

1996

« Production d'énergie nucléaire et traitement des déchets : des filières d'aujourd'hui aux solutions innovantes »

Maubuisson, 15^{ème} session, 9-14 septembre 1996

Table des matières détaillée

Avant-propos Y. Abgrall	p. i
I - Introduction à l'Ecole Joliot-Curie 1996 J.-P. Dufour	p. 1
II - Fission nucléaire de basse énergie et réactions induites par neutrons G. Barreau	p. 13
III - Bases de neutronique : coefficients de réactivité dans les réacteurs nucléaires P. Reuss	p. 67
IV - Spallation réactions J. Cugnon	p. 97
V - Physique des cibles de spallation : les codes et leur validation J. Fréhaut	p. 115
VI - Dégâts d'irradiation dans les solides Y. Quéré	p. 153
VII - Principes et normes de radioprotection H. Métivier	p. 156
VIII - Les différents aspects du cycle actuel, de l'extraction de l'uranium au stockage des déchets J.-P. Schapira	p. 179
IX - Réacteurs nucléaires : le point de vue du physicien J.-M. Cavedon	p. 212
X - Les solutions étudiées : améliorations et options innovantes : les améliorations du cycle actuel M. Delpech	p. 227
XI - Principes de base et caractéristiques particulières des systèmes sous-critiques assistés par accélérateur J.-M. Loiseaux	p. 239
XII - Accélérateurs de haute intensité J.-M. Lagniel	p. 270
XIII - Transmutation des déchets : les perspectives S. Leray	p. 289
XIV - La séparation isotopique J.-M. Cavedon	p. 326
Séminaires Jeunes	p. 34

ECOLE INTERNATIONALE JOLIOT-CURIE

DE PHYSIQUE NUCLEAIRE

Maubuisson, France

15^{ème} session, 9-14 Septembre 1996

L'Institut National de Physique Nucléaire et de Physique des Particules du CNRS

en collaboration avec

La Direction des Sciences de la Matière du CEA

et le Fonds National de la Recherche Scientifique de Belgique

**PRODUCTION D'ENERGIE NUCLEAIRE ET
TRAITEMENT DES DECHETS**

des filières d'aujourd'hui aux solutions innovantes

J.-P. DUFOUR

G. BARREAU

P. REUSS

J. CUGNON

J. FREHAUT

Y. QUERE

H. METIVIER

J.-P. SCHAPIRA

J.-M. CAVEDON

M. DELPECH

J.-M. LOISEAUX

J.-M. LAGNIEL

S. LERAY

Conseil Scientifique

Y. ABGRALL (CEN Bordeaux), N. ALAMANOS (CEA Saclay), J.-P. BLAIZOT (CEA Saclay), P. BONCHE (CEA Saclay), Ph. CHOMAZ (GANIL Caen), J. CUGNON (U Liège), G. DUCHÈNE (CRN Strasbourg), J.-P. DUFOUR (CEN Bordeaux), Y. EL MASRI (UC Louvain), H. FONVIEILLE (LPC Clermont), R. FRASCARIA (IPN Orsay), J. GOSSET (CEA Saclay), D. GOUTTE (CEA Bruyères-le-Châtel), J.-Y. GROSSIORD (IPN Lyon), P.-H. HEENEN (UL Bruxelles), C. LE BRUN (LPC Caen), C. LECLERCQ-WILLAIN (UL Bruxelles), A. LEFEBVRE (CSNSM Orsay), M. LEWITOWICZ (GANIL Caen), J.-F. MATHIOT (LPC Clermont), J. MEYER (IPN Lyon), Ch. MIEHE (CRN Strasbourg), D. SANTOS (ISN Grenoble), F. SEBILLE (SUBATECH Nantes), C. SEMAY (U Mons), B. SILVESTRE-BRAC (ISN Grenoble), E. SURAUD (LPQ Toulouse).

Comité d'Organisation

Y. ABGRALL, P. BONCHE, J.-P. DUFOUR, D. GOUTTE, P.-H. HEENEN.

Cours enseignés aux précédentes sessions de l'Ecole Joliot-Curie de Physique Nucléaire :

1982 : COLLISIONS NUCLEAIRES AUX ENERGIES VOISINES DE L'ENERGIE DE FERMI
H. Flocard, J. Hüfner, J. Richert, B. Tamain, R. Babinet, J. Cugnon, D. Guerreau, C. Guet,
J. Menet, H. Pirner

1983 : STRUCTURE NUCLEAIRE AUX FRONTIERES DE LA STABILITE
J.-P. Blaizot, M. Epherre, C. Mahaux, M. Meyer, H. Sergolle, Z. Szymanski, S. Della Negra,
J. Delorme, S. Gales, D. Gogny, B. Haas, J.-P. Vivien.

1984 : MESONS, BARYONS, QUARKS ET PHYSIQUE NUCLEAIRE
B. Desplanques, B. Frois, U. Gastaldi, E. Pedrazzi, G. Ripka, J. Arvieux, J.-J. Aubert,
M. Ericson, G. London, B. Vignon.

1985 : LA MATIERE NUCLEAIRE DANS TOUS SES ETATS
P. Bonche, J. Cugnon, R. Babinet, J.-F. Mathiot, L. Van Hove, M. Buenerd, J. Galin, M.-C. Lemaire,
J. Meyer.

1986 : SYMETRIES ET PHYSIQUE NUCLEAIRE
P. Depommier, S. Gales, Nguyen Van Giai, P. Guichon, P. Schuck, D. Goutte, M. Vergnes,
M. Avenier, P. Hubert, G. Girardi, B. Loiseau.

1987 : AU-DELA DU CHAMP MOYEN
K. Dietrich, G.-J. Wagner, C. Grégoire, X. Campi, B. Silvestre-Brac, S. Platchkov, B. Mayer,
Y. Abgrall, O. Bohigas, P. Grangé, C. Signarbieux.

1988 : a/ INSTRUMENTATION EN PHYSIQUE NUCLEAIRE ET PHYSIQUE DES PARTICULES
F. Sauli, V. Comparat, M. Suffert, J. Séguinot, P. Farthouat, R. Wigmans, B. Equer, D. L'Hôte,
L. Fayard, H. Videau, J.-M. Durand, A. Boudart, H. Fanet, F. Bourgeois, D. Perret-Gallix,
L. Gonzalez-Mestres.

b/ LA RECHERCHE DU PLASMA DE QUARKS ET DE GLUONS : LES COLLISIONS
D'IONS LOURDS ULTRARELATIVISTES - ANALYSE MULTIDIMENSIONNELLE
J.-P. Blaizot, J.-N. Capdevielle, A. Capella, J. Gosset, G. Landaud, P. Lutz, A. Morel, B. Pire,
D. Vautherin.

1989 : NUCLEONS DANS LE NOYAU, MAIS ENCORE...
P. Grangé, J.-F. Mathiot, M. Ericson, H.-J. Pirner, M. Roy-Stephan, J. Delorme, R. Frascaria,
S. Gales, A. Magnon, M. Arnould.

1990 : LA PHYSIQUE NUCLEAIRE DU LABORATOIRE AUX ETOILES
N. Prantzos, M. Arnould, E. Schatzman, J.-P. Thibaud, P. Descouvemont, J.-P. Dufour,
P. Quentin, E. Suraud, R. Schaeffer.

1991 : LES NOYAUX EN PLEINES FORMES
Z. Szymanski, P.-h. Heenen, J.-F. Berger, K. Heyde, B. Haas, R. Janssens, D. Paya, D. Gogny,
G. Huber, S. Bjørnholm, M. Brack.

1992 : MATIERE HADRONIQUE OU...AUJOURD'HUI ET DEMAIN AVEC LES ELECTRONS
V. Breton, H. Fonvieille, B. Frois, R. Van de Vyver, G. Smadja, J. Martino, J.-P. Blaizot,
J.-F. Mathiot, P. Vernin, X. Artru, J. Remillieux

1993 : LES NOYAUX EN 1993 : *une nouvelle façon d'exister*

J. Meyer, G. Sletten, S. Gales, A. Mueller, D. Vautherin, J.-P. Dufour, P. Armbruster,
B. Tamain, P. Leleux, M. Belakhovsky.

1994 : PHYSIQUE NUCLEAIRE INSTRUMENTALE : *des éléments pour un bon choix*

Ch. Bourgeois, J.-M. Brom, Y. El Masri, W. Mittig, D. L'Hôte, J.-P. Didelez, P. Desesquelles,
F. Hannachi, G. Fournier, M. Maire, L. Valentin.

1995 : NOYAUX EN COLLISIONS

R. Balian, B. Remaud, E. Suraud, D. Durand, A. Gobbi, J. Cugnon, O. Drapier, J. Govaerts,
R. Prieels.

Ces cours peuvent être consultés dans les bibliothèques des laboratoires de l'IN2P3, du CEA, du FNRS et au CERN. Les cours 1989, 1994, 1995 encore disponibles peuvent être obtenus sur demande auprès de :

Josette GARRABOS

CEN Bordeaux

BP 120

33175 GRADIGNAN Cedex - France

☎ 05 56 89 18 00

Les cours de la session 1988(a) sont en vente aux Editions de Physique, Paris

TABLE DES MATIERES

AVANT-PROPOS

Y. ABGRALL

INTRODUCTION A L'ECOLE JOLIOT-CURIE 1996..... 1

J.-P. DUFOUR

FISSION NUCLEAIRE DE BASSE ENERGIE ET REACTIONS INDUITES PAR NEUTRONS

G. BARREAU

La Fission nucléaire.....	13
A. Approche macroscopique de la fission.....	14
A-1 Le modèle de la goutte liquide.....	14
A-2 Confrontation avec l'expérience.....	18
B. Approche microscopique de la fission.....	22
B-1 Naissance et triomphe de la double barrière de fission.....	22
B-2 La méthode de Strutinski.....	25
B-3 Surface d'énergie potentielle calculée par la méthode de Strutinski.....	28
B-4 Calculs Hartree-Fock et double barrière de fission.....	29
C. La double barrière de fission et l'expérience.....	32
C-1 Conséquences expérimentales.....	32
C-2 Déterminations expérimentales des barrières de fission.....	36
D. Après le point de scission.....	42
E. Réactions nucléaires induites par neutrons.....	49
E-1 Allure des sections efficaces dans le domaine des résonances.....	49
E-2 Allure des sections efficaces dans le domaine des neutrons thermiques.....	52
E-3 Domaine des résonances non résolues : le continuum.....	54
E-4 Les caractéristiques de la fission induite par neutrons.....	57
E-5 Propriétés caractéristiques des niveaux de résonances.....	60
Bibliographie.....	64

BASES DE NEUTRONIQUE : coefficients de réactivité dans les réacteurs nucléaires

P. REUSS

1. Réaction en chaîne de fissions.....	67
2. Notion de réactivité.....	68
3. Analyse du bilan neutronique.....	71
4. Eléments de conception des réacteurs.....	77
5. Coefficients de réactivité.....	79
6. Coefficients de température.....	80
1. Cas des réacteurs à neutrons à eau sous pression.....	81
2. Cas des réacteurs à neutrons rapides.....	85
7. Typologie générale des effets sur la réactivité.....	86
8. Variation des coefficients de réactivité avec l'état du système.....	87
1. Problématique de l'utilisation du bore dans les REP.....	87
2. Problématique du recyclage du plutonium dans les REP.....	89
3. Problématique de la consommation accrue du plutonium.....	93
9. Conclusions.....	95
Bibliographie.....	96

SPALLATION REACTIONS

J. CUGNON

1. Introduction	97
2. Experimental survey	98
1. Light particle emission	98
2. Residues	101
3. Theoretical background	102
1. The INC + evaporation model	102
2. Alternative approaches	110
4. Conclusions	111
References	112

PHYSIQUE DES CIBLES DE SPALLATION : *les codes et leur validation*

J. FREHAUT

I. Introduction	115
II. Le système de codes TIERCE	117
1. Généralités	117
2. Le code MCNP	119
3. Le code HETC	119
4. Désexcitation gamma des noyaux résiduels	131
5. Décroissance des noyaux résiduels	131
6. Evaluation des dommages d'irradiation	132
III. Développements en cours et perspectives	133
1. Données de base	133
2. Cascade intranucléaire	133
3. Les noyaux légers après la cascade	134
4. Evaporation et fission	135
5. Sections efficaces de réaction inverse	136
6. Cascade internucléaire et transport	136
IV. Validation des codes	137
1. Introduction	137
2. Base de données expérimentales	139
V. Programme expérimental	141
1. Mesures différentielles en angle et en énergie de production de neutrons	141
2. Mesures du nombre de neutrons par proton	145
3. Résiduels de spallation	146
VI. Conclusion	148
Références	150

DEGATS D'IRRADIATION DANS LES SOLIDES

Y. QUERE

Plan de cours	153
---------------------	-----

PRINCIPES ET NORMES DE RADIOPROTECTION

H. METIVIER

Introduction	156
1. Origine des règles de la radioprotection	156
1. Radioactivité et exposition, quelques définitions	156
2. La Commission Internationale de Protection radiologique	158
2. Enoncé des principes	161
1. Nature des effets	161
2. Le cadre conceptuel de la protection radiologique	162
3. Définition des quantités utilisées en protection	165
1. Dose absorbée	165

2. Dose équivalente.....	165
3. Dose efficace.....	166
4. Grandeurs dosimétriques complémentaires.....	168
5. Limites secondaires.....	170
4. Les nouvelles recommandations.....	171
1. Les nouvelles bases scientifiques.....	171
2. Les nouvelles normes.....	172
Conclusion.....	172
Bibliographie.....	173

LES DIFFERENTS ASPECTS DU CYCLE ACTUEL, DE L'EXTRACTION DE L'URANIUM AU STOCKAGE DES DECHETS

J.-P. SCHAPIRA

1. Introduction.....	179
2. Production et gestion de matières nucléaires et des déchets en amont du réacteur.....	181
1. Généralités et risques liés aux déchets.....	181
2. La production de l'uranium naturel au niveau de la mine.....	184
3. L'enrichissement isotopique de l'uranium.....	186
3. Production et gestion de matières nucléaires et des déchets en aval du réacteur.....	188
1. Les déchets et matières nucléaires produits par les réacteurs.....	188
2. Les options de gestion des combustibles usés.....	191
3. Le retraitement des combustibles usés.....	193
4. Le recyclage du plutonium.....	195
5. Le stockage géologique en profondeur des déchets B et C.....	198
6. La loi des déchets du 30 décembre 1991.....	201
4. Données concernant la production des déchets.....	202
1. Le cas de la France.....	202
2. La situation à l'étranger.....	205
Références.....	207
Annexes.....	208

REACTEURS NUCLEAIRES : *le point de vue du physicien*

J.-M. CAVEDON

1. Introduction.....	212
2. La réaction de fission et les réactions en chaîne.....	212
3. Principe des réacteurs nucléaires.....	215
4. La formule des quatre facteurs.....	216
5. Flux neutronique et modérateur.....	217
6. Stabilité et pilotage d'un réacteur.....	218
7. Les différents filières de réacteurs.....	221

LES SOLUTIONS ETUDIEES : *améliorations et options innovantes - les améliorations du cycle actuel*

M. DELPECH

1. Introduction.....	227
2. Objectifs de l'amélioration du cycle.....	228
3. Critères d'évaluation.....	229
4. Etape de mise en œuvre.....	230
5. Les solutions.....	232
6. Les solutions : 3 axes.....	235
7. Les outils expérimentaux.....	235
Conclusion.....	235

PRINCIPES DE BASE ET CARACTERISTIQUES PARTICULIERES DES SYSTEMES SOUS-CRITIQUES ASSISTES PAR ACCELERATEUR

J.-M. LOISEAUX

Introduction	239
1. Principes généraux des réacteurs sous-critiques	241
A-1. Le réacteur sous-critique, la multiplication, l'énergie dégagée par neutron source	241
B-1. La source de neutrons	242
C-1. Contrôle de la puissance réacteur	243
D-1. Aspects économiques liés à l'utilisation de l'accélérateur	244
E-1. Eléments du cahier des charges de l'ensemble réacteur-accélérateur	245
2. Origine physique des paramètres du réacteur sous-critique	246
A-2. Le paramètre k	246
B-2. Evolution de paramètre k avec le taux de combustion (burn-up)	247
C-2. Distribution spatiale de flux et de la puissance dans un réacteur de taille finie avec une source ponctuelle de neutrons	248
D-2. Réponse en temps d'un réacteur sous-critique	252
E-2. Economie comparée des neutrons dans un réacteur critique et un réacteur sous-critique	256
3. Exemple de conception d'un réacteur sous-critique assisté par accélérateur	258
A-3. Choix des paramètres	258
B-3. Choix de la configuration, réflecteur, cible, combustible, fluide caloporteur	258
C-3. Choix de sécurité	259
D-3. Choix d'un cycle du combustible	260
E-3. Conclusion	265
4. Recherches, développements actuels à court terme, perspectives à moyen terme	266
A-4. Les développements actuels concernant la neutronique	266
B-4. Test de configurations	267
C-4. Vers une «facilité européenne»	267
Conclusion	268

ACCELERATEURS DE HAUTE INTENSITE

J.-M. LAGNIEL

I. Applications des accélérateurs haute intensité	270
II. Machines en fonctionnement et projets	271
1. Le cyclotron du PSI	271
2. Le linac du LAMPF	271
3. Quels choix pour les nouveaux projets ?	272
4. Le projet APT	272
5. Projets étudiés par CEA/DSM/GECA/LNS	273
III. Les principaux problèmes à résoudre	275
IV. Maîtrise des pertes de faisceau	276
1. Niveau tolérable des pertes	276
2. Maîtrise du «halo»	277
3. Etudes théoriques	277
4. Etude expérimentale, l'expérience FODO	277
V. Le projet IPHI : injecteur de protons de haute intensité	278
1. La source et la ligne de transport basse énergie	279
2. Le RFQ	281
3. Le DTL	283
4. Les systèmes HF du RFQ et du DTL	285
5. La ligne diagnostics	285
VI. Conclusion	286
Références	287

TRANSMUTATION DES DECHETS : *les perspectives*

S. LERAY

1. Introduction	289
1. Les déchets nucléaires : quelques rappels	289
2. Transmutation : généralités	291
2. Transmutation par réactions photonucléaires	295
1. Principe	295
2. Potentiel de transmutation	296
3. Rendement de transmutation	297
4. Considérations énergétiques	298
5. Conclusion	299
3. Transmutation par spallation	299
1. Spallation directe	299
2. Spallation indirecte	302
3. Conclusion	303
4. Transmutation à l'aide de la fusion catalysée par muons	303
1. Principe	303
2. Exemple d'application	305
3. Comparaison avec la spallation	306
4. Conclusion	307
5. Transmutation dans des hybrides fusion-fission	307
1. Principe	307
2. Les réactions mises en jeu	307
3. Les paramètres importants	308
4. Les différentes propositions pour la transmutation de déchets	311
5. Conclusion	311
6. Transmutation dans des hybrides spallation-fission	312
1. Principe	312
2. Les choix techniques	313
3. Projets américains	316
4. Le Japon : programme OMEGA	318
5. Les études en France	319
6. Conclusion	319
7. Bilan et perspectives	321
Références	322

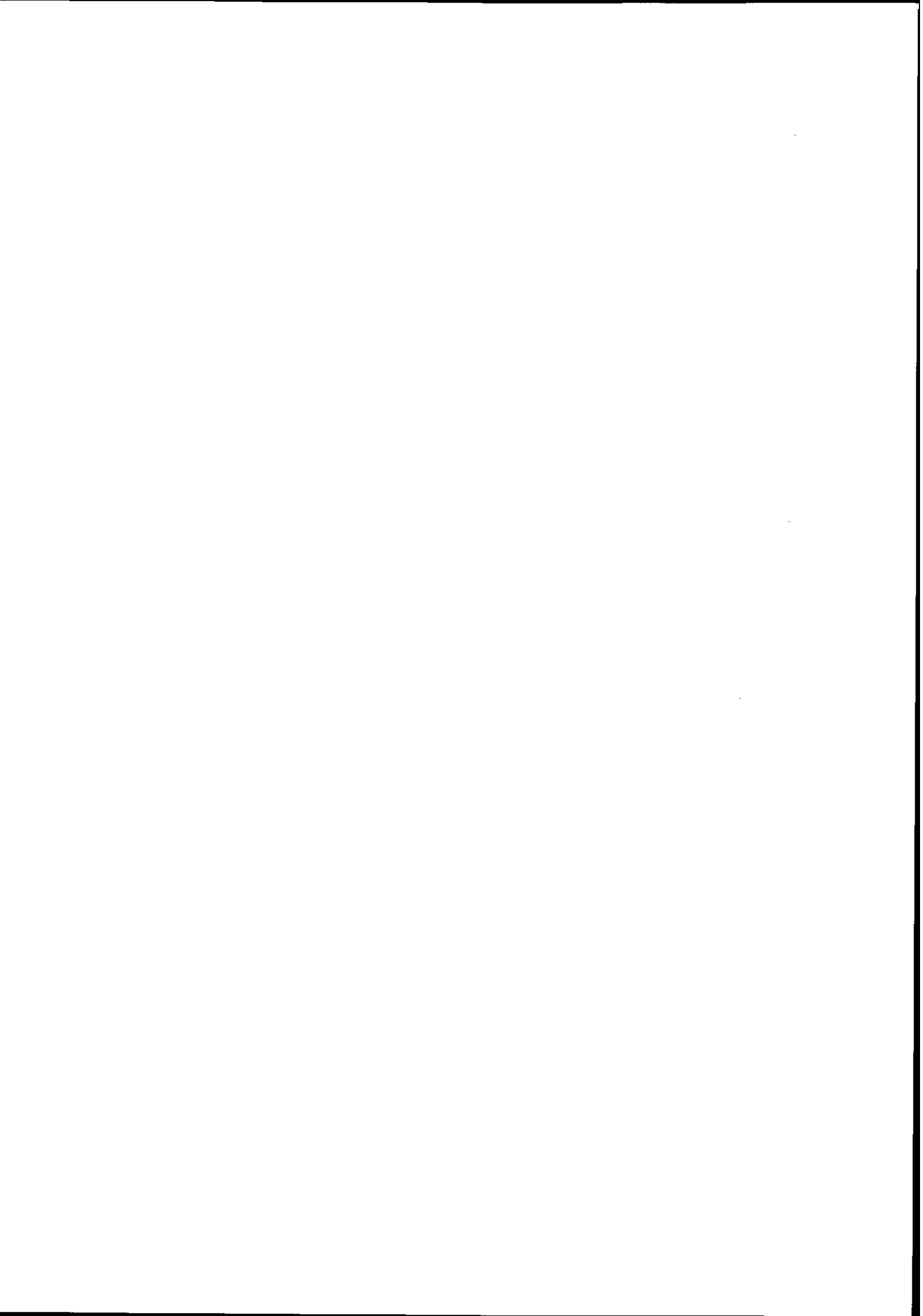
LA SEPARATION ISOTOPIQUE

J.-M. CAVEDON

1. Introduction	326
2. L'enrichissement de l'uranium	326
3. Définitions	327
4. L'ultracentrifugation	328
5. SILVA	330
6. La résonance cyclotronique ionique (RCI)	336
7. La séparation isotopique et le cycle du combustible nucléaire	337
Annexe	345

SEMINAIRES JEUNES	347
-------------------------	-----

LISTE DES PARTICIPANTS	351
------------------------------	-----



Avant-propos

La gestion des déchets hautement radioactifs est sans doute le principal problème que la production d'énergie nucléaire ait à faire face. Peut-on se contenter de les enfouir profondément ? Faut-il les incinérer, et comment ?

Plus généralement, alors que l'ensemble du cycle électronucléaire actuellement exploité se voit remis en cause, quelles améliorations peut-on y apporter à court ou moyen terme ? parallèlement, quelles perspectives peut-on attendre des systèmes sous-critiques assistés par accélérateur proposés récemment ? Quel est dans ce domaine l'apport novateur de la recherche fondamentale et de la communauté des physiciens nucléaires ?

C'est précisément à toutes ces questions qu'était consacrée l'Ecole Joliot-Curie 1996 qui s'est tenue à Maubuisson du 9 au 14 Septembre.

Cette Ecole, la quinzième du nom, et dont trouvera ici les comptes rendus, était divisée en trois parties,

1) la physique de base (voire un brin de biologie) indispensable à la compréhension des phénomènes mis en jeu.

2) une description des différents aspects du cycle actuel et des différents types de réacteurs, mettant en évidence les problèmes posés et les contraintes technologiques.

3) les solutions étudiées, qu'il s'agisse des améliorations des filières actuelles ou d'options plus innovantes comme les systèmes hybrides associant un accélérateur à un milieu amplificateur de neutrons, le recours au cycle thorium-uranium ou les perspectives nouvelles dans la transmutation des déchets à vie longue.

Cette Ecole nous aura permis de prendre la mesure de l'enthousiasme avec lequel la communauté de physiciens nucléaires fundamentalistes s'est investie dans un domaine de recherche qu'elle avait, depuis déjà bien longtemps, quelque peu déserté. Le nombre de doctorants engagés récemment dans cette discipline est, sous cet aspect, fort éloquent comme l'atteste la douzaine de "séminaires jeunes" consacrés à ce sujet (on en trouvera les résumés à la fin de ce recueil).

Nos remerciements iront tout d'abord à l'équipe des professeurs pour la qualité scientifique et pédagogique de leurs cours. Pourquoi n'iraient-ils pas également à l'ensemble des participants pour avoir su rendre cette session très vivante et enrichissante ? A noter que, cette année encore, avec 85 participants, nous avons saturé nos possibilités d'accueil !

Le succès de l'Ecole doit beaucoup à la compétence de Mlles J. Garrabos et P. Chambon du CEN Bordeaux-Gradignan et de Mme M. Furgolle du siège de l'IN2P3. Nous sommes heureux de les en remercier.

L'Université Bordeaux I a assuré l'édition des cours de l'Ecole 1996. Que la Présidence et les services concernés trouvent ici l'expression de notre gratitude.

Cette année encore, le soutien de l'IN2P3, de la DSM du CEA et du FNRS belge ne nous a pas fait défaut. Nous sommes redevables à leurs responsables de contribuer ainsi au développement de l'Ecole Internationale Joliot-Curie de Physique Nucléaire.

Y. ABGRALL

Pour le Comité d'Organisation

Introduction à l'École Joliot-Curie 1996

Jean-Pierre DUFOUR

CENBG, Le Haut Vigneau, BP 120
F-33175 Gradignan cedex

Le fait que la recherche fondamentale féconde à terme l'activité de production industrielle est une réalité, maintenant largement admise, que le sujet de cette école Joliot-Curie, l'énergie nucléaire, illustre de façon exemplaire.

Des découvertes fondamentales, dont celle de la radioactivité il y a cent ans, à la construction des premiers réacteurs utilisés commercialement il s'est passé plusieurs dizaines d'années pendant lesquelles l'implication de la recherche est passée progressivement de la percée conceptuelle à une exploration plus systématique des propriétés nucléaires puis à la métrologie. Cette première étape de recherche où la curiosité naturelle des scientifiques a "par hasard" ouvert la voie de l'énergie nucléaire s'est terminée dans les années 1970. Il a pu sembler alors que les seuls progrès dans le domaine seraient désormais d'ordre essentiellement technologiques.

Puis au cours des années 90, presque comme une surprise, on a pu voir le retour au premier plan de la recherche fondamentale à la suite d'une demande sociale concernant les déchets et la sécurité de l'industrie nucléaire. Dans cette réactualisation, la nouveauté est en grande partie la motivation de la recherche qui ne répond plus uniquement à des préoccupations d'ordre scientifique mais aussi aux besoins définis par la société. En France par exemple, la loi de Décembre 1991, (donnée ici en annexe) définit une période de quinze ans pendant laquelle la recherche publique doit apporter de nouveaux éléments de réponse concernant les possibilités de stockage, réversible ou non, ou de transmutation de déchets radioactifs. Ailleurs dans le monde des questions semblables et d'autres comme l'élimination des stocks de plutonium militaire ou l'amélioration de la sécurité des installations nucléaires sont également à l'ordre du jour.

Les recherches en cours peuvent être classées, au moins au premier ordre, selon trois thèmes principaux :

- Les améliorations du cycle actuel. Il s'agit notamment des études sur les recyclages de combustibles pour brûler les transuraniens en réacteur et parallèlement des travaux sur le conditionnement et le stockage géologique des déchets nucléaires ultimes.
- Les réacteurs dits "hybrides". En utilisant un accélérateur de particules (typiquement des protons d'énergie supérieure à 500 MeV) il est possible par réactions nucléaires dites de spallation de créer des neutrons qui sont injectés dans un réacteur sous-critique. Les buts poursuivis sont multiples : l'incinération des transuraniens, la transmutation des produits de fission et une meilleure sécurité par diminution du risque de fusion du cœur.

- Le cycle au Thorium dont la mise en oeuvre est facilitée dans un système hybride par l'apport supplémentaire des neutrons de spallation. Les avantages mis en avant sont essentiellement une production très faible des déchets nucléaires appelés actinides mineurs, l'importance des réserves mondiales de Thorium, avantages qui viennent s'ajouter à ceux déjà mentionnés pour tout système hybride.

Le but de cette introduction à l'école Joliot-Curie est essentiellement de fournir un repérage général. Celui-ci doit aller au-delà de l'inventaire à grands traits fait ci-dessus et inclure la dimension temporelle, tant il est vrai que sur des sujets comme la sécurité, la gestion des déchets ou les effets des faibles radioactivités, les connaissances et leur perception dans la société ont fortement évolué lors des cinquante dernières années. Dans cette perspective historique le tableau 1 récapitule les dates marquantes de l'industrie nucléaire : de la découverte initiale de la fission en 1939 aux années 1991-93 qui marquent l'essor des trois thèmes mentionnés précédemment.

Tableau 1 : Perspective historique sommaire par dates marquantes

1939	-	Découverte de la fission
1942	-	Première pile Chicago
1945	-	France : Création du CEA
1948	-	France ZOE (Zéro énergie, Oxyde d'Uranium, Eau lourde)
1951	-	EBR1 (IDAHO) 300 KW \Rightarrow électricité
1954	-	AEC "Five reactor Demonstration Program"
1956	-	France : G1 - Marcoule : Graphite-Gaz
1963	-	Percée économique (Jersey-Central Power & Light)
1969	-	France : EDF opte pour la filière à eau pressurisée avec la perspective d'un parc de surgénérateurs
1972	-	Convention de Londres : interdiction du rejet de déchets en mer (70 pays)
1977	-	France : Mise en marche de Fessenheim
1979	-	Accident de Three Mile Island (TMI) - USA
1979	-	France : Création de l'ANDRA (devient un établissement public en 1992)
1986	-	Accident de Tchernobyl
1991	-	France : Loi relative aux recherches sur les déchets
1992	-	Convention de Paris : zéro déchet en mer (15 pays d'Europe)
1993	-	France : Inventaire de l'ANDRA Projet EPR : réacteur plus sûr pour le futur

Il est important de réaliser que peu après la fin de la deuxième guerre mondiale, les connaissances fondamentales étaient suffisamment avancées pour que la difficulté soit bien plus d'avoir à trier parmi une profusion de solutions que d'en faire progresser une en particulier. La notion de filière s'est ainsi dégagée très rapidement : un réacteur doit comporter un combustible nucléaire, un modérateur et un fluide caloporteur. Pour chacune des trois composantes d'une filière les quelques choix possibles ont été identifiés très tôt. Le combustible peut être de l'uranium naturel ou enrichi ou les isotopes fissiles, ^{239}Pu et ^{233}Th générés par capture de neutrons sur ^{238}U ou ^{232}Th ce qu'on appelle la surgénération. Le premier réacteur ayant permis de produire de l'électricité (EBR1 en 1951) était d'ailleurs de ce type. Le modérateur est destiné à ralentir les neutrons issus de la fission (1 à 2 MeV). Ce processus est surtout intéressant avec ^{235}U qui a une section efficace de fission qui croît pour les faibles énergies de neutrons (< 1 eV). Ce modérateur doit être peu absorbant pour les neutrons et léger pour ralentir efficacement les neutrons par collisions successives. Les matériaux possibles sont H_2O , D_2O (eau lourde), Be, BeO et C (graphite). L'eau lourde en particulier absorbe très peu les neutrons.

Pour constituer le fluide caloporteur, qui doit également être peu absorbant pour les neutrons, on retrouve les éléments légers constituant des gaz ou des liquides (H_2O , D_2O , CO_2 , air, He) ou des éléments plus lourds à température assez élevée pour les rendre liquides (Na, Na-K, Pb, Bi).

Les solutions effectivement testées n'ont pas été aussi nombreuses que les possibilités de combinaisons mathématiques, mais à travers le monde les années 50 ont vu un foisonnement d'explorations différentes. On peut citer en particulier le programme lancé en 1954 aux Etats-Unis sur cinq types de réacteurs différents (Tableau 2). En France, la première pile, ZOE (pour Zéro énergie, Oxyde d'uranium, Eau lourde) a fonctionné en 1948 et fut suivie des réacteurs de Marcoule (G1, 2, 3 à partir de 1956) qui appartenaient à la filière graphite-gaz. Les principales filières utilisées dans les réacteurs sont données dans le tableau 3.

Tableau 2 : Programme des cinq réacteurs de démonstration aux USA (1954)

Réacteur	Contractant	Lieu
Experimental Boiling Water Reactor (EBWR)	Argonne National Laboratory	Arco, ID
Experimental Breeder Reactor No. 2 (EBR-2)	Argonne National Laboratory	Argonne, IL
Homogeneous Reactor Experiment No. 2 (HRE-2)	Oak Ridge National Laboratory	Oak Ridge, TN
Pressurized Water Reactor (PWR)	Duquesne Light Co.	Shippingport, PA
Sodium Reactor Experiment (SRE)	Atomics International	Santa Susana, CA

Tableau 3: Principales filières utilisées dans les réacteurs nucléaires

Filière	Combustible	Modérateur	Fluide caloporteur
Graphite-Gaz (UNGG)	U naturel	Graphite	Gaz carbonique ou hélium
Eau lourde	U naturel ou enrichi	Eau lourde	Eau lourde Eau ordinaire Liquide organique
Eau sous pression (REP)	U enrichi	Eau ordinaire	Eau ordinaire
Surgénérateur	U enrichi Plutonium	Néant	Sodium

La véritable percée économique eut lieu au cours des années 60 aux Etats-Unis et consacra la filière dite à eau pressurisée (REP en français, PWR en anglais). En 1969, sur décision prise au plus haut niveau de l'Etat, la France fit le choix d'utiliser la même filière et abandonna celle au graphite-gaz. Dans le même temps l'enthousiasme pour cette nouvelle énergie fut tel que l'utilisation de l'isotope ^{235}U peu abondant (0,7% de l'uranium naturel) apparut essentiellement comme une première étape vers les filières surgénératrices qui consomment l'isotope ^{238}U . Dans ce scénario la production de ^{239}Pu à partir de ^{238}U peut à terme se faire sans plus avoir recours à ^{235}U . En France les décisions de construire les réacteurs Phénix et Superphénix ainsi que l'usine de séparation du Pu à partir du combustible usé ont découlé de cette perspective.

Les années 1970 ont vu successivement l'énergie nucléaire supplanter d'autres voies de production d'électricité dans un contexte de tension internationale sur le pétrole puis subir un choc majeur en 1979 avec l'accident de Three Mile Island (TMI). La fusion du coeur de ce réacteur ne causa que des dégâts matériels mais marqua très fortement l'opinion publique américaine qui se défia dès lors beaucoup plus fortement des estimations officielles sur les risques, comme le fameux rapport Rasmussen. Par ailleurs de nouvelles contraintes juridiques consécutives à cet accident contribuèrent à renchérir le coût du nucléaire aux USA.

Avec la mise en oeuvre du nucléaire à grande échelle il était naturel que la question des déchets nucléaires se pose progressivement de façon plus significative. La convention de Londres signée en 1972 permit d'interdire le rejet en mer des déchets nucléaires solides les plus actifs. En France l'Agence Nationale pour les Déchets Radioactifs (ANDRA) fut créée en 1979 comme une structure interne au CEA, puis administrativement détachée en 1992 pour devenir un établissement public.

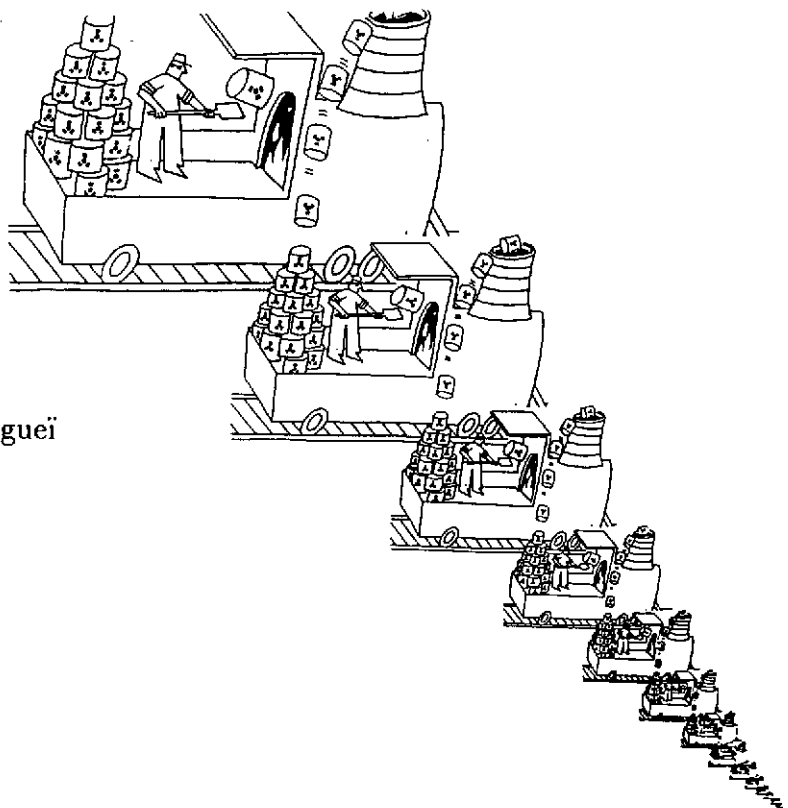
Par ailleurs le climat général sur le marché de l'énergie fut beaucoup moins favorable au nucléaire à partir des années 80. D'une part la consommation d'énergie des pays développés

nucléaire à partir des années 80. D'une part la consommation d'énergie des pays développés avait cessé de croître et d'autre part le prix du pétrole, après l'envolée des années 70, revint à des cours très bas.

C'est dans ce contexte que survint l'accident de Tchernobyl en 1986. Concrétisant l'accident maximum prévisible, il eut en Europe sur le grand public un effet globalement semblable à celui de TMI aux Etats-Unis. En France, paradoxalement, les débats concernant les conséquences des pollutions radioactives de Tchernobyl amenèrent l'opinion publique à s'inquiéter davantage des déchets nucléaires que d'un éventuel accident. On peut relier ce fait à un changement de stratégie de communication de l'exploitant (EDF) et des autorités de sûreté et de contrôle en faveur de la transparence dans l'information. Citons par exemple l'accès aux mesures des balises radiologiques par le minitel 3614 Magnuc et la création des Commissions Locales d'Information (CLI) autour de chaque centrale.

Après environ vingt ans de vie économique la situation de l'énergie nucléaire est devenue très variable selon les pays. Au-delà de la variété des filières, l'attitude sur le traitement du combustible irradié (stockage tel quel comme aux Etats-Unis ou séparation des produits de fission, du plutonium et des actinides mineurs comme en France) et l'ancrage d'images positives ou négatives dans le public ont abouti à un paysage mondial extrêmement hétérogène.

Dans ce panorama, la France se retrouve, par son choix stratégique d'explorer la voie surgénératrice, en situation d'être probablement le pays le plus à même d'explorer les différentes alternatives dans la gestion des déchets nucléaires. C'est ainsi que l'on peut comprendre les décisions successives des années 1991-1993 : Loi sur les recherches de 1991 (Annexe 1), Convention de Paris signée en 1992 par 15 pays d'Europe sur l'interdiction totale de l'immersion de déchets (solides) en mer, conversion de Superphénix en outil de recherche sur l'élimination des déchets (Annexe 2, article du Monde 30/12/92) et l'inventaire national des déchets radioactifs réalisé par l'ANDRA en 1993.



Détournement du dessin de Sergueï
(voir article du Monde
en Annexe 2)

Dans la même période le souci d'accroître la sécurité des réacteurs est également présent avec le projet EPR (European Pressurized water Reactor) mené par la France et l'Allemagne.

Cette petite perspective historique s'arrête au moment où Charles Bowman aux États-Unis et Carlo Rubbia en Europe proposent d'utiliser les accélérateurs de particules comme compléments versatiles de réacteurs du futur pouvant au choix : produire de l'énergie avec beaucoup moins de déchets (cycle au Thorium), brûler du plutonium et les actinides mineurs, transmuter des produits de fission. Les copies des premières pages des brevets pris par ces deux scientifiques sont donnés dans l'annexe 4.

La présentation concentrée des événements successifs qui ont marqué l'évolution de l'énergie nucléaire montre bien que les "solutions" qui seront finalement retenues tiendront à l'intérieur d'un triangle formé par les limites économiques, les limites sociales et les limites de la physique. Sans oublier donc ces contraintes toujours sous-jacentes, c'est bien sûr à l'exploration des possibilités d'innovations scientifiques que cette école est consacrée.

Pour clore cette introduction voici quelques notions importantes souvent utilisées dans les cours de l'école.

- **Incinération de déchets nucléaires** : ce terme recouvre l'élimination des éléments transuraniens ($Z > 92$) en les faisant fissionner. Certains isotopes ayant une faible section efficace de fission, il est nécessaire de leur faire capturer un neutron pour pouvoir les éliminer ensuite par fission. L'incinération est un processus qui globalement fournit de l'énergie.
- **Transmutation** : bien que désignant tout processus de transformation d'un élément chimique en un autre, ce terme sera dans le cadre des déchets souvent utilisé de manière restrictive pour l'élimination des produits de fission radiotoxiques. Le moyen le plus économique pour transmuter est la séquence capture de neutron puis décroissance bêta du noyau de masse $A+1$. La transmutation est ainsi, à la différence de l'incinération, consommatrice d'énergie.
- **Spallation** : ce terme désigne les réactions nucléaires dans lesquelles un proton de haute énergie ($E \geq \text{GeV}$) casse un noyau cible. Plus qu'un mécanisme bien identifié la spallation a d'abord été un terme empirique lié à l'observation expérimentale de résidus de réaction correspondant à des pertes de masse allant de quelques nucléons à plusieurs dizaines de nucléons par rapport au noyau cible. Actuellement la spallation est comprise comme le résultat de deux étapes successives : i) une phase d'interaction directe, une cascade intranucléaire de collisions nucléons-nucléons lors de laquelle plusieurs nucléons sont éjectés et le reste du noyau chauffé, ii) une phase d'évaporation de particules, le refroidissement du noyau, lors de laquelle un grand nombre de neutrons peuvent être émis.

Les neutrons sont émis de façon préférentielle dans l'évaporation car ils n'ont pas de barrière coulombienne. Il peut ainsi y avoir plusieurs dizaines de neutrons émis pour seulement quelques particules chargées. Cette propriété a conduit à l'idée d'utiliser la

spallation pour construire une source de neutrons, par exemple pulsée pour certaines recherches, ou continue pour les systèmes hybrides. Avec cette technique chaque neutron "coûte" environ 30 MeV d'énergie de faisceau, c'est à dire qu'un proton de 900 MeV peut générer 30 neutrons. Avec un rendement de 50% pour l'accélérateur et de 33% pour le rendement thermique d'une centrale nucléaire qui fournit l'électricité, on voit que la production de chaque neutron de spallation a nécessité au départ environ l'énergie d'une fission (200 MeV). Au plan théorique ce mécanisme n'est encore qu'imparfaitement décrit comme il le sera exposé dans les cours qui suivent.

- **Surgénération, élimination des déchets et systèmes hybrides** : le point commun entre ces trois notions est l'apport ou l'utilisation de neutrons supplémentaires. Dans le bilan neutronique la surgénération prélève en moyenne un neutron par fission, l'élimination de certains déchets par capture de neutrons est également consommatrice. Dans le premier projet Rubbia de réacteur thermique au Thorium, les neutrons de spallation sont par exemple nécessaires pour soutenir le cycle de surgénération. En régime de neutrons rapides le rapport entre section efficace de fission et section efficace de capture devient plus grand et permet d'améliorer le bilan neutronique. L'intérêt d'un apport supplémentaire de neutrons de spallation est alors davantage de faciliter la stabilité d'opération du coeur puisqu'à intensité d'accélérateur nulle le réacteur d'un système hybride est sous critique et s'arrête de lui-même. Puisqu'un surgénérateur rapide est conçu pour minimiser l'importance des captures de neutrons on conçoit qu'il soit plus efficace pour l'incinération qu'un réacteur thermique de type REP. De même, utilisé en sous-génération, le bilan neutronique devient fortement excédentaire ce qui pourrait être utilisé pour transmuter des produits de fission. (cf. article du Monde).

REPUBLIQUE FRANÇAISE

JOURNAL OFFICIEL

LOIS ET DECRETS

**LOI n° 91-1381 du 30 décembre 1991 relative
aux recherches sur la gestion des déchets
radioactifs (1)**

NOR : INDX3100071L

L'Assemblée nationale et le Sénat ont adopté,
Le Président de la République promulgue la loi dont la
teneur suit :

Art. 1^{er}. - La gestion des déchets radioactifs à haute
activité et à vie longue doit être assurée dans le respect de
la protection de la nature, de l'environnement et de la
santé, en prenant en considération les droits des généra-
tions futures.

Art. 2. - Il est inséré, après l'article 3 de la loi n° 76-663
du 19 juillet 1976 relative aux installations classées pour la
protection de l'environnement, un article 3-1 ainsi rédigé :

« **Art. 3-1.** - Le stockage souterrain en couches géolo-
giques profondes de produits dangereux, de quelque nature
qu'ils soient, est soumis à autorisation administrative. Cette
autorisation ne peut être accordée ou prolongée que pour
une durée limitée et peut en conséquence prévoir les condi-
tions de réversibilité du stockage. Les produits doivent être
retirés à l'expiration de l'autorisation.

« Les conditions et garanties selon lesquelles certaines
autorisations peuvent être accordées ou prolongées pour
une durée illimitée, par dérogation aux dispositions de
l'alinéa précédent, seront définies dans une loi ultérieure. »

Art. 3. - Le stockage en France de déchets radioactifs
importés, même si leur retraitement a été effectué sur le
territoire national, est interdit au-delà des délais techniques
imposés par le retraitement.

Art. 4. - Le Gouvernement adresse chaque année au
Parlement un rapport faisant état de l'avancement des
recherches sur la gestion des déchets radioactifs à haute
activité et à vie longue et des travaux qui sont menés simu-
tanément pour :

- la recherche de solutions permettant la séparation et la
transmutation des éléments radioactifs à vie longue
présents dans ces déchets ;
- l'étude des possibilités de stockage réversible ou irré-
versible dans les formations géologiques profondes,
notamment grâce à la réalisation de laboratoires sou-
terrains ;
- l'étude de procédés de conditionnement et d'entrepo-
sage de longue durée en surface de ces déchets.

Ce rapport fait également état des recherches et des réali-
sations effectuées à l'étranger.

A l'issue d'une période qui ne pourra excéder quinze ans
à compter de la promulgation de la présente loi, le Gouver-
nement adressera au Parlement un rapport global d'évalua-
tion de ces recherches accompagné d'un projet de loi auto-
risant, le cas échéant, la création d'un centre de stockage
des déchets radioactifs à haute activité et à vie longue et
fixant le régime des servitudes et des sujétions afférentes à
ce centre.

etc...

(Articles 5 à 14 relatifs aux laboratoires souterrains.)

La présente loi sera exécutée comme loi de l'Etat.

Fait à Paris, le 30 décembre 1991.

FRANÇOIS MITTERRAND

Par le Président de la République :

Le Premier ministre,
ÉDITH CRESSON

*Le ministre d'Etat, ministre de l'économie,
des finances et du budget,*
PIERRE BÉRÉGOVOY

*Le ministre d'Etat, ministre de la fonction publique
et de la modernisation de l'administration,*
JEAN-PIERRE SOISSON

Le ministre de la recherche et de la technologie,
HUBERT CURIEN

Le ministre de l'environnement,
BRICE LALONDE

Le ministre délégué au budget,
MICHEL CHARASSE

Le ministre délégué à l'industrie et au commerce extérieur,
DOMINIQUE STRAUSS-KAHN

SCIENCES

Un rapport du ministre de la recherche et de l'espace

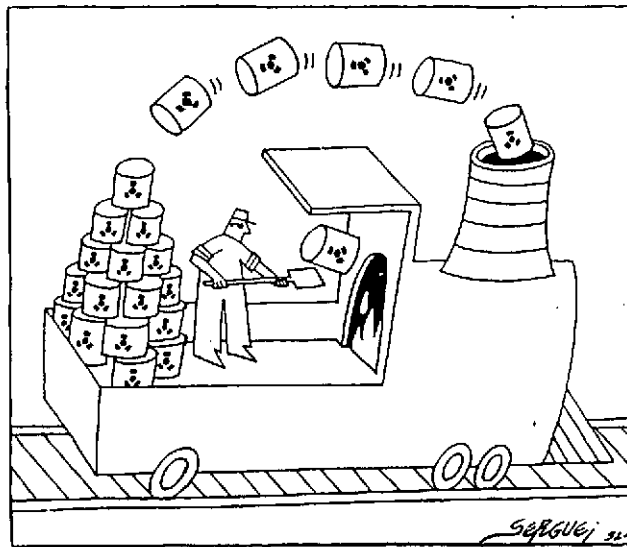
Superphénix est indispensable aux études sur la gestion des déchets radioactifs, estime M. Hubert Curien

Le réacteur à neutrons rapides Superphénix et son pré-décenseur Phénix sont indispensables aux études visant à diminuer les stocks de plutonium et de certains déchets radioactifs issus des centrales nucléaires, estime M. Hubert Curien, dans un rapport remis récemment au premier ministre. Le ministre de la recherche et de l'espace propose la mise en place d'un « programme de recherches diversifié » sur la gestion des déchets radioactifs ouvert à toutes les solutions actuellement envisageables.

Après avoir décidé, le 29 juin, de geler pour plusieurs mois Superphénix, le surgénérateur contesté de Creys-Malville (Isère), M. Pierre Bérégovoy avait demandé à M. Hubert Curien de préparer « un rapport sur l'incinération des déchets et les conditions dans lesquelles Superphénix pourra y contribuer » (le Monde du 1^{er} juillet). Dans le document qu'il vient de lui remettre, le ministre de la recherche et de l'espace conclut : « Il faut poursuivre les recherches techniques et l'évaluation économique concernant les réacteurs à neutrons rapides [comme Superphénix] qui apparaissent aujourd'hui comme la seule voie pour réduire efficacement le stock de plutonium et d'autres actinides. »

M. Curien tient, cependant, à préciser que ces propositions se situent dans le droit-fil de la loi du 30 décembre 1991, « qui édicte un moratoire de quinze ans avant tout stockage souterrain, prévoit un programme de recherche et développement à conduire pendant cette période ». S'il souligne les acquis du programme électronucléaire français, le ministre met aussi en exergue : « les difficultés et les incertitudes » qui pèsent, en France comme ailleurs, les réacteurs à neutrons rapides (RNR) et la gestion des « produits de fin de cycle » issus des combustibles irradiés.

Certains pays, comme les Etats-Unis et la Suède, ont décidé d'enfouir directement ces combustibles usés. C'est la solution la plus économique. Mais, estime le rapport, elle présente plusieurs inconvénients : stockage de volumes plus importants de produits hautement radioactifs et gaspillage de l'énergie encore exploitable de l'uranium et du plutonium enfouis avec les déchets.



La France et le Japon ont préféré le retraitement qui permet de récupérer les matières fissiles. Un seul réacteur à eau pressurisée (REP) du type de ceux qui équipent le parc électronucléaire français génère cha-

que année 21 tonnes de combustibles usés contenant 20 tonnes d'uranium enrichi à 0,9 %, réutilisable ; 260 tonnes de plutonium ; 21 kilos d'actinides mineurs (neptunium 237, américium, curium) et

750 kilos de produits de fission (césium 135, technétium 99, zirconium 93). Actinides mineurs et produits de fission, qui constituent les déchets hautement radioactifs à vie longue (plusieurs centaines de milliers d'années), sont vitrifiés pour un enfouissement profond ultérieur.

Reste le plutonium, « porteur de grands risques de prolifération ». Ses possesseurs se trouvent devant un dilemme, écrit M. Curien dans son rapport. Ou ils le considèrent comme un déchet et l'enfouissent, ou ils le brûlent. Sous forme de combustible MOX (mélange d'oxydes d'uranium et de plutonium) dans les REP, ou directement dans les réacteurs à neutrons rapides (RNR) de type Superphénix, mais fonctionnant en « sous-générateurs ».

Imaginé au début des années 70 pour produire (en surgénérateurs) plus de plutonium qu'ils n'en consomment et représenter ainsi une source d'énergie inépuisable, les RNR ont perdu tout intérêt économique à court et moyen terme en raison de l'effondrement des cours de l'uranium. Cette nouvelle utilisation leur redonnerait un certain avenir. Selon le rapport Curien, la mise en œuvre d'un parc mixte de REP et de RNR incinérateurs (à raison d'un RNR pour 2 à 4 REP) pourrait permettre la stabilisation du stock de plutonium français à 300 tonnes environ, alors que nous en produisons actuellement quelque 13 tonnes par an. Les RNR permettraient aussi d'assurer la destruction d'une quantité notable d'actinides mineurs.

Cette solution n'est envisageable qu'au prix de quinze à vingt ans de recherche pour résoudre les nombreux problèmes techniques en suspens et d'une sérieuse évaluation technico-économique, souligne le rapport. Ces études, dans lesquelles Superphénix et Phénix, son pré-décenseur construit à Marcoule, joueraient un rôle central, doivent constituer l'un des axes des recherches, prévues par la loi du 30 décembre 1991, sur « l'aval du cycle », estime M. Curien. Les autres axes porteraient sur les sites de stockage, les procédés de retraitement poussé, l'optimisation des réacteurs actuels et futurs pour minimiser la radiotoxicité des produits de fin de cycle, et la « transmutation » des produits de fission en substance à « durée de vie » plus courte.

J.-P. D.

Echéances

par Jean-Paul Dufour

Le rapport de M. Hubert Curien relance, en pleine période des fêtes, la procédure réglementaire pour un éventuel redémarrage de Superphénix. Sa publication devrait contribuer à rassurer les responsables de la NERSA et d'EDF, exploitants du surgénérateur de Creys-Malville (Isère), ainsi que les partenaires européens de la France engagés avec elle dans des recherches sur la filière des réacteurs à neutrons rapides. La décision du 29 juin de « geler » Superphénix leur avait fait craindre, en effet, un « entarrement » définitif sous la pression des écologistes.

« Une enquête publique sera menée dès que possible », précise aujourd'hui le premier ministre dans un communiqué (le Monde du 26 décembre). En pleine préparation des élections législatives de mars, donc. Les populations locales, majoritairement favorables au redémarrage pour des raisons

économiques, devraient y être sensibles. Les opposants vont, évidemment, faire campagne contre toute remise en marche. Mais comment contester une démarche qui se réclame de la « transparence » et s'appuie sur une loi votée l'an dernier au Parlement à une écrasante majorité, toutes tendances confondues ?

Le temps joue pour M. Bérégovoy. « Au vu du dossier de l'exploitant et des observations rassemblées pendant l'enquête publique, l'autorité de sûreté rendra un avis définitif sur le contenu des travaux nécessaires. La décision du gouvernement sera prise en fonction des conclusions de l'enquête publique et de l'avis de l'autorité de sûreté », rappelle le premier ministre dans son communiqué. Selon des experts, tout cela pourrait prendre « quelques mois ». Jusqu'en avril, par exemple.



US005160696A

United States Patent [19]
Bowman

[11] Patent Number: 5,160,696
[45] Date of Patent: Nov. 3, 1992

[54] APPARATUS FOR NUCLEAR
TRANSMUTATION AND POWER
PRODUCTION USING AN INTENSE
ACCELERATOR-GENERATED THERMAL
NEUTRON FLUX

[75] Inventor: Charles D. Bowman, Los Alamos, N. Mex.

[73] Assignee: The United States of America as represented by the United States Department of Energy, Washington, D.C.

[21] Appl. No.: 560,900

[22] Filed: Jul. 17, 1990

[51] Int. Cl.⁵ G21G 1/02

[52] U.S. Cl. 376/189; 376/195;
376/170

[58] Field of Search 376/189-195,
376/170-172, 156, 158, 354-360

[56] References Cited

U.S. PATENT DOCUMENTS

3,216,901	11/1965	Teitel	376/359
3,325,371	6/1967	Stanton	
3,349,001	10/1967	Stanton	
3,453,175	7/1969	Hodge	
3,778,627	12/1973	Carpenter	
4,309,249	1/1982	Steinberg et al.	
4,721,596	1/1988	Marriott et al.	376/189

FOREIGN PATENT DOCUMENTS

98600	4/1988	Japan	376/158
-------	--------	-------	---------

OTHER PUBLICATIONS

H. Takada et al., "A Conceptual Study of Actinide Transmutation System with Proton Accelerator," proceedings of the 2nd International Symposium held on Jan. 24-26, Mito, Ibaraki, Japan.

Kazuo Furukawa et al., "Accelerator Molten-Salt Breeding and Thorium Fuel Cycle," proceedings of the 2nd International Symposium held on Jan. 24-26, Mito, Ibaraki, Japan.

F. Atchison et al., "Status Report of the SIN Neutron

Source," proceedings of the International Collaboration on Advanced Neutron sources held on Sep. 13-16, 1983, Atomic Energy of Canada, Limited, Report AE-CL-8488.

"Preliminary Design and Neutronic Analysis of a Laser Fusion Driven Actinide Waste Burning Hybrid Reactor", Berwald et al., Nuclear Technology, vol. 42, Jan. 1979, pp. 34-50.

"Intense Neutron Sources", U.S. Atomic Energy Commission, COMF-660925, Sep. 1966, pp. 651-652.

Primary Examiner—Brooks H. Hunt

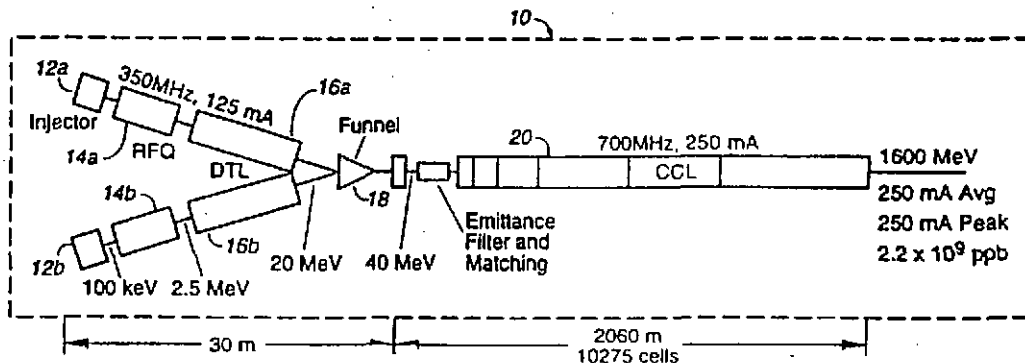
Assistant Examiner—Frederick H. Voss

Attorney, Agent, or Firm—Samuel M. Freund; Paul D. Gaetjens; William R. Moser

[57] ABSTRACT

Apparatus for nuclear transmutation and power production using an intense accelerator-generated thermal neutron flux. High thermal neutron fluxes generated from the action of a high power proton accelerator on a spallation target allows the efficient burn-up of higher actinide nuclear waste by a two-step process. Additionally, rapid burn-up of fission product waste for nuclides having small thermal neutron cross sections, and the practicality of small material inventories while achieving significant throughput derive from employment of such high fluxes. Several nuclear technology problems are addressed including 1. nuclear energy production without a waste stream requiring storage on a geological timescale, 2. the burn-up of defense and commercial nuclear waste, and 3. the production of defense nuclear material. The apparatus includes an accelerator, a target for neutron production surrounded by a blanket region for transmutation, a turbine for electric power production, and a chemical processing facility. In all applications, the accelerator power may be generated internally from fission and the waste produced thereby is transmuted internally so that waste management might not be required beyond the human lifespan.

60 Claims, 4 Drawing Sheets



RFQ Radio-Frequency Quadrupole
DTL Drift-Tube Linac
CCL Coupled-Cavity Linac



PCT

WORLD INTELLECTUAL PROPERTY ORGANIZATION
International Bureau

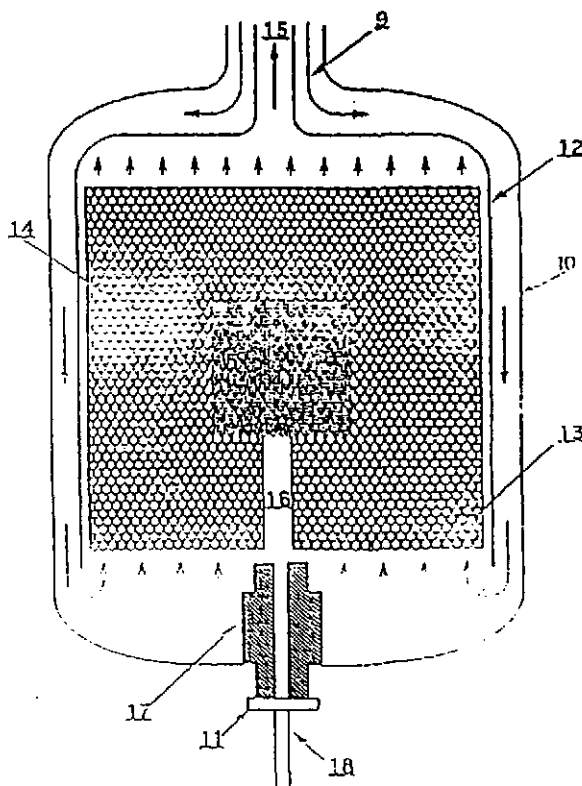
INTERNATIONAL APPLICATION PUBLISHED UNDER THE PATENT COOPERATION TREATY (PCT)

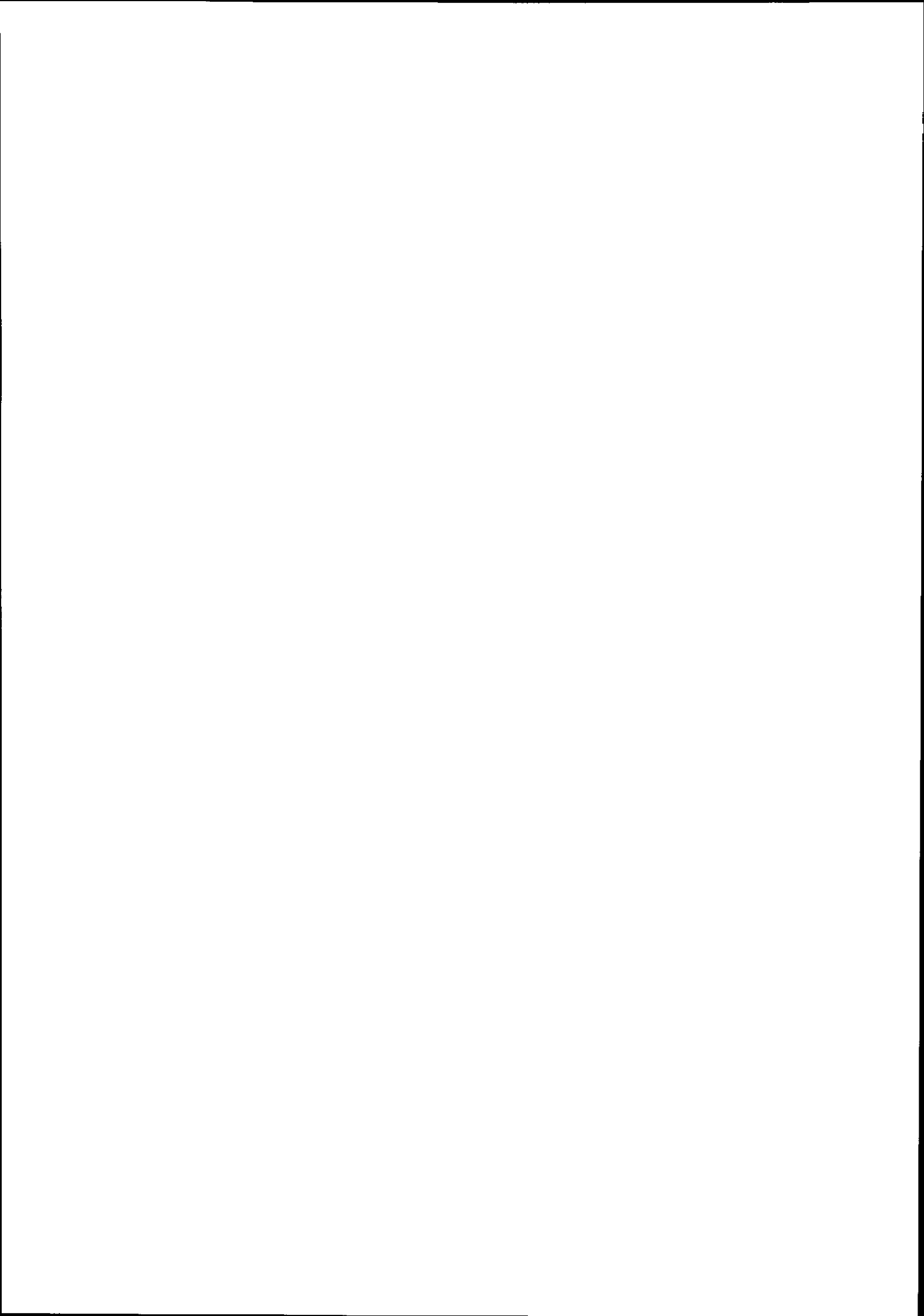
(51) International Patent Classification ⁶ : G21C 1/00, 1/30	A1	(11) International Publication Number: WO 95/12203 (43) International Publication Date: 4 May 1995 (04.05.95)
(21) International Application Number: PCT/EP94/02467 (22) International Filing Date: 25 July 1994 (25.07.94) (30) Priority Data: 93117587.1 29 October 1993 (29.10.93) EP (34) Countries for which the regional or international application was filed: AT et al. (71)(72) Applicant and Inventor: RUBBIA, Carlo (IT/CH); 9, chemin des Tulipiers, CH-1200 Genève (CH). (74) Agent: LOISEL, Bertrand; Cabinet Plasseraud, 84, rue d'Amsterdam, F-75440 Paris Cédex 09 (FR).	(81) Designated States: AM, AT, AU, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CZ, DE, DK, ES, FI, GB, GE, HU, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LK, LT, LU, LV, MD, MG, MN, MW, NL, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SI, SK, TJ, TT, UA, US, UZ, VN, European patent (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, ML, MR, NE, SN, TD, TG), ARIPO patent (KE, MW, SD). Published With international search report.	

(54) Title: AN ENERGY AMPLIFIER FOR "CLEAN" NUCLEAR ENERGY PRODUCTION DRIVEN BY A PARTICLE BEAM ACCELERATOR

(57) Abstract

The method is for producing energy from a nuclear fuel material contained in an enclosure, through a process of breeding of a fissile element from a fertile element of the fuel material via a β -precursor of said fissile element and fission of the fissile element. A high energy particle beam is directed into the enclosure for interacting with heavy nuclei contained in the enclosure so as to produce high energy neutrons. The neutrons thereby produced are multiplied in sub-critical conditions by the breeding and fission process. Said breeding and fission process is carried out inside the enclosure.





FISSION NUCLEAIRE DE BASSE ENERGIE ET REACTIONS INDUITES PAR NEUTRONS

G. BARREAU
CEN Bordeaux
Le Haut Vigneau
F-33175 GRADIGNAN Cedex

LA FISSION NUCLEAIRE

- 1932** : Découverte du neutron par G. CHADWICK
- 1934** : Découverte de la radioactivité artificielle par F. JOLIOT et I. CURIE.
Théorie de la radioactivité β^- par E. FERMI
Première utilisation des neutrons pour produire les éléments de $Z > 92$ à partir d'une cible d'Uranium naturel. L'origine des nombreuses radioactivités observées soulèvent des problèmes.
- 1938** : P. SAVITCH du groupe de F. JOLIOT isole un radioélément dont les propriétés sont proches de celles du Lanthane ($Z=57$).
- 1938** : O. HAHN et F. STRASSMANN mettent clairement en évidence, par séparation chimique, la présence de Barium radioactif dans une cible d'Uranium bombardée par des neutrons. Preuve est faite que toutes les radioactivités nouvelles observées appartiennent à des éléments du milieu du tableau de MENDELEEV.
- 1939** : L. MEITNER et O. FRISCH donnent le nom de **FISSION NUCLEAIRE** à ce nouveau phénomène. Preuves physiques par O. FRISCH et par F. JOLIOT (ch. Ionisation)
- 1939** : N. BOHR et J.A. WHEELER interprètent la fission dans le cadre de la goutte liquide. Ils suggèrent que seul l'isotope 235 , contenu à dans l'Uranium naturel, subit la fission ; cette première description du mécanisme de fission est déjà globalement satisfaisante. Dès la fin de 1939, plus d'une centaine de publications sur la fission ont été publiées.
- 1939** : V. HALBAN, F. JOLIOT, L. KOWARSKI et F. PERRIN découvrent l'émission de neutrons au cours du processus de fission. Ils déposent deux brevets intitulés :
- Dispositif de production d'énergie.
- Perfectionnements aux charges explosives.
- 1942** : Divergence à Chicago du premier réacteur nucléaire construit sous la direction de E. FERMI
- 1945** : Première explosion nucléaire à Alamogordo (Nouveau Mexique USA)

A - APPROCHE MACROSCOPIQUE DE LA FISSION

A-1 - LE MODELE DE LA GOUTTE LIQUIDE

Dès 1939, et grâce aux premiers travaux de BOHR et WHEELER, le modèle de la goutte liquide a servi de cadre théorique au phénomène de fission et notamment pour calculer l'énergie libérée et préciser le concept de barrière de fission. Pendant longtemps, l'histoire de la fission s'est confondue avec celle de la barrière de fission qui joue un rôle capital dans les propriétés du phénomène de fission. Malgré ses lacunes, ce modèle de la goutte liquide contient l'essentiel de ce qu'il faut savoir pour comprendre le phénomène de fission, c'est donc par lui que je commencerai.

Dans ce modèle, le noyau est assimilé à une goutte liquide incompressible, uniformément chargée. Les forces en jeu au sein du noyau sont les forces nucléaires à courte portée et attractives auxquelles s'ajoutent les forces coulombiennes répulsives entre les protons. Pour une forme donnée du noyau, son énergie totale est calculée en représentant l'interaction nucléaire comme une tension superficielle dont les propriétés sont extraites de la formule semi-empirique des masses. Puisque le volume de la goutte chargée est incompressible, sa stabilité est essentiellement gouvernée par l'antagonisme de ces deux forces.

Pour un noyau sphérique, l'énergie de surface augmente comme $A^{2/3}$ alors que l'énergie de répulsion coulombienne croît, à densité constante, comme $\frac{Z^2}{A^{1/3}}$.

On peut donc comprendre que le processus de fission est un phénomène qui apparaît le plus aisément dans les noyaux lourds.

Lorsqu'un noyau lourd est excité, certaines distorsions de sa surface peuvent apparaître. Les forces de tension superficielle tendent à lui redonner sa forme initiale tandis que les forces de répulsion coulombienne tendent au contraire à augmenter la distorsion. Si ces forces répulsives l'emportent sur les forces attractives, la déformation de la goutte liquide peut augmenter et conduire à la fission. Nous allons maintenant étudier plus quantitativement ce mécanisme.

- **Comportement du noyau pour de petites déformations : paramètre de fissilité**

Pour de faibles distorsions de la goutte liquide à partir de la forme sphérique initiale, la variation de son énergie potentielle peut se calculer à partir de la formule de masse de BETHE et WEISZACKER. Il est facile de montrer la relation suivante :

$$\Delta V(\alpha) = a_s A^{2/3} [f(\alpha) - 1] + a_c \frac{Z^2}{A^{1/3}} [g(\alpha) - 1]$$

Pour aboutir à cette expression nous avons supposé que seuls les termes de surface et de répulsion coulombienne dépendaient de la déformation caractérisée par le paramètre α .

Pour une goutte chargée sphérique, les énergies potentielles associées à ces deux termes s'écrivent sous les formes suivantes :

$$V_s(0) = a_s A^{2/3} \quad \text{Energie de surface du noyau sphérique initial}$$

$$V_c(0) = a_c \frac{Z^2}{A^{1/3}} \quad \text{Energie coulombienne du noyau sphérique.}$$

La fonction $f(\alpha)$ représente le rapport entre la surface de la goutte à la déformation α et la surface de la goutte sphérique initiale. Tandis que $g(\alpha)$ désigne ce rapport pour les énergies coulombiennes. Pour expliciter ces deux fonctions, nous allons comme BOHR et WHEELER considérer une faible déformation quadripolaire.

En coordonnées polaires, le rayon du noyau est représenté par un développement en polynôme de LEGENDRE arrêté à l'ordre 2 :

$$R(\theta) = R_0 \left(1 + \alpha_2 P_2(\cos(\theta)) \right)$$

On peut montrer que les facteurs $f(\alpha)$ et $g(\alpha)$ introduits ci-dessus s'expriment simplement par :

$$f(\alpha) = 1 + \frac{2\alpha_2^2}{5} + \dots \text{soit : } V_s(\alpha) \approx V_s(0) \left(1 + \frac{2\alpha^2}{5} \right)$$

$$g(\alpha) = 1 - \frac{\alpha_2^2}{5} + \dots \text{soit : } V_c(\alpha) \approx V_c(0) \left(1 - \frac{\alpha^2}{5} \right)$$

Nous obtenons alors la variation d'énergie potentielle suivante :

$$\Delta V(\alpha) \approx V_s(0) \frac{2\alpha^2}{5} - V_c(0) \frac{\alpha^2}{5} = \frac{2\alpha^2}{5} V_s(0) (1 - x)$$

$$\text{où } x = \frac{V_c(0)}{2V_s(0)} = \frac{3 e^2}{5 r_0} \cdot \frac{Z^2/A}{2a_s'(1 - KI^2)} \approx \frac{Z^2/A}{47}$$

x est appelé le paramètre de fissilité, il est donc proportionnel à Z^2/A

Lorsqu'on déforme le noyau, son énergie de surface augmente et son énergie coulombienne diminue ; ce paramètre x contrôle donc les amplitudes relatives de ces variations, on notera :

- pour $x < 1$ $V(\alpha)$ augmente avec la déformation, le noyau est stable vis à vis de la fission
- pour $x > 1$ le noyau est complètement instable, y compris dans la forme sphérique.

A titre indicatif, les valeurs du paramètre de fissilité pour quelques noyaux lourds sont les suivantes :

	²⁰⁹ Bi	²³² Th	²³⁵ U	²³⁸ U	²⁵⁴ Fm
X=	0.7	0.74	0.77	0.76	0.84.

Pour tous les noyaux stables connus, le paramètre de fissilité est inférieur à 1, la fission spontanée de ces noyaux n'est en principe pas possible ; nous savons qu'il n'en est rien et nous allons montrer comment le modèle de la goutte liquide permet de le montrer.

- **Chaleur de réaction dans le cas d'une fission symétrique**

A partir des relations établies ci-dessus nous allons considérer maintenant la fission d'un noyau en deux fragments identiques. La chaleur de réaction va s'écrire :

$$Q = \left[M(N, Z) - 2M\left(\frac{N}{2}, \frac{Z}{2}\right) \right] c^2 = V_s(0) \left(2^{1/3} - 1 \right) + \frac{V_c(0)}{2} \left(2^{1/3} - 2 \right)$$

$$Q = V_s(0)(0.260 - 0.740x)$$

La fission symétrique n'est énergétiquement possible que pour les noyaux dont le paramètre de fissilité $x > 0.35$.

Pour les noyaux tels que $0.35 < x < 1$, l'énergie potentielle croît tout d'abord avec la déformation, et elle devient négative pour une déformation infinie (fragments séparés) ; il doit donc y avoir au moins un maximum dans la fonction $V(\alpha)$.

Ce maximum est assimilable à une barrière, c'est la barrière de fission. Classiquement, elle représente l'énergie supplémentaire qu'il faut fournir au noyau pour qu'il puisse fissionner, cette barrière peut être franchie :

- par effet tunnel, elle explique donc la fission spontanée des noyaux lourds
- par apport d'une énergie d'excitation suffisante : de 5 à 6 MeV pour les actinides.

Quelques ordres de grandeur : il n'est peut être pas inutile de donner, dans le cadre de la goutte liquide, les ordres de grandeur des énergies mises en jeu dans le calcul simple qui nous a conduit au calcul de cette barrière de fission: au niveau de la barrière de fission les variations relatives des énergies de surface et coulombienne avoisinent la centaine de MeV, la barrière de fission est donc une différence entre des valeurs d'énergies très importantes : une précision de 100 keV sur cette barrière exige en fait une précision meilleure que 1/1000 sur les énergies de surface et coulombienne

précision impossible à atteindre avec le modèle de la goutte liquide et ce malgré les nombreuses améliorations apportées depuis son introduction.

- **Surface d'énergie potentielle**

Les relations établies ci-dessus font intervenir les déformations du type les plus simples, on doit en principe considérer un espace à plusieurs dimensions. Le problème est d'évaluer correctement et en continu l'évolution de la forme du noyau fissionnant et la modification des énergies de surface et coulombienne lorsqu'une sphère se déforme. Ce type de calcul nécessite l'utilisation d'ordinateurs très puissants car il n'est pas possible de trouver des formes analytiques simples pour décrire un processus aussi complexe que la fission.

Depuis les premiers travaux de BOHR et WHEELER, les calculs les plus complets effectués à partir du modèle de la goutte liquide ont été réalisés par SWIATECKI et ses élèves COHEN et NIX en utilisant :

- un développement en polynôme de LEGENDRE du rayon vecteur de la goutte chargée pour en décrire la forme.

- deux sphéroïdes reliés par un hyperboloïde de révolution, un modèle de déformation plus adapté que le précédent pour décrire les configurations proches de la scission.

En dépit de leur complexité, ces calculs ont permis de dresser la surfaces d'énergie potentielle du noyau en fonction des différents axes de déformations.

La figure (A-1) représente schématiquement cette surface d'énergie potentielle ainsi obtenue en fonction des paramètres les plus importants : α_2 qui décrit l'élongation du noyau et α_4 qui décrit sa striction ou la formation du col entre les deux fragments.

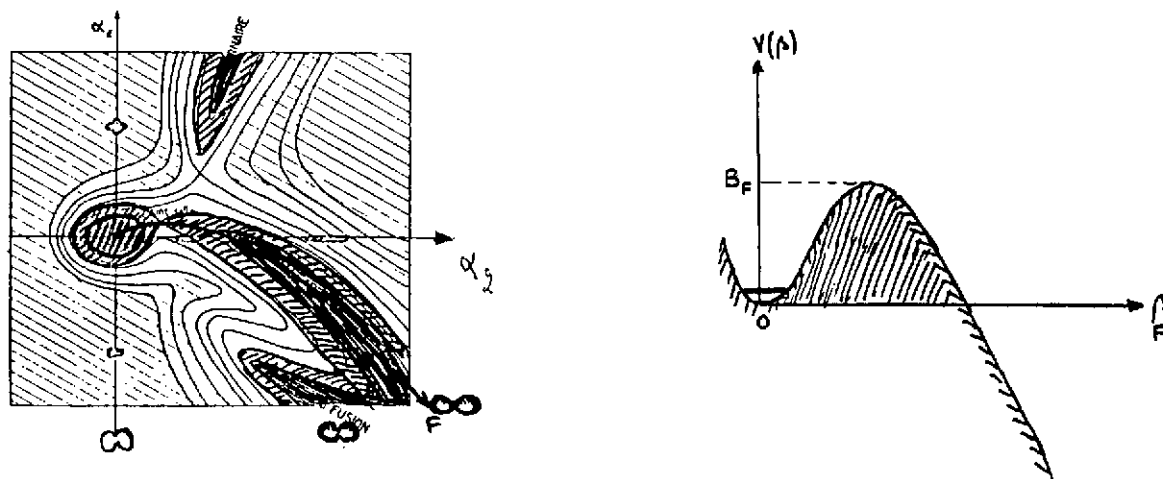


Fig.A1: Surface d'énergie potentielle (goutte liquide) d'un noyau lourd en fonction de son élongation (α_2) et de sa striction (α_4).
Energie potentielle le long de la trajectoire OF: Barrière de fission.

Les lignes de niveaux reportés sur cette surface font apparaître :

- un puits profond sphérique qui correspond au noyau dans son état fondamental,
- la vallée de la fission binaire qui débouche elle-même dans la vallée de la fusion,
- la vallée de la fission ternaire ou division du noyau en trois fragments symétriques.

Ces deux vallées sont séparées de l'état fondamental par des cols dont la hauteur par rapport à ce fondamental est caractéristique d'un seuil de fission; la valeur la plus faible étant atteinte pour la fission binaire. L'évolution du système fissionnant entre l'état initial et la scission peut être représentée par une ligne de cette surface que l'on appelle le chemin de la fission et la variation de l'énergie potentielle le long de ce chemin s'apparente à celle d'une barrière, la barrière de fission.

Les calculs ont été effectués pour les configurations symétriques et asymétriques et pour toutes les valeurs de x entre 0 et 1. De ces études systématiques, émergent plusieurs résultats intéressants que nous rappellerons brièvement.

• Configurations de point-selle dans la région des actinides

Lorsque $x > 0.67$, on observe un premier col pour le passage de la goutte sphérique à une forme cylindrique intermédiaire et un second col entre cette vallée de potentiel et la vallée des deux fragments séparés ; en revanche pour $x < 0.67$, la goutte sphérique se déformerait directement en deux fragments après passage par un seul col.

• Stabilité de la goutte liquide vis à vis de l'asymétrie de masse

Les résultats montrent que c'est seulement en dessous de $x = 0.396$ que la fission asymétrique est la plus stable ; cette valeur de x que nous avons déjà rencontrée est connue sous le nom de point de Businaro-Gallone. Au-delà, et contrairement à l'évidence expérimentale, la fission symétrique est toujours la plus favorable.

A-2 - CONFRONTATION AVEC L'EXPERIENCE

Le modèle de la goutte liquide, malgré sa simplicité, a permis d'expliquer les grandes tendances de la fission :

- la fissilité des noyaux croît avec le facteur Z^2/A , ceci apparaît clairement dans la fission spontanée dont les demi-vies sont de plus en plus courtes au fur et à mesure que l'on atteint les transuraniens les plus lointains; cette tendance observée expérimentalement est reproduite seulement en moyenne avec des écarts importants au niveau des éléments les plus lourds pour reproduire notamment la forte dépendance des demi-vies avec :
 - l'excès de neutrons pour un Z donné
 - la parité en Z (ou en N) des demi-vies puisque on observe expérimentalement des vies moyennes pour les noyaux impairs plus élevées que pour les noyaux pair-pair voisins - figure (A2-1).
- Les mêmes remarques s'appliquent également pour les barrières de fission dont l'évolution générale avec le paramètre de fissilité x est globalement bien reproduite avec néanmoins des écarts importants - figure (A2-2) :
 - dans la région du Plomb ($Z=82$)
 - dans la région des noyaux lourds où la variation des barrières calculées s'avère beaucoup plus forte que ne le prévoit l'expérience : nous verrons plus loin que ces barrières se situent

toutes au voisinage de 6 MeV entre l'Uranium et le Fermium. On rapprochera ce dernier point de l'énorme variation (10^{20}) des demi-vies de fission spontanée observée à travers cette région.

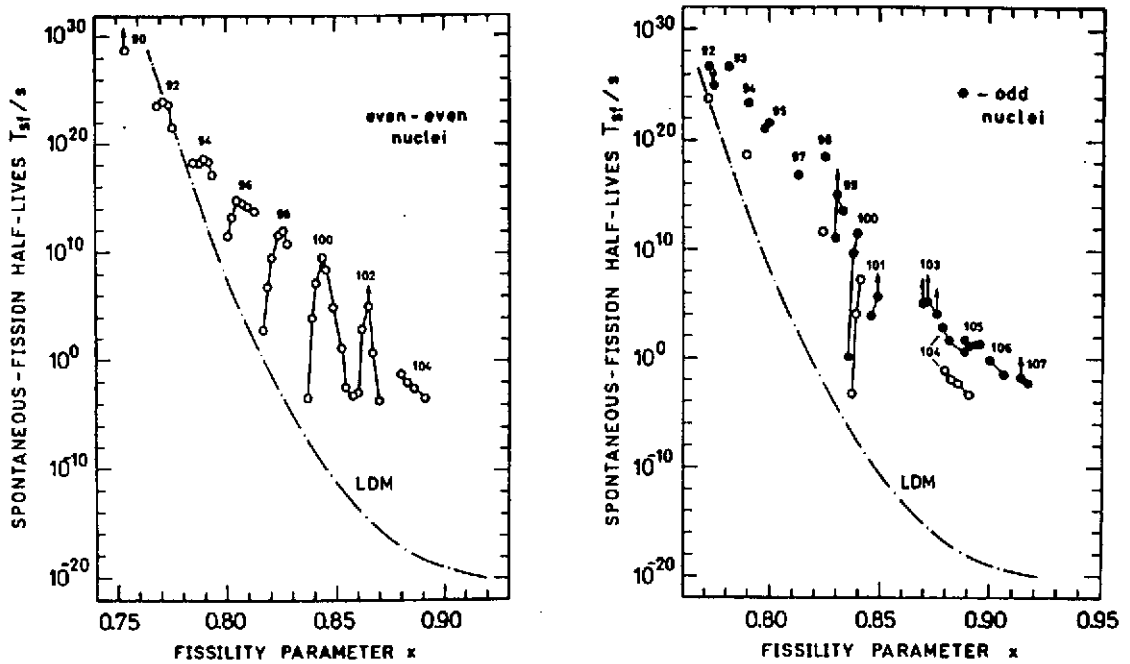


Fig.A2-1: Périodes mesurées de fission spontanée des noyaux lourds en fonction de leur paramètre de fissilité (x) et comparaison avec les prévisions de la goutte liquide (LDM).

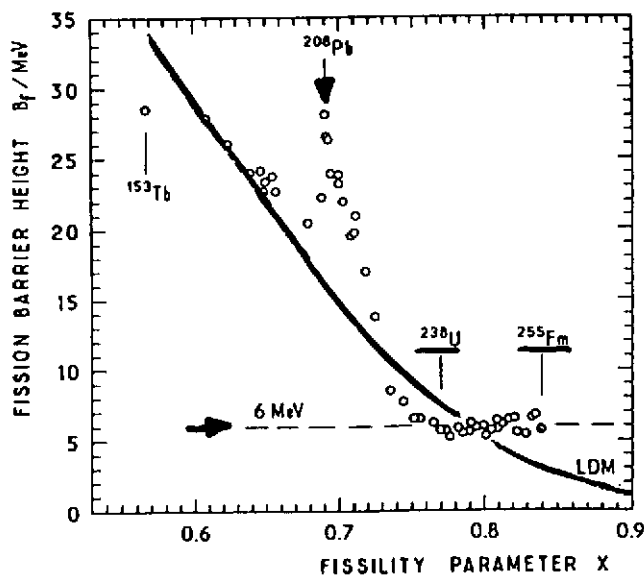


Fig.A2-2: Barrières de fission des noyaux lourds en fonction de leur paramètre de fissilité (x) et comparaison avec les prévisions de la goutte liquide

- Le plus grand succès de la goutte liquide se situe au niveau des prédictions des caractéristiques des noyaux fissionnants dont la division en masse est symétrique. C'est le cas notamment :
 - des noyaux plus légers que le radium dont on sait que les configurations de point-selle sont très proches de celles de deux fragments séparés
 - des noyaux fissionnants formés à grande énergie d'excitation.

L'échec le plus évident du modèle de la goutte liquide se situe certainement dans son incapacité à reproduire, à faible énergie d'excitation, la fission asymétrique des noyaux lourds depuis le Thorium et jusqu'aux isotopes du Fermium alors qu'une transition vers la fission symétrique réapparaît dans la région des ^{257}Fm - ^{258}Fm , tandis que, la région des Radium avec une distribution en masse à trois bosses marque la transition vers la fission symétrique des noyaux plus légers.

Le fait le plus remarquable de cette asymétrie prononcée de la fission de basse énergie réside dans la relative stabilité du fragment lourd de ces distributions de masse autour d'un ensemble qui favorise la formation d'un fragment lourd stabilisé par les couches magiques ($Z=50$ et $N=82$). Figure (A2-3).

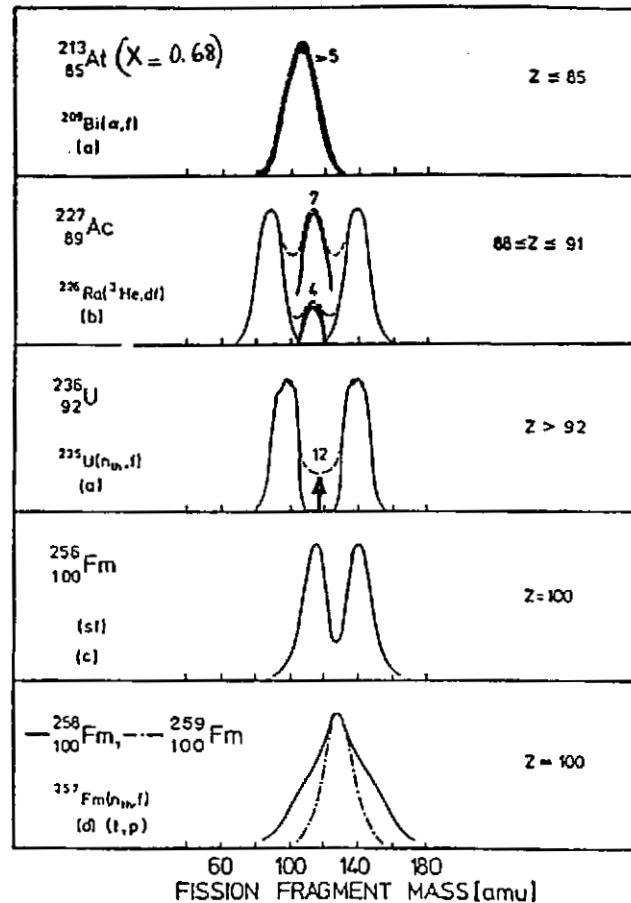


Fig.A2-3: Allure des distributions en masse pour différents noyaux lourds de $Z > 85$.

Ces insuffisances du modèle de la goutte liquide ont été reconnues dès la fin des années 50, elles expliquent en partie pourquoi la fission est restée pendant des années un domaine à part de la physique nucléaire. Cette situation va changer très rapidement au cours des années 60 par

l'émergence de nouveaux concepts pour aborder les déformations nucléaires à travers les approches développées par BOHR et MOTTELSON puis par NILSSON.

Sur le plan expérimental c'est surtout la découverte de nouveaux phénomènes de la fission complètement inexplicables dans le cadre de la goutte liquide ; pour les plus significatifs :

- La découverte d'une activité de fission spontanée dite anormale par une équipe de Dubna lancée à l'époque dans la recherche des éléments lourds de $Z > 104$. Au cours d'irradiation de cibles de ^{238}U par un faisceau de Ne il apparût qu'un des produits de réaction fissionnait spontanément avec une période de 14 ms. Plusieurs expériences croisées permirent d'attribuer cette activité de fission au noyau ^{242}Am dont la période connue de fission spontanée est beaucoup plus longue. Des expériences complémentaires montrèrent rapidement qu'il s'agissait d'un état excité de ce noyau qui fissionnait mais que sa fonction d'excitation n'était pas celle d'un isomère de spin dont de nombreux exemples étaient déjà connus à l'époque.
- Les structures intermédiaires observées sous le seuil de fission des noyaux dits non-fissiles comme le ^{237}Np (figure A2-4). Il s'agissait là de résonances de faible amplitude dont l'espacement régulier allait à l'encontre de la répartition statistique de ces résonances telles qu'on peut les observer dans les noyaux fissiles voisins ^{235}U et ^{239}Pu .

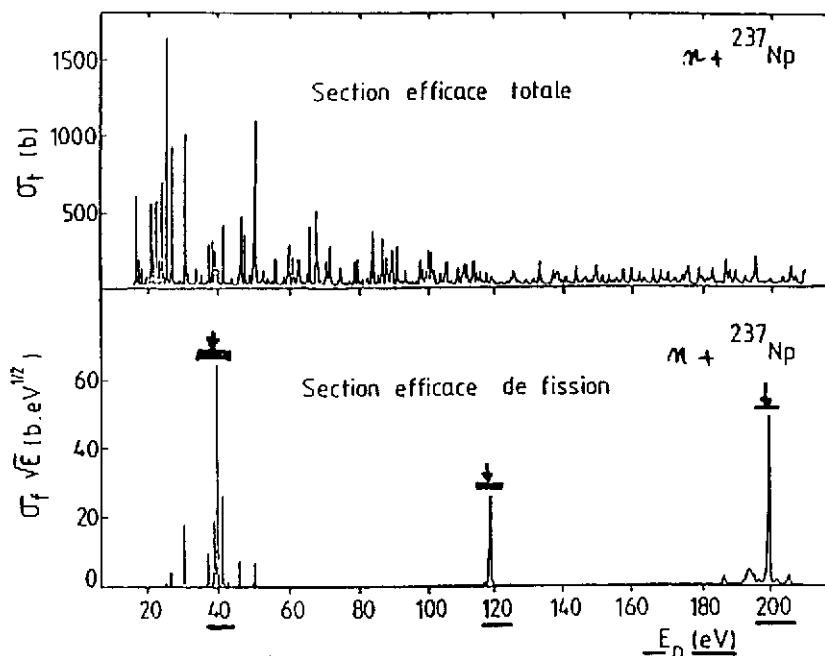


Fig.A2-4: Sections efficaces totale et de fission de ^{237}Np par neutrons de résonances. (on notera le regroupement des résonances dans la section efficace de fission)

B - APPROCHE MICROSCOPIQUE DE LA FISSION

B-1 - NAISSANCE ET TRIOMPHE DE LA DOUBLE BARRIERE DE FISSION

Le début des années 60 se traduit par des progrès importants concernant le traitement microscopique des déformations nucléaires par le biais du modèle de Nilsson et le plein essor de la spectroscopie des états déformés observés dans la région des terres rares.

A cette époque, le surcroît de stabilité des noyaux comportant un nombre de neutrons et/ou de protons dit magique (2, 8, 20, 28, 50, 82, 126) était déjà attribué à la structure en couches des nucléons dans le noyau dont la structure microscopique était explorée à partir du modèle de particules indépendantes se déplaçant dans un potentiel moyen du type potentiel harmonique ou du type Wood-Saxon. Comme le montre la figure(x), ces états de particules indépendantes se groupent en paquets dans un noyau sphérique pour former des couches au lieu d'être régulièrement espacés en \sqrt{E} tel que le laissait prévoir le modèle de la goutte liquide (ou le modèle de Thomas-Fermi). L'existence de ces couches est due au fait que les longueurs d'onde des nucléons sont du même ordre de grandeur que les dimensions du noyau. Un noyau comportant un nombre magique de neutrons ou de protons aura une énergie de liaison par nucléon plus grande qu'un noyau ayant quelques nucléons supplémentaires; ces quelques nucléons devront en effet se placer dans la couche supérieure, et ils seront moins liés malgré un tassement général des niveaux dû à l'augmentation du rayon du noyau (le niveau de Fermi se maintiendrait à la même énergie s'il n'y avait pas de couches). Comme l'existence des couches profondes a peu d'incidence sur l'énergie de liaison globale des nucléons qui les occupent, l'énergie de liaison moyenne par nucléon (ou la masse par nucléon) d'un noyau sera modulée en fonction de N et de Z, suivant le degré d'occupation des dernières couches de protons et de neutrons ou suivant leur densité d'états au voisinage de leur énergie de Fermi respective.

Dès le début des années 50, le modèle en couches sphériques s'avéra incapable d'expliquer les moments quadripolaires anormalement élevés des noyaux situés entre deux couches magiques $150 < A < 190$ et $A > 220$ (tel que ^{176}Lu dont le moment quadripolaire est 30 fois plus élevé que celui prévu par le modèle en couches sphériques), J. RAINWATER postule pour la première fois l'existence de noyaux stables déformés et propose un modèle en couches déformées dans lequel les nucléons se meuvent librement dans un potentiel dont la déformation est la même que celle du noyau, J. RAINWATER suggère que le couplage à un coeur sphérique de particules hors des couches magiques polarise ce coeur et entraîne sa déformation.

Peu de temps après, A. BOHR suggère qu'un mode d'excitation collectif soit associée à la déformation : mode vibrationnel ou rotationnel; c'est le point de départ du modèle unifié développé par A. BOHR et B. MOTTELSON qui rend compte à la fois de l'aspect macroscopique et du comportement individuel des nucléons couplés à un coeur pair. Le succès de ce modèle est

rapidement confirmé par l'observation d'un grand nombre de bandes de rotation dans la région des terres rares et des actinides qui signent ainsi la déformation permanente des noyaux de ces régions. C'est dans ce contexte que se situe le modèle en couches déformées développé par S.G. NILSSON en 1955. Nous allons en rappeler les principales caractéristiques :

- Le potentiel considéré par NILSSON est celui d'un oscillateur harmonique anisotrope dont l'Hamiltonien s'exprime par :

$$H = -\frac{\hbar^2}{2m} \Delta + \frac{1}{2m} \left[\omega_{\perp}^2 (x^2 + y^2) + \omega_z^2 z^2 \right] + C\bar{I}\bar{s} + D\bar{I}^2$$

- C'est un potentiel à symétrie axiale définie par les fréquences d'oscillation : ω_{\perp} et ω_z qui s'expriment en fonction des paramètres de déformation ε et ε_4 par :

$$\omega_{\perp} = \omega_0(\varepsilon, \varepsilon_4) \left(1 + \frac{1}{3} \varepsilon \right) \quad \text{et} \quad \omega_z = \omega_0(\varepsilon, \varepsilon_4) \left(1 - \frac{2}{3} \varepsilon \right)$$

Les paramètres ε et ε_4 décrivent respectivement la déformation suivant l'axe oz et l'écart par rapport aux déformations sphéroidales.

Les paramètres C et D sont déterminés empiriquement pour obtenir le meilleur accord possible avec l'expérience.

Les états propres de cet Hamiltonien sont ceux de l'oscillateur harmonique anisotrope $[N, n_z, \Lambda, \Omega, \pi]$:

N est le nombre quantique principal de l'oscillateur harmonique.

Λ est la projection du moment angulaire orbital \bar{I} sur l'axe de symétrie

Ω est la projection du moment angulaire $\bar{j} = \bar{I} + \bar{s}$ sur l'axe de symétrie

$$\Omega = \Lambda \pm \frac{1}{2}$$

$\pi = (-1)^N$ est la parité de la fonction d'onde :

Dans le cadre de cet Hamiltonien, Ω et π sont de bons nombres quantiques. Ceci entraîne les conséquences suivantes sur les diagrammes indiquant les niveaux d'énergie des différents états en fonction de la déformation, communément appelés diagrammes de Nilsson dont un exemple est montré sur la figure (B1 -1) :

- si on déforme le noyau, la dégénérescence des niveaux d'énergie du potentiel sphérique est partiellement levée, chaque niveau de moment angulaire total j donnant naissance à $(2j+1)/2$ niveaux doublement dégénérés et caractérisés par $|\Omega|$.

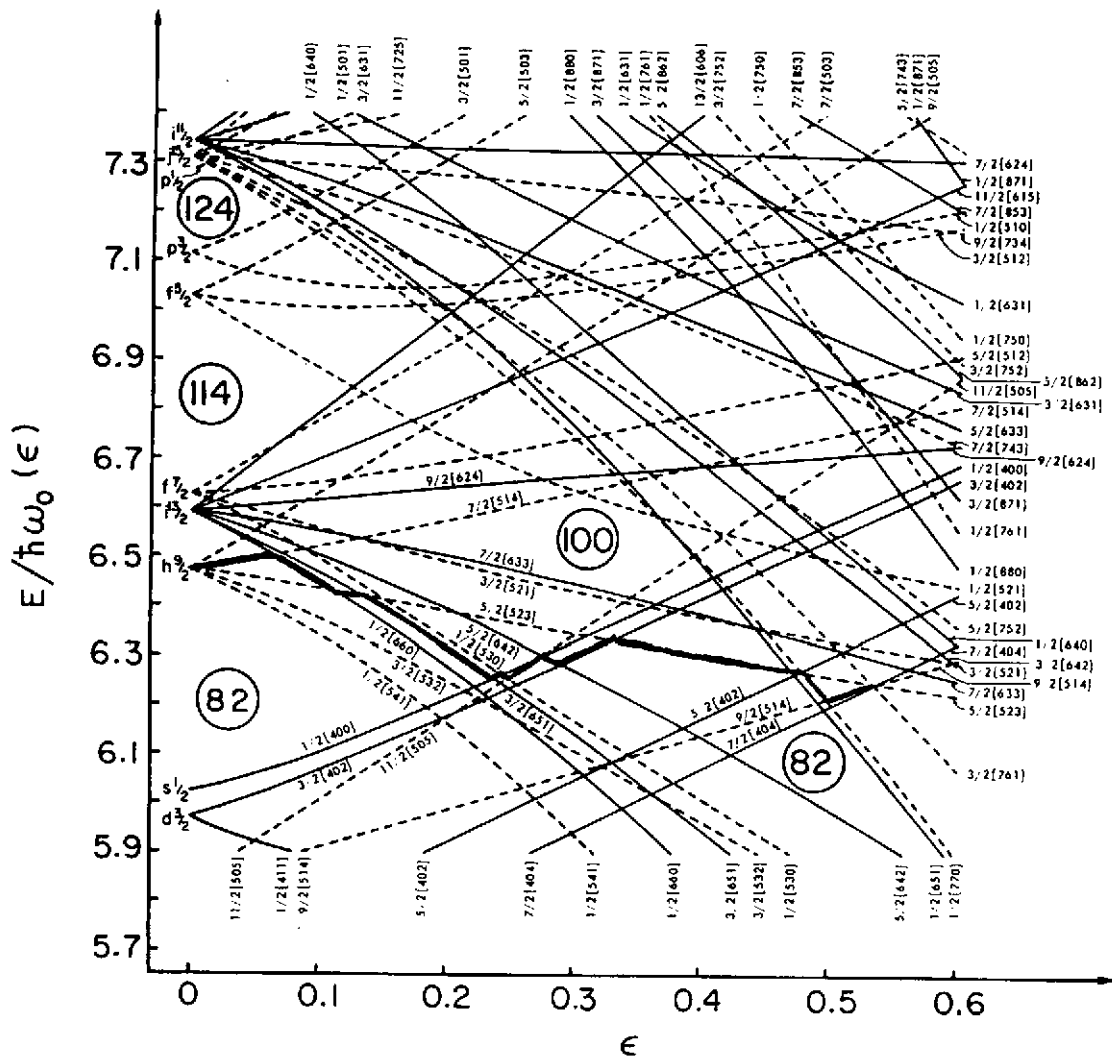


Fig.B1-1: Diagramme de Nilsson pour les protons $82 < Z < 126$.

- L'étalement en énergie de ces niveaux augmente avec la déformation, pour de faible déformation, cet étalement conduit à une répartition uniforme des niveaux visible sur la figure autour de $\epsilon = 0.15$
- A grandes déformations ($\epsilon = 0.5$) on voit réapparaître les effets de couches dus au regroupement des niveaux de Nilsson venant de couches initialement différentes.

La présence de ces regroupements, parce qu'ils abaissent la densité de niveaux est à l'origine de la déformation permanente de certains noyaux dans leur état fondamental.

C'est dans le cadre de ce modèle que MOTTELSON et NILSSON ont pu montrer que la déformation d'équilibre correspond au minimum dans l'énergie totale du noyau calculée en fonction de sa déformation; cette énergie totale est obtenue en sommant pour chaque déformation les plus bas états d'énergie de N neutrons et de Z protons.

On a pu ainsi reproduire les déformations des terres rares et des actinides que l'on savait déformés. La fission s'est avérée être un objet unique pour l'étude des effets de couches à grande déformation. D'où l'idée d'utiliser ce modèle pour calculer les barrières de fission; ces calculs ont été entrepris par NILSSON, les résultats obtenus sont illustrés par la figure B1-2 où l'on a reporté pour plusieurs actinides la variation de leur énergie potentielle en fonction du paramètre de déformation ϵ .

On notera que le type de barrière obtenue présente un minimum pour une forme non sphérique en bon accord avec l'expérience, néanmoins et à grande déformation, le modèle ne reproduit pas la décroissance de l'énergie potentielle : bien qu'un point-selle se dessine pour ^{238}U vers $\epsilon \approx 0.5$, on constate que l'énergie croît rapidement lorsque la déformation augmente.

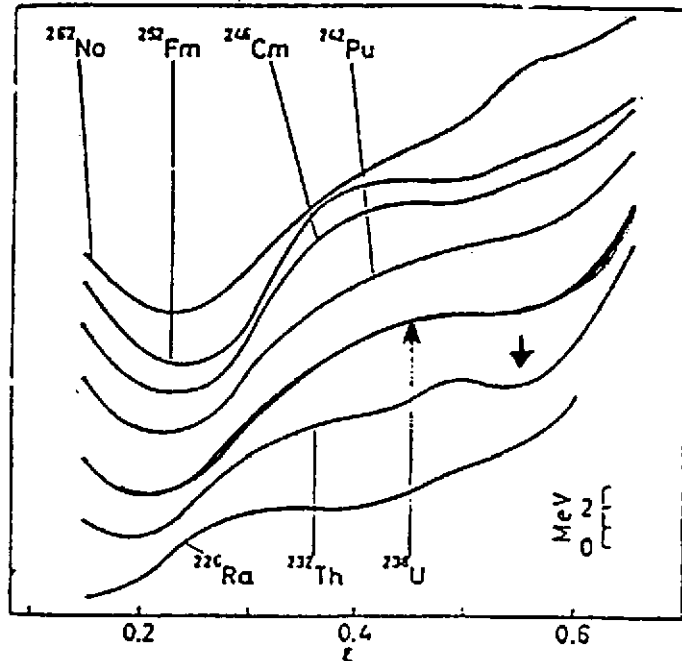


Fig.B1-2: Barrières de fission calculées pour un puits de potentiel déformé.

Les raisons de cet échec sont maintenant bien comprises, elles proviennent de l'hypothèse propre au modèle de Nilsson, selon laquelle les surfaces équipotentielles engendrent des volumes constants dans lesquels la densité de matière nucléaire est supposée constante. Cette hypothèse entraîne que l'énergie totale obtenue par simple sommation des énergies individuelles est surestimée aux grandes déformations. Le modèle en couches déformées entraîne ainsi une erreur systématique qui devient considérable à partir de $\epsilon \geq 0.6$.

On remarquera que l'énergie potentielle totale calculée à partir du modèle de Nilsson présente des oscillations autour d'une valeur moyenne qui croît régulièrement avec la déformation, ces oscillations représentent des fluctuations de la densité des états de Nilsson au voisinage de l'énergie de Fermi. L'étude de ces oscillations à grandes déformations, à partir d'un formalisme approprié, constitue ce que l'on a appelé la méthode de STRUTINSKI.

B-2 - LA METHODE DE STRUTINSKI

La méthode proposée par STRUTINSKI reprend la sommation sur les énergies de particules tout en normalisant cette somme (dont la valeur absolue est erronée) sur la valeur moyenne fournie par la goutte liquide, cette idée de renormalisation avait déjà été entrevue par MYERS et SWIATECKI mais la première prescription quantitative en fut donnée par STRUTINSKI.

La méthode proposée par STRUTINSKI consiste donc à réaliser la synthèse du modèle de la goutte liquide et du modèle en couches déformées pour décrire simultanément la valeur moyenne de l'énergie potentielle et les fluctuations locales de cette énergie potentielle en fonction du nombre de nucléons et de la déformation du noyau; la méthode proposée débouche donc sur un modèle macroscopique-microscopique de la fission.

Quantitativement la méthode de STRUTINSKI fait intervenir les opérations suivantes :

- il faut choisir un ensemble de paramètres $\{\alpha\}$ permettant de décrire les différentes formes du noyau au cours de son évolution vers la fission
- on calcule l'énergie potentielle goutte liquide $V_{GL}(\alpha)$ pour les différentes formes du noyau
- on génère pour ces différentes formes, le puits de potentiel dont on détermine les états de particules (neutrons et protons) par résolution de l'équation de Schrödinger.

L'évolution de l'énergie potentielle du noyau avec sa déformation s'écrit sous la forme suivante :

$$V(\alpha) = V_{GL}(\alpha) + \sum_{p,n} [\Delta V_C(\alpha) + \Delta V_P(\alpha)]$$

Dans cette expression, $\Delta V_C(\alpha)$ est la correction de couches, $\Delta V_P(\alpha)$ est la correction des effets d'appariement., ces corrections sont effectuées indépendamment pour les protons et les neutrons.

Considérons par exemple la corrections de couches pour les protons, elle s'exprime par :

$$\Delta V_C(\alpha) = \sum_Z \varepsilon_i - \sum_Z \bar{\varepsilon}_i$$

où les ε_i représentent les énergies des Z états de protons les plus liés tandis que les $\bar{\varepsilon}_i$ représentent les énergies «moyennes» qu'auraient ces états s'il n'y avait pas d'effet de couches.

La densité des états discrets est définie par : $g(\varepsilon) = \sum_i \delta(\varepsilon - \varepsilon_i)$

L'énergie totale issue du modèle en couches est définie par : $\sum_i \varepsilon_i = \int_{-\infty}^{\lambda} \varepsilon g(\varepsilon)$

où λ , le niveau de Fermi est défini à partir du nombre de protons par la relation :

$$Z = 2 \int_{-\infty}^{\lambda} g(\varepsilon) d\varepsilon$$

Pour calculer $\sum_Z \bar{\varepsilon}_i$, on définit une densité de niveaux lissée $\bar{g}(\varepsilon')$ par l'intermédiaire d'une fonction de pondération $f(\varepsilon, \varepsilon')$ telle que :

$$\bar{g}(\varepsilon') = \sum_{i=1}^Z f(\varepsilon' - \varepsilon_i) \delta(\varepsilon - \varepsilon_i) = \sum_{i=1}^Z \frac{1}{\gamma \sqrt{\pi}} e^{-\left(\frac{\varepsilon_i - \varepsilon'}{\gamma}\right)^2} \cdot P\left(\frac{\varepsilon_i - \varepsilon'}{\gamma}\right)$$

La densité des états discrets $g(\varepsilon)$ croit de façon non linéaire et présente des oscillations de fréquence $\hbar\omega_0$, il convient donc de prendre γ de l'ordre de 1 à 1.5 $\hbar\omega_0$ si l'on veut lisser ces oscillations tout en conservant l'allure générale de $g(\varepsilon)$.

Le choix de la fonction de pondération doit répondre à deux critères importants :

- convergence, celle-ci est réalisée à partir du produit d'une gaussienne par un polynôme de degré pair $2M$
- la correction de couche doit être, à partir d'une valeur donnée de M , indépendante de γ , ceci est généralement bien réalisé dès que $M \geq 2$.

Dans la pratique, un polynôme d'ordre pair limité à l'ordre 6 et une valeur de γ voisine de $41\text{MeV}/A^{1/3}$ assurent une variation correcte de $\bar{g}(\varepsilon')$ et une stabilisation de la correction de couche.

La correction de couche calculée est surtout sensible au degré de remplissage de la dernière couche mise en jeu; elle est négative si cette dernière couche est presque remplie et positive dans le cas contraire. Cet effet est illustré par la figure B2-1 qui montre les oscillations de la correction de couche en fonction de la déformation pour un nombre de neutron N pair compris entre 100 et 126 ainsi que la variation du rapport entre la densités d'états au voisinage de l'énergie de Fermi est la densité lissée pour quelques valeurs de N . La corrélation entre les variations de ces deux grandeurs apparaît très nettement. On vérifiera que la correction de couche est minimale pour la forme sphérique à $N=126$ alors qu'un minimum déformé se développe à $\beta \approx 0.3$ pour $N=106$.

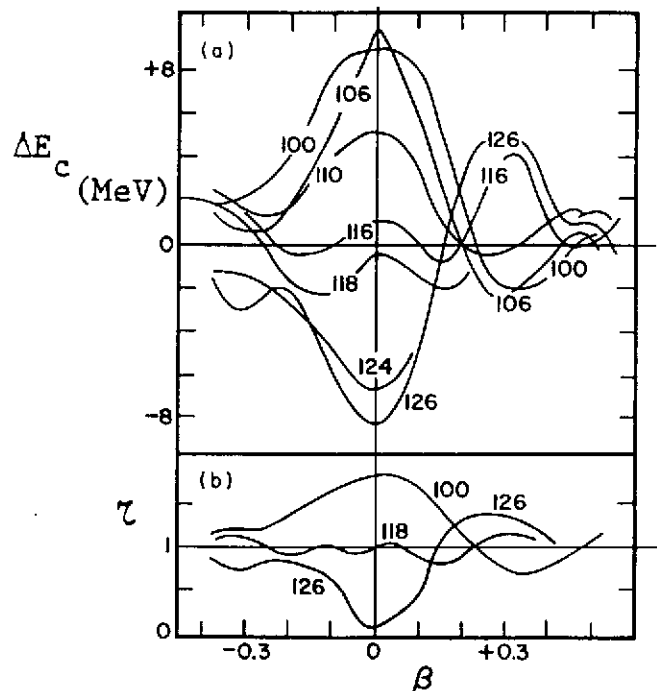


Fig.B2-1: Correction de couches pour les neutrons en fonction de la déformation dans la région $100 < N < 126$.

B-3 - SURFACE D'ENERGIE POTENTIELLE CALCULEE PAR LA METHODE DE STRUTINSKI

Le caractère oscillatoire des corrections de couche va modifier considérablement la surface d'énergie potentielle goutte liquide. La figure B3-1 représente la surface d'énergie potentielle d'un actinide en fonction de son élongation et de sa striction. En comparaison avec celle obtenue pour la goutte liquide on constate en outre la déformation de l'état fondamental, l'apparition d'un second puits de potentiel situé à environ 3 Mev au-dessus du fondamental associé à une forme prolate du noyau assimilable à un ellipsoïde dont le rapport des axes est voisin de 2. On aboutit ainsi à une barrière de fission à deux bosses dont l'allure générale est représentée sur la figure B3-2 pour 3 noyaux lourds de la région Thorium-Californium. On notera que les hauteurs relatives des deux barrières et la profondeur du second puits qu'elles encadrent varient de façon importante avec le numéro atomique Z du noyau. Dans la région des Thorium la seconde barrière est plus élevée que la première alors que l'effet inverse est observé pour les noyaux de Z plus élevé, la barrière la plus haute se situant entre 5 et 6 Mev c'est dans la région Uranium-Plutonium que les deux barrières atteignent des hauteurs voisines et c'est dans cette région que le second minimum est le plus prononcé (~3 Mev).

Cette évolution trouve son origine dans la variation du point selle goutte liquide dont la déformation se rapproche de celle de la sphère lorsque Z augmente (voir figure B3-2), il est dû à une augmentation plus rapide du terme coulombien par rapport au terme de surface.

A la fin des années 70 la méthode de STRUTINSKI s'est imposée très rapidement dans l'étude du phénomène de fission alors qu'initialement cette méthode était orientée vers la recherche des noyaux dits super lourds ($A \approx 300$) dont il fallait préciser l'existence sur le plan théorique. On sait maintenant, et malgré de très nombreuses recherches, que de tels noyaux n'ont pas encore été observés. Sur le plan théorique, la méthode de STRUTINSKI est un succès puisqu'elle est à l'origine de la prédiction d'un deuxième puits à grande déformation. Néanmoins, elle fut dès l'origine qualifiée d'approche phénoménologique ou encore semi classique puisqu'elle ne part pas d'un modèle unique et qu'elle combine sans l'expliquer les aspects classiques et quantiques du noyau.

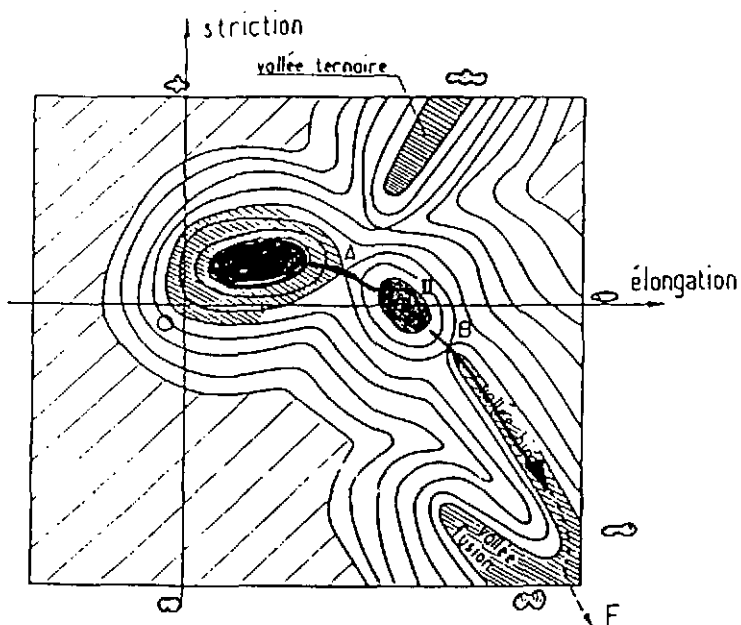


Fig. B3-1: Surface d'énergie potentielle suivant la méthode de strutinski.

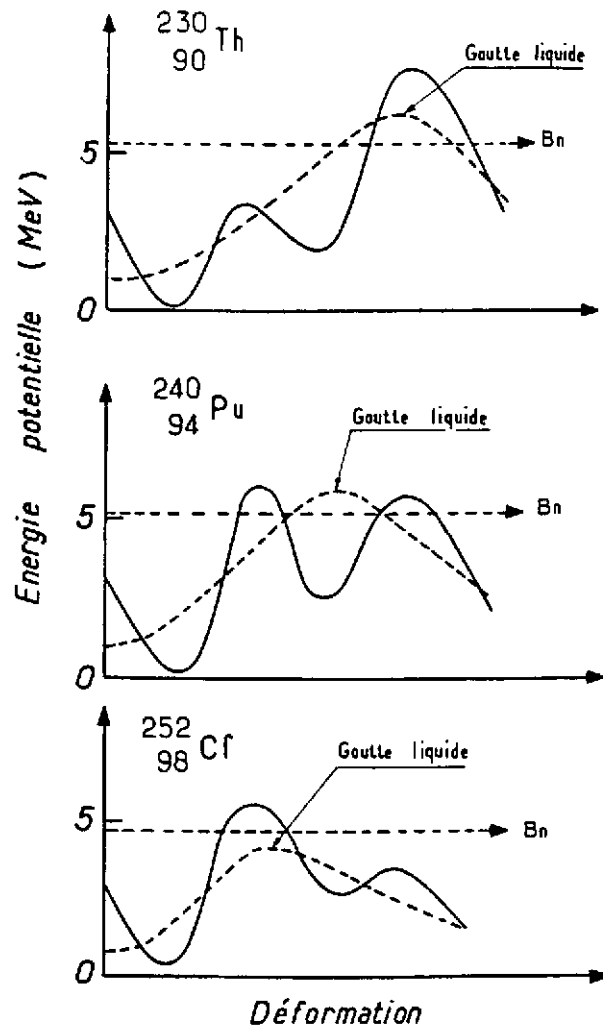


Fig.B3-2: Allure des barrières de fission calculées par la méthode de Strutinski et comparées aux barrières type goutte liquide (B_n est l'énergie de liaison d'un neutron pour le noyau considéré).

B-4 - CALCULS HARTREE-FOCK ET DOUBLE BARRIÈRE DE FISSION

A la même époque des progrès décisifs sont obtenus pour décrire la force nucléon-nucléon, l'augmentation de la puissance de calcul des ordinateurs va permettre les premières approches microscopiques du phénomène de fission. C'est ainsi qu'en 1974, M. BRACK et Ph. QUENTIN apportent une justification microscopique à la méthode de Strutinski, la même année H. FLOCARD réalise le premier calcul self-consistant de la barrière du ^{240}Pu à partir d'une force nucléon-nucléon du type Skyrme. Le calcul conduit bien à une barrière à deux bosses mais les barrières obtenues s'avèrent beaucoup plus élevées que celles obtenues par la méthode de Strutinski. Malgré cet échec, les approches microscopiques vont connaître un progression régulière pour aboutir à la fin des années 80 à des barrières de fission compatibles avec l'expérience. Les progrès réalisés reposent essentiellement sur les points suivants :

- La maîtrise des techniques HFB pour décrire notamment les corrélations d'appariement et les inclure dans les effets de champs moyens. Ces calculs sont du type contraints : des champs extérieurs auxiliaires permettent de rendre compte des aspects collectifs et de la

dynamique du processus de fission . Cette approche permet de générer un ensemble continu d'états qui représentent la totalité des configurations que le système est susceptible d'adopter au cours de son évolution.

- Une nouvelle paramétrisation de la force nucléon-nucléon (interaction D1) développée par GOGNY et employée avec succès pour décrire les noyaux dans leur état fondamental (énergies de liaison, déformations, excitations de basses énergies). La souplesse de sa paramétrisation en fait un outil bien adapté pour décrire les processus nucléaires de grandes amplitudes.

- La prise en compte des ruptures de symétrie du noyau sur le chemin de la fission en considérant que le noyau peut rompre sa symétrie axiale au niveau de la première barrière et qu'il peut être instable vis à vis de l'asymétrie de masse au niveau de la deuxième barrière.

La figure B4-1 illustre, pour le ^{240}Pu , l'influence des ruptures de symétrie sur la hauteur des barrières, on notera la correction importante introduite par la prise en compte de l'asymétrie de masse au niveau de la deuxième barrière.

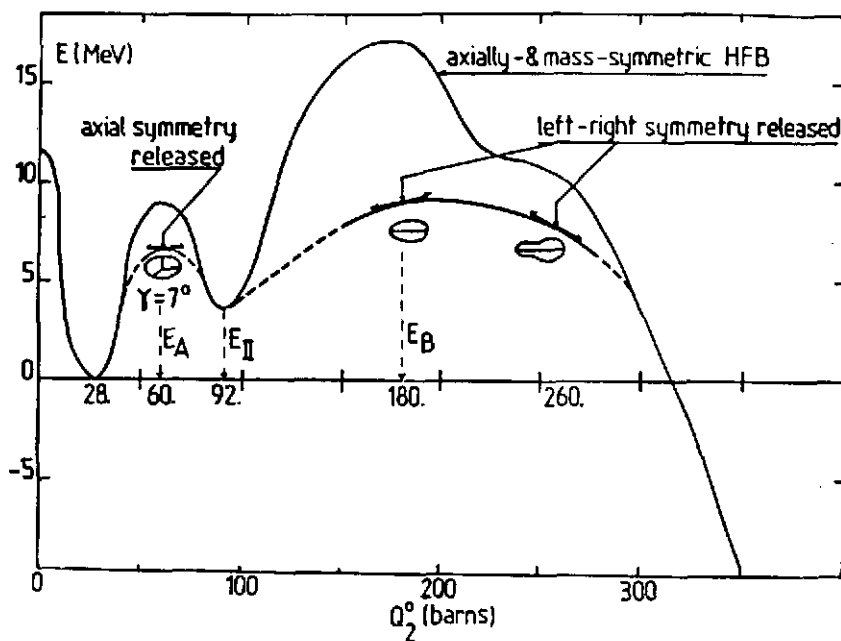


Fig. B4-1: Barrière de fission calculée par la méthode Hartree-Fock-Bogolyubov en fonction de la déformation quadrupolaire (on notera l'effet des ruptures de symétrie aux sommets de la barrière).

Un résultat particulièrement intéressant de ces calculs concerne la surface d'énergie potentielle qui gouverne la scission du noyau ^{240}Pu . La figure B4-2 illustre cette surface dans la région des grands allongements pour lesquels le noyau va se séparer en deux fragments (sur cette figure la surface est portée en fonction des déformations contraintes d'élongation et de striction : Il apparaît nettement deux vallées qui correspondent respectivement au noyau ^{240}Pu avant (vallée de la fission) et après (vallée de la fusion) la scission. Ces deux vallées sont séparées par une barrière dont la hauteur

diminue avec l'élongation pour s'annuler autour de $Q_2 = 370 \text{ barns}$. En partant du second point selle, la scission peut s'effectuer soit à faible déformation par franchissement de la barrière qui sépare les deux vallées soit à déformation plus grande quand cette barrière a disparu. La première éventualité, relativement rare, correspond au processus de fission froide où les fragments de fission sont formés avec une faible énergie d'excitation (qq MeV) et une grande énergie cinétique : c'est le processus de fission sans émission de neutrons observée expérimentalement.

Le second type de scission correspond à la fission dite normale associée à des fragments excités (20 à 30 MeV) avec une énergie cinétique plus faible que dans le premier cas.

Ces résultats montrent s'il en est, la topologie très complexe de la surface d'énergie potentielle d'un noyau fissionnant, complexité déjà remarquée et prise en compte dans les calculs fondés sur la méthode de Strutinski.

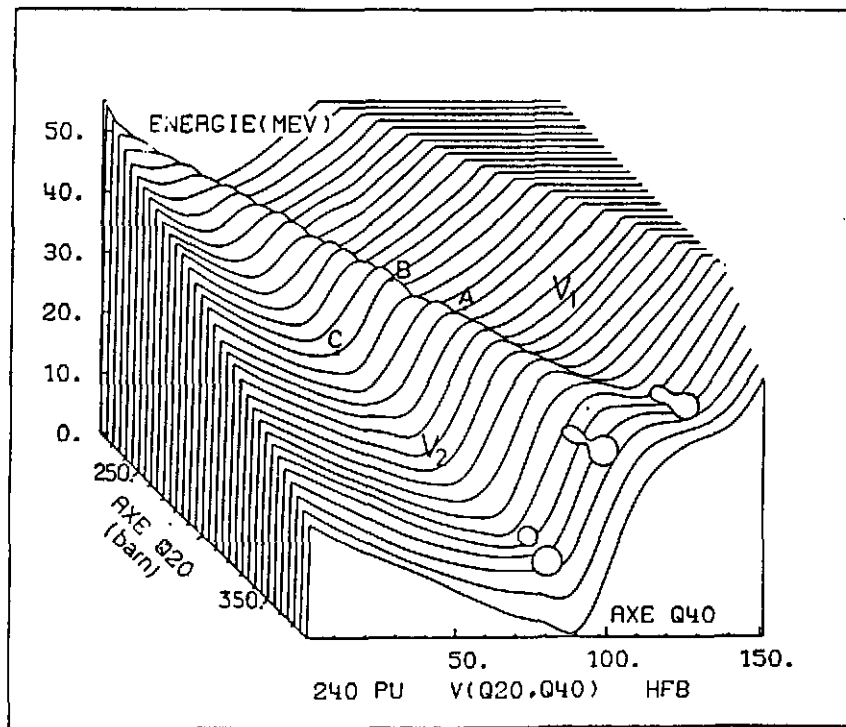


Fig.B4-2: Allure de la surface d'énergie potentielle du noyau ^{240}Pu au-delà de la seconde barrière (Calculs du type Hartree-Fock-Bogolyubov contraint)

C - LA DOUBLE BARRIÈRE DE FISSION ET L'EXPERIENCE

C-1 - CONSEQUENCES EXPERIMENTALES

La présence d'un second puits assure une certaine stabilité au noyau lorsque sa déformation correspond à ce puits. Pour des énergies d'excitation proches du sommet des barrières et dans le cas d'un second puits prononcé (région des Uranium-Plutonium), la double barrière de fission fait apparaître une véritable hiérarchie des états du noyau fissionnant en fonction de sa déformation. Comme l'illustre la figure C1-1 on peut distinguer :

- > les états composés de classe I, normalement déformés et très denses ($D_I = 0.1 / 1 \text{ eV}$)
- > les états composés de classe II, superdéformés, à une énergie d'excitation réduite ($E_{II} \approx 2 \text{ à } 3 \text{ MeV}$) avec une densité de niveaux plus faible ($D_{II} = 0.05 / 10 \text{ keV}$).

Ces états ont des propriétés comparables : leur présence et leur couplage par effet tunnel à travers la barrière intermédiaire ont permis une interprétation cohérente de nombreux faits expérimentaux en désaccord avec les prévisions du modèle de la goutte liquide.

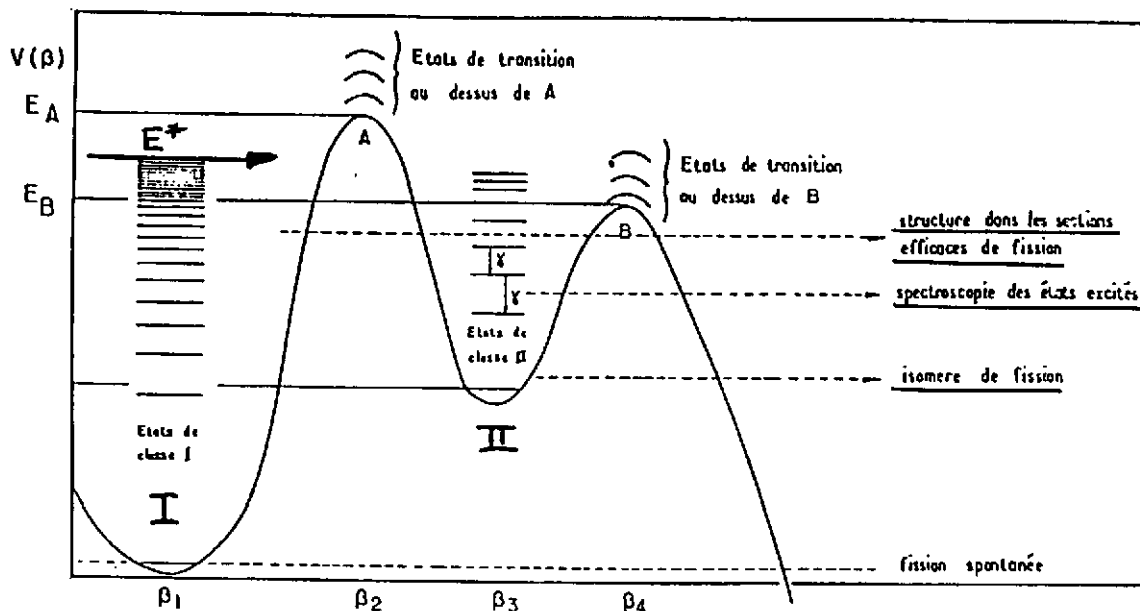


Fig.C1-1: Hiérarchie des états du système fissionnant en fonction de sa déformation et conséquences expérimentales.

- **Isomères de fission :**

Ils correspondent aux états de classe II les plus bas du second puits. La désexcitation de ces états se fait soit par fission après traversée de la seconde barrière soit par émission γ par retour dans le

premier puits après traversée de la première barrière. Ce sont des isomères de forme puisqu'ils correspondent à une déformation plus grande que celle de l'état fondamental du premier puits. Depuis la découverte du premier isomère de forme par Polikanov en 1962, une trentaine de ces isomères ont été observés dans la région Uranium-Berkelium (voir figure C1-2). Leur énergie d'excitation est comprise entre 2 et 3 MeV au-dessus de l'état fondamental de classe I et ils fissionnent avec des périodes de fission spontanée comprises entre 14 ms et quelques dizaines de picosecondes (cette dernière limite étant imposée par les contraintes expérimentales).

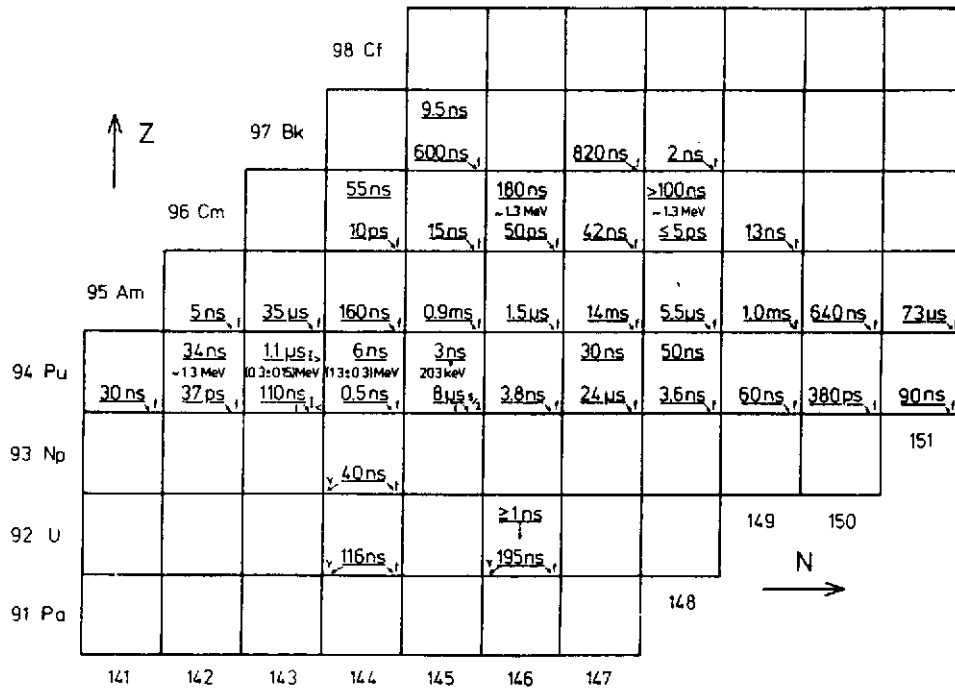
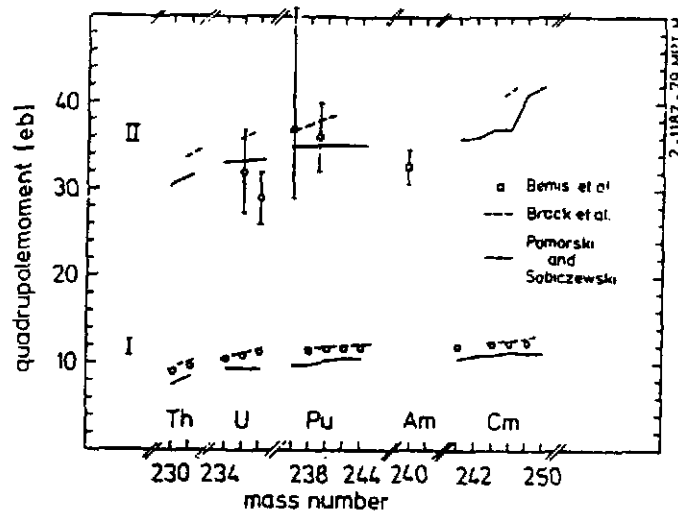


Fig.C1-2: Les isomères de fission observés dans la région des actinides.

Plusieurs mesures ont permis de préciser les propriétés de ces isomères de forme dont une étude spectroscopique détaillée a pu être effectuée par différentes méthodes expérimentales :

- mesure du moment d'inertie associé à la bande de rotation construite sur l'isomère par spectroscopie d'électrons de conversion ($^{236,238}\text{U}$ et ^{240}Pu) quantité mesurée : paramètre d'inertie $\frac{\hbar^2}{2J}$ du second puits environ deux fois plus faible que celui du premier puits (3.3 keV contre 7 keV)
- mesure du moment quadripolaire pour cinq de ces isomères (U, Pu et Am) à partir de mesures de vies moyennes ou mesure du déplacement en fréquence d'une transition atomique lorsqu'on passe du noyau dans son état fondamental à l'isomère (la déformation induit une variation du champ coulombien vu par les électrons).

Les valeurs des moments quadripolaires en bon accord avec les prédictions théoriques, elles correspondent à des noyaux déformés prolates dont le rapport grand axe/petit axe est voisin de 2. (figure C1-3).



Noyau	Isomère			Etat fondamental	
	Q (b)	c/a	Q _{calc} (b)	Q (b)	c/a
²³⁶ U	32 ± 5	1.9 ± 0.1	33.1	10.81 ± 0.11	1.29 ± 0.02
²³⁸ U	29 ± 3	1.8 ± 0.1	33.3	10.84 ± 0.07	1.29 ± 0.02
²³⁶ Pu	37 ± 8	2.0 ± 0.3	34.8 ; 36.7	(11.27 ± 0.15)	1.31 ± 0.02
²³⁹ Pu	36 ± 4	2.0 ± 0.1		(11.3 ± 0.5)	1.31 ± 0.05
²⁴⁰ Am	32.7 ± 2	2.0 ± 0.1			

Fig.C1-3: Moments Quadrupolaires des isomères de fission (II) et des états fondamentaux (I) des actinides. Les valeurs mesurées et les rapports c/a des ellipsoïdes correspondants sont reportés dans le tableau ci-dessous.

• Structures intermédiaires dans les sections efficaces de réaction (n,f)

Dans le domaine des neutrons de résonances, la section efficace totale de capture de neutrons par les actinides présente un grand nombre de résonances correspondant aux états du noyau composé qui sont très voisins des états de classe I mais ces résonances n'apparaissent dans la section efficace de fission de certains noyaux qu'au voisinage de certaines énergies particulières correspondant à la position des états de classe II qui sont moins denses que les états classe I. Les états du second puits jouent le rôle d'état-porte (figure C1-4) vers la fission et sont responsables de ces structures intermédiaires qui ont été observées pour plusieurs noyaux dont le ²³⁷Np.

En utilisant un faisceau de neutrons polarisés sur une cible de ²³⁷Np également polarisée on a pu montré que toutes les résonances fines d'une même structure intermédiaire possédaient le spin et la parité de l'état de classe II responsable de la structure, ce qui confirmait l'interprétation donnée précédemment.

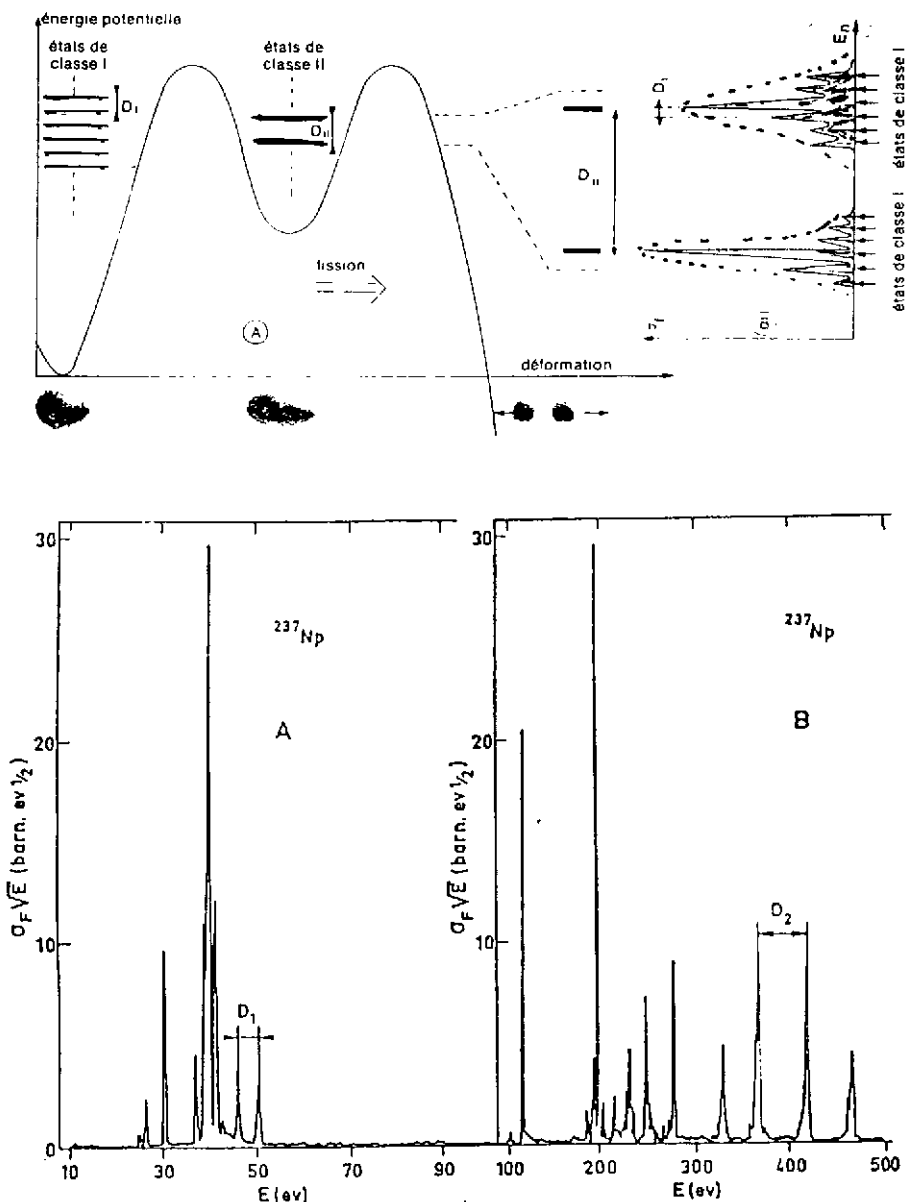


Fig.C1-4: Illustration schématique du phénomène de structure intermédiaire.

• Les résonances de vibration

Parmi les états du premier et du second puits, les états de vibration β vont jouer un rôle particulier dans la fission car la quasi totalité de l'énergie disponible y est concentré dans le degré de liberté associé à la fission. Aux énergies d'excitation pour lesquelles la section efficace de fission devient mesurable (de 4 à 5 Mev pour les actinides), les états de vibration du premier puits sont complètement amortis et ils se retrouvent sous forme de composantes dans les états de classe I ; en revanche les états de vibration β du second puits dont l'énergie effective est plus faible, peuvent être assez bien définis en énergie. Aux énergies de ces états, et comme l'illustre la figure C1-5, le coefficient de transmission de la barrière de fission présente des résonances qui vont se traduire sous forme de résonances de vibration dans la probabilité de fission du noyau.

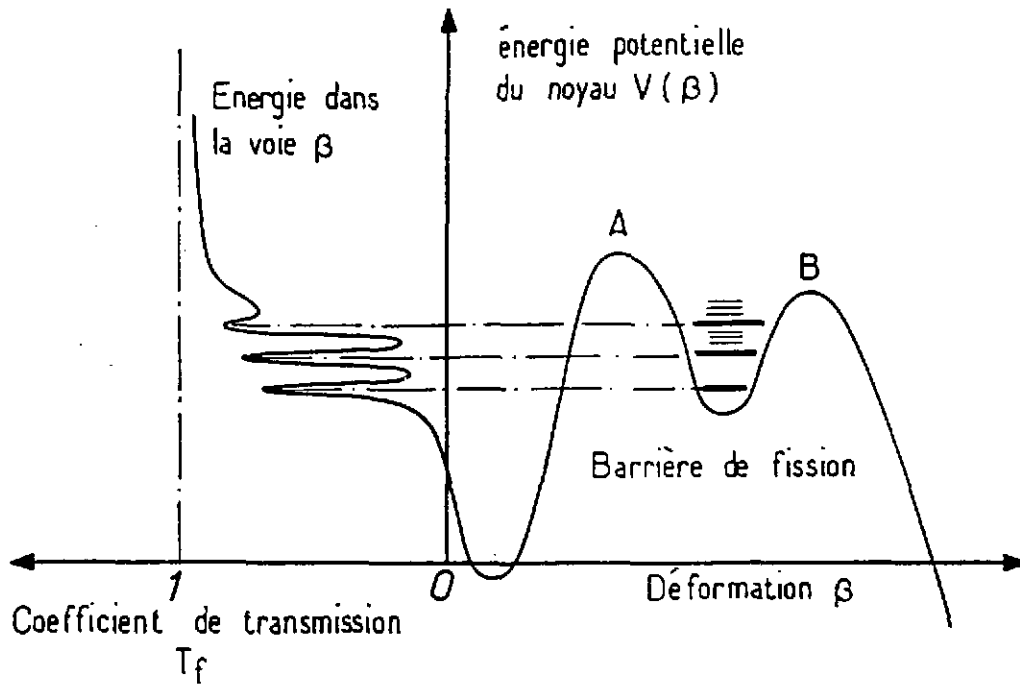


Fig.C1-5: Illustration schématique du phénomène de résonances de vibration sous le seuil de fission (voir texte).

La largeur d'une résonance est directement liée au temps de vie de l'état de vibration qui lui a donné naissance ; elle dépend de sa position en énergie et d'un éventuel couplage de cet état de vibration avec les états de classe II voisins.

De nombreuses résonances de vibration ont été observées, généralement sous le seuil de fission ; certaines de ces résonances présentent une sous-structure attribuée au couplage mentionné ci-dessus. Nous verrons plus tard comment l'étude de ces résonances a permis d'obtenir des informations sur la double barrière de fission.

C-2 - DETERMINATIONS EXPERIMENTALES DES BARRIERES DE FISSION

La majeure partie des informations dont on dispose provient de l'analyse des probabilités de fission et des fonctions d'excitation de production des isomères de forme.

Il faut souligner que ces analyses fournissent généralement les extrema de la double barrière (hauteur des barrière de fission et du second puits) et éventuellement sa forme à partir d'une paramétrisation en série de paraboles jointives (figure C2-1) proposée à l'origine par Los-Alamos et reprise ensuite par l'ensemble de la communauté.

Chaque barrière est définie par sa hauteur E et sa courbure $\hbar\omega$, cette dernière valeur détermine l'épaisseur de la barrière.

- Les isomères de fission

La plupart de ces isomères de forme a été formée par réaction du type (α, xn) , donc par évaporation successive de neutrons et dont une fraction permet d'alimenter l'état fondamental (ou l'un des états excités) du second puits (figure C2-2). On mesure la variation, avec l'énergie de la particule incidente, du rapport entre le nombre de fissions retardées (provenant de

l'isomère) et le nombre de fission promptes; on sait que les taux de production (par rapport à la fission prompte) varient entre 10^{-4} et 10^{-6} , les fonctions d'excitation présentent l'allure caractéristique des réactions à seuil et dont une analyse à partir d'un modèle statistique permet généralement d'extraire la hauteur du second puits E_{II} et la forme de la seconde barrière ($E_B, \hbar\omega_B$).

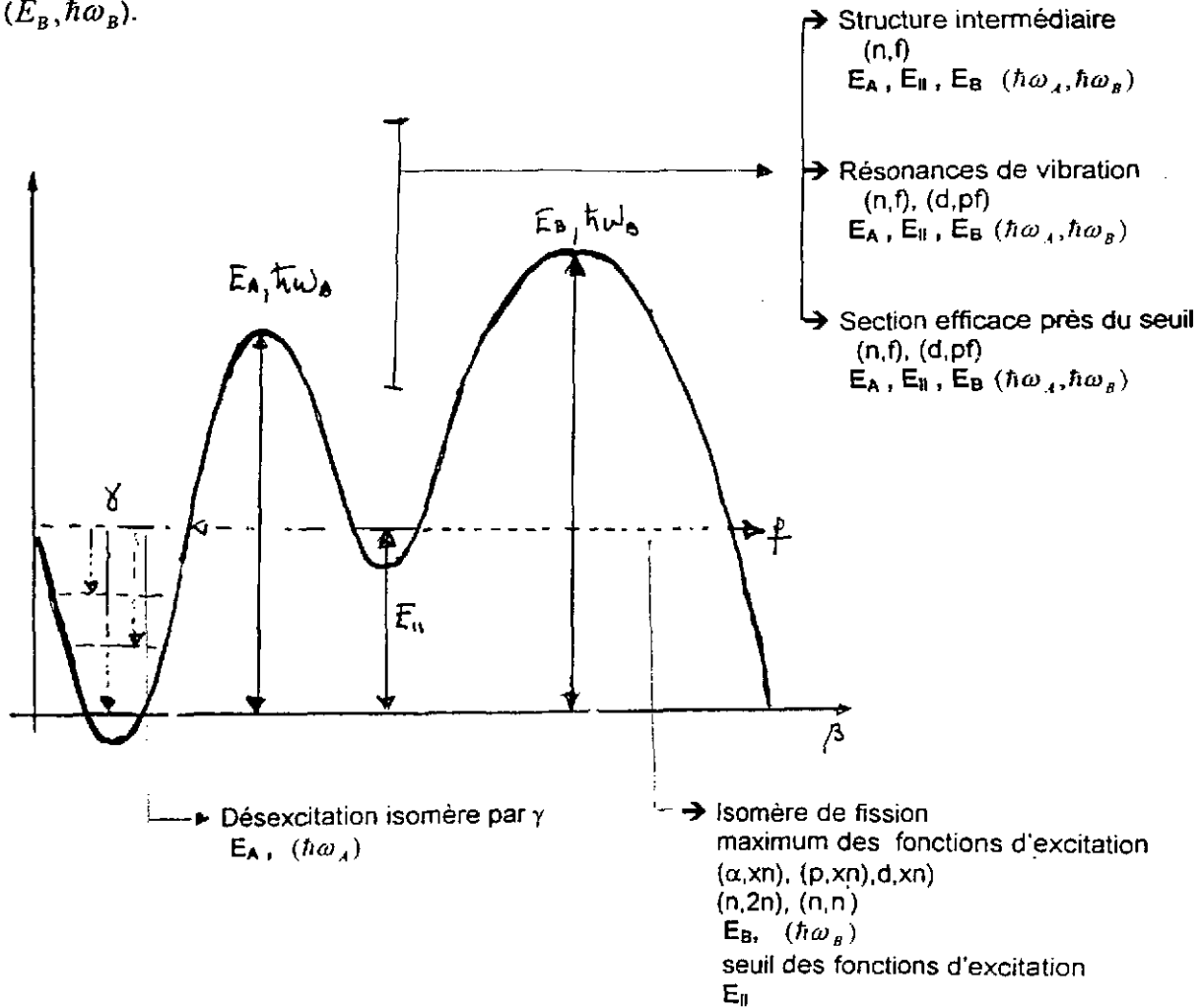


Fig.C2-1: Paramétrisation de la double barrière de fission en série de paraboles jointives et les faits expérimentaux permettant d'en déterminer les paramètres:
 $E_A, E_B, \hbar\omega_A$ et $\hbar\omega_B$: Les hauteurs et les courbures des barrières
 E_{II} : La hauteur du second puits.

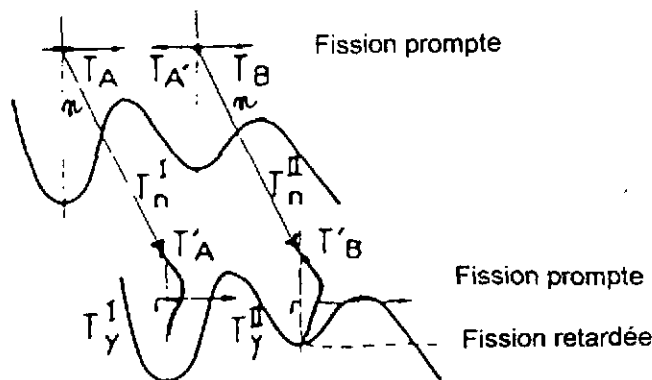


Fig.C2-2: Alimentation des états du second puits par évaporation successive de neutrons.

Soulignons les inconvénients de cette approche indirecte :

- **Sur le plan expérimental :**

pour apprécier le seuil d'ouverture de la fission isomérique dont la section efficace ne dépasse jamais quelques microbarns. Il est fréquent, c'est le cas dans la région des Pu d'alimenter non seulement l'état fondamental mais aussi un état excité du second puits. Par ailleurs, il est souvent difficile d'identifier précisément le noyau fissionnant surtout lorsque plusieurs voies d'évaporation sont ouvertes comme c'est le cas dans les réactions du type (p, xn) ou (α, xn) et il est souvent nécessaire d'utiliser plusieurs réactions croisées pour une bonne identification du noyau recherché.

- **Sur le plan de l'analyse des données :**

cette analyse fait appel à un modèle statistique qui dépend pour décrire la chaîne d'évaporation des densités de niveaux et du paramètre de température, des quantités souvent très mal maîtrisées.

Dans deux cas seulement, une méthode plus directe a permis de situer précisément la hauteur du second puits à partir de la spectroscopie des transitions γ de désexcitation du second puits vers le premier puits; encore s'agit-il de deux cas très favorables (^{236}U et ^{238}U) et uniques jusqu'à ce jour.

- **Les probabilités de fission**

La probabilité de fission d'un noyau peut être obtenue en fonction de son énergie d'excitation

- soit directement par réaction de transfert à partir de projectiles chargés légers
- soit indirectement par capture de neutron ou par photofission en divisant la section efficace de fission mesurée par la section efficace de capture des neutrons ou de gammas incidents.

Pour les noyaux non fissiles par neutrons lents, c.a.d. pour ceux dont le seuil de fission est supérieure à l'énergie de liaison d'un neutron on utilise les réactions du type (n, f) (ou (γ, f)), malheureusement les noyaux accessibles dans ces mesures sont toujours très proches de la vallée de stabilité ($^{232, 233}\text{Th}$, ^{232}Pa , $^{235, 237, 239}\text{U}$).

Pour les noyaux appelés fissiles dont le seuil de fission est inférieur à l'énergie de liaison d'un neutron, on utilise des réactions de transferts du type (d, pf) , (t, pf) , $(^3\text{He}, df)$ pour des énergies de projectiles variant de quelques 10 MeV à 30 MeV; une partie importante de l'énergie cinétique du projectile peut être transmise à la particule légère émise de telle sorte que le nucléon (ou le groupe de nucléons) transféré peut conduire à un niveau d'énergie d'excitation inférieure à l'énergie de liaison d'un neutron dans le noyau résiduel formé. Contrairement aux réactions induites par neutrons, le grand choix des faisceaux de particules chargées légères autorise une très grande souplesse dans le choix de la cible et du noyau fissionnant.

Le mécanisme de ces réactions est bien maîtrisé : son analyse théorique se fait dans le cadre du formalisme DWBA (voir cours spécialisés) en outre le bilan énergétique est bien défini et pourra être mesuré puisque l'on a une interaction à deux corps dans l'état final : il s'agit donc

de mesurer : le spectre direct des particules légères sortantes dont l'intensité donne en valeur relative la section efficace de formation du noyau fissionnant dans un état d'excitation donné (par la cinématique) ainsi que la section efficace du même phénomène, suivi par la fission de ce noyau. (les fragments de fission sont détectés en coïncidences avec les particules légères sortantes). Le rapport des deux spectres fournit donc directement la probabilité de fission du noyau.

Ces probabilités de fission ont été mesurées pour plus d'une trentaine d'isotopes différents, pour certains, la probabilité de fission a été mesurée par plusieurs réactions différentes.

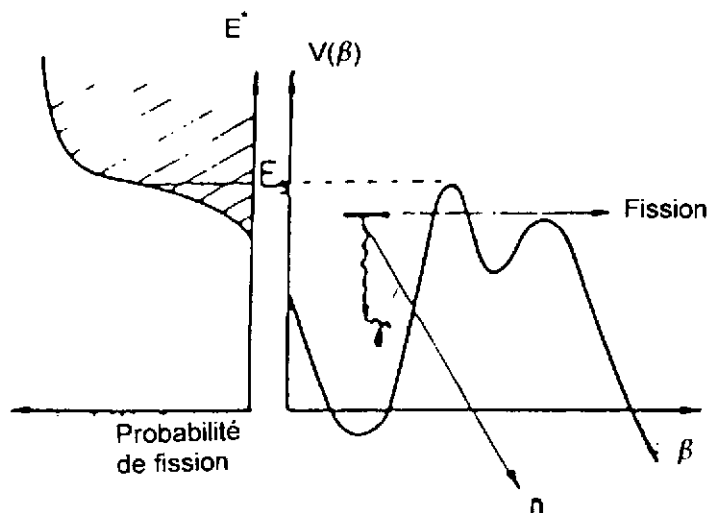


Fig.C2-3: Profil schématique de la probabilité de fission au voisinage du seuil .

Comme l'illustre la figure C2-3 la probabilité de fission croît très rapidement pour des énergies d'excitation voisines de la barrière la plus haute : la valeur du seuil de fission permet en général d'en déterminer la hauteur tandis que la pente de la probabilité de fission permet de déterminer la courbure de cette barrière. Quelques tendances :

- Dans le cas des actinides les plus lourds, pour lesquels la première barrière est plus haute que la seconde, ces mesures permettent de définir hauteur et courbure de cette première barrière et complètent les mesures de la hauteur du second puits et des caractéristiques de la seconde barrière fournies par l'étude des isomères.
- Dans le cas des actinides les plus légers, pour lesquels les deux barrières ont sensiblement la même hauteur, l'analyse des résultats expérimentaux est sensible aux 4 paramètres définissant les barrières, il faut alors généralement fixer les courbures d'après les systématiques pour extraire les valeurs des hauteurs de barrières.

• Méthodes d'analyse

Les données sont analysées à partir d'un modèle statistique qui rend compte de la formation du noyau fissionnant et de sa désexcitation vers les différentes voies de sortie : fission, émission

de neutrons ou de γ , les largeurs partielles associées sont calculées en utilisant des densités de niveaux calculées pour les déformations appropriées du noyau.

Pour obtenir un bon accord avec les résultats expérimentaux il est nécessaire de supposer que le noyau perd sa symétrie axiale quand il franchit la première barrière et qu'il franchit la seconde barrière en empruntant :

- soit un chemin le long duquel il rompt sa symétrie par réflexion (déformation octupolaire d'asymétrie de masse) tout en conservant sa symétrie axiale.
- soit un chemin légèrement plus élevé où il rompt sa symétrie axiale mais conserve sa symétrie par réflexion.

Ces ruptures de symétrie du noyau au niveau des barrières sont, comme nous l'avons vu, très bien expliquées par les calculs de surfaces d'énergie potentielle.

• **Systématiques des barrières de fission des actinides**

Une cinquantaine d'actinides ont ainsi été étudiés, la figure C2-4 représente les résultats obtenus pour la hauteur des deux barrières E_A et E_B . La précision sur ces valeurs est estimée à ± 300 keV. On constate que la première barrière est sensiblement constante et voisine de 6 MeV alors que la seconde barrière décroît de 6.5 MeV à 4 MeV quand on passe du Thorium au Curium.

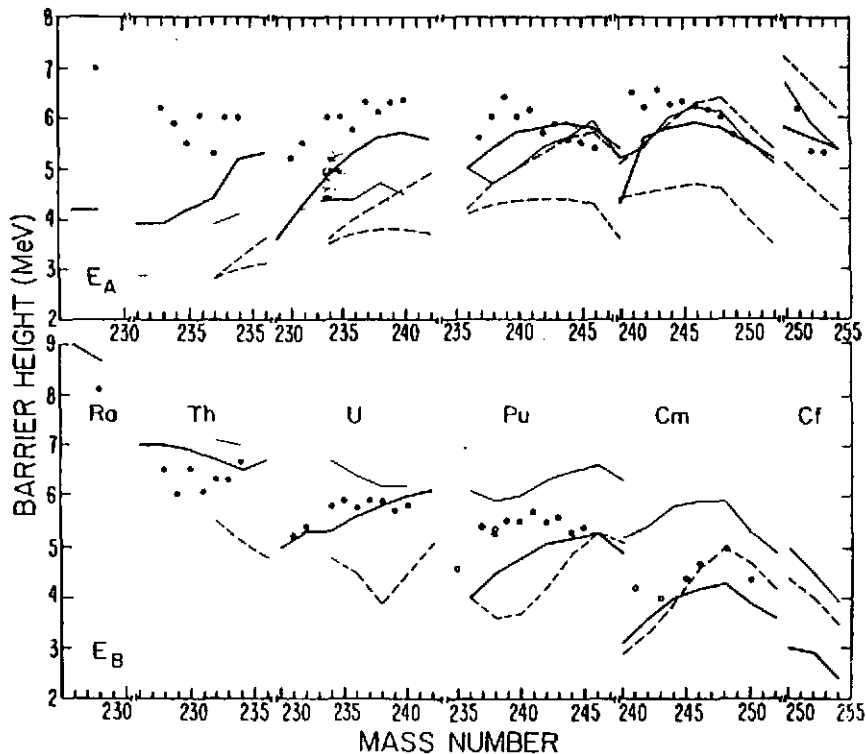


Fig.C2-4: Comparaison des barrières de fission expérimentales à plusieurs calculs théoriques fondés sur la méthode de Strutinski.

On notera que dans la région des Thorium, les premières barrières théoriques sont nettement plus basses que les valeurs expérimentales. Cette anomalie du Thorium est maintenant bien

comprise en considérant un effet de couche secondaire qui creuse le sommet de la seconde barrière asymétrique en masse des noyaux de cette région (figure C2-5) : la première barrière est effectivement très basse, ce sont les deux barrières suivantes que l'on observerait expérimentalement. Les résonances de vibration observées dans les réactions $^{230,232}\text{Th}(n,f)$ et $^{231}\text{Pa}(n,f)$ devraient être dues à des états de vibration du troisième puits. Comme ce troisième puits peu profond (< 2 MeV) est asymétrique en masse, son état fondamental se scinde en deux états de parité opposées séparées d'environ 10 keV : chaque résonance de vibration devrait être formée de la superposition des résonances associées aux deux bandes de rotation construites sur les états de parités opposées.

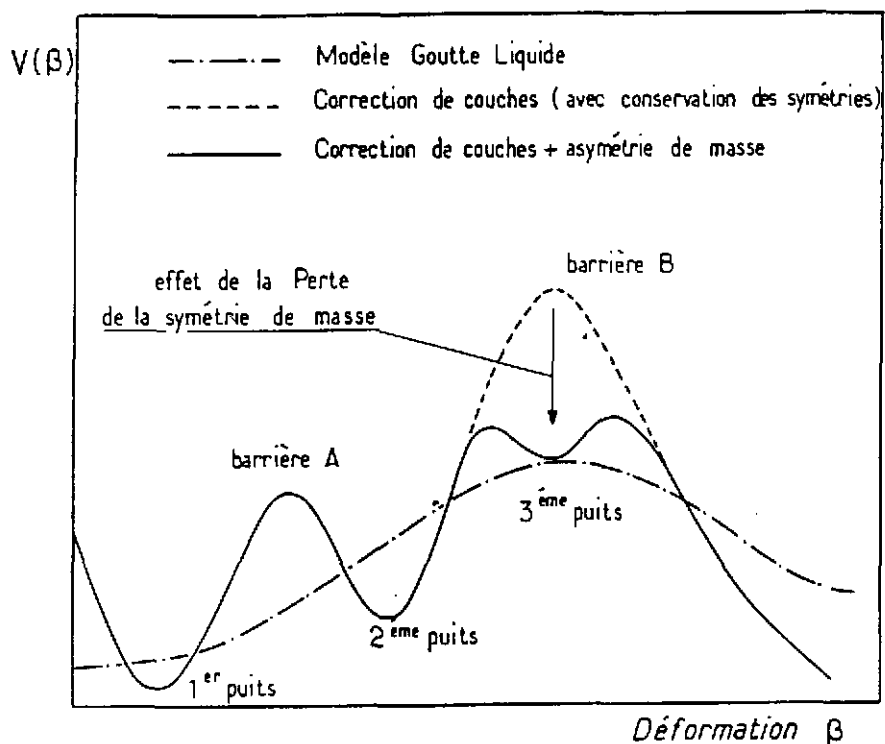


Fig.C2-5: Barrière de fission d'un noyau de la région du Thorium, on notera l'apparition d'un troisième puits au sommet de la seconde barrière.

Dans la région des thorium, nous avons vu que la seconde barrière est en phase avec la barrière goutte liquide, sa forme exacte est donc très sensible aux effets de couche.

Dans la région des Californium et Einsteinium c'est la première barrière qui est en phase avec la barrière goutte liquide ; les résonances de vibration observées dans les probabilités de fission de ces noyaux suggèrent qu'un effet de couche secondaire creuse le sommet de la première barrière pour donner naissance à un puits capable d'assurer une certaine stabilité à des états de vibration. En effet la seconde barrière de ces noyaux est trop basse et les états de vibration du second puits trop larges pour apparaître dans les probabilités de fission.

D - APRES LE POINT DE SCISSION

Après le passage des barrières, le système fissionnant évolue irréversiblement vers la scission. Cette transition est très rapide (quelques 10^{-22} s) et comme l'illustre très schématiquement la figure (D-1), le système y récupère, aux dépens de son énergie potentielle une quantité importante d'énergie (de 20 à 30 MeV) que l'on retrouve essentiellement sous forme d'énergie de déformation des fragments. Juste après la scission, les fragments convertissent leur énergie de répulsion coulombienne en énergie cinétique de translation ; ils atteignent ainsi 90% de leur énergie cinétique finale en $1.3 \cdot 10^{-20}$ s. Dès que la distance entre les deux fragments dépasse la portée des forces nucléaires ($\sim 2.5 \cdot 10^{-13}$ cm), ils disposent d'une énergie de déformation qu'ils convertissent très rapidement en énergie d'excitation interne (cette conversion se fait par amortissement de vibration collectives en $\sim 10^{-21}$ s). Les fragments vont se désexciter tout d'abord en évaporant des neutrons puis des gammas. L'émission des neutrons prompts se fait en 10^{-14} s (la distance entre les fragments est alors de $2 \cdot 10^{-8}$ cm), l'émission des gamma s'effectuant sur une plage en temps beaucoup plus large qui peut atteindre quelques μ s.

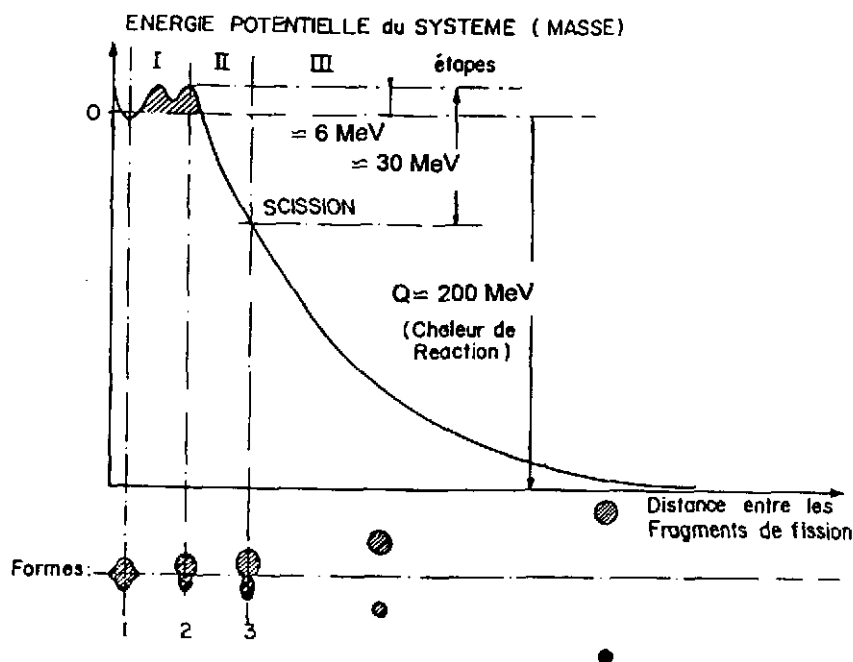


Fig. D-1: Illustration schématique des étapes du processus de fission

Les fragments de fission ainsi formés sont instables car trop riches en neutrons, on les distingue des produits de fission qui rejoignent la vallée de stabilité par désintégration β^- successives (4 en moyenne par fragment). L'émission de neutrons retardés entre parfois en compétition avec une désintégration β^- et si leur contribution ne représente qu'un 1% de l'émission total des neutrons il n'est pas inutile de rappeler leur importance dans le contrôle de la réactivité des réacteurs.

Pour la fission thermique du noyau ^{235}U , les énergies (moyennes) mises en jeu dans l'ensemble des processus prompts et retardés sont les suivantes :

<u>Energie dite prompte</u>		(MeV)
énergie cinétique des fragments		169.0
émission des neutrons		4.8
émission du rayonnement γ		7.0
		180.8
<u>Energie dite retardée</u>		
émission β^-		6.4
émission des neutrons retardés		0.010
émission du rayonnement γ		6.2
émission $\bar{\nu}$		10.0
		22.610
<u>Energie totale libérée</u>		203.410

• **Distribution en masse et en énergie cinétique des fragments**

Les distributions en masse ont d'abord été mesurées par des méthodes radiochimiques c'est à dire quelques millisecondes après l'instant de scission. Il s'agit donc des produits de fission, les méthodes physiques (détecteurs à barrière de surface ou spectromètre de masse en ligne) ont permis de ramener ce temps de mesure à quelques microsecondes après la scission donc avant la désintégration β^- mais toujours après l'émission de neutrons prompts. La distribution des fragments avant cette émission de neutrons est en général inaccessible expérimentalement (à l'exception toutefois des événements rares associés au phénomène de fission froide sans émission de neutrons). La fission asymétrique en masse est la caractéristique essentielle de la fission induite par neutrons thermiques (ou fission spontanée) des noyaux de la région Thorium-Californium ($Z=90-98$). Les distributions de masses correspondantes sont reportées sur la figure (D-2). On vérifiera que la fission symétrique est largement défavorisée. Le rapport pic/vallée est d'environ 600 pour la fission thermique de ^{235}U .

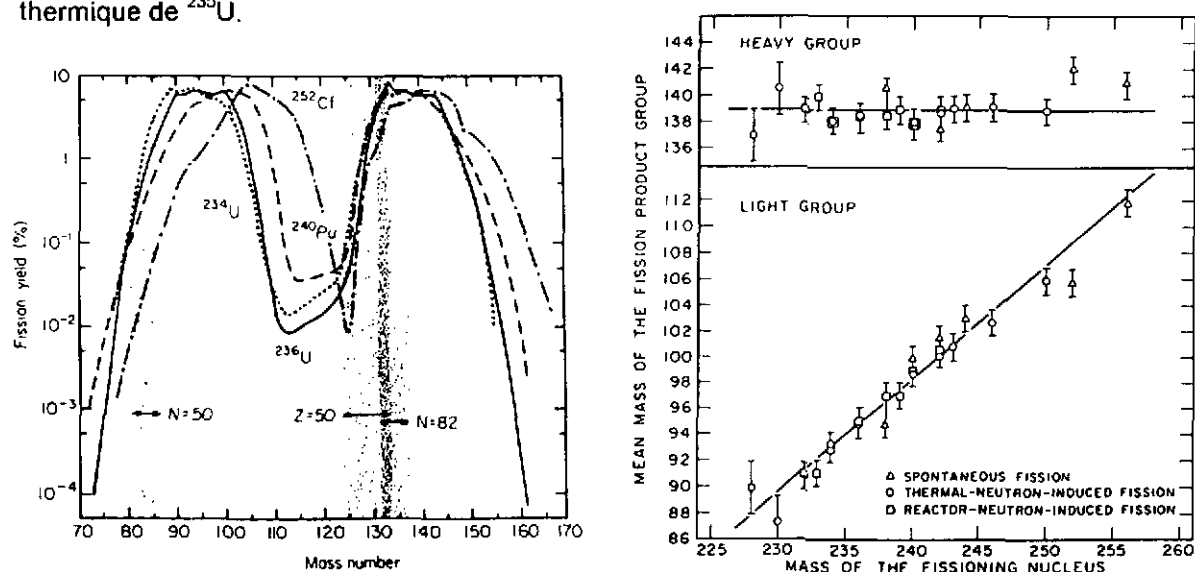


Fig. D -2: Distributions en masse des produits de fission de plusieurs actinides. Evolution des masses moyennes légères et lourdes en fonction de la masse du système fissionnant.

Ces distributions présentent un pic associé aux fragments lourds autour de la masse 139 alors que le pic des fragments légers se déplace vers les masses plus lourdes lorsque la masse du noyau fissionnant augmente, ce qui conduit à une vallée (symétrique) de plus en plus étroite entre ces deux pics. Cette caractéristique est maintenant bien comprise en termes d'effet couches sphériques ($Z=50$ et $N=82$) qui stabilisent le flanc de montée de la distribution des fragments lourds.

La forme de ces distributions de masses varie avec l'énergie d'excitation du noyau fissionnant comme le montre la figure (D-3) concernant la fission induite de ^{235}U par neutrons rapides, le changement le plus important concerne l'augmentation de la fission symétrique.

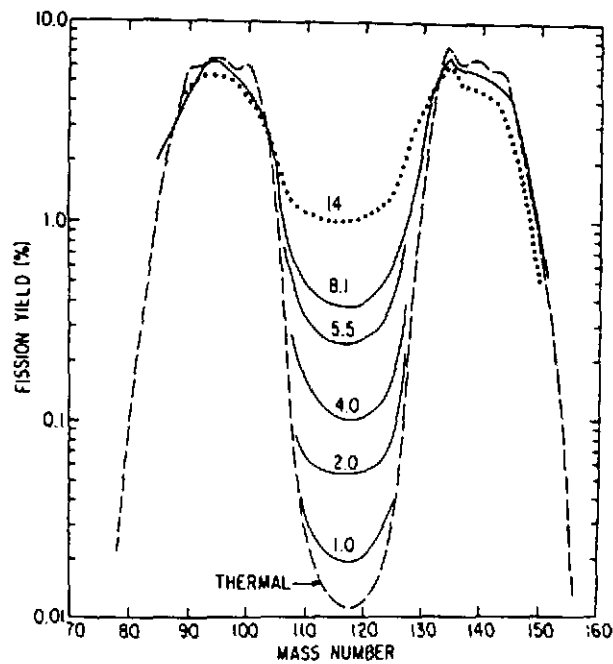


Fig. D-3: Distributions en masse de la fission induite de ^{235}U pour différentes énergies des neutrons incidents.

Le bilan en énergie de la fission thermique de ^{235}U montre qu'en moyenne une énergie d'environ 200 MeV est libérée par la perte de masse (Q de réaction), la majeure partie (environ 170 MeV) de cette énergie se retrouve sous la forme d'énergie cinétique des fragments : la figure (D-4) montre la distribution en énergie cinétique totale des fragments (corrigée de l'émission de neutrons) pour les trois principaux noyaux fissiles ^{233}U , ^{235}U et ^{239}Pu .

L'énergie cinétique totale (EKT) moyenne des fragments augmente avec la masse et la charge du noyau fissionnant comme $(Z^2/A^{1/3})$ en revanche elle est indépendante de l'énergie d'excitation du système fissionnant : on retrouve là l'effet de la répulsion coulombienne des fragments libérés à la scission. La déformation des fragments, puisqu'elle modifie la distance entre les centres de charge des fragments, explique la variation de l'énergie cinétique totale en fonction du rapport de masse des fragments.

Comme le montre la figure (D-5) cette énergie est maximum pour les fragmentations les plus probables (le fragment lourd M_H est quasi-sphérique), en revanche les fragmentations voisines de la

symétrie de masse correspondent à des noyaux déformés qui conduisent à une diminution de leur répulsion coulombienne et par suite à une diminution de l'énergie cinétique totale. Ce déficit en énergie cinétique totale (comparée à la fragmentation la plus probable) est d'environ 20 MeV pour la fission thermique de ^{235}U .

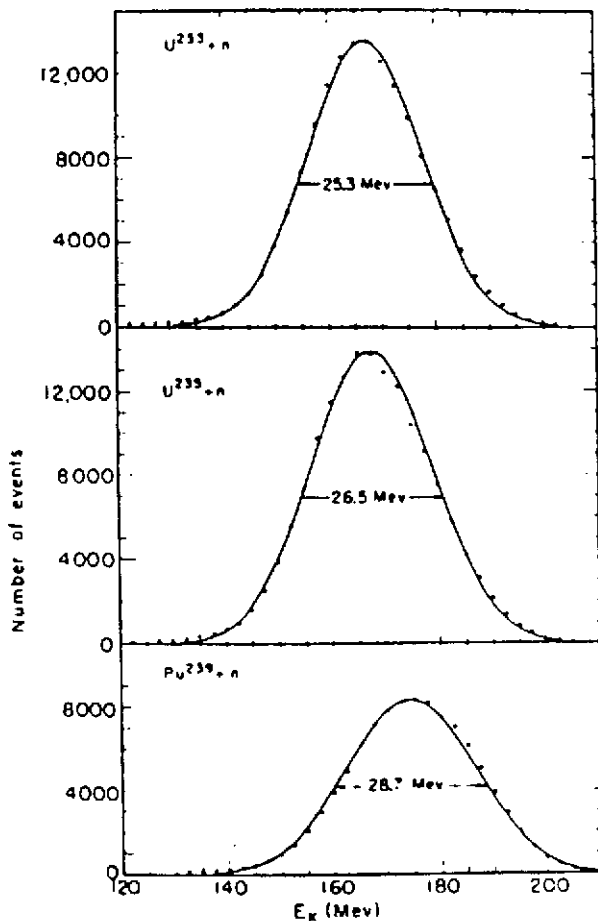


Fig. D-4: Distributions en energie cinétique totale des fragments de la fission induite par neutrons thermiques des noyaux $^{235,235}\text{U}$ et ^{239}Pu .

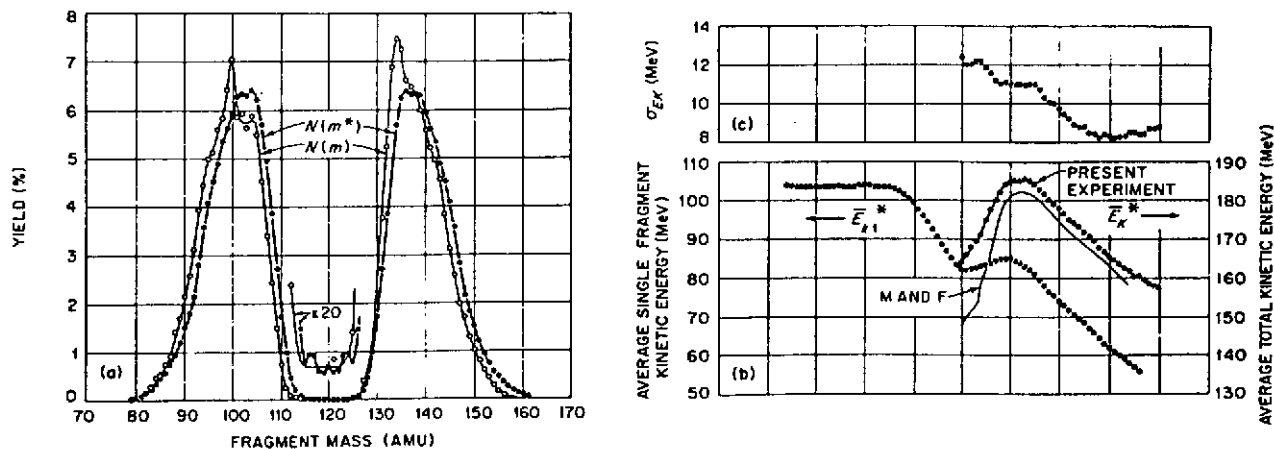


Fig. D-5: Fission induite par neutrons thermiques de ^{239}Pu .

- (a) les distributions en masse avant ($N(m)$) et après ($N(m^*)$) émission des neutrons.
- (b) énergie cinétique moyenne par masse (\bar{E}_k^*) et énergie cinétique totale (\bar{E}_k).
- (c) variance σ_{E_k} de l'énergie cinétique totale en fonction de la masse des fragments.

- **Emission de neutrons**

La multiplicité d'émission a fait l'objet de très nombreuses études, c'est le cas du nombre total moyen de neutrons ν_T et de la probabilité d'émission.

- 2.4 neutrons sont émis en moyenne dans la fission thermique de ^{235}U .
- 2.88 dans le cas de la fission thermique de ^{239}Pu .

Ce nombre moyen augmente régulièrement avec la masse du noyau fissionnant, il est de 4 pour la fission thermique de ^{249}Cf .

Il augmente avec l'énergie des neutrons induisant la fission, l'énergie cinétique des fragments restant constante, l'énergie d'excitation supplémentaire est évacuée sous forme de neutron. Pour les principaux noyaux fissiles l'émission d'un neutron correspond à un incrément en énergie d'excitation de 8 MeV environ.

Une caractéristique importante concerne le nombre moyen de neutron prompts par mode de fission c'est à dire en fonction de la masse du fragment émetteur M.

La variation de ce nombre $\nu(M)$ est représentée sur la figure (D-6) pour différents système fissionnants. Nous retrouvons l'allure classique en dent de scie où, quelque soit le système, $\nu(M)$ présente un minimum au voisinage de la masse 130. Ce minimum est à relier à la très faible déformation des noyaux de cette région de masse dominée par les effets de couches sphériques $N=82$ et $Z=50$.

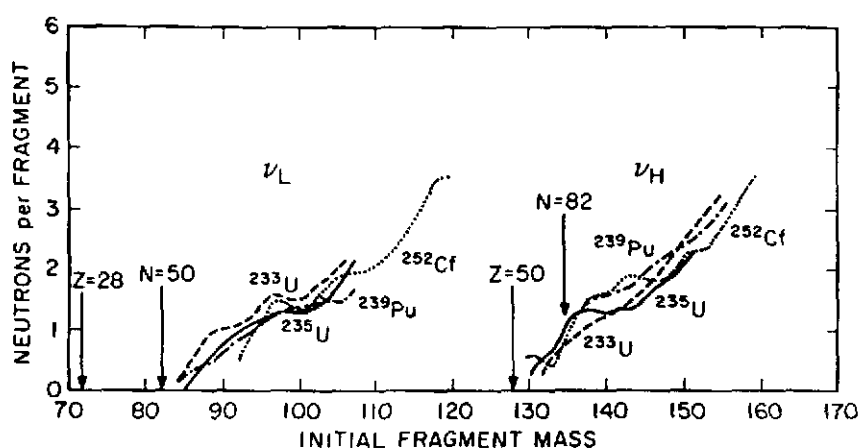


Fig. D-6: Nombre moyen $\nu(M)$ de neutron émis par fragment pour la fission thermique de $^{233,235}\text{U}$ et ^{239}Pu et la fission spontanée de ^{252}Cf .

- **Spectre en énergie et distributions angulaires des neutrons :**

Ces distributions ont été particulièrement bien étudiées dans le cas de la fission spontanée de ^{252}Cf . A partir des mesures les plus récentes on peut dégager les caractéristiques suivantes :

- La distribution angulaire des neutrons est isotrope dans le référentiel de masse de ces fragments. Dans le laboratoire, l'émission des neutrons est fortement piquée dans la direction de vol des fragments
- Le spectre en énergie mesuré dans le laboratoire est distribué entre 0 et 12 MeV environ avec une énergie moyenne de 2 Mev. L'allure de ce spectre en énergie est représentée sur la

figure (D-7) où il est comparé à deux formules semi-empiriques. La formule de Watt est l'expression dans le laboratoire d'un spectre d'évaporation dans le référentiel des fragments de la forme : $\varepsilon \cdot \exp(-\varepsilon/\tau)$ avec une valeur de τ voisine de 1 MeV.

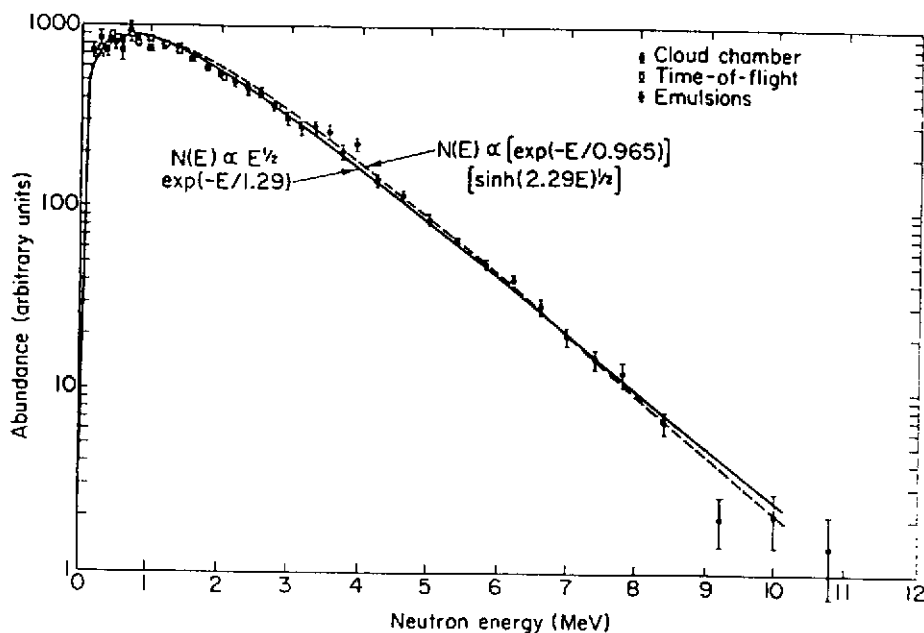


Fig. D-7: Spectre des neutrons prompts de la fission thermique de ^{235}U . Le spectre expérimental est comparé à deux représentations semi-empiriques.

• Emission de rayonnements gamma

Cette émission γ est moins bien connue que celle des neutrons prompts en raison des difficultés expérimentales qu'elle soulève :

- présence d'un bruit de fond γ important provenant des captures de neutron ou de diffusion élastique.
- distribution très large des temps d'émission qui s'étale de quelques 10^{-14} s à plusieurs μs .
- la faible anisotropie (10 à 20 %) des γ comparée à celle des neutrons ce qui rend difficile la séparation des contributions de chaque fragments.

Néanmoins il faut retenir que l'énergie totale moyenne emmenée par les γ est d'environ 7 MeV avec une multiplicité moyenne voisine de 7 pour tous les systèmes étudiés.

La figure (D-8) présente le spectre total en énergie relatif à la fission thermique de ^{235}U .

Il est constitué à basse énergie (non visible sur la figure) des γ de désexcitation yrast des fragments. Cette région a fait l'objet de très nombreuses études concernant la spectroscopie des noyaux riches en neutrons dont la fission est une source de production abondante. Cette région de basse énergie est suivie d'un spectre continu qui s'étale jusqu'à 10 MeV environ (voire au-delà pour la fission spontanée de ^{252}Cf).

Comme le montre la figure (D-9), la variation du nombre de γ émis en fonction de la masse des fragments présente également une allure en dent de scie très semblable en position à celle des neutrons.

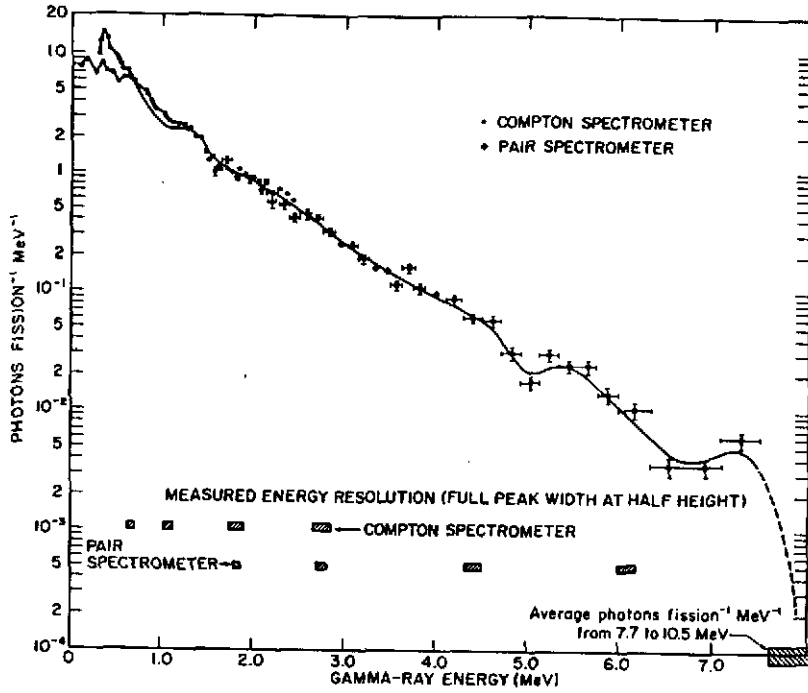


Fig. D-8: Spectre des gamma prompts de la fission thermique de ²³⁵U.

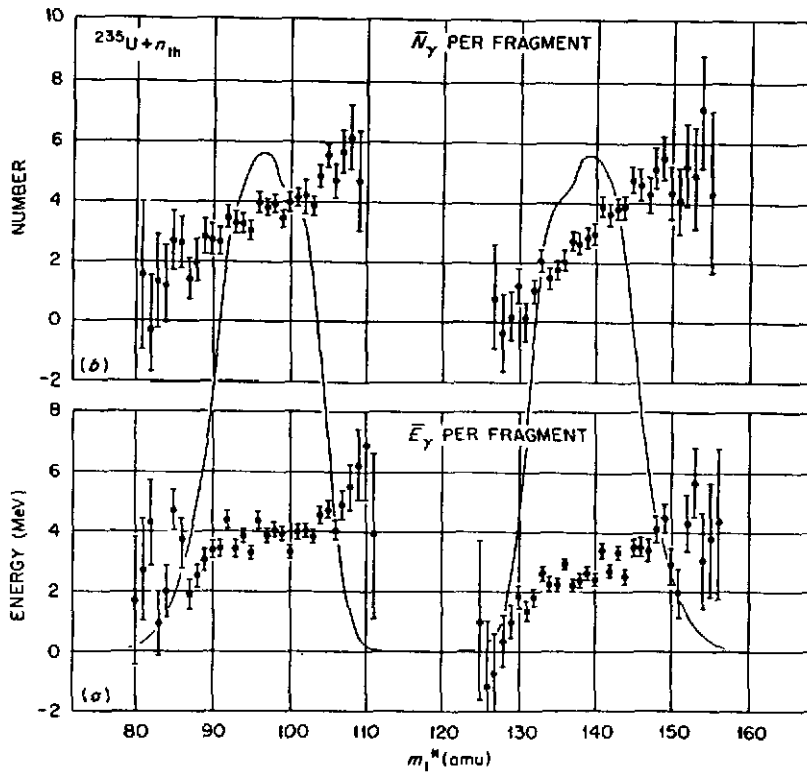


Fig.D-9: Energie moyenne (a) et multiplicité moyenne des γ émis par les fragments dans la fission thermique de ²³⁵U.

E - REACTIONS NUCLEAIRES INDUITES PAR NEUTRONS

La mise en évidence de ces résonances est à l'origine du concept de noyau composé proposé dès 1936 par N. BOHR et encore largement utilisé par la communauté des physiciens nucléaires.

L'interaction d'un neutron avec un noyau cible se déroule en deux étapes :

1. Formation d'un noyau composé de vie longue comparée à la durée de la collision ($\cong 10^{-22}$ s)
2. Désexcitation de ce composite indépendamment de son mécanisme de formation.

L'énergie d'excitation apportée par le neutron est progressivement répartie dans le noyau composé par une série de collisions à deux corps par le biais d'excitations du type n-particules n-1 trous qui vont conduire à des mélanges de configurations complexes dans le noyau à l'issue desquelles le noyau a perdu la mémoire du processus qui l'a provoqué. Néanmoins, certaines configurations peuvent émerger au cours de ce long processus pour lesquelles l'énergie est suffisamment concentrée pour que l'émission d'un nucléon, une transition électromagnétique ou le franchissement d'une barrière autorisée par cette configuration puisse se produire. Ces configurations sont une extension au-delà de l'énergie de séparation du neutron des états discrets (liés) de plus basse énergie, on les qualifie d'états quasi liés ou virtuels.

Ils ont une «énergie», un spin et une parité bien définie, leur durée de vie est plus courte que les niveaux liés puisque l'émission de particule s'ajoute à l'émission γ , mais leur durée de vie reste longue devant la durée d'une simple collision. Pour les noyaux lourds et de masse moyenne, les largeurs totales associées varient entre 0.01 et 2 eV ce qui conduit à des vies moyennes variant de quelques 10^{-13} à 10^{-16} s donc proches des temps caractéristiques des transitions électromagnétiques. C'est ce que confirme l'expérience puisque la capture radiative est souvent le processus dominant de désexcitation.

E-1 - ALLURE DES SECTIONS EFFICACES DANS LE DOMAINE DES RESONANCES

Les hypothèses présentées permettent d'écrire la section efficace de réalisation d'un processus de désexcitation (n→i) sous la forme suivante :

$$\sigma(n, i) = \sigma_{NC}(E_n) \cdot \frac{\Gamma_i}{\Gamma_T}$$

où : Γ_i est la largeur partielle associée à la voie de désexcitation i

Γ_T est la somme des largeurs partielles ouvertes.

Dans la voie d'entrée (définie dans le CM) le noyau composé est défini par :

- son énergie d'excitation : $E^* = S_n + E_n \cdot \frac{A}{A+1}$

- son moment angulaire \bar{J} résultant du couplage du spin de la cible \bar{I} et du moment orbital \bar{l} dans son mouvement relatif tel que $\bar{J} = \bar{I} + \bar{l} + \frac{1}{2}$; à basse énergie.

Dans le domaine des résonances résolues, les neutrons incidents sont du type $l=0$ et pour un noyau cible de spin non nul deux familles de résonances peuvent être alimentées :

$$J_+ = I + \frac{1}{2} \text{ et } J_- = I - \frac{1}{2}$$

- sa parité telle que: $\pi_{NC} = \pi_C \cdot (-1)^l$, c'est celle (π_C) du noyau cible pour $l=0$

Au voisinage d'un niveau résonant situé à l'énergie E_R , un calcul complet permet de montrer que la section efficace de réaction $\sigma(n, i)$ peut s'écrire :

$$\sigma(n, i) = \pi \lambda^2 g(J) \frac{\Gamma_n \cdot \Gamma_i}{(E_n - E_R)^2 + \frac{\Gamma_T^2}{4}}$$

où $g(J) = \frac{2J+1}{2(2I+1)}$ est le poids statistique du moment angulaire J dans la réaction, il reflète, dans

le cas où ni la cible et ni le neutron incident ne sont polarisés, les différentes orientations des moments angulaires dans la voie d'entrée et dans la voie de sortie. C'est la formule de BREIT et WIGNER.

Cette relation est valable pour toutes les voies de réactions à l'exception de la voie de diffusion élastique dans laquelle on doit tenir compte du terme d'interférence entre la diffusion résonante et la diffusion potentielle.

Une expression simple et largement utilisée est celle où la diffusion potentielle est traitée dans le cadre de la diffusion par une sphère impénétrable (ce qui facilite le calcul des facteurs de déphasage) en se limitant à des neutrons incidents dans l'état $l=0$, il vient :

$$\sigma(n, n) = \frac{\pi \lambda^2 g(J)}{(E_n - E_R)^2 + \frac{\Gamma_T^2}{4}} \left[\Gamma_n^2 + 4\Gamma_n (E_n - E_R) \frac{R}{\lambda} \right] + \sigma_p$$

Le second terme représente la diffusion potentielle incohérente, c'est la limite théorique vers laquelle tend la section efficace de diffusion en l'absence de résonances.

Le premier terme représente la diffusion élastique résonante dont l'interférence avec la diffusion potentielle est représentée par l'expression entre [].

C'est le changement de signe de cette expression de part et d'autre de l'énergie de la résonance qui est responsable de l'asymétrie de ces résonances de diffusion élastique, caractéristique qui les distingue nettement des résonances de réaction comme le montre la figure E1-1, ce profil caractéristique est très bien illustré par la résonance à 29 KeV du ^{56}Fe .

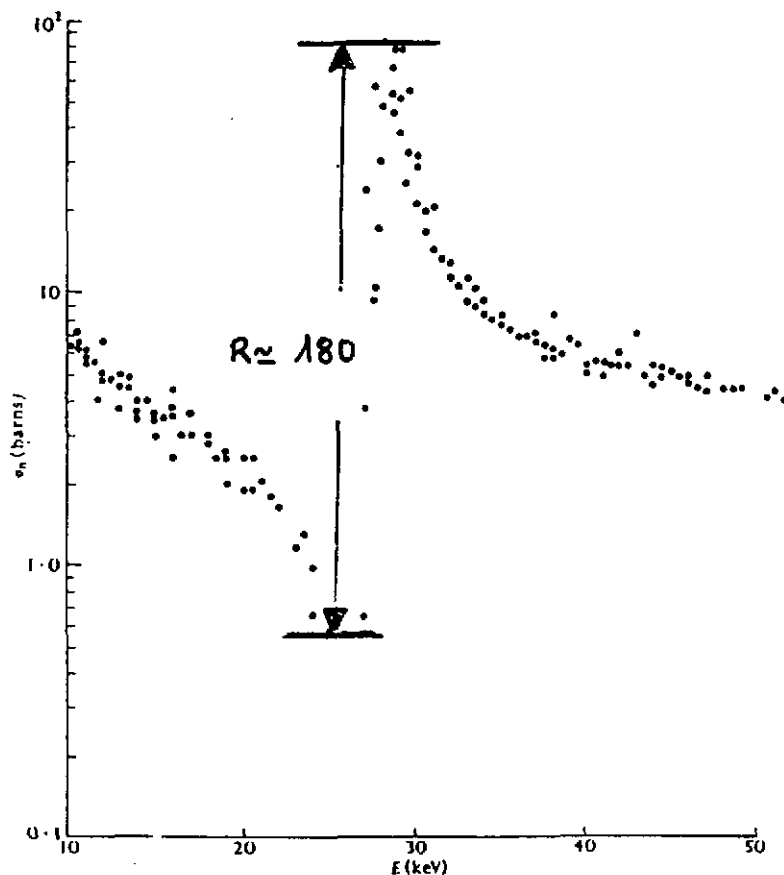


Fig.E1-1: section efficace de diffusion élastique au voisinage de la résonance à 29 KeV de la réaction $^{56}\text{Fe}(n,n)$.

Quelques exemples caractéristiques:

Depuis la découverte de ces résonances, un travail considérable a été effectué pour les répertorier. Les résultats obtenus ont fait l'objet de nombreuses compilations. On peut dégager de ces résultats un certain nombre de grandes tendances :

- à l'exception des noyaux légers et des noyaux lourds, la capture radiative (n,γ) est la réaction dominante dans la région des résonances et à plus basse énergie, mais contrairement aux largeurs partielles élastique et de fission, les largeurs partielles de capture radiative Γ_γ varient peu de résonance en résonance.
- la densité de ces résonances varie considérablement en fonction de la masse du noyau cible :
 - dans les noyaux légers, l'espacement atteint plusieurs centaines de keV, c'est le cas pour les $^{6,7}\text{Li}$ où les résonances les plus basses apparaissent à environ 250 keV avec des largeurs supérieures à plusieurs dizaines de keV.

- pour les noyaux de masse 40 à 100 les espacements diminuent rapidement du kev à la centaine d'ev, alors que pour les actinides, la région des résonances résolues ne dépasse pas les 300 ev (60 ev) pour le noyau ^{239}Pu (^{235}U) avec des largeurs totales qui dépassent souvent l'ev.

Cette évolution rapide de la densité des résonances reflète naturellement la densité des niveaux excités du noyau composé à l'énergie de liaison du neutron. Leur étude constitue d'ailleurs la principale source d'informations de ces densités de niveaux.

Dans le domaine des résonances résolues, leur densité est bien représentée par une expression de la forme :

$$\rho_R(E, J, \pi) \propto e^{2\sqrt{aE}} \cdot (2J + 1) \cdot e^{\left(\frac{-J(J+1)}{2\sigma^2}\right)}$$

où a est le paramètre de densité de niveaux. En dehors des couches fermées, ce paramètre varie linéairement avec la masse : $a \sim (A/8, A/10)$. σ est un paramètre dont la valeur est comprise entre 5 et 7.

En général, les moments angulaires mis en jeu sont suffisamment faibles (< 4 ou 5) pour qu'on puisse négliger le terme exponentiel, la dépendance en moment angulaire des résonances se réduit à la loi simple en $2J+1$ qui se vérifie généralement assez bien.

E-2 - ALLURE DES SECTIONS EFFICACES DANS LE DOMAINE DES NEUTRONS THERMIQUES

Un traitement plus complet montre que la largeur partielle de diffusion élastique est proportionnelle à la vitesse du neutron incident. Il est d'usage de définir une largeur d'émission réduite telle que

$$\Gamma_n^0 = \frac{\Gamma_n^R}{\sqrt{E_R}} = \frac{\Gamma_n}{\sqrt{E_n}} \text{ pour une résonance isolée induite par un neutron } l=0.$$

Dans ces conditions, la section efficace de réaction peut alors s'écrire :

$$\sigma(n, i) = \pi \lambda^2 g(J) \frac{\Gamma_i \Gamma_n}{(E - E_R)^2 + \Gamma^2/4}$$

Dans le cas d'une résonance très large : $\Gamma^2/4 \gg (E - E_R)^2$ ou encore si l'on est très loin de cette résonance $E_R \gg E$, le terme de résonance varie très peu avec l'énergie, on retrouve alors la variation en $1/v$ contenue implicitement dans la longueur d'onde λ . Cette loi est bien vérifiée pour les noyaux légers où les résonances sont bien séparées et apparaissent dans le domaine de la dizaine de kev, c'est le cas des réactions $^{10}\text{B}(n, \alpha)$ et $^6\text{Li}(n, \alpha)$ où les sections efficaces de ces réactions dépassent le millier de barn à $E_N=0.025$ ev (figure E2-1).

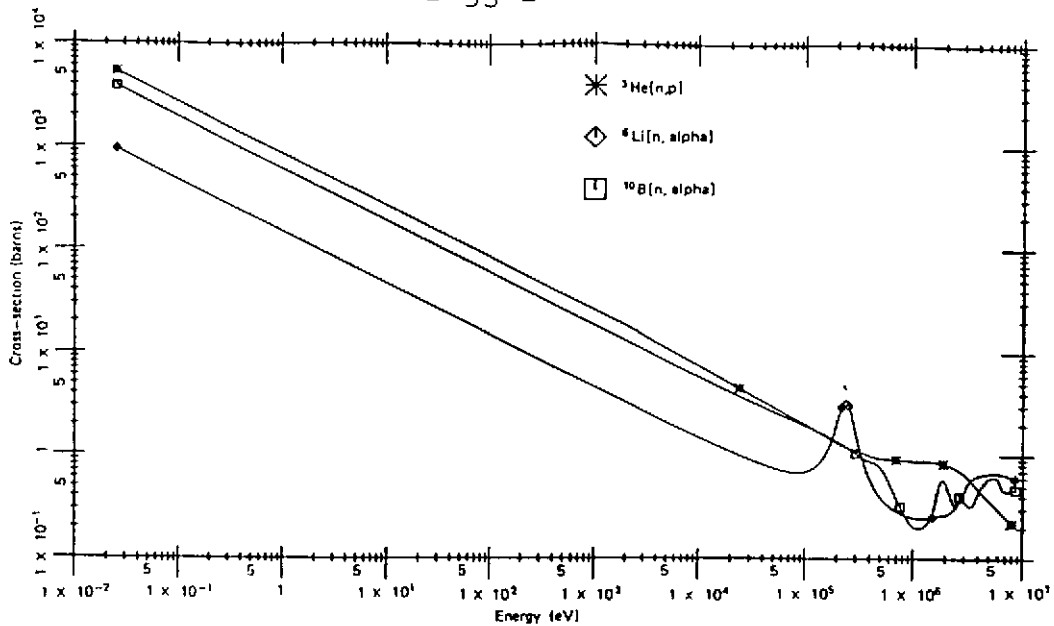


Fig.E2-1: Sections efficaces des réactions $^3\text{He}(n,p)$, $^6\text{Li}(n,\alpha)$ $^{10}\text{B}(n,\alpha)$.

Dans la région des noyaux moyens et lourds, cette relation en $1/v$ est observée dans une gamme plus étroite d'énergie quand elle n'est pas perturbée par une ou plusieurs résonances intenses. C'est le cas des sections efficaces de capture radiative sur les noyaux ^{113}Cd ou ^{115}In où les ailes des résonances à 0.178 eV et 1.45 eV contribuent pour plus de 90 % à la section efficace par neutrons thermiques et dont elles expliquent la valeur anormalement élevée, c'est le cas aussi des sections efficaces très élevées observées pour certains produits de fission tels que: ^{149}Sm ou ^{135}Xe dont les sections efficaces de capture radiative (n,γ) atteignent respectivement 41000 barns et $2.6 \cdot 10^6$ barns (figure E2-2).

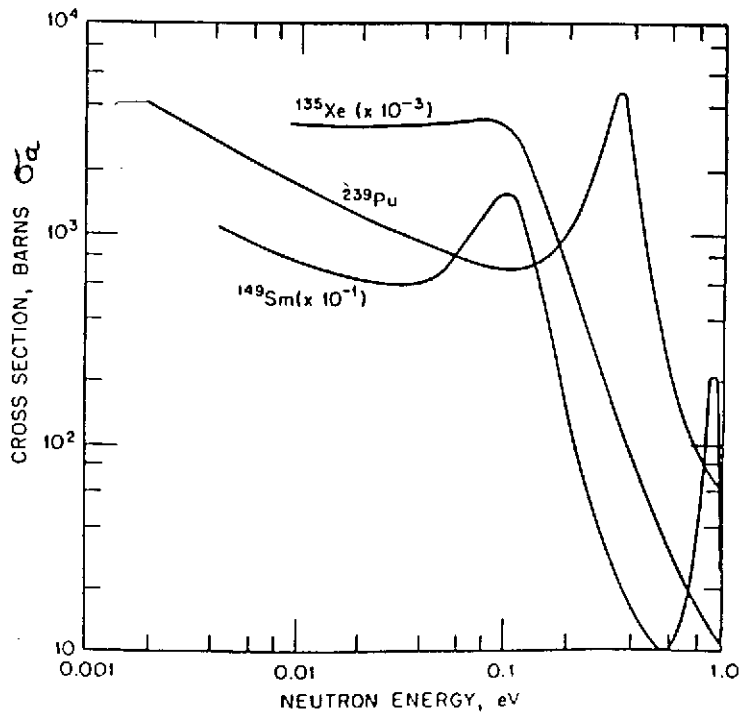


Fig.E2-2: Sections efficaces de capture radiative (n,γ) à faible énergie de neutron pour les noyaux ^{135}Xe , ^{149}Sm et ^{239}Pu .

E-3 - DOMAINE DES RESONANCES NON RESOLUES : LE CONTINUUM

Pour les noyaux moyens et lourds, dès que l'énergie des neutrons dépasse le kev la densité des niveaux excités devient telle que l'on atteint très rapidement le domaine du continuum. L'augmentation des voies de désintégration et en particulier des voies de diffusion inélastique conduit à une augmentation rapide de l'espace de phase. Dans ces conditions, les résonances échappent à l'observation et chaque point de mesure est une moyenne sur plusieurs résonances appartenant à un intervalle Δ correspondant à la résolution expérimentale et supérieur à leur espacement D .

On peut définir une section efficace moyenne de réaction telle que :

$$\bar{\sigma}_R = \frac{1}{\Delta} \int \sigma_R(E) dE = \frac{D}{\Delta} \frac{1}{D} \int \sigma_R(E) dE$$

L'intégrale calculée sur une résonance est égale à : $2\pi^2 \lambda^2 g(J) \frac{\Gamma_n \Gamma_R}{\Gamma_T}$

Dans le domaine des résonances non résolues, à grande énergie, nous savons que : $\Gamma_n \gg \Gamma_T$ donc

$\Gamma_T = \Gamma_n$ et l'intégrale sur chaque résonance s'écrira comme :

$$2\pi^2 \lambda^2 g(J) \Gamma_n$$

Pour les n résonances comprises dans l'intervalle Δ cette intégrale peut s'écrire :

$$2\pi^2 \lambda^2 g(J) \sum_i \Gamma_n^i$$

On obtient finalement pour la section efficace moyenne :

$$\bar{\sigma}_R = \frac{1}{\Delta} \int \sigma_R(E) dE = 2\pi^2 \lambda^2 \frac{\bar{\Gamma}_n}{D}$$

Nous voyons apparaître dans cette expression la quantité $\frac{\Gamma_n}{D}$ appelée encore fonction densité neutronique (Strength Function en anglais).

Cette quantité a joué un rôle essentiel dans l'analyse des sections efficaces neutroniques et de leurs études systématiques en fonction de l'énergie des neutrons et du nombre de masse du noyau cible. Historiquement, son interprétation est, en grande partie, à l'origine des développements du modèle optique.

Un calcul simple va nous permettre d'en donner un ordre de grandeur pour des neutrons du type $l=0$, nous utiliserons pour cela les arguments avancés par Blatt et Weisskopf pour définir le facteur de transmission associé à la désexcitation du noyau composé dans une voie de sortie (i).

Formellement, ce facteur de transmission est égal au rapport du nombre d'essais réussis (N_i) et du nombre total N_0 pour sortir du noyau.

- Le nombre d'essais réussis par seconde est déterminé à partir de la vie moyenne associée à la

voie de sortie (i): $N_0 = \frac{1}{\tau_i} = \frac{\Gamma_i}{\hbar}$.

- Pour déterminer le nombre total d'essais, nous pouvons tout d'abord déterminer le temps au bout duquel le noyau composé a la possibilité de se désexciter dans la voie (i), ceci revient à rechercher quand la fonction d'onde du système revient dans cette configuration particulière : pour l'émission de neutron c'est le temps séparant deux réflexions du neutron à la surface du noyau. Une image simple de ce mouvement nous est fournie par un noyau composé dont le spectre des énergies propres est supposé équidistant autour de l'énergie E_0 de cette configuration particulière et tel que: $E_n = E_0 + nD$.

L'évolution du noyau en fonction du temps peut alors s'exprimer sur la base des fonctions propres φ_n associées à ce spectre :

$$\Psi(t) = \sum_n a_n \varphi_n \exp\left(-i E_n t / \hbar\right) = \exp\left(-i E_0 t / \hbar\right) \sum_n a_n \varphi_n \exp\left(-i n D t / \hbar\right)$$

Cette expression fait apparaître un mouvement périodique de fréquence : $N_i = D / 2\pi\hbar$

La largeur totale du niveau (i) devrait être $\Gamma \approx D/2\pi$ si chaque réflexion sur la surface était réussie, nous savons qu'il n'en est rien à cause des effets quantiques qui contrôlent la traversée de la barrière de potentiel associée à la surface du noyau. Le facteur de transmission T_i de la voie de sortie (i) du noyau composé va alors s'écrire :

$$T_i = 2\pi \frac{\Gamma_i}{D}$$

Dans le cas simple d'un potentiel nucléaire à bord franc et de profondeur V_0 , le potentiel de cette barrière peut s'écrire pour des neutrons du type $l=0$:

$$T_{l=0} = 4 \sqrt{\varepsilon_n / V_0} = 2\pi \frac{\Gamma_n}{D} \Rightarrow \frac{\Gamma_n}{D} = \frac{2}{\pi} \sqrt{\varepsilon_n / V_0}$$

où ε_n est l'énergie du neutron dans le centre de masse du système.

En considérant la largeur réduite ramenée à 1 ev on peut encore écrire :

$$\Gamma_n^0 = \Gamma_n / \sqrt{\epsilon_n}$$

$$\frac{\Gamma_n^0}{D} = \frac{2}{\pi \sqrt{V_0}}$$

Pour un puits dont la profondeur est de 40 MeV on obtient : $\frac{\Gamma_n^0}{D} = 10^{-4}$

Cette valeur est comme nous allons le voir proche des valeurs expérimentales représentées sur la figure E3-1 en fonction de la masse du noyau cible.

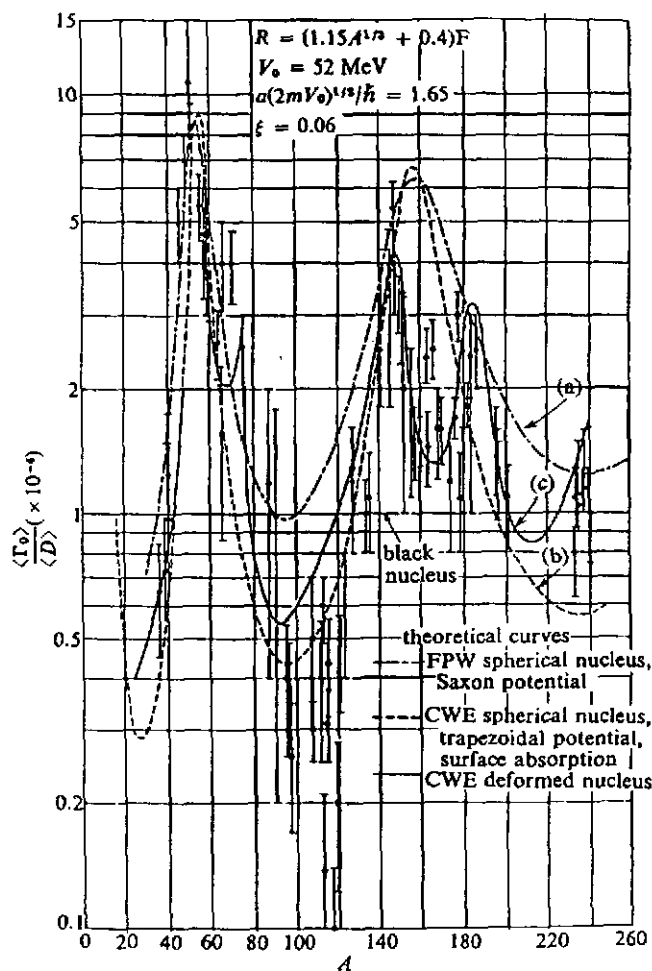


Fig.E3-1: Fonction densité et comparaison avec les prévisions du modèle optique.

On remarquera que cette fonction densité présente des oscillations autour de notre estimation avec des extréma centrés autour des masses : $A \approx 50, 90$ et 160 . On a souvent assimilé les maxima à des résonances de forme en fonction du nombre de masse. Elles s'interprètent aisément dans le modèle simple que nous avons utilisé précédemment en considérant que le rayon du noyau est proportionnel à la longueur d'onde réduite du neutron incident. On peut montrer que cette condition est

approximativement remplie pour les états de particules $3s\ 1/2$ et $4s\ 1/2$ quasiment libres dans le puits de potentiel caractéristiques des noyaux de masse $A=90$ et 160 .

La double structure autour de $A=160$ est attribuée à la déformation des noyaux de cette région. Le minimum autour de $A=90$ est associé à la contribution des captures de neutron de $l=1$ prépondérantes dans cette région de masse (états de particules $2p\ 1/2$ et $2p\ 3/2$). Comme le montre la courbe en trait plein, les tendances mentionnées ci-dessus sont bien reproduites par un calcul de modèle optique.

E-4 - LES CARACTERISTIQUES DE LA FISSION INDUITE PAR NEUTRONS

Comme nous allons le voir à partir de quelques exemples, le formalisme développé précédemment s'applique aux noyaux les plus lourds existants dans la nature : ^{232}Th , $^{235,238}\text{U}$. La présence de la barrière de fission va jouer un rôle essentiel dans la fission induite par neutrons thermiques de ces noyaux. A des énergies aussi basses, l'énergie d'excitation du noyau composé formé par capture de neutron est pratiquement égale à l'énergie de liaison du dernier neutron dans le noyau composé formé. Nous savons que cette énergie de liaison présente un effet de structure (effet pair-impair) dont est responsable la force d'appariement: cette énergie de liaison est systématiquement plus élevée lorsque le noyau composé comporte un nombre pair de neutrons. Comme le montre le tableau ci-contre :

⇒ Energie d'excitation (capture de neutrons thermiques) $E^* \cong S_N(A+1)$

Noyau cible (A)	S_n	B_f	Pf	σ_c	σ_f
	(MeV)			(barn)	
^{232}Th	4.78	6.40	4.10^{-5}	7.56	3.10^{-4}
^{238}U	4.81	6.20	1.610^{-4}	2.73	---
^{233}U	6.84	6.00	0.99	48	531
^{235}U	6.50	5.90	0.977	98	582

Cet effet pair-impair peut atteindre les 2 MeV, en revanche la barrière de fission varie peu d'un noyau à un autre, elle reste voisine de 6 MeV avec des variations de faible amplitude et de signe opposé à l'effet observé sur les énergies de liaison.

L'instabilité de ces noyaux lourds vis à vis de la fission induite est contrôlée par la différence $S_N(A+1)-B_f(A+1)$, il suffit pour s'en convaincre de calculer la pénétrabilité P_f d'une barrière de fission de forme parabolique pour laquelle il existe une expression analytique simple:

$$P_f = \frac{1}{1 + \exp\left(-2\pi \frac{E^* - B_f}{\hbar\omega}\right)}$$

où $\hbar\omega$ est un paramètre de forme de la barrière de fission et dont la valeur est proche de 0.5 MeV pour les actinides considérés.

Les pénétrabilités ont été reportées en colonne 4 du tableau où l'on remarque que :

- elles sont proches de l'unité pour les noyaux fissionnants (A+1) à N pair.
- elles sont très faibles pour les noyaux fissionnants (A+1) à N impair.

Ces considérations nous permettent donc de dégager deux familles de noyaux cibles :

- les noyaux fissiles ^{235}U , ^{239}Pu , qui conduisent par capture de neutron à des noyaux fissionnants dont l'énergie d'excitation est supérieure à la barrière de fission
- les noyaux non fissiles ^{232}Th , ^{238}U , qui conduisent par capture de neutron à des noyaux fissionnants dont l'énergie d'excitation est inférieure à la barrière de fission.

Ces noyaux non fissiles fissionnent plus difficilement et par effet tunnel, c'est ce que l'on a appelé la fission sous le seuil. On les désigne aussi sous le nom de noyaux fertiles car par capture de neutron et désintégration β ils conduisent aux noyaux fissiles ^{235}U et ^{239}Pu .

L'allure des sections efficaces et leurs valeurs absolues distinguent nettement ces deux familles de noyaux : voir figure (E4-1).

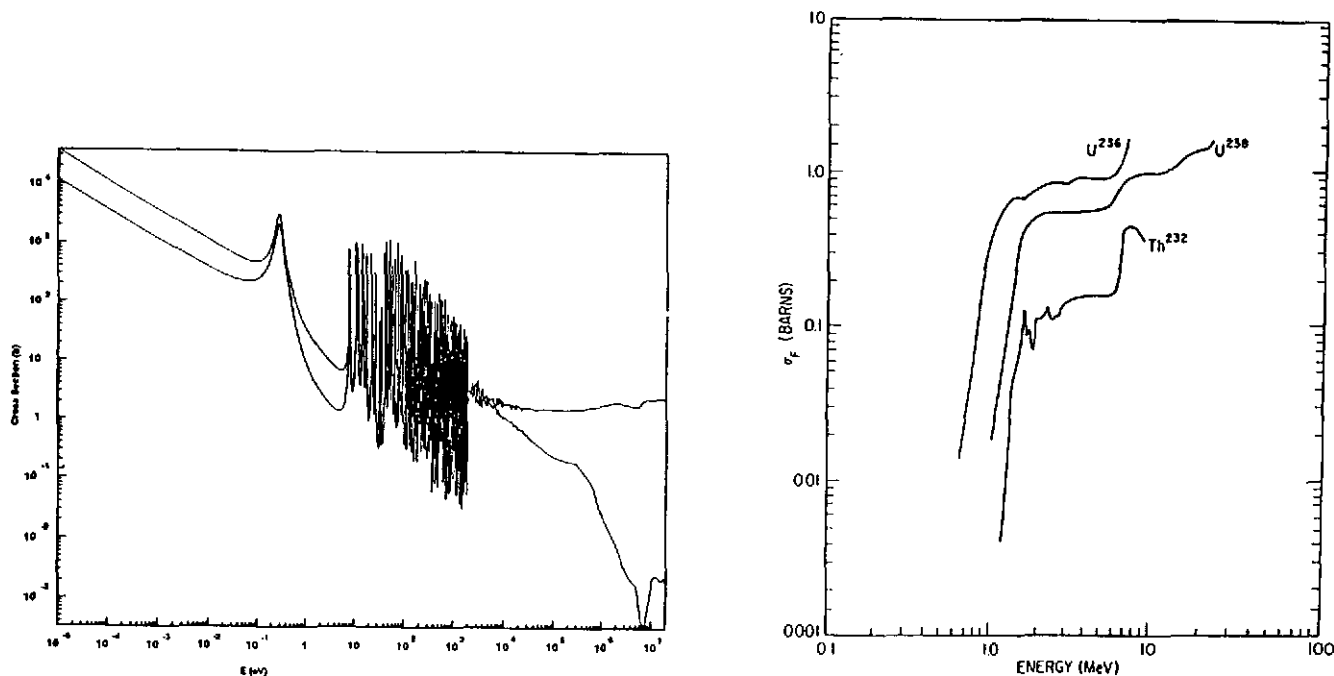


Fig.E4-1: Allure des sections efficaces de fission pour:
 (a) les noyaux fissiles (^{239}Pu)
 (b) les noyaux non fissiles

• Noyaux fissiles

Les noyaux ^{229}Th , $^{233,235}\text{U}$, ^{238}Np , $^{238,241}\text{Pu}$, ^{242}Am de nombre de neutron N impair.

L'allure des sections efficaces fait apparaître trois domaines d'énergie :

- **Domaine thermique** : $E_N < 0.1$ eV

Les sections efficaces de fission par neutrons thermiques atteignent plusieurs centaines de barns, (1000 barns pour le ^{239}Pu), l'allure des sections efficaces, dans ce domaine d'énergie s'apparente à la variation en $1/v$ que l'on observe pour les noyaux plus légers.

- **Domaine des résonances** : $0.1 < E_N < 1-10$ KeV

Pour les deux noyaux fissiles les plus connus, les variations locales de sections efficaces de fission peuvent atteindre ou dépasser le millier de barn.

- **Domaine rapide** :

Ces résonances reposent sur un fond continu qui décroît avec l'énergie pour se stabiliser entre 1 et 2 barns à 10 MeV d'énergie de neutron.

Un nombre considérable de données sur les résonances neutroniques a été accumulé sur les réacteurs rapides. C'est de cette époque que date le développement des sources pulsées de neutrons très intenses obtenues à partir d'accélérateurs de particules chargées. Les fortes intensités de ces sources de neutrons allaient permettre par la méthode du temps de vol de séparer plusieurs centaines de résonances dont les caractéristiques ont été répertoriées.

A cet effet, des formalismes plus élaborés que celui de Breit et Wigner à un niveau ont été développés pour traiter simultanément plusieurs centaines de résonances dont l'espacement Γ et la largeur D ne correspondaient plus à la validité de cette approche ($\Gamma/D \ll 1$). Ces formalismes découlent de la théorie de la matrice R étudiée par Wigner et Eisenbud au début des années 50, c'est le cas notamment des approches multiniveaux développées aux Etats-Unis dans les années 60.

La forte densité de résonances et l'apparition des premiers niveaux résonants à très basse énergie (autour de 0.3 eV pour ^{235}U et ^{239}Pu) expliquent en partie les déviations des sections efficaces de fission par rapport à la loi en $1/v$ dans la région des neutrons thermiques.

C'est le cas en particulier pour le ^{239}Pu dont la section efficace de fission décroît moins vite que la loi en $1/v$. Pour ^{235}U , le comportement inverse est observé, il est attribué à un effet de résonance sur un niveau lié, proche des premiers niveaux résonants.

- **Noyaux non fissiles**

Les noyaux ^{232}Th , $^{236,238}\text{U}$, ^{237}Np , $^{240,242}\text{Pu}$, ^{241}Am de nombre de neutrons pair.

Leurs sections efficaces de fission ne débutent réellement qu'au-delà de la zone de résonance par une augmentation brutale de la section efficace : l'énergie seuil correspondante varie de plusieurs centaines de keV à 2 MeV environ (au voisinage du MeV pour ^{238}U). Au delà de cet énergie seuil, le profil de section efficace rejoint celui des sections efficaces des noyaux fissiles : c'est en particulier le cas pour le plateau de section efficace qui précède, au voisinage d'une énergie de neutron de 6 MeV, l'ouverture du seuil de fission de seconde chance qui correspond à l'évaporation d'un neutron suivi de la fission d'un noyau résiduel dont l'énergie d'excitation est encore au-dessus de son seuil de fission.

On conçoit facilement que la section efficace de ces noyaux non fissiles va être très sensible à la forme de la barrière de la barrière de fission, c'est le cas de la fission sous le seuil dont les caractéristiques ont permis l'exploration de la double barrière de fission.

E-5 - PROPRIETES CARACTERISTIQUES DES NIVEAUX DE RESONANCES

Les énergies des niveaux excités que l'on peut atteindre expérimentalement sont à peine supérieures à l'énergie de liaison du neutron dans le noyau composé formé, c.a.d comprise entre 5 et 8 MeV. L'énergie et la densité de ces niveaux sont trop élevées pour que la théorie puisse prévoir les propriétés individuelles de ces niveaux dans le cas des noyaux lourds ; on ne peut que traiter leurs propriétés statistiques obtenues à partir d'un grand nombre de niveaux résonnants.

Quelques propriétés de cet échantillon :

➔ cet échantillon est prélevé dans un intervalle d'énergie (qq 100 eV) autour de 6 MeV donc une infime partie de l'énergie d'excitation du noyau composé en ce qui concerne la gamme d'énergie où les résonances sont résolues.

➔ Cet échantillon ne contient que les niveaux pour lesquels les conditions quantiques de spin et de parité imposées par le noyau cible et le neutron incident sont remplies. Dans le cas le plus simple des neutrons dits «s» notre échantillon comprendra l'ensemble des deux populations de spin et de même parité.

➔ Expérimentalement, cet échantillon est caractérisé par l'espacement des niveaux résonnants et de leurs largeurs partielles de désexcitation, ce sont leurs distributions dont nous allons maintenant parler.

• Espacement des niveaux résonnants

Les espacements des niveaux appartenant à une même famille de spin et de parité suivent une distribution dite loi de Wigner qui a été vérifiée expérimentalement. La probabilité pour qu'un

espacement réduit : $x = \frac{S}{\langle D \rangle}$ soit compris entre x et $x+dx$ s'écrit :

$$F(x) = \frac{\pi}{2} x \cdot \exp\left(-\frac{\pi}{4} x^2\right)$$

On notera que la probabilité de trouver un espacement nul est extrêmement faible, c'est ce que l'on a appelé la loi de répulsion des niveaux.

L'étude de la distribution des espacements de niveaux a fait l'objet de très nombreux travaux théoriques, néanmoins la loi simple proposée par Wigner a toujours eu la préférence des expérimentateurs car en pratique l'écart entre la loi de Wigner et une loi plus élaborée n'est pas décelable expérimentalement.

REM : à partir de cette loi on peut dégager la loi décrivant la superposition des espacements relatifs à deux états de spin. Cette loi dépend du rapport des populations (k).

• Distributions des largeurs partielles

Comme nous l'avons déjà souligné, un état du noyau composé est la superposition

d'un très grand nombre de configurations différentes du couple neutron incident noyau cible. Néanmoins, l'analyse statistique des données expérimentales a permis de dégager le concept de **voies de sortie** dans la désexcitation du noyau composé.

Ce concept découle des études théoriques menées par PORTER et THOMAS dans les années 60 pour décrire les fluctuations des largeurs partielles des niveaux résonants.

Formellement, les auteurs ont montré que ces fluctuations obéissaient aux lois de distributions en χ^2 à ν degrés de liberté:

$$P(x, \nu) = \frac{\nu/2}{\Gamma(\nu/2)} \left(\frac{\nu x}{2}\right)^{\nu/2-1} \exp\left(-\frac{\nu x}{2}\right)$$

$$x = \frac{\Gamma_i}{\langle \Gamma_i \rangle} \quad \text{et} \quad \nu \quad \text{nombre de voies de sortie}$$

La variance d'une telle distribution est: $\langle x^2 \rangle - \langle x \rangle^2 = \frac{2}{\nu}$.

La dispersion est d'autant plus faible que le nombre ν de voies de sortie est grand.

Dans la pratique, les distributions expérimentales ne coïncident pas toujours avec un terme de la famille définie ci-dessus où le nombre de degré de liberté est égal au nombre réel de voies de sortie ; on choisira plutôt une distribution théorique correspondant à un nombre de degrés de liberté **apparent** ν_{ap} , non nécessairement entier, inférieur au nombre réel de voies de sortie ν telle que :

$$\nu_{ap} < \nu.$$

Dans le cas d'un mode de désexcitation à peu de voies de sortie, la comparaison entre ν_{ap} et le nombre attendu de voies de sortie peut donner des renseignements sur le degré d'ouverture des voies comme nous allons le voir pour la fission.

Nous commencerons par les cas les plus simples :

- **La diffusion élastique** dont les largeurs partielles Γ_n présentent des fluctuations très importantes avec une concentration très inférieure à la valeur moyenne. La distribution correspondante est compatible avec une distribution à **une voie de sortie** (émission du neutron dans la voie d'entrée), $\nu=1$.
- **Les largeurs partielles Γ_γ** varient peu d'une résonance à une autre avec une forte concentration autour de la valeur moyenne, caractéristique d'une distribution dont **le nombre de voies de sortie peut atteindre ou dépasser 50**. Cette valeur reflète simplement le grand nombre de voies de désexcitation possibles associées à la capture radiative.

• **Les largeurs de fission**

L'expérience montre de fortes fluctuations dans les largeurs de fission de résonance à résonance incompatibles avec un processus à grand nombre de voies de sortie identifiées à toutes les paires différentes de fragments produits dans la fission ; la solution de ce problème fut apportée par BOHR à partir d'une redéfinition de la notion de voies de fission compatible avec les distributions expérimentales des largeurs de fission.

• **La théorie des voies de fission (A.Bohr 1955)**

L'idée de Bohr part du fait que, pour les actinides de A impair, l'énergie d'excitation du noyau composé pair-pair formé par capture de neutron lent est voisin de la hauteur de la barrière de fission, une étape intermédiaire importante devrait donc être le passage du point selle que le noyau fissionnant franchit avec peu d'énergie d'excitation puisque la plus grande partie de celle-ci a été utilisée en énergie de déformation. Les états quantiques énergétiquement accessibles au sommet de la barrière de fission devraient être peu nombreux et similaires aux premiers états collectifs du noyau dans sa forme d'équilibre stable. Le schéma de ces états collectifs constitue donc une base pour la recherche des voies de fission possibles. Prenons l'exemple de ^{236}U formé par capture de neutrons s: les voies de fission sont définies par les nombres quantiques J, K, Π : 3- (deux voies de sortie possibles) et 4- (une voie de sortie possible). Chaque voie de sortie définit une barrière de fission dont la hauteur dépend de l'énergie d'excitation de l'état de transition. La pénétrabilité d'une telle barrière (supposée parabolique) est donnée par la formule de HILL et WHEELER:

$$P_f^{J,\pi} = \frac{1}{1 + \exp\left(-\frac{E - E_B^{J,\pi}}{\hbar\omega}\right)}$$

A partir de cette expression on peut définir une largeur de fission à partir des arguments suivants : le temps moyen au bout duquel le noyau retrouve cette configuration de point selle est défini par: $\tau_0 = 2\pi / \langle D \rangle$, à partir du principe d'incertitude on définit une largeur moyenne de fission : de la

probabilité moyenne de fission par seconde : $\lambda_f^{J,\pi} = P_f^{J,\pi} / \tau_0$, il vient : $\langle \Gamma_f^{J,\pi} \rangle = \hbar \lambda_f^{J,\pi} = \langle D \rangle P_f^{J,\pi} / 2\pi$

- **Degré d'ouverture d'une voie** : elle dépend de la pénétrabilité de la barrière correspondante : la voie est complètement ouverte ($P_f^{J,\pi} \approx 1$) si $\frac{E_f^{J,\pi} - E}{\hbar\omega}$ est inférieur à -0.4 ; elle est pratiquement fermée ($P_f^{J,\pi} < 0.01$) si $\frac{E_f^{J,\pi} - E}{\hbar\omega}$ est supérieur à 0.7.

On peut alors définir pour un état quantique J^π du noyau composé une fonction densité donnée par la relation :

$$2\pi \frac{\langle \Gamma_f^{J,\pi} \rangle}{\langle D_f^{J,\pi} \rangle} = \sum_{J,\pi} P_f^{J,\pi}$$

La sommation porte sur toutes les voies de spin et de parité disponibles à l'énergie d'excitation E.

La somme $\sum_{J,\pi} P_f^{J,\pi} \equiv N_{eff}$ représente le nombre effectif de voies de sortie de fission, elle est égale

au nombre de voies de fission ν si toutes les pénétrabilités sont égales à 1.

Par exemple dans le cas de ^{239}Pu deux familles :

$$\begin{aligned} \text{famille 1} \quad \nu_{app} &= 1 \dots \langle \Gamma_f \rangle = 34.3 \text{ meV} \dots \langle D \rangle = 3.2 \text{ eV} \\ J^\pi &= 1^+ \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{famille 2} \quad \nu_{app} &= 1.47 \dots \langle \Gamma_f \rangle = 2219 \text{ meV} \dots \langle D \rangle = 9.6 \text{ eV} \\ J^\pi &= 0^+ \end{aligned}$$

L'existence de deux familles de résonances dont une avec des résonances très larges (pour $J=0^+$) s'explique très bien dans le cadre de la théorie des voies de fission de BOHR appliquée au ^{239}Pu . Il s'agit là d'un cas très favorable où d'une part le spin de plusieurs résonances a pu être déterminé et d'autre part, les états de transition (de parité positive) identifiés correctement au passage de la barrière.

BIBLIOGRAPHIE

- S. Bjornholm, J.E. Lynn, Rev. Mod. Phys. 52, 4, (1980)
- H.C. Britt, Proc. of Phys. and Chem. of Fission, Julich(1979), Vol 1, p3
- N. Bohr, J. Wheeler, Phys. Rev. 56, 426,(1939)
- A Bohr, B. Mottelson , Kgl. Dan. Vid. Selsk. Mat. Fys. Medd.30, 1, (1955)
- A Bohr, B. Mottelson , Nuclear Structure , Benjamin 1975
- S. Cohen, W.J. Swiatecki Ann. Phys. (NY) 19 (1962) 67
- S. Cohen, W.J. Swiatecki Ann. Phys. (NY) 22 (1963) 406
- H. Flocard, Ph. Quentin, A.K. Kerman et D. Vautherin Nucl. Phys. A203, 433, (1973)
- D. Gogny, Nuclear Self Consistent fields Ed. G. Ripka Amsterdam p333 (1975)
- J.E. Lynn, the theory of neutron resonance
- V.Metag, Phys. Reports, vol.65, 1, (1980)
- A. Michaudon, Advances in Nuclear Physics, Plenum Press 6, 1, (1973)
- W.D. Myers , W.J. Swiatecki, Nucl. Phys. 81, 1, (1966)
- H. Nifenecker et al , Phys. and Chem. of Fission, vol 2, 117, (1973) Rochester (NY)
- S.G. Nilsson, Kgl. Dan. Vid. Selsk. Mat. Fys. Medd 29,16, (1955)
- S. Polikanov et al., Sov. Phys. JETP 15 , 1016 (1962)
- J. Rainwater. Rev. Mod. Phys. 48, 385, (1950)
- V.M. Strutinski, Yad. Fis 3, 614, (1966)
- V.M. Strutinski, Nucl. Phys. A95, 420, (1967)
- V.M. Strutinski, Nucl. Phys. A212, 1, (1968)
- C. Wagemans, (editeur) The Nuclear Fission Process, CRC Press (1990)
- R. Vandenbosch, J. Huizenga, Nuclear fission (1973) Academic Press New York.

BASES DE NEUTRONIQUE : COEFFICIENTS DE RÉACTIVITÉ DANS LES RÉACTEURS NUCLÉAIRES

Paul REUSS

Institut National des Sciences et Techniques Nucléaires

INSTN/UERTI

CEA/Saclay, F-91191 GIF-SUR-YVETTE CEDEX

Tél. : 01 69 08 24 12 ; Fax : 01 69 08 99 50 ; E-Mail : reuss@instndir.cea.fr

Septembre 1996

Résumé : dans le but de fournir quelques éléments d'analyse de sûreté sur les problèmes de recyclage du plutonium dans les réacteurs à fission et d'incinération de déchets nucléaires, cette note à caractère didactique rappelle les notions de réactivité (mesure de l'écart à la criticité du facteur de multiplication d'un système) et de coefficients de réactivité (dérivées de ce facteur par rapport aux variables d'état du système), décrit les principaux effets physiques susceptibles de modifier la réactivité et examine comment les coefficients qui les quantifient dépendent des grandes caractéristiques du système.

Abstract : with the objective to give some clues for the safety analysis related to the plutonium recycling and to the incineration of nuclear wastes, this paper recalls some basic neutron physics : reactivity (measure of the deviation from the critical state of a system) and reactivity coefficients (variations of the reactivity with the state variables of the system). The physical effects which can modify both the reactivity and the reactivity coefficients are examined.

Sommaire

- Réaction en chaîne de fissions	3
- Notion de réactivité	4
- Analyse du bilan neutronique	7
- Éléments de conception des réacteurs	13
- Coefficients de réactivité	15
- Coefficients de température	16
• Cas des réacteurs à eau sous pression	17
• Cas des réacteurs à neutrons rapides	21
- Typologie générale des effets sur la réactivité	22
- Variation des coefficients de réactivité avec l'état du système	23
• Problématique de l'utilisation du bore dans les REP	23
• Problématique du recyclage du plutonium dans les REP	25
• Problématique de la consommation accrue du plutonium	29
- Conclusions	31
- Bibliographie	32

Réaction en chaîne de fissions

La réaction en chaîne de fissions dans les réacteurs nucléaires est basée sur deux particularités de la physique nucléaire :

- Le neutron peut facilement provoquer la fission d'un noyau lourd du fait, outre l'apport de son énergie cinétique, de l'apport d'énergie résultant de sa liaison avec les autres nucléons de la « cible ». Pour quelques noyaux (un nucléide naturel, l'uranium 235, et quelques nucléides artificiels, les plutonium 239 et 241, l'uranium 233...) l'énergie de liaison seule suffit pour provoquer la fission avec une grande probabilité.
- Quelques neutrons – en moyenne entre 2,5 et 3 suivant les noyaux – sont émis lors d'une fission. Cela résulte de la courbure de la « vallée de stabilité » des noyaux : les fragments de la fission sont trop chargés en neutrons et en éjectent quelques-uns⁽¹⁾.

Si l'on parvient à récupérer des neutrons émis par fission pour provoquer de nouvelles fissions, une réaction en chaîne, très similaire à celle d'une combustion usuelle, pourra être envisagée. Cette « combustion nucléaire » est exo-énergétique car les noyaux lourds sont moins liés (en terme d'énergie de liaison moyenne par nucléon) que les noyaux intermédiaires ; ordre de grandeur : 200 MeV par fission, soit, par unité de masse, environ un million de fois plus que la combustion chimique.

En pratique, deux voies sont possibles :

- La première cherche à utiliser les neutrons tels qu'ils sont fournis par la fission, c'est-à-dire à une énergie de l'ordre de 2 MeV (vitesse de 20 000 km/s). Il est indispensable alors que la matière soit très riche en matière fissile, sinon trop de neutrons seraient perdus dans des captures stériles par d'autres matériaux. Cette voie est celle des bombes dites « atomiques » et celle des réacteurs à neutrons rapides.
- La deuxième voie cherche à tirer partie des très grandes sections efficaces que présentent les noyaux fissiles pour les neutrons lents. Elle consiste à ralentir les neutrons par diffusions successives, dans un matériau bien choisi appelé « modérateur », avant

1. Cette courbure de la vallée de stabilité a aussi comme conséquence que ces produits sont presque systématiquement radioactifs, ce qui évidemment complique la gestion des « cendres » de la « combustion nucléaire ».

de les absorber dans la matière « combustible ». Il est possible, dans ces conditions, d'utiliser un « combustible » peu riche en noyaux fissiles, voire même l'uranium naturel constitué de seulement 0,72 % d'uranium 235 (fissile) et de 99,28 % d'uranium 238 qui ne peut pas subir la fission par neutrons lents (et ne la subit que rarement par neutrons rapides). Cette voie est celle des réacteurs dits à « neutrons thermiques » car un bon modérateur amène le « gaz » neutronique presque à l'équilibre avec la température du milieu (la vitesse des neutrons thermiques est de l'ordre de 2 à 3 km/s). La plupart des réacteurs électronucléaires sont des réacteurs à neutrons thermiques modérés au graphite, à l'eau lourde et, le plus souvent, à l'eau ordinaire (en France notamment).

Notion de réactivité

L'équilibre – ou le déséquilibre – d'une réaction en chaîne de fissions dans un réacteur nucléaire est caractérisé par la valeur du *facteur de multiplication* k défini comme le rapport moyen entre l'effectif d'une génération de neutrons et l'effectif de la génération précédente qui lui a donné naissance ou, ce qui revient au même, entre les nombres de fissions à une étape donnée et à l'étape précédente :

- si $k > 1$ ces effectifs croissent au cours du temps ; le système est *surcritique* ;
- si $k < 1$ ces effectifs décroissent au cours du temps ; le système est *sous-critique* ;
- si $k = 1$ ces effectifs restent constants au cours du temps ; le système est alors qualifié de *critique*.

Le facteur de multiplication est le produit $\pi \nu$ de la probabilité π qu'un neutron émis par fission induise une nouvelle fission (c'est-à-dire qu'il ne soit pas capturé de façon stérile dans le ou hors du système) par le nombre moyen ν de neutrons émis lors d'une fission.

Pour situer le système par rapport à la criticité, la *réactivité* est aussi souvent utilisée ; elle est définie par :

$$\rho = \frac{k - 1}{k}$$

et permet de centrer sur zéro la criticité. Elle est généralement exprimée en *pcm* (pour cent mille).

Après extinction d'éventuels transitoires, le réacteur évolue selon un mode exponentiel $\exp(\omega t)$ avec une constante de temps ω du signe de ρ et de valeur absolue d'autant plus grande que la valeur absolue de la réactivité est élevée : voir les figures 1a et 1b. (Si le réacteur est critique, ce mode asymptotique est un régime stationnaire : c'est celui qu'établit l'exploitant en situation nominale.)

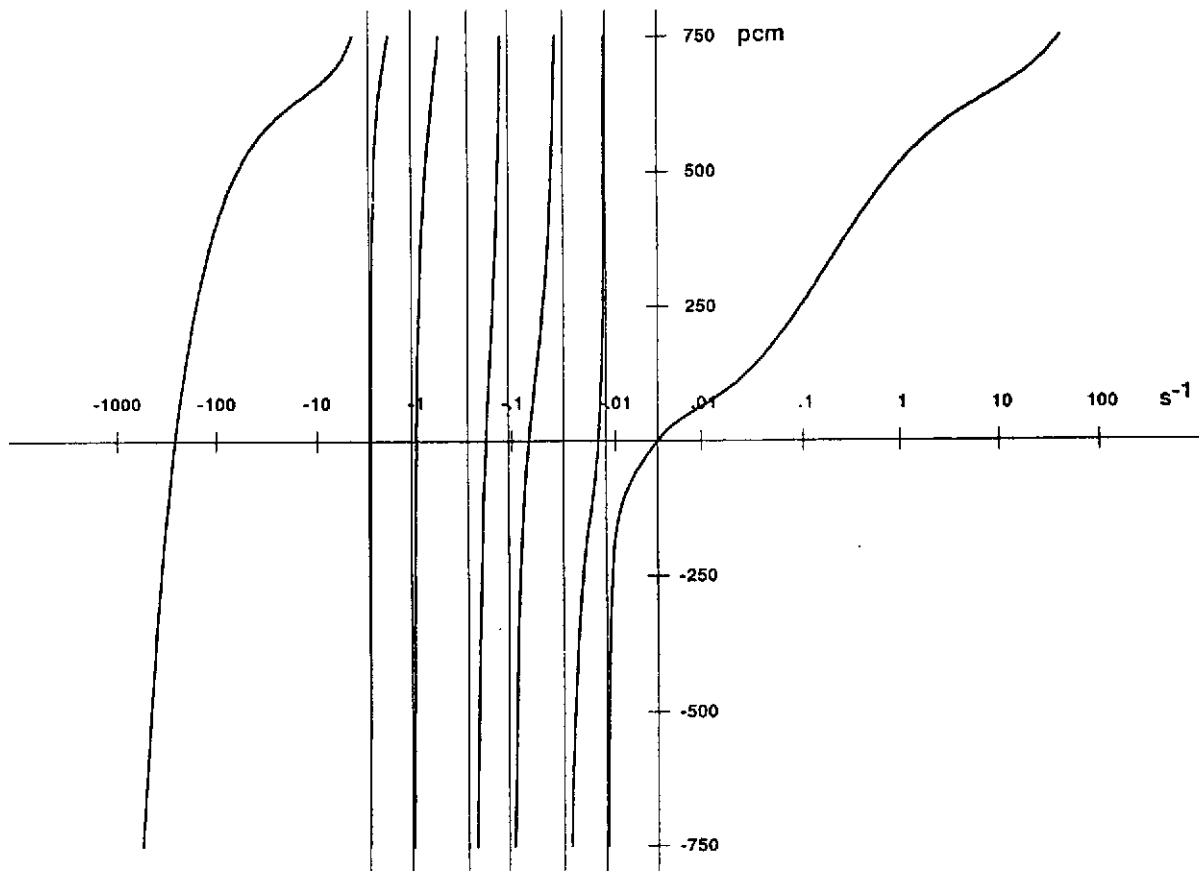


Figure 1a

Représentation graphique de l'équation de Nordheim pour un réacteur à eau sous pression et à uranium 235 : valeurs de ω (en abscisses) des différents modes pour une réactivité ρ donnée (en ordonnées).

Le paramètre-clé dans l'expression de ω est la proportion β des *neutrons retardés*, c'est-à-dire ceux qui sont émis non pas directement au moment de la fission mais, en moyenne, une dizaine de secondes plus tard après une désintégration bêta d'un fragment de

fission. Cette proportion est, en quelque sorte, l'*unité naturelle* de réactivité ; par exemple :

- $\beta = 650$ pcm pour l'uranium 235,
- $\beta = 210$ pcm pour le plutonium 239, etc.

Tant que la réactivité est soit négative, soit positive mais nettement inférieure à β , la constante ω est petite et l'évolution est lente (après extinction d'éventuels transitoires).

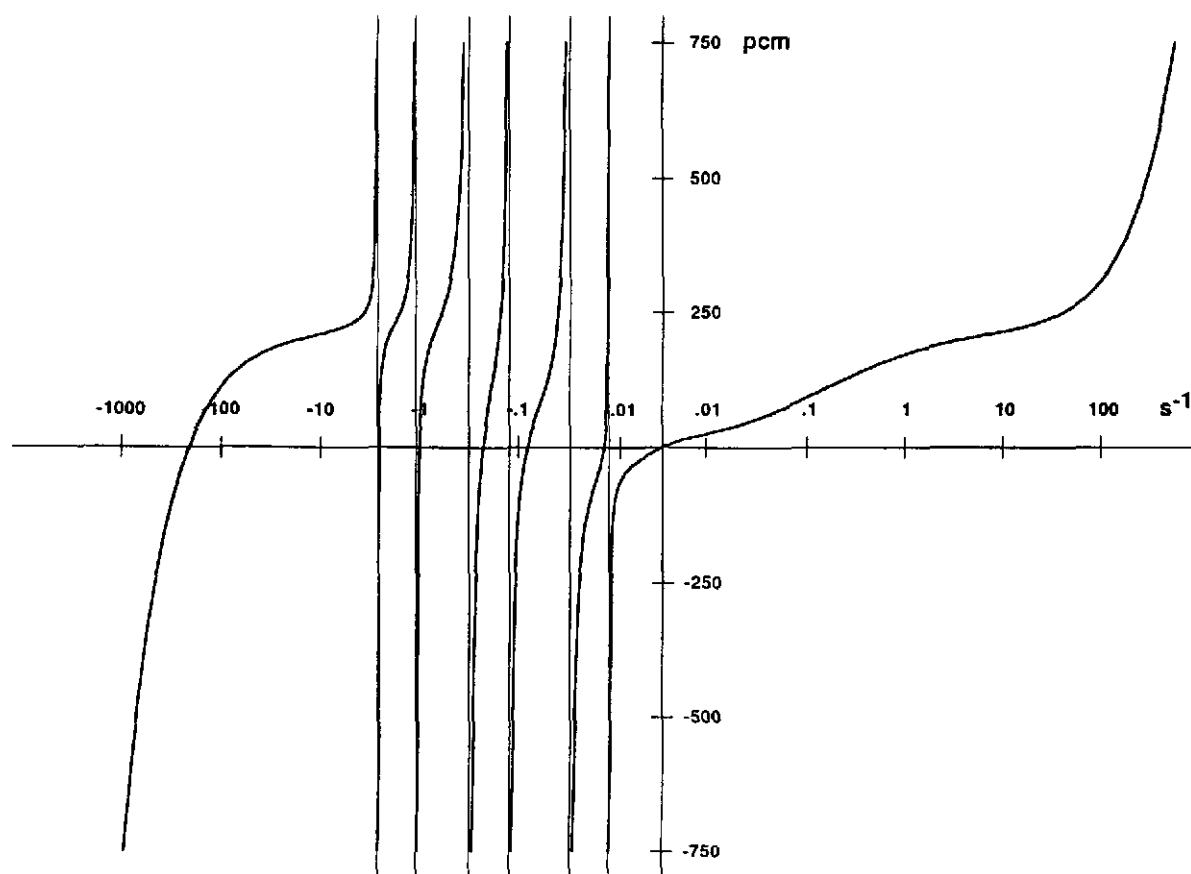


Figure 1b

Représentation graphique de l'équation de Nordheim pour un réacteur à eau sous pression et à plutonium 239. On remarquera que ce réacteur est plus « nerveux » que le précédent : pour une réactivité donnée, la valeur absolue de la constante de temps ω du mode principal est plus grande.

Si, par contre, la réactivité s'approche de, et a fortiori dépasse β , la croissance exponentielle de la population neutronique – et de la puissance du réacteur qui lui est proportionnelle – devient extrêmement rapide : elle n'est plus gouvernée par la longue durée de vie « effective » des neutrons retardés mais par la très courte

durée de vie (réelle) des *neutrons prompts* : quelques 10^{-7} s pour un réacteur à neutrons rapides, quelques 10^{-5} s pour un réacteur à eau sous pression, par exemple. Il est impératif d'éviter qu'un réacteur devienne ainsi surcritique par les seuls neutrons prompts et de s'assurer que si une telle situation survenait, des contre-réactions suffisantes interviendraient spontanément pour abaisser la réactivité.

Nous abordons là une notion de coefficient de réactivité ; mais avant de la détailler, il est utile d'examiner, à partir d'une analyse un peu plus fouillée du bilan neutronique, comment jouent sur le facteur de multiplication les principaux paramètres intervenant dans la conception des réacteurs.

Analyse du bilan neutronique

Il est commode d'introduire dans les raisonnements la valeur k_{∞} qu'aurait le facteur de multiplication si le réacteur était infiniment grand et d'écrire :

$$k = k_{\infty} P_{NF}$$

où P_{NF} est la probabilité de non-fuite du neutron (figure 2). Dans le cadre de la théorie élémentaire de la neutronique, elle s'écrit :

$$P_{NF} = \frac{1}{1 + M^2 B^2}$$

où l'*aire de migration* M^2 est le sixième du carré moyen $\langle r^2 \rangle$ de la distance parcourue par les neutrons à vol d'oiseau et le *laplacien géométrique* B^2 un paramètre caractérisant la forme et les dimensions du système ; par exemple :

$$B^2 = \pi^2/R^2 \text{ pour une sphère de rayon } R ;$$

$$B^2 = \pi^2/H^2 + j^2/R^2 \text{ pour un cylindre de hauteur } H \text{ et de rayon } R \text{ (} j = 2,405 : \text{ premier zéro de la fonction de Bessel } J_0 \text{)} ;$$

$$B^2 = 3 \pi^2/a^2 \text{ pour un cube d'arête } a.$$

Le facteur de multiplication infini est traditionnellement décomposé en un produit de quatre facteurs :

$$k_{\infty} = \epsilon p f \eta$$

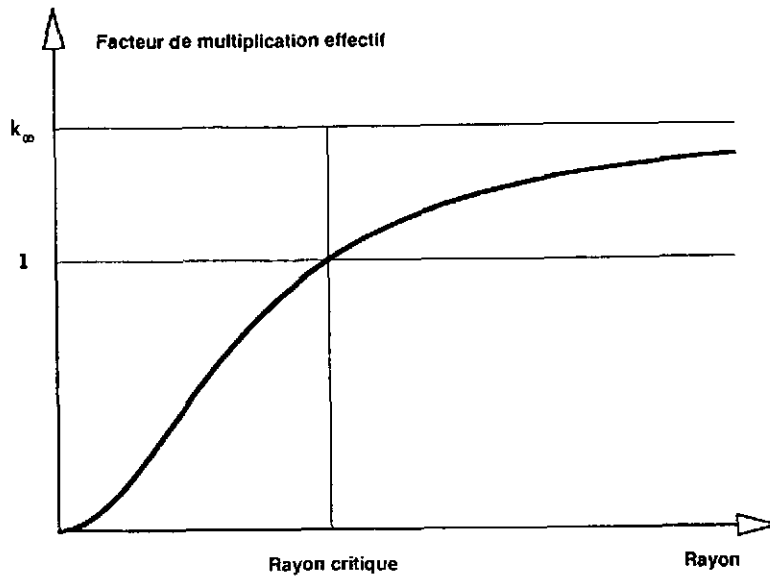


Figure 2

Variation du facteur de multiplication « effectif » d'un réacteur nu et homogène en fonction de sa taille.

Pour les *réacteurs à neutrons rapides* cette décomposition (figure 3a) est intéressante pour comparer différents concepts mais n'est pas réellement utile pour l'analyse des coefficients de réactivité que nous voulons faire ici.

Pour les *réacteurs à neutrons thermiques*, en revanche, cette décomposition (figures 3b et 3c) et les formules simples associées permettent (et c'en est même le principal intérêt) une analyse qualitative très physique des effets en réactivité (effets de température, efficacité du bore, etc.) et s'avèrent même étonnement précises sur le plan quantitatif. C'est pourquoi nous rappellerons rapidement ce formalisme.

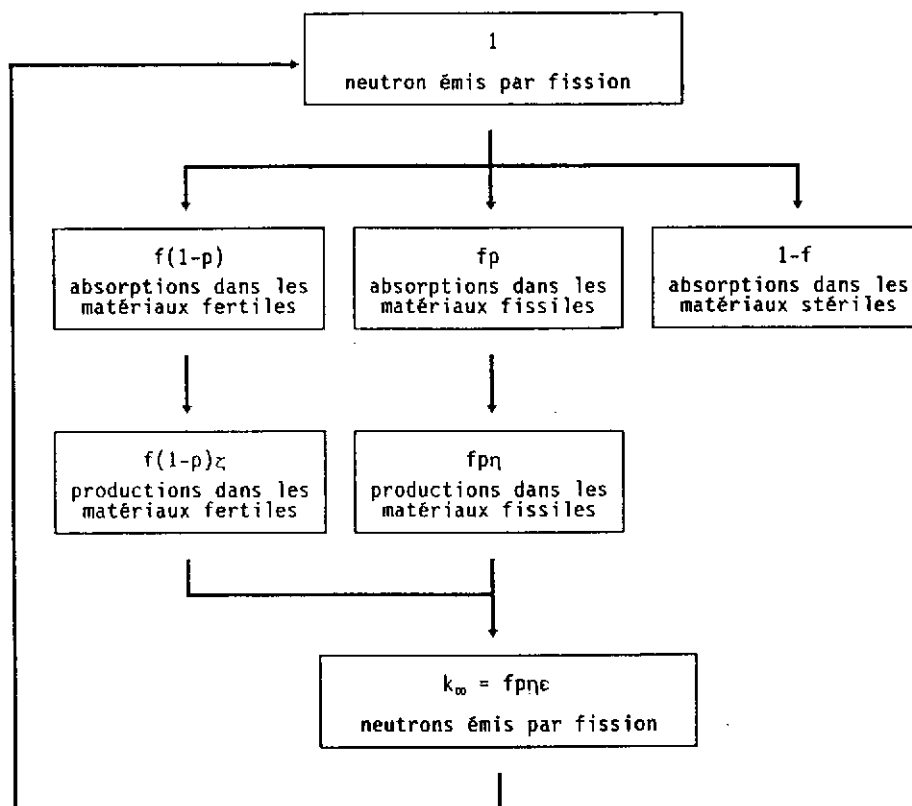
Le *facteur de fission rapide* ϵ , peu sensible aux variations d'état, ne figure ici que pour mémoire.

Le *facteur antitrappe* ρ , s'écrit (les notations sont usuelles) :

$$\rho = \exp \left[- \frac{V_c N_c I_{\text{eff}}}{V_m N_m (\epsilon \sigma_s)_m} \right]$$

Les termes au numérateur et au dénominateur expriment la compétition entre les deux processus qui régissent le ralentissement des neutrons, respectivement la capture dans les résonances du maté-

riau combustible (de l'uranium 238, principalement) qui les fait disparaître (numérateur) et la diffusion (sur le modérateur, principalement) qui leur fait perdre leur énergie cinétique et les amène finalement dans le domaine thermique (dénominateur).



A = absorption

P = production

F = fissile

f = fertile

s = stérile

$$f = \frac{A_{F+f}}{A_{F+f+s}}$$

$$p = \frac{A_f}{A_{F+f}}$$

$$\eta = \frac{P_F}{A_F}$$

$$z = \frac{P_f}{A_f}$$

$$c = 1 + \frac{1-p}{p} \frac{z}{\eta} = 1 + \frac{P_f}{P_F}$$

Figure 3a

Décomposition du facteur de multiplication « infini » en quatre facteurs, pour les réacteurs à neutrons rapides.

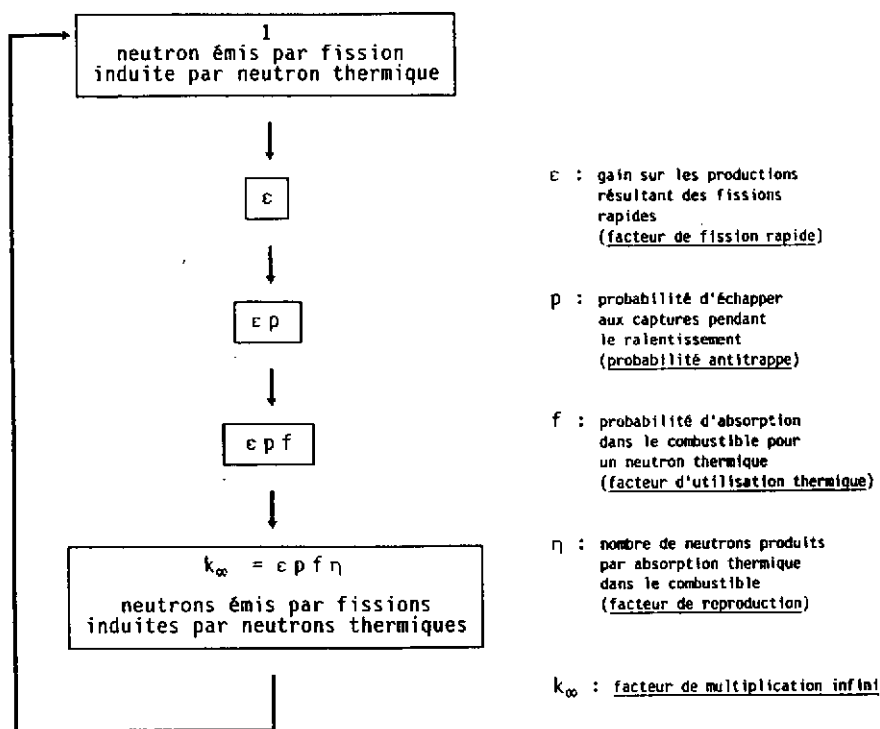


Figure 3b

Décomposition du facteur de multiplication « infini » en quatre facteurs, pour les réacteurs à neutrons thermiques.

• Facteur de fission rapide :	1,07
• Probabilité antitrappe :	0,75
• Facteur d'utilisation thermique :	0,92
• Facteur de reproduction :	1,78
• Facteur de multiplication infini :	1,31
• Nombre moyen de neutrons émis par fission :	2,42
• Probabilité qu'un neutron provoque une fission :	0,54

Cette valeur - élevée - est nécessaire pour compenser les fuites (2 000 à 3 000 pcm) et, surtout, les effets de l'évolution (plus de 30 000 pcm).

L'excédent de réactivité d'un coeur de R.E.P., en début de cycle, est compensé par de l'acide borique en solution dans l'eau et, éventuellement, des poisons consommables.

Figure 3c

Ordre de grandeur des quatre facteurs pour un réacteur à eau sous pression (combustible en début de vie, sans bore).

L'intégrale effective I_{eff} représente l'intégrale de la « forêt de résonances » (figure 4a), la phénomène d'« autoprotection » étant pris en compte pour pondérer la section efficace de capture.

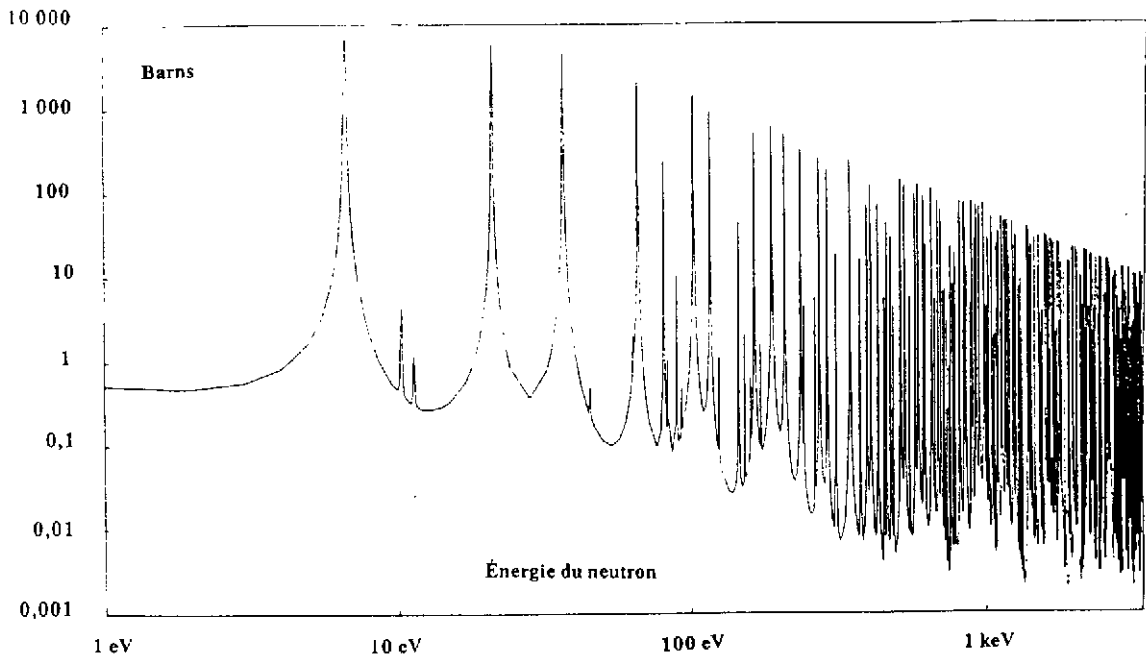


Figure 4a

Section efficace de capture neutronique par l'uranium 238 (détail)

Cette intégrale effective dépend d'un paramètre appelé « section efficace de dilution » ; la figure 4b montre que la variation est quasiment linéaire en fonction de la racine carrée de ce paramètre.

$$I_{\text{eff}} \approx A + B \sqrt{\sigma_d}$$

Au prix de quelques approximations, on peut écrire :

$$\sigma_d = C^{\text{te}} \frac{S (1 - C)b}{M 1 - C + Cb}$$

où S est la surface de l'élément de combustible et M sa masse. Le coefficient b est le facteur de Bell : ce facteur, proche de 1, permet d'améliorer la transposition de la géométrie hétérogène considérée à une géométrie homogène équivalente. Le facteur de Dancoff C (représenté sur la figure 5) est la probabilité qu'un neutron émergent d'un élément de combustible entre, sans collision intermédiaire, dans un autre élément de combustible.

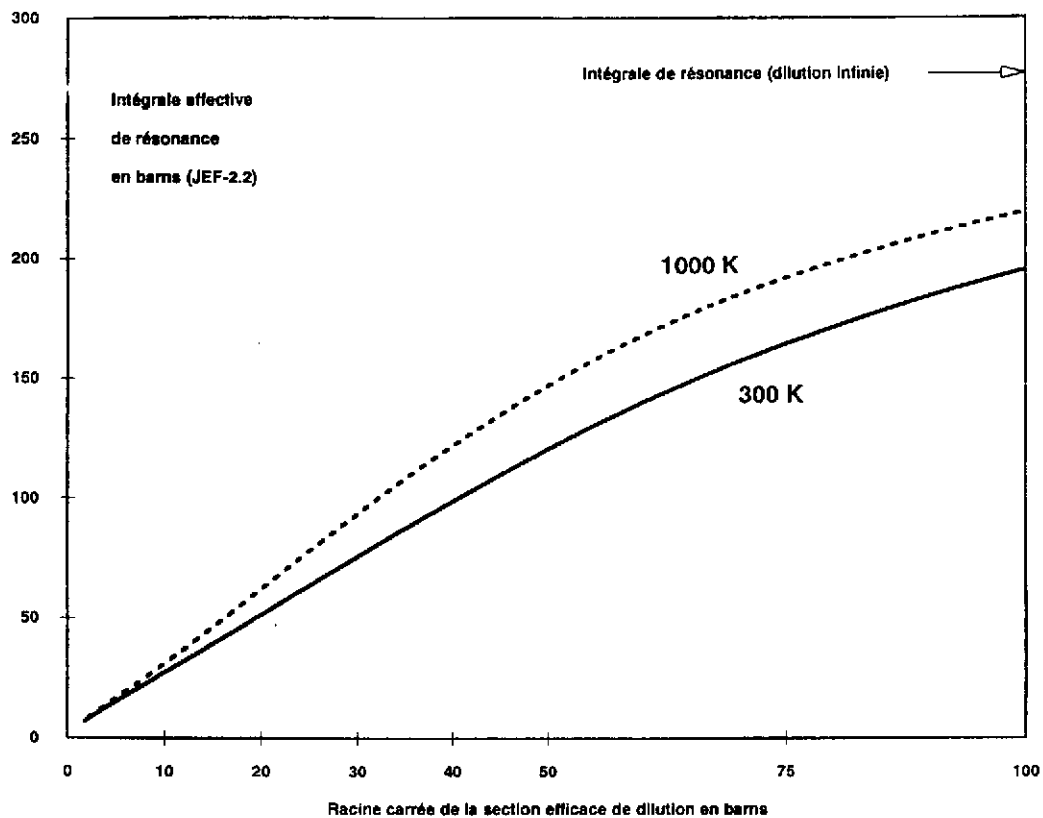


Figure 4b

Intégrale effective de l'uranium 238 en fonction de la section efficace de dilution.

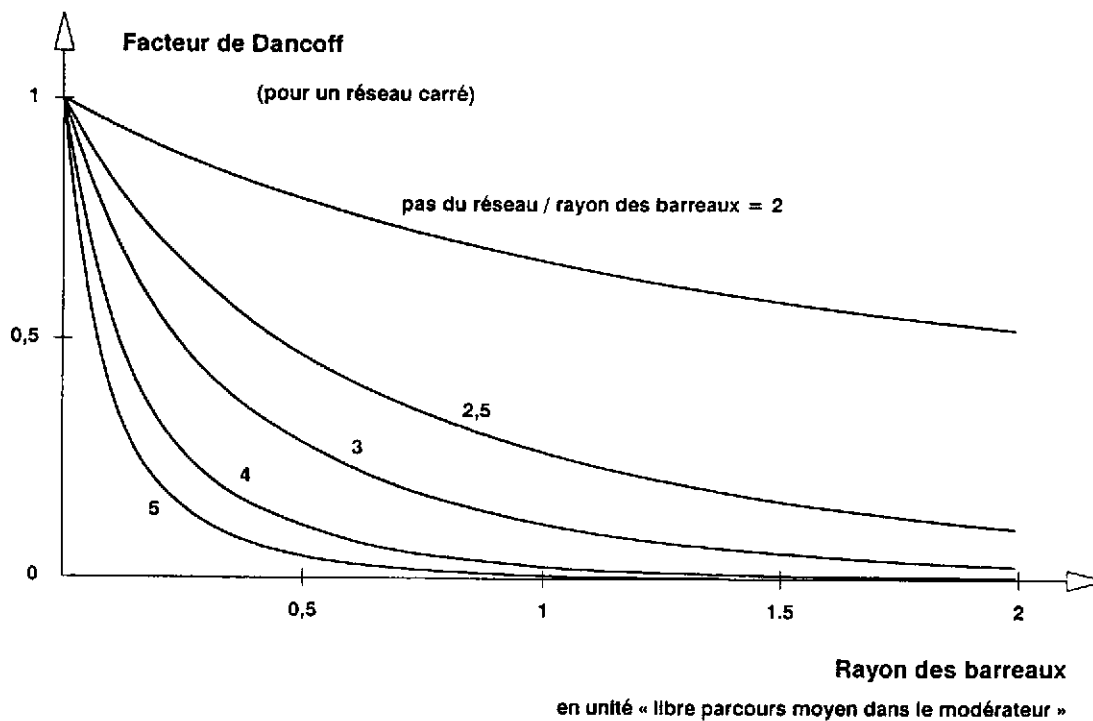


Figure 5

Facteur de Dancoff pour un réseau carré de crayons de combustible non gainés.

En raisonnant avec des sections efficaces et des flux moyens sur tout le spectre des neutrons thermiques et sur chacune des zones, on peut expliciter le bilan des neutrons thermiques par :

1) Le *facteur d'utilisation thermique* f :

$$f = \frac{V_c \Sigma_{a,c} \Phi_c}{V_c \Sigma_{a,c} \Phi_c + V_m \Sigma_{a,m} \Phi_m + V_g \Sigma_{a,g} \Phi_g}$$

où les indices c , m et g désignent respectivement le combustible, le modérateur et la gaine. L'analyse est plus simple en récrivant cette relation sous la forme :

$$\frac{1}{f} - 1 = \frac{V_m \Sigma_{a,m} \Phi_m}{V_c \Sigma_{a,c} \Phi_c}$$

(la gaine, qui capture peu les neutrons thermiques, a été omise pour alléger cette dernière formule).

2) Le *facteur de reproduction* η :

$$\eta = \frac{\nu \Sigma_{f,c}}{\Sigma_{a,c}}$$

Éléments de conception des réacteurs

Ces formules simples permettent de dégager quelques éléments-clés de la conception des réacteurs. Par exemple (pour les réacteurs à neutrons thermiques) :

1) Si toutes les dimensions caractéristiques d'un réseau sont multipliées par un même facteur (*homothétie*), seule l'intégrale effective est affectée⁽²⁾ : si le réseau grossit, S/M décroît et C croît. Ces deux effets jouent dans le même sens, une diminution de l'intégrale effective et donc une amélioration du facteur antitrappe et finalement du facteur de multiplication. Concrètement, cette variation de k_∞ avec le facteur d'homothétie est relativement faible, et ce sont plus des considérations de thermique que de neutronique qui guident le choix du diamètre du combustible.

2. Si l'on néglige la variation du facteur de désavantage Φ_m/Φ_c .

2) A diamètre de combustible fixé, on peut faire varier l'écartement des crayons donc le *rapport de modération* V_m/V_c . Si ce rapport croît, le facteur antitrappe s'améliore⁽³⁾ mais, en revanche, le facteur d'utilisation thermique se dégrade ; globalement, le facteur de multiplication passe par un maximum pour l'*optimum de modération* (figure 6). On remarquera que les réacteurs à eau sous pression sont nettement sous-modérés, d'un facteur 2 environ (l'effet en réactivité correspondant est de l'ordre de 5 000 pcm). Il y a à cela trois raisons :

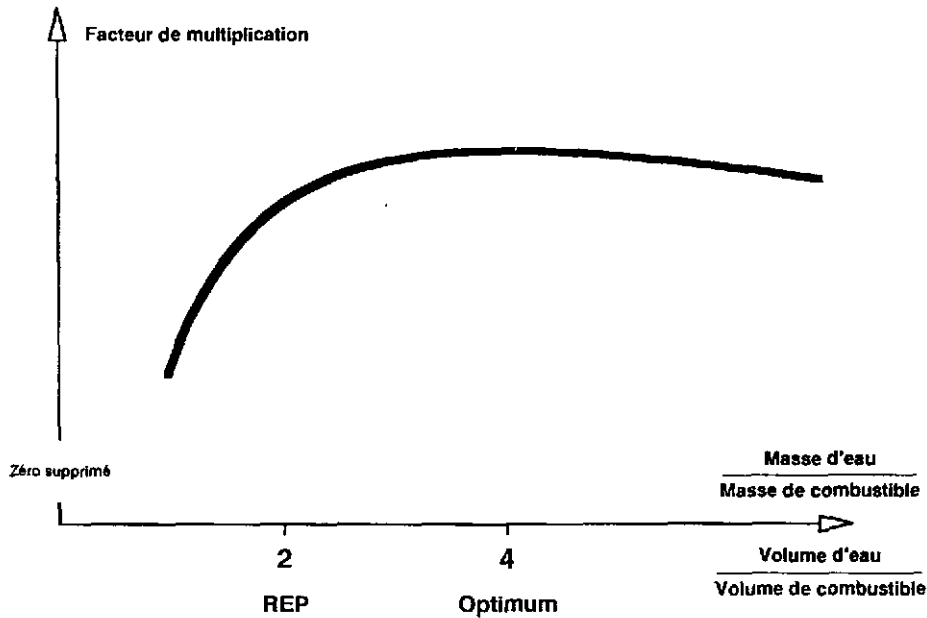


Figure 6

Optimum de modération (pour l'exemple du réacteur à eau sous pression).

- a) une meilleure utilisation du combustible à cause d'un facteur de conversion $^{238}\text{U} \rightarrow ^{239}\text{Pu}$ plus grand (les captures résonnantes sont favorisées) ;
- b) une plus grande compacité du coeur ;
- c) un coefficient de réactivité de modérateur allant dans le sens de la sûreté (s'il y a diminution de la masse d'eau par échauffement ou ébullition, la réactivité baisse et le réacteur devient sous-critique). Cette troisième raison est évidemment la plus importante. C'est

3. A l'effet direct du rapport de modération s'ajoute l'effet, plus faible, d'une réduction du facteur de Dancoff.

parce qu'on exige que ce coefficient reste négatif même lorsque du bore est dissous dans l'eau - l'addition de bore a pour effet de déplacer vers la gauche l'optimum de modération - que l'on a adopté ce facteur 2.

3) Troisième paramètre de conception important : la *teneur de l'uranium en isotope 235* (ou du plutonium si le combustible est du MOX). Si cette teneur augmente, les facteurs f et η s'améliorent : ce paramètre permet d'ajuster la réactivité initiale du réseau, et par voie de conséquence la courbe en évolution, de façon à obtenir la durée de cycle souhaitée. On notera que la variation relative du facteur de multiplication est beaucoup plus faible que celle de la teneur, d'un facteur 10 environ pour un REP⁽⁴⁾ et davantage encore pour un RNR.

Coefficients de réactivité

Si pour une raison physique quelconque le facteur de multiplication k du réacteur varie quand un paramètre p caractérisant l'état de ce réacteur varie, l'effet sera pris en compte par la dérivée de k par rapport à p . L'habitude veut que l'on choisisse la *dérivée logarithmique* de k , c'est-à-dire que l'on définisse les coefficients de réactivité par⁽⁵⁾ :

$$\alpha = \frac{1}{k} \cdot \frac{\partial k}{\partial p}$$

et qu'on les exprime en *pcm* (pour cent mille) pour la variation unitaire de p .

Ces dérivées peuvent être évaluées par différence ou, mieux, par une formule de perturbation. En neutronique, si l'on note H l'opérateur donnant le flux ϕ par l'équation :

$$H\phi + S = \frac{1}{v} \frac{\partial \phi}{\partial t}$$

la formule des perturbations s'écrit :

4. Un tiers de l'effet provient du facteur f et deux tiers du facteur η .

5. Comme k est toujours proche de l'unité cela ne change rien en pratique. Cette convention est intéressante si k est exprimé sous une forme factorisée : il suffit alors d'ajouter les dérivées logarithmiques de chacun des facteurs.

$$\frac{\partial k}{k} = \frac{\langle \phi^+ , \partial H \phi \rangle}{\langle \phi^+ , P \phi \rangle}$$

où l'on a posé $H = P - Q$, où P est l'opérateur de production par fission, et où ϕ et ϕ^+ sont respectivement les flux et flux adjoint (ce dernier est aussi appelé « importance neutronique »), en régime stationnaire, solutions des équations :

$$H \phi = 0 \quad \text{et} \quad H^+ \phi^+ = 0.$$

Le *signe* des coefficients de réactivité est important, souvent plus que la valeur absolue : le cas des coefficients de température en est un exemple.

Coefficients de température

Les températures font partie des paramètres d'état d'un système. Les coefficients de température sont importants en neutronique car, d'une part, les effets sont souvent assez spectaculaires et, d'autre part, ces effets gouvernent la stabilité et la sûreté intrinsèques d'un coeur.

Un réacteur est *stable* si le *coefficient de température est négatif*. Supposons, par exemple, que se produise une augmentation de puissance. Cela va provoquer une augmentation de température. Si le coefficient de température est négatif, il va en résulter une baisse de réactivité : le réacteur, normalement critique initialement, devient légèrement sous-critique ; la puissance baisse. On constate ainsi que cette réaction s'oppose à la perturbation initiale. (Le raisonnement serait symétrique et la conclusion identique si l'on parlait d'une baisse de puissance.)

Dans cet aspect « stabilité », c'est le coefficient de la température qui varie le plus vite avec les variations de puissance, celle du *combustible*, qui est important : nous allons voir que le coefficient associé est effectivement négatif (effet Doppler). Ainsi, un réacteur n'a pas besoin d'être piloté pour maintenir la puissance à la valeur de consigne : s'il s'en écarte, il y revient spontanément (figure 7) ; les actions de pilotage ne sont nécessaires que pour *modifier* un niveau de puissance ou *compenser* une lente évolution naturelle de réactivité (effet xénon, évolution, etc.).

L'aspect « sûreté » est étroitement lié à l'aspect « stabilité » : si dans le raisonnement précédent, nous passons d'une petite à une

grande perturbation, nous pouvons dire qu'un coefficient de température négatif, à condition qu'il soit suffisamment efficace, permettra de contrecarrer et même d'annuler une « excursion » intempestive de la puissance (accident de réactivité).

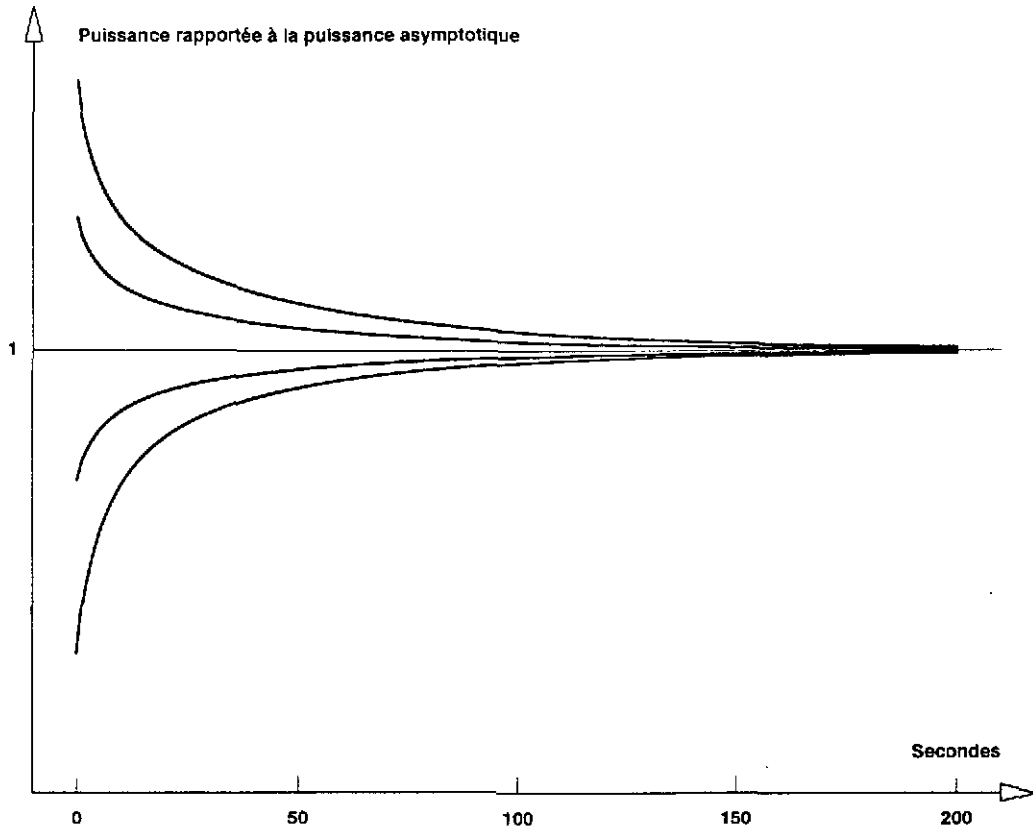


Figure 7

Retour spontané à la puissance d'équilibre après une perturbation.

On notera aussi qu'il y a une certaine relation entre les coefficients de vide et les coefficients de réactivité, puisque l'augmentation de température conduit à une dilatation des matériaux (les liquides en particulier) qui est une façon parmi d'autres (ébullition, etc.) de créer du vide.

Une description plus précise, sur deux exemples, des effets de température permettra de mieux cerner ces ressemblances... et différences.

1) Cas des réacteurs à neutrons à eau sous pression

a) Nous avons dit que la neutronique est affectée par la température du combustible par *effet Doppler* : c'est l'uranium, essen-

tiellement l'uranium 238, qui intervient ici⁽⁶⁾. L'effet Doppler est dû à l'agitation thermique des cibles avec lesquelles interagissent les neutrons : pour une énergie de neutron donnée dans le « système du laboratoire » (système lié au réacteur), l'énergie du couple neutron-noyau dans le « système du centre de masse » est dispersée selon un spectre lié à celui de l'agitation thermique des noyaux. Cette dispersion, très faible pour les neutrons épithermiques, a en général des conséquences négligeables, sauf si la section efficace varie brutalement comme c'est le cas au voisinage des pics de résonances. L'effet Doppler amène à un élargissement des résonances et à un abaissement des pics (figure 8).

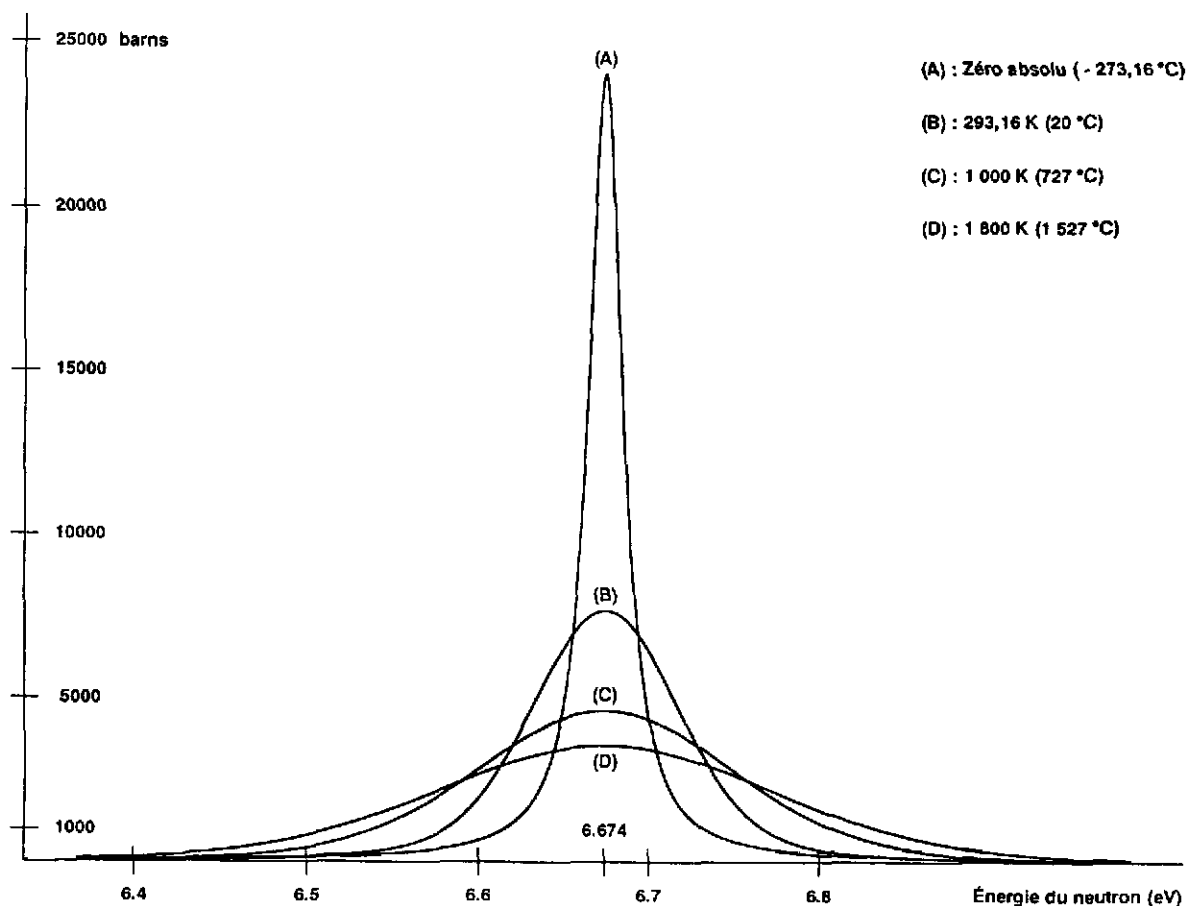


Figure 8

Élargissement par effet Doppler de la première grande résonance de l'uranium 238.

6. L'effet est moindre pour les autres noyaux lourds car leur absorption résonnante est plus faible (moindre concentration) ; en outre, pour les noyaux fissiles, il y a compensation entre les effets sur la capture et sur la fission. En pratique, l'effet Doppler n'est pris en compte que pour ^{238}U et ^{240}Pu .

Bien que l'aire sous la courbe (intégrale de résonance) ne varie pas, l'absorption résonnante (caractérisée par l'intégrale *effective* de résonance), elle, *augmente* : l'abaissement de la section efficace au voisinage du pic joue peu car cette section reste pratiquement infinie, mais l'élargissement conduit à un agrandissement du domaine « dangereux » pour les neutrons (élargissement des « trappes »). La figure 4 montre que l'effet Doppler affecte passablement l'intégrale effective (la variation est à peu près proportionnelle à la racine carrée de la température absolue). L'effet en réactivité est de l'ordre de - 3 pcm/°C.

b) Le deuxième effet de température est un *effet de spectre des neutrons thermiques* : il est lié à la température du matériau thermalisant les neutrons, c'est-à-dire du *modérateur*. Si la température du thermaliseur croît, le spectre de Maxwell se déplace vers les plus hautes énergies, et il en est de même du spectre réel : ce « durcissement » n'aurait pas d'effet sur le facteur de multiplication – qui est un rapport de taux de réaction – si toutes les sections efficaces d'absorption variaient selon la même « loi en 1/v ». Ce n'est pas le cas pour quelques noyaux importants : ^{235}U , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , etc., ce qui conduit à des effets de température sur les facteurs f et surtout η . Pour ce dernier, on peut écrire, si le combustible est un mélange d'uranium 235 et d'uranium 238 :

$$\eta = \eta_5 \cdot \frac{N_5 \sigma_{a5}}{N_5 \sigma_{a5} + N_8 \sigma_{a8}} \qquad \eta_5 = \frac{\nu_5 \sigma_{f5}}{\sigma_{a5}}$$

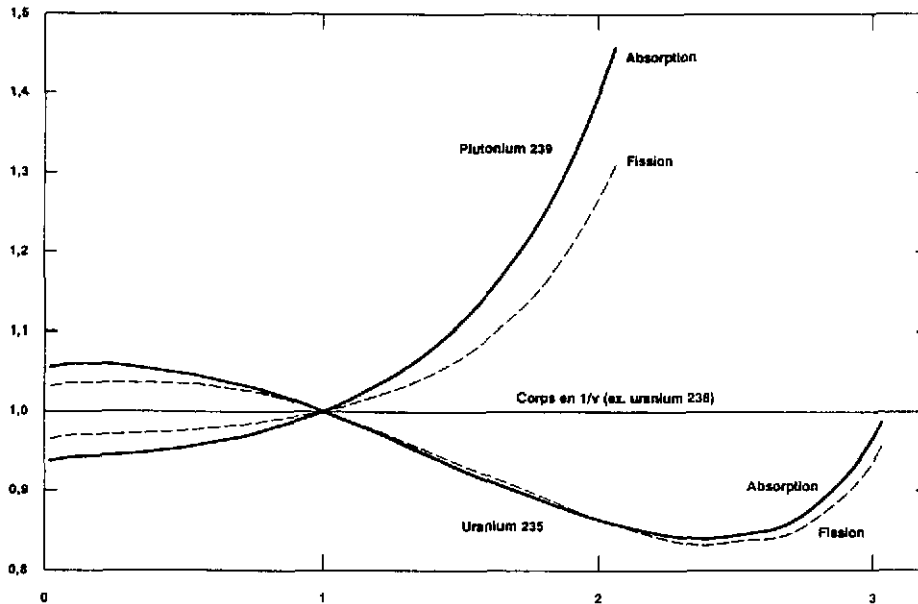
et constater que ces deux facteurs diminuent avec la température car σ_{a5} décroît plus vite que $1/v$ (à cause d'une résonance négative proche de zéro) et σ_{f5} plus vite que σ_{a5} (figure 9). Les deux coefficients de température associés (négatifs) sont de l'ordre de quelques pcm par degré. Pour un combustible à plutonium, le deuxième coefficient reste négatif mais le premier devient positif, et l'emporte, à cause de la résonance à 0,3 eV du ^{239}Pu , juste à la limite supérieure du domaine des neutrons thermiques.

c) Dans les réacteurs à eau sous pression, l'effet de température le plus important en valeur absolue, lié au modérateur, est celui dû à la *dilatation de l'eau*. Aux conditions nominales d'un REP, l'eau se dilate considérablement avec sa température : la densité ρ décroît d'environ un quart de pour cent par degré Celsius. Cette diminution de la quantité d'eau dans le coeur si sa température augmente va affecter l'aire de migration (augmentation de M^2 ,

donc effet négatif sur la réactivité) et, surtout, les facteurs ρ et f .
Les formules précédentes donnent :

$$\frac{1}{\rho} \frac{\partial \rho}{\partial T} = \ln\left(\frac{1}{p}\right) \cdot \frac{1}{\rho} \frac{d\rho}{dT}$$

$$\frac{1}{f} \frac{\partial f}{\partial T} = - (1 - f) \cdot \frac{1}{\rho} \frac{d\rho}{dT}$$



Produit vitesse * section efficace (rapporté à sa valeur à 2200 m/s) en fonction de la vitesse (rapportée à 2200 m/s)

Figure 9

Variations des sections efficaces de l'uranium 235, de l'uranium 238 et du plutonium 239 dans le domaine des neutrons thermiques.

- L'effet sur le *facteur antitrappe* est *négatif* (moins de ralentissement des neutrons, donc davantage de captures résonnantes) : environ - 50 pcm/°C.
- L'effet sur le *facteur d'utilisation thermique* est *positif* (moins de captures par le modérateur, donc davantage d'absorptions, et notamment de fissions, dans le combustible) ; l'ordre de grandeur dépend de l'intensité de l'absorption par le modérateur et, par conséquent, de la quantité de bore dissous sous forme d'acide borique $B(OH)_3$ dans l'eau : ce coefficient de température peut, par exemple, décroître de + 45 pcm/°C en début de cycle (environ 1 000 ppm de bore) à + 15 pcm/°C en fin de cycle (pratiquement plus de bore).

On voit finalement que le coefficient global de température modérateur n'est que très légèrement négatif en début de cycle, mais devient largement négatif en fin de cycle.

2) Cas des réacteurs à neutrons rapides

En se limitant aux plus importants, on peut repérer cinq effets de température dans les réacteurs à neutrons rapides, le premier lié au combustible et les quatre autres au sodium.

a) L'*effet Doppler*, lié à la température du *combustible*, est moins important que dans les réacteurs à neutrons thermiques, puisque seule une proportion assez faible des neutrons atteint le domaine des résonances. Malgré un effet positif sur le plutonium (l'effet sur la fission dépassant l'effet sur la capture), le coefficient Doppler est *négatif* car l'effet sur la capture de l'uranium 238 l'emporte. L'ordre de grandeur, plus faible que dans les REP, environ $-1 \text{ pcm}/^\circ\text{C}$, suffit pour assurer la stabilité du réacteur.

b) Le *sodium* induit des effets de température par sa *dilatation* si sa température croît. L'effet direct sur la *capture*, analogue à l'effet de dilatation d'eau sur le facteur f , donne un coefficient *positif*.

c) La diminution de la diffusion par le sodium, donc du ralentissement élastique, conduit à un *durcissement de spectre*, ayant en général un effet *positif* (les facteurs η des noyaux lourds, et donc l'importance neutronique, s'améliorent le plus souvent lorsque les neutrons sont d'énergie plus élevée).

d) L'augmentation de la transparence aux neutrons du sodium conduit à une *augmentation de l'effet Dancoff* (parcours sans chocs d'une aiguille de combustible à l'autre) ; nous avons vu que cela entraîne une diminution de l'intégrale effective de résonance pour la capture par l'uranium 238 : cet effet aussi est caractérisé par un coefficient *positif*.

e) Le quatrième effet lié au sodium, l'augmentation de l'aire de migration (plus longs libres parcours moyens des neutrons), et par conséquent l'*augmentation des fuites*, donne en revanche un coefficient *négatif*.

Le signe du coefficient global associé au sodium (ou coefficient de *vide*) dépend de la valeur absolue de ce dernier coefficient par rapport à celles des trois autres. En pratique, cet effet de *vide* est :

- *positif* dans les parties *centrales* du coeur d'un réacteur de grande puissance tel Superphénix, d'où les neutrons ont peu de chances de s'échapper ;
- *négatif* dans les parties *périphériques* où les fuites sont, en revanche, intenses.

Typologie générale des effets sur la réactivité

Les variations de température ne sont que l'une des nombreuses causes pouvant induire des effets sur la réactivité, puisque toute modification de la géométrie, des compositions et des sections efficaces risque d'affecter le facteur de multiplication.

La formule des perturbations permet de dresser une typologie générale de ces effets en les classant selon la façon dont ils affectent l'« opérateur de Boltzmann » H . On sait que H est le produit de deux opérateurs :

- l'*opérateur de collision* C explicitant les événements possibles lors d'une interaction d'un neutron avec un noyau d'atome ;
- l'*opérateur de transport* T décrivant le déplacement en ligne droite des neutrons jusqu'à leur prochaine interaction.

1) Modification des collisions

Une collision se caractérise par la section efficace $\Sigma = N\sigma$ et par le nombre de secondaires (nombre moyen de neutrons « sortant » de la collision) et leur spectre.

L'effet Doppler est le seul qui modifie des sections efficaces microscopiques σ . En revanche, les concentrations N peuvent être modifiées pour de nombreuses raisons : dilatation thermique, ébullition, déplacement mécanique (barres de commandes, expériences d'oscillations...), irradiation neutronique (formation et consommation d'actinides, produits de fission...), etc.

L'augmentation d'une section efficace d'*absorption* (les autres sections efficaces étant supposées inchangées) conduit à une *disparition* supplémentaire de neutrons, donc à un effet négatif sur la réactivité.

L'augmentation d'une section efficace de *diffusion* conduit à une *modification d'importance* des neutrons concernés qui changent

à la fois de direction et d'énergie ; l'effet en réactivité dépend du signe de la modification moyenne d'importance.

L'augmentation d'une section efficace de *fission* conduit, d'une part, à un *ajout* de neutrons et, d'autre part, à un *changement d'importance* ; l'effet en réactivité est positif, puisque le premier effet l'emporte en pratique.

2) Modification du transport

Seule la section efficace *totale* intervient dans l'opérateur de transport. Comme précédemment, si elle varie, c'est en général à cause de changements de la concentration N .

Une modification de Σ affecte les *parcours* des neutrons et l'effet en réactivité provient, ici aussi, des *différences d'importance* entre le point de départ et le point d'arrivée.

Variation des coefficients de réactivité avec l'état du système

Un coefficient de réactivité, qui est une dérivée, exprime déjà une variation. Nous nous intéressons maintenant à des « variations de variations » : comment les coefficients de réactivité sont-ils affectés par des changements d'état du système ?

La question peut être étudiée à partir de la formule des perturbations : pour une même perturbation ∂H , l'effet en réactivité dépend des caractéristiques générales du réacteur par le biais du flux ϕ et du flux adjoint ϕ^* (ces deux grandeurs étant renormalisées par division par $\langle \phi^*, P \phi \rangle$, c'est-à-dire le nombre total de productions de neutrons par unité de temps). Nous nous limiterons ici à des considérations physiques élémentaires et illustrerons la discussion par trois exemples.

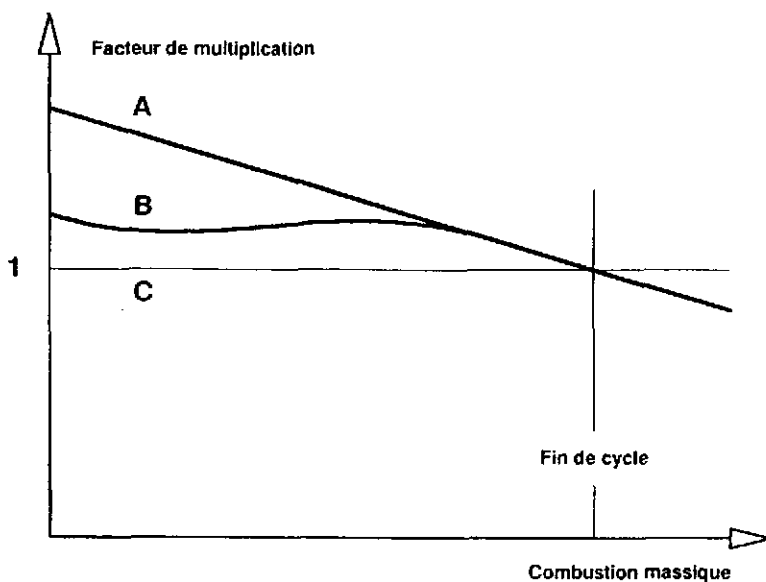
1) Problématique de l'utilisation du bore dans les REP

Nous avons vu que le bore, un puissant absorbant de neutrons thermiques, affecte le coefficient de température du facteur d'utilisation thermique dû à la dilatation de l'eau – et donc du bore si celui-ci est en solution dans l'eau – : plus la concentration de bore augmente, plus le coefficient (positif) s'accroît. Le critère de sûreté que l'on s'impose, « coefficient global de température de modérateur toujours négatif », conduit donc à une concentration limite de bore à ne pas dépasser.

On s'est arrangé lors de la conception (choix d'une configuration sous-moderée) pour que cette limite soit assez « confortable ». Il peut arriver cependant que les *besoins* de compensation de réactivité dépassent, en début de cycle, cette limite.

Il a fallu alors trouver une réponse à cette difficulté : ce sont les *poisons consommables*. Ils sont définis par trois critères :

- Ces poisons sont sous forme *solide* : ne se dilatant pratiquement pas, ils n'induisent donc pas un coefficient de température positif.
- Ils sont suffisamment *efficaces* pour compenser, sinon totalement, du moins en bonne partie, l'excédent de réactivité du coeur en début de cycle, de façon que la quantité de bore soluble nécessaire soit suffisamment réduite pour être inférieure à la limite (voir figure 10).



A - sans poisons

B - avec poisons consommables

C - avec la concentration d'acide borique ajustée à tout instant

Figure 10

Courbes d'évolution du facteur de multiplication d'un réacteur à eau sous pression (schéma).

- Ils sont, enfin, *consommables*, c'est-à-dire qu'ils disparaissent par irradiation neutronique à un rythme tel que l'empoisonnement qu'ils représentent soit négligeable quand la compensation d'excédent de réactivité n'est plus nécessaire, c'est-à-dire en fin de cycle.

En pratique, les poisons consommables peuvent être à base de *bore* sous forme de pyrex dans des crayons spécifiques, ou à base de *gadolinium* sous forme d'oxyde mélangé à l'oxyde d'uranium dans certains crayons.

2) Problématique du recyclage du plutonium dans les REP

Le recyclage du plutonium réalisé par EdF depuis 1987 dans quelques REP de 900 MWe est la résultante d'une longue histoire.

On peut repérer d'abord l'intérêt manifesté par la France, dès l'époque des débuts du CEA, pour la filière des réacteurs à neutrons rapides surgénérateurs : les réacteurs à neutrons thermiques n'étaient vus que comme une étape transitoire pour constituer un stock initial de plutonium.

La décision de retraiter le combustible irradié fut la conséquence de cette vision de l'avenir.

Mais, après un début prometteur, la filière des réacteurs à neutrons rapides ne s'est pas développée aussi rapidement que ne l'escomptaient ses promoteurs.

D'où un excédent de plutonium récupéré au retraitement par rapport aux besoins de cette filière et l'idée de l'utiliser dans les réacteurs existants – c'est-à-dire les REP d'EdF – plutôt que d'attendre un hypothétique et lointain programme de masse en RNR. (Cet argument est renforcé par le fait que tout réacteur est convertisseur d'uranium 238 en plutonium : la consommation *nette* de plutonium dans ces conditions est relativement faible.)

Le combustible MOX (oxyde mixte d'uranium et de plutonium) utilisé alors est très similaire au combustible standard (oxyde d'uranium enrichi) pour les neutrons rapides et épithermiques ; il est, en revanche, beaucoup plus absorbant – d'un facteur 3 environ – pour les neutrons thermiques à cause, d'une part d'une concentration plus forte en plutonium qu'en uranium 235 pour compenser une composition isotopique assez pauvre du plutonium (deux tiers seulement d'isotopes fissiles) et d'autre part, de sections efficaces plus

grandes et de résonances dans le cas du plutonium (cf : figures 11a et 11b).

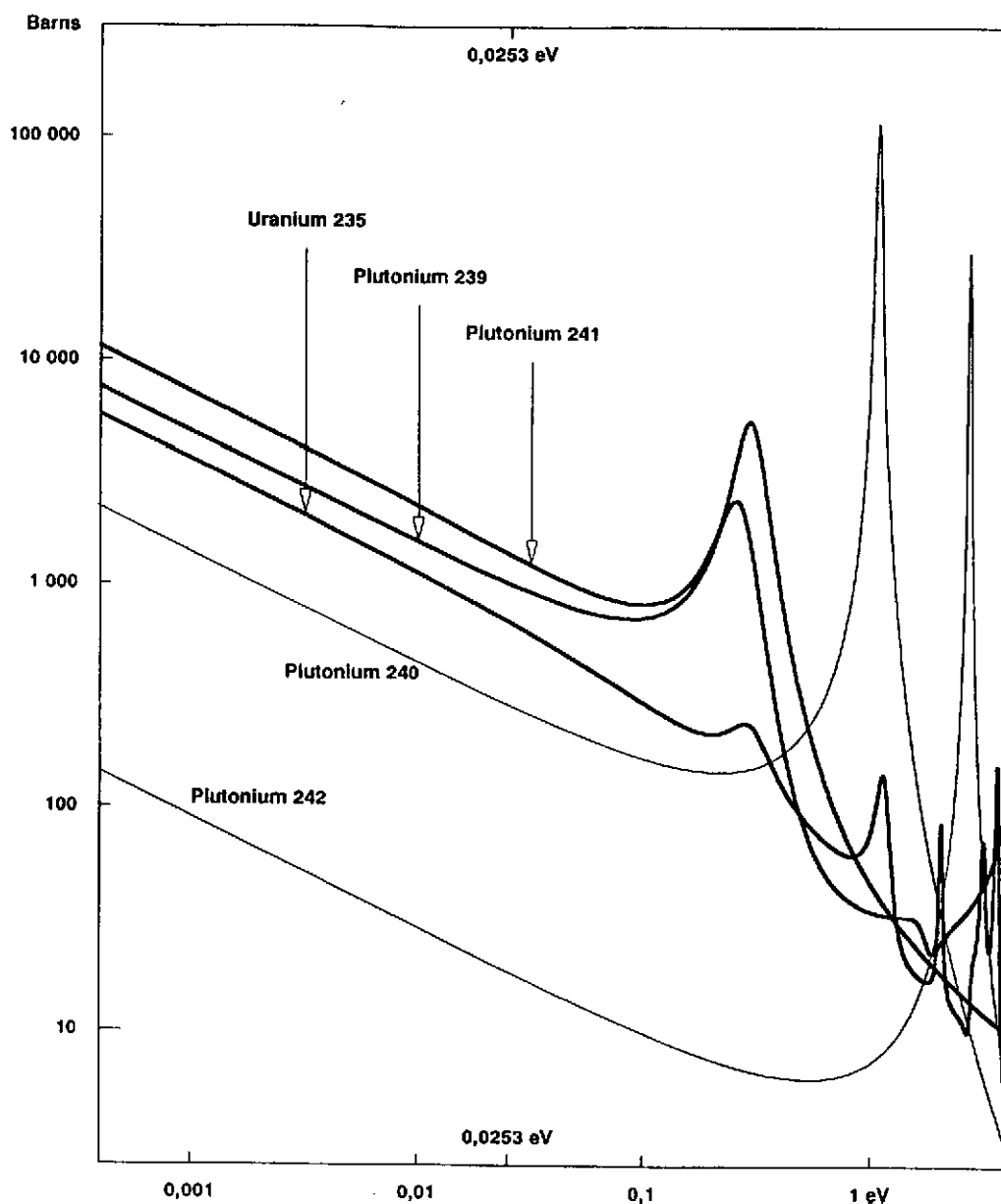


Figure 11a

Comparaison des sections efficaces des principaux isotopes du plutonium dans le domaine thermique avec celle de l'uranium 235.

Cette forte absorption entraîne une *réduction* – du même facteur 3 environ – de l'*efficacité des absorbants*, notamment des grappes de commande. Il faut donc utiliser plus de grappes pour contrôler un coeur MOX.

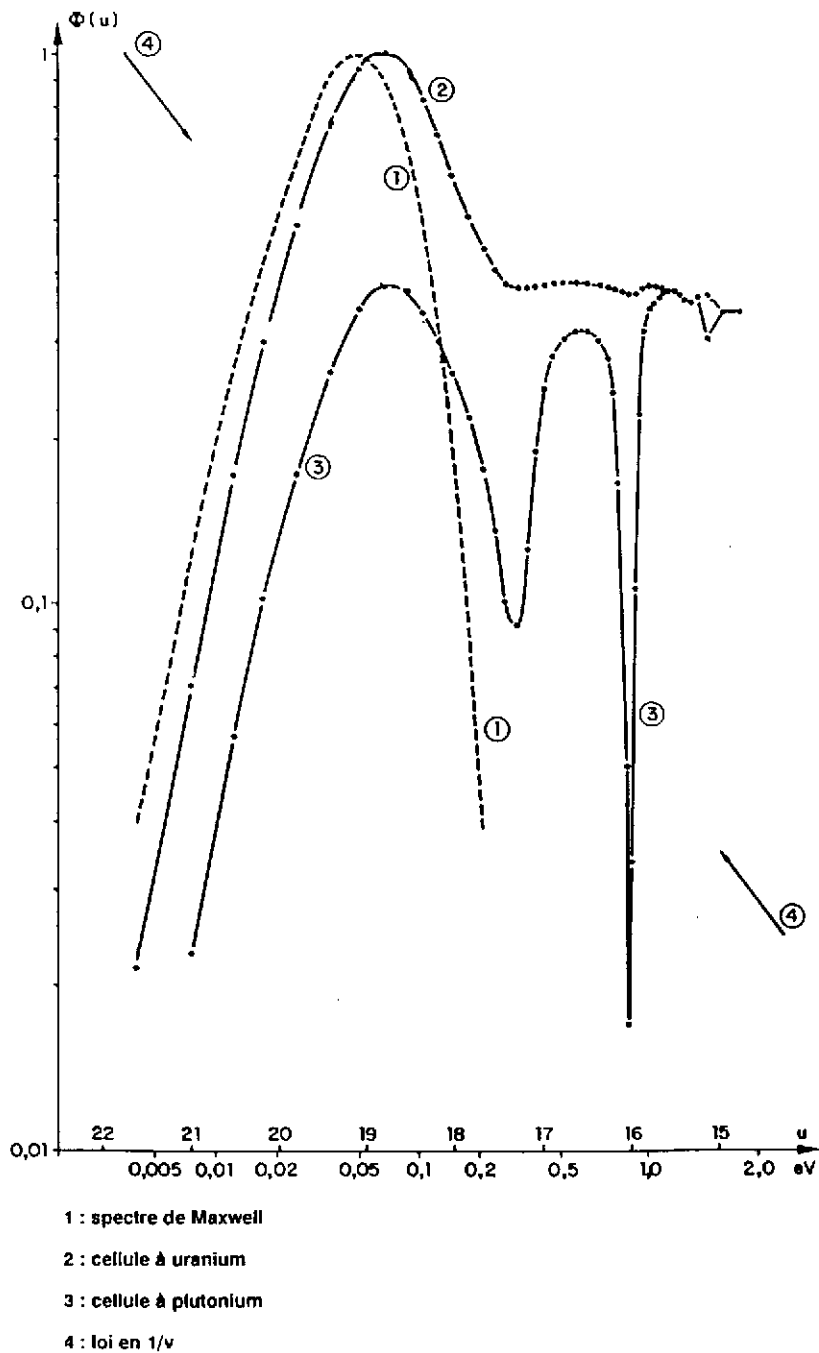


Figure 11b

Spectre des neutrons thermiques dans le modérateur d'un réacteur à eau sous pression pour un combustible standard et un combustible MOX.

Mais les REP, qui n'ont pas été conçus pour cela, ne disposent pas d'un nombre suffisant de grappes pour qu'un coeur 100 % MOX puisse être piloté et contrôlé en toute sûreté ; il suffit, par contre, si le coeur est chargé à 50 % en MOX. Par prudence, les autorités de

sûreté ont exigé qu'un coeur de REP ne contienne pas plus d'un tiers d'assemblages à plutonium.

Conséquence : il y aura forcément dans le coeur des *interfaces* entre assemblages MOX et standard. Des calculs de neutronique, même élémentaires, montrent que, dans ces conditions, un important *pic de puissance* apparaît près de l'interface et dans la zone MOX (figure 12).

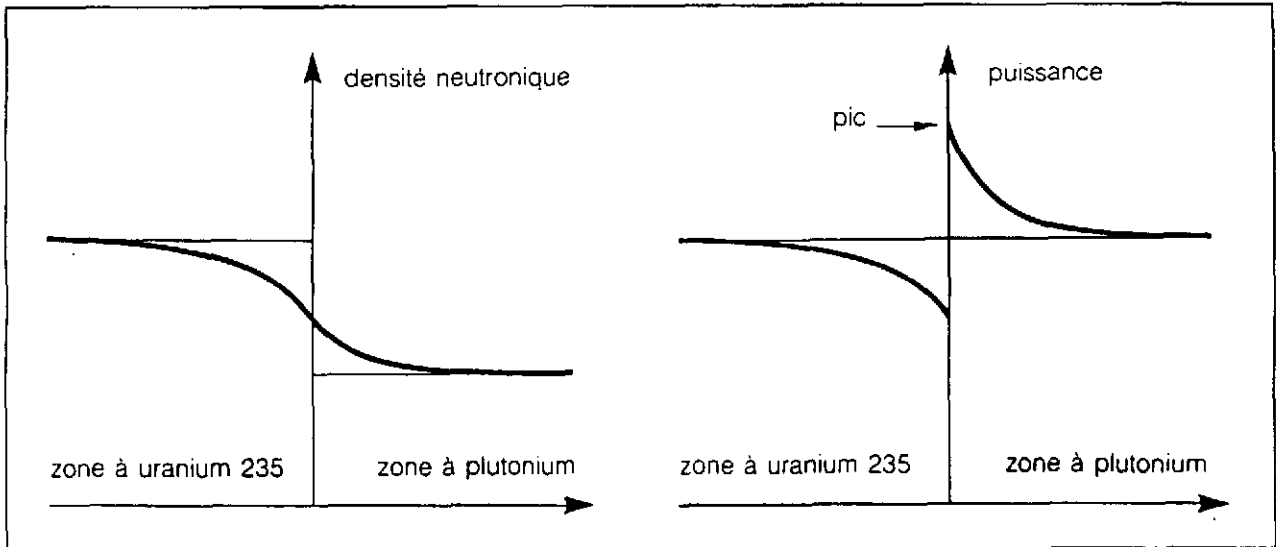


Figure 12

Densité (ou flux) des neutrons thermiques et distribution de puissance au voisinage d'une interface entre un combustible à uranium et un combustible à plutonium (sans zonage).

Le remède à cela est le *zonage* des assemblages MOX (figure 13) : là où la puissance serait excessive, en périphérie, la teneur est réduite, et vice-versa en partie centrale. La question a pu être posée de savoir si le surcoût de fabrication dû au zonage rendait encore économiquement viable le recyclage du plutonium dans les réacteurs à eau...

Disons qu'un élément de réponse évident est de reprendre la conception des REP pour qu'un recyclage du plutonium puisse être opéré sans zonage : on trouve, par exemple, cette idée dans les travaux sur EPR.

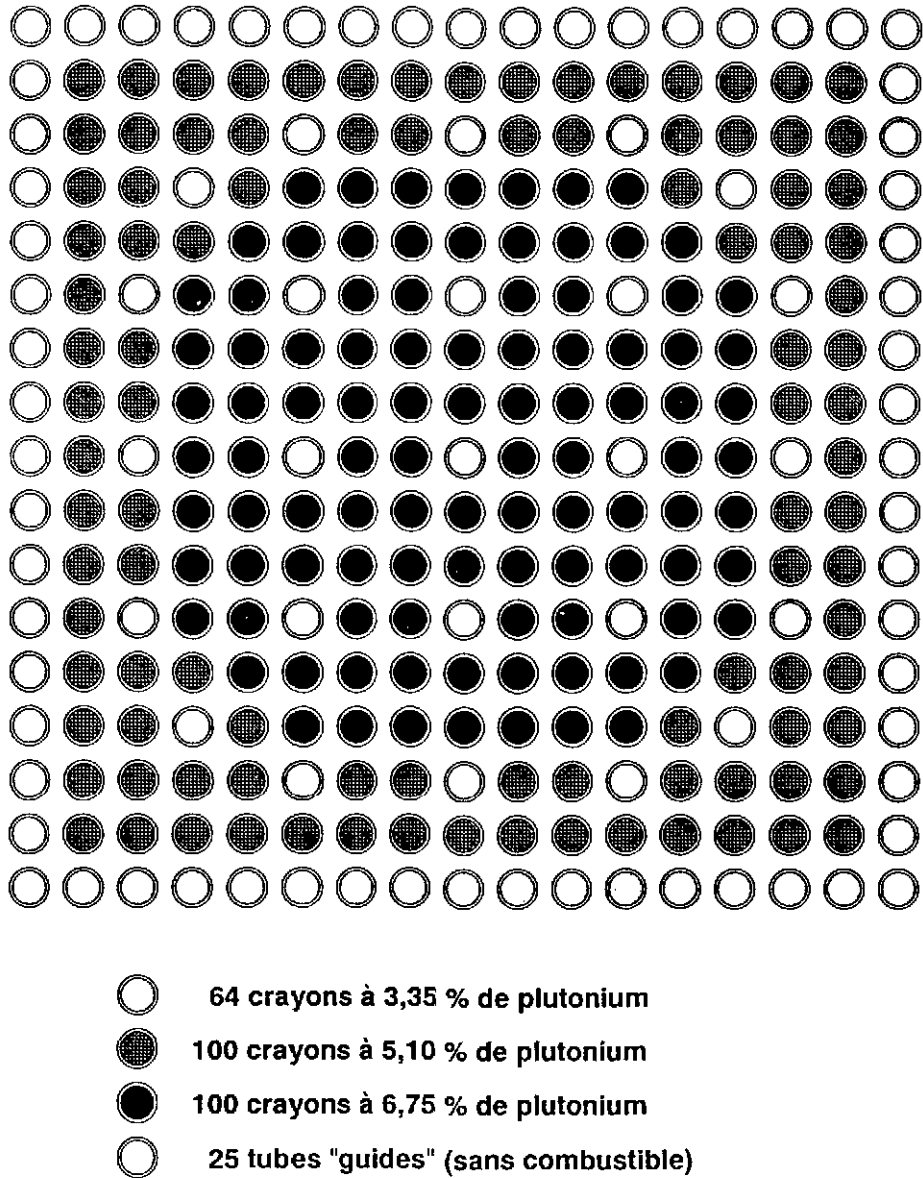


Figure 13

Section droite d'un assemblage MOX de réacteur à eau sous pression.

3) Problématique de la consommation accrue du plutonium

Autre idée, plus radicale : considérer le plutonium plutôt comme un déchet⁽⁷⁾ que comme une matière énergétique ; par conséquent, chercher non pas à économiser la consommation de plutonium mais à la rendre maximum. C'est le concept « CAPRA » (consommation accrue de plutonium en réacteurs à neutrons rapides ;

7. La consommation accrue de plutonium peut ainsi être défendue par ses promoteurs avec des arguments de réduction de la radiotoxicité à court et long terme des actinides.

on le trouve aussi dans les études sur les réacteurs à eau sous la dénomination de « recyclage du plutonium sur support inerte »).

La réponse à la consommation accrue du plutonium est de réduire, voire supprimer, la conversion : dans un réacteur usuel, la matière fissile fabriquée par irradiation neutronique des matériaux fertiles contribue de façon notable à la fourniture d'énergie, même s'il n'y a pas retraitement (voir la figure 14), et a fortiori si le combustible est retraité ; a contrario, sans conversion, seule la matière fissile placée dans le coeur contribue à la production d'énergie, et elle est donc davantage consommée. Dans le concept CAPRA, cette idée simple est appliquée au plutonium.

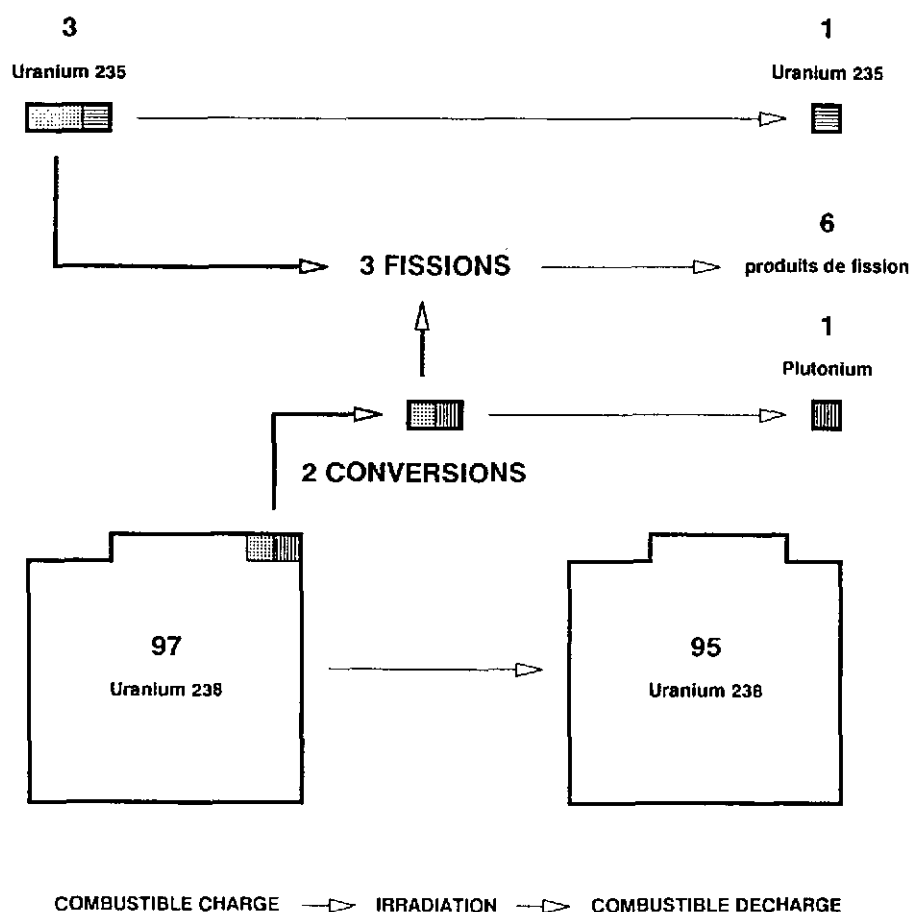


Figure 14

Bilan approximatif des noyaux lourds pour un REP (cycle à trois tours et 33 000 MWj/t).

Il est clair que la suppression, dans un coeur, de toute matière fertile – en pratique l'uranium 238 – est un changement radical dans l'état du réacteur. Notamment tous les coefficients de réactivité ris-

quent d'en être profondément modifiés... et seule une étude approfondie permet de réellement conclure.

Pour nous limiter à un aspect essentiel, il est évident que la suppression de l'uranium 238 conduit à la disparition de l'effet Doppler associé. Et nous avons vu que ce coefficient est fondamental pour assurer la stabilité du réacteur et une très efficace contre-réaction en cas d'accident (par exemple, l'accident d'éjection de grappe).

La seule parade est évidemment de trouver un substitut à l'uranium 238, qui ne soit pas fertile et qui présente de nombreuses résonances (une terre rare pourrait peut-être jouer ce rôle)... On peut aussi se restreindre à un compromis : une consommation accrue de plutonium mais pas autant que le maximum théorique, en utilisant un combustible contenant encore de l'uranium 238 assurant un certain effet Doppler sans trop de conversion.

Conclusions

Le point frappant, dans ce type de problématique, est le très grand *couplage* entre les divers aspects : une décision en entraîne presque inévitablement d'autres, optimiser une propriété dégrade, voire rend inacceptable, d'autres...

L'émergence d'un nouveau concept est ainsi toujours difficile. Les études physiques et de conception ne sont jamais linéaires ; un constant retour aux prémisses est, au contraire, nécessaire.

Une remarque importante à faire est que les moyens de calcul, optimisés dans un objectif précis, ne sont pas toujours bien adaptés pour traiter les problèmes nouveaux tels ceux que nous avons évoqués (par exemple, la mise en oeuvre du recyclage du plutonium dans les REP a entraîné de nombreuses remises en question dans les schémas de calcul et de nombreux développements).

Insistons sur le fait que ces nouvelles problématiques suscitent non seulement des travaux de développements théoriques (physique, mathématiques, informatique) mais nécessitent aussi des expériences nouvelles, de type à la fois *différentiel* (mesure de données nucléaires) et *intégral* (maquettes des configurations envisagées).

■

BIBLIOGRAPHIE

A) Introduction élémentaire à la neutronique

- [1] P. REUSS : *L'énergie nucléaire*, PUF - Que sais-je ?, 1994.
- [2] P. REUSS : *La neutronique*, PUF - Que sais-je ?, en préparation.
- [3] P. REUSS : *Au coeur des réacteurs : la neutronique*, Clefs CEA, n° 11, 1988.
- [4] P. REUSS : *Réacteurs à eau sous pression et combustible au plutonium*, Clefs CEA, n° 20, 1991.
- [5] P. REUSS, J.-B. THOMAS : *Qu'est-ce qu'un logiciel ?*, Clefs CEA, n° 29, 1994.

B) Enseignement de la neutronique

- [6] J. BUSSAC, P. REUSS : *Traité de neutronique*, Hermann, 1978 et 1985.
- [7] P. REUSS : *Éléments de physique nucléaire à l'usage du neutronicien*, INSTN, 1981, 1987 et 1995.
- [8] P. REUSS : *Éléments de neutronique*, INSTN, 1986 et 1995.
- [9] H. TELLIER : *Réactions nucléaires induites par les neutrons*, INSTN, 1989.
- [10] P. REUSS : *Clefs pour la neutronique des réacteurs à eau sous pression*, INSTN, 1990.
- [11] R. BARJON : *Physique des réacteurs nucléaires*, Institut des Sciences Nucléaires, Grenoble, 1992.
- [12] D. ROZON : *Introduction à la cinétique des réacteurs nucléaires*, Éditions de l'École Polytechnique de Montréal, 1992.
- [13] H. TELLIER : *Cinétique des réacteurs nucléaires*, INSTN, 1994.
- [14] P. REUSS, H. TELLIER et al. : *Compléments de neutronique*, INSTN, treize cahiers publiés entre 1985 et 1992.
- [15] P. REUSS : *Travaux dirigés de neutronique*, INSTN, 1992-1996.

Spallation reactions

Joseph CUGNON*

CEA DAPNIA/SPhN, CE Saclay, F-91191 Gif-sur-Yvette Cedex, France

September 3, 1996

Résumé

Les réactions de spallation sont prépondérantes dans les interactions des hadrons avec les noyaux dans le domaine du GeV (de ~ 0.1 à ~ 10 GeV). Elles correspondent à l'éjection parfois importante de particules légères, laissant un résidu avec une masse plus ou moins voisine de la masse du noyau cible. Les principaux aspects des résultats expérimentaux, ainsi que ceux du modèle théorique le plus performant (cascade intranucléaire + évaporation), sont exposés. Le contenu physique de ce modèle est discuté de manière critique. Les approches alternatives sont brièvement passées en revue.

Abstract

Spallation reactions dominate the interactions of hadrons with nuclei in the GeV range (from ~ 0.1 to ~ 10 GeV). They correspond to a sometimes important ejection of light particles leaving most of the time a residue of mass commensurate with the target mass. The main features of the experimental data are briefly reviewed. The most successful theoretical model, namely the intranuclear cascade + evaporation model, is presented. Its physical content, results and possible improvements are critically discussed. Alternative approaches are shortly reviewed.

1 Introduction

There is no precise definition of the spallation. Loosely speaking, this term covers the interaction of high energy hadrons or light nuclei (from a few tens of MeV to a few GeV) with nuclear targets. In a somehow restricted sense, it corresponds to the reaction mechanism by which this high energy projectile pulls out of the target some nucleons and/or light particles, leaving a residual nucleus (sometimes called spallation product). In the GeV range, this is by far the dominant interaction pattern.

Depending upon the conditions, the number of emitted light particles, and especially neutrons, may be quite large. This is, of course, the feature of outermost importance for the so-called subcritical hybrid systems^{1,2)}. This possibility was noticed by E.O. Lawrence in 1947³⁾ after the very first experiments at the newly installed 184 inches cyclotron at Berkeley. Amusingly enough, it was also very early recognized that spallation reactions could be used for producing ^{239}Pu from depleted uranium (uranium resources were not well known at that time) and as an external source of neutrons for fission reactors⁴⁾ (already almost the concept of

*On leave of absence from University of Liège, Physics Department, B5, Sart Tilman, B-4000 Liège 1, Belgium

the energy amplifier !). The interest in spallation reactions has been recently renewed because they are of pivotal importance in the development of powerful neutron sources for various purposes: (i) hybrid systems, be then devoted to energy production^{1,2)} or to incineration of nuclear wastes⁵⁾ ; (ii) so-called multipurpose spallation sources devoted to irradiation studies, material structure analyses,...⁶⁾ ; (iii) future tritium production units⁷⁾.

Another interest, which has not discontinued for three decades, is related to the possibility of producing isotopes. Along these lines, let us notice the large scale investigation by astrophysicists of spallation induced nucleosynthesis and chemical evolution of the Galaxy⁸⁾. Nuclear physicists have been interested for long by the possible production of exotic nuclei⁹⁾ and also recently by the production of exotic beams¹⁰⁾. They are also interested by the possibility of producing hot nuclei¹¹⁾ and studying the multifragmentation of the target¹²⁾.

Correlatively, experiments have focused on one or the other of the two main aspects of spallation reactions : energy spectrum and angular distribution of emitted light particles on the one hand and production rate of residues on the other hand.

This review is organized as follows. In section 2, we make a survey of the experimental data, paying particular attention to neutron cross-sections in proton-induced reactions. In section 3, we review the most popular theoretical approach to spallation reactions, namely the intranuclear cascade (INC) + evaporation model. We briefly discuss the possible improvements of this model as well as alternative descriptions. Finally, section 4 contains our conclusion.

2 Experimental survey

2.1 Light particle emission

2.1.1 Proton induced reactions

Neutron spectra. Most of the existing measurements of neutron double differential cross-sections are reported in table 1. The quality of the data is not completely assessed, as the 7.5° data of refs. 13 and 14 differ by as much as a factor 2. The shape of the spectra seems rather well established. We show a typical example, namely $p + Pb$ at 800 MeV, in fig. 1. It is interesting to discuss these spectra a little bit as they provide a clue to the physics involved. There is a characteristic peak at large energy (almost the incident energy) which is quite visible at 0° and whose importance fades out with increasing scattering angle. This peak is due to quasi elastic scattering, by which a neutron is ejected by the incoming proton and leaves the target without further interaction. This can happen in peripheral interactions only. As a matter of fact, the importance of this peak is proportional to $A_T^{2/3}$, A_T being the target mass number. At smaller energy (~ 250 MeV down) there is a broad bump, which also seems to disappear progressively in the "background" as the scattering angle increases. This bump is due to quasi inelastic scattering, by which the neutron is ejected (without further interaction) by the proton which is excited to a Δ^+ resonance. The importance of this peak at 0° is proportional to $A_T^{1/3}$. The spectra display a huge peak at low energy, which is independent of the angle of emission. This is reminiscent of an evaporation process, owing to the slope parameter and the $A_T^{5/3}$ dependence.

These characteristics led Serber¹⁵⁾ to propose very early a two stage picture of the spallation reactions, namely a first fast stage in which the incident proton loses part of its energy by individual nucleon-nucleon scatterings and a second slow stage in which the remaining target excitation energy is released by evaporation. The component of the neutron spectra extending between the evaporation bump and the quasi inelastic peak is presumably due to multiple collisions. We will come back to this point later on.

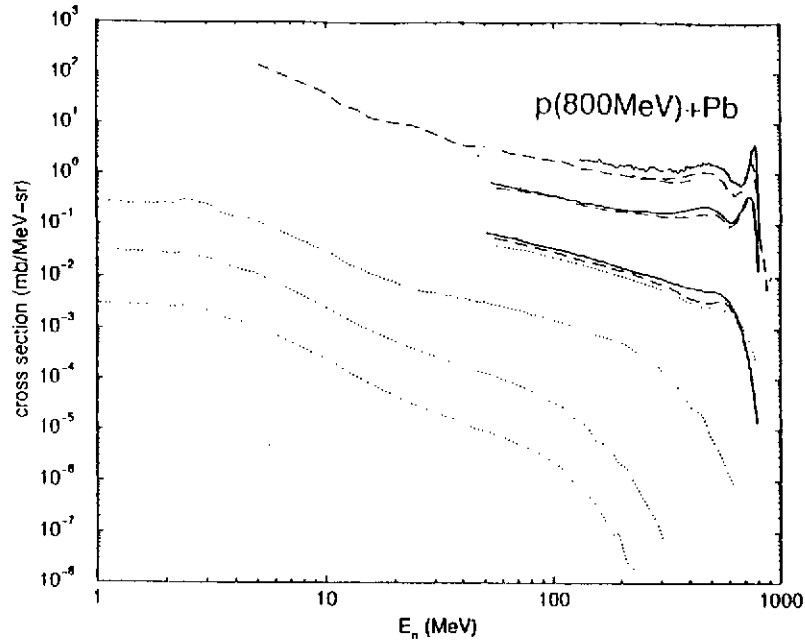


Fig. 1 : Representation of the available data of the neutron double differential cross-section in $p(800 \text{ MeV}) + \text{Pb}$ reactions for $0^\circ, 7.5^\circ, 30^\circ, 60^\circ, 120^\circ$ and 150° from top to bottom. The cross-sections have been multiplied by a factor 10^{-n} , where $n = 1, 2, \dots$ for the angle $7.5^\circ, 30^\circ, \dots$, respectively. The data are taken from the references indicated in table 1.

E_{inc} (MeV)	Angle	Target	Refs.
<i>Neutron Spectra</i>			
113	$7.5^\circ, 30^\circ, 60^\circ, 150^\circ$	<i>Be, C, O, Al, Fe, W, Pb, U</i>	<i>NSE102(1989)310</i>
256	$7.5^\circ, 30^\circ, 60^\circ, 150^\circ$ $7.5^\circ, 30^\circ, 60^\circ, 120^\circ, 150^\circ$	<i>Be, C, O, Al, Fe, U</i> <i>Li, Al, Zr, Pb</i>	<i>NSE110(1992)289</i> <i>PRC47(1993)1647</i>
450	$30^\circ, 45^\circ, 60^\circ$	<i>Be, C, Cu, Co, Bi, Pb</i>	<i>PRC6(1972)1496*</i>
585	$30^\circ, 90^\circ, 150^\circ$	<i>C, Al, Fe, Nb, In, Ta, U</i>	<i>PRC36(1987)1976</i>
597	$30^\circ, 60^\circ, 120^\circ, 150^\circ$	<i>Be, B, C, N, O, Al</i> <i>Fe, Pb, U</i>	<i>NSE115(1993)1</i>
647	0°	<i>Be, C, Al</i>	<i>PLB63(1976)35</i>
800	0° 0° $7.5^\circ, 30^\circ$ $7.5^\circ, 30^\circ, 60^\circ, 120^\circ, 150^\circ$ $30^\circ, 60^\circ, 120^\circ, 150^\circ$	<i>Al, Ti, Cu, W, Pb, U</i> <i>B, C, Al</i> <i>Li, Al, Pb</i> <i>Li, Al, Zr, Pb</i> <i>Be, B, C, N, O, Al, Fe, Cd, W, Pb, U</i>	<i>PRC18(1978)1418</i> <i>PLB63(1976)35</i> <i>RadEj f96(1986)73</i> <i>PRC47(1993)1647</i> <i>NSE112(1992)78</i>
<i>Proton Spectra</i>			
640	140°	<i>Be, C, Al, Cu, Pb</i>	<i>NPA326(1979)297</i>
800	$5^\circ - 30^\circ$ $5^\circ - 30^\circ$ $15^\circ, 30^\circ, 40^\circ, 60^\circ$ $15^\circ - 150^\circ$	<i>C, Ca, Pb</i> <i>Li, C, Al, Ca, V, Zr, Pb</i> <i>C</i> <i>C, NaF, KCl, Cu, Pb</i>	<i>PRC29(1984)204</i> <i>PRC21(1980)1014</i> <i>PL100B(1981)121</i> <i>PRC24(1981)971</i>
1000	$9^\circ - 20^\circ$	<i>C, Ca</i>	<i>NPA184(1972)437</i>
2100	$15^\circ - 150^\circ$	<i>C, NaF, KCl, Cu, Pb</i>	<i>PRC24(1981)971</i>

Table 1 : List of existing experimental neutron data.

Proton and light charged particle spectra. Most of the existing (though not always published) proton double differential cross-sections are reported in table 1. It is interesting to note that the shapes of these cross-sections are similar to the ones of neutron cross-sections at the same energy and for the same target. Charged pion cross-sections have been measured scarcely. Documented double differential cross-sections can be found in ref. 16 for 730 MeV protons and in ref. 17 for 300-580 MeV neutrons. Other measurements deal with multiplicities (see below).

There exists a few measurements of composite particle spectra, basically the low energy part. They can be found, for instance in refs. 18-24. In ref. 20, it is shown that in p -nucleus collisions at 800 MeV, d , t ,... are produced by coalescence of nucleons. We will come back to the multiplicities below.

2.1.2 Other projectiles

There exists some extended measurements of the double differential cross-section for light particle emission (p , d , t , π) in neutron-induced reactions on several nuclei (C , Cu , W , Bi) in the 300-580 MeV domain^{17,25,26}. They show the same qualitative aspects as for incident protons.

Some studies has been made for pion-induced reactions²⁷. Let us mention also the results from antiproton annihilation on nuclei²⁸⁻³⁰, which can be considered as a multispallation process induced by the high energy pions released by annihilation. It is amusing to note that the n/p ratio is abnormally high for these reactions^{29,31}. Finally, there has been some partial measurements with light ion beams, like in refs. 32 (d), 33 (3He), 34 (4He), to cite a few examples. Reactions induced by heavier beams can still fall in the category of spallation reactions, but the mechanisms are becoming more and more complex³⁵.

2.1.3 Particle multiplicities

Very few direct measurements have been done. Multiplicities can be inferred from measured total production cross-section (if the total reaction cross-section is assumed) or from the multiplicity distribution (assuming reasonable impact parameter dependence). Indicative results are shown in table 2. A few comments are in order. The uncertainty can reach a factor 2. The indicated value of the proton multiplicities seem to be too small. The composite multiplicities are at least a factor 10 smaller than the nucleon multiplicity.

Average multiplicity			
Type	Value	System	Reference
$\langle n \rangle$	~ 10	$p(585MeV) + Pb$	PRC36(1987)1976
	~ 6	$p(475MeV) + Bi$	PLB336(1994)147
	~ 11	$p(2GeV) + Bi$	"
$\langle p \rangle$	1.6	$p(800MeV) + Pb$	PRC6(1972)1496*
	2.6	$p(2.1GeV) + Pb$	"
$\langle d \rangle$	~ 0.4	$p(800MeV) + Pb$	"
	0.75	$p(2.1GeV) + Pb$	"
$\langle d \rangle / \langle p \rangle$	0.1	$n(0.3 - 0.58GeV) + Bi$	NPA510(1990)774
$\langle t \rangle / \langle p \rangle$	0.01	"	"
$\langle \pi^+ \rangle$	~ 0.12	$p(730MeV) + Pb$	PRD6(1972)3085
			PRC24(1981)971
$\langle \pi^- \rangle$	~ 0.06	$p(730MeV) + Pb$	PRD6(1972)3085
			PRC24(1981)971

Table 2 : Data on the average particle multiplicities.

2.2 Residues

2.2.1 Introduction

Here we restrict to proton induced reactions. Most of the measurements have been done with radiochemical or activation methods. Therefore they imply the very late stages of the process, well after the cascade stage ($\sim 10^{-22}s$), the evaporation stage ($\sim 10^{-20} - \sim 10^{-16}s$) and even after β -decay of very short-lived emitters (this is to be contrasted to the light particle spectra, which involves the first two processes only). The experimentalists distinguish between independent yields and cumulated yields, the latter referring to isotopes that are fed by several β -decays in cascade. This is the reason why the mass spectra usually show an erratic behaviour around some general trend (see fig. 2). Let us notice that stable isotopes are not seen by this method.

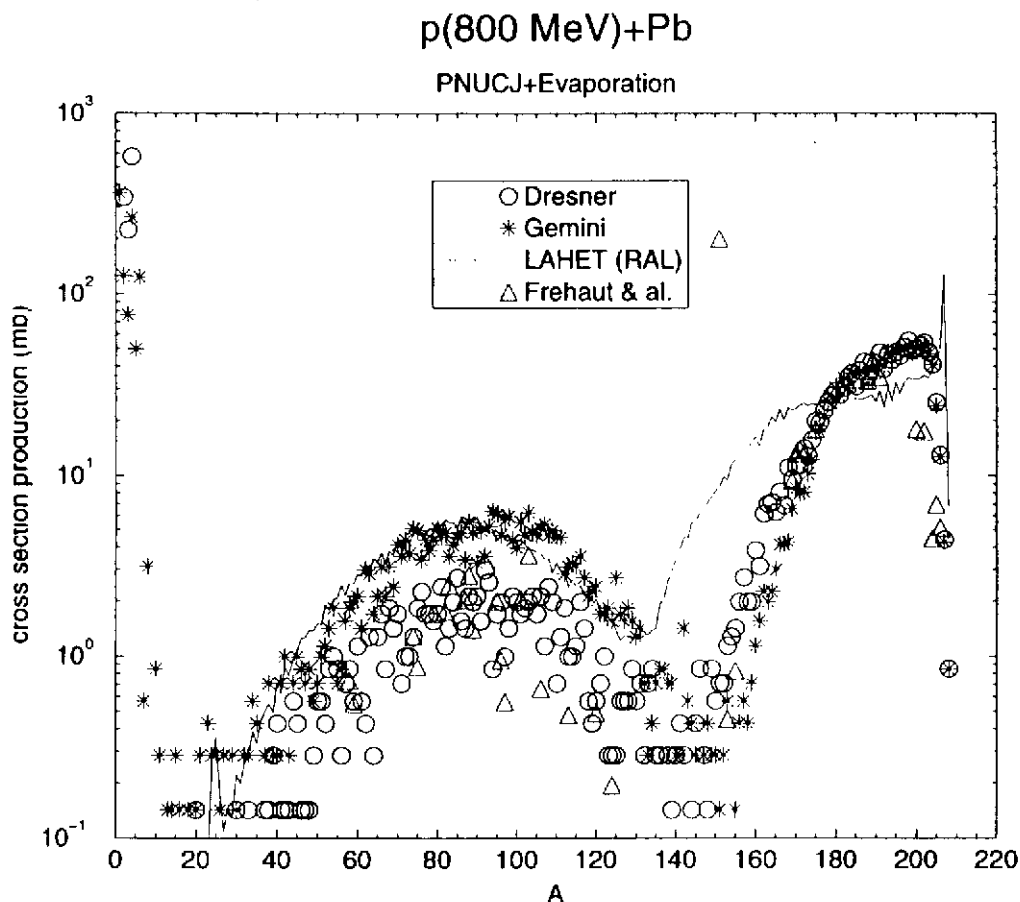


Fig. 2 : Residue mass spectrum for $p(800 \text{ MeV}) + Pb$ collisions. Data⁴⁰⁾ are given by the triangles. The results of various INC + evaporation calculations are indicated by the other symbols (see text for details).

2.2.2 Survey of the experimental data

A huge amount of experimental data for light and medium-heavy targets (of astrophysical interest) has been produced by Michel's group⁸⁾. Of particular interest for nuclear technology are the data of refs.³⁶⁻⁴⁰⁾ (see also ref. 41 for π -induced reactions). One example is given in fig.1. One uses to distinguish the various parts of the mass spectrum according to the suspected origin of the fragments. The residues of mass close to the target one (the largest part, this part may sometimes extend very far) results from the spallation process. They are

called spallation residues. The broad bump around $A \simeq 100$ corresponds to fission (fitting also into the two stage process). Light elements are produced both as fast particles ejected in the first stage and by evaporation of the remnant. The last component (the intermediate mass fragments) extends between the light fragments and the fission peak. They are produced by a simultaneous splitting of the remnant in several similar fragments or by one or several successive evaporation-like binary break-ups. This issue is not settled yet.

Semi-empirical formulae have been proposed to exhibit the general trends of the mass and isotope yields⁴²⁻⁴⁴. They generally give good results. According to ref.44, the yield for spallation products (excluding fission) can accurately be given by:

$$Y(A) = \sigma_R P(A_T) \exp(-P(A_T)(A_T - A)), \quad (1)$$

where σ_R is the total reaction cross-section, A_T is the target mass number, and where

$$P(A_T) = \exp(-0.00757 A_T - 2.584). \quad (2)$$

The isotope yields for a given isobar are given by

$$Y(Z) = n(A) \exp[-R(A)|Z_\beta(A) + \Delta - Z|^U], \quad (3)$$

where $Z_\beta(A)$ is the Z -value of the stability line, $n(A)$ is a normalization constant (to find back $Y(A)$ after integration over Z) and where

$$\Delta = 0.02703A - 0.895. \quad (4)$$

The other parameters $R(A)$ and U (basically equal to 2) can be found in ref. 44. There are some theoretical grounds for expression (1) and the value of P ⁴⁵.

3 Theoretical background

3.1 The INC + evaporation model

3.1.1 Introduction

The INC model has been suggested by Serber¹⁵, soon after the first measurements. It is sufficient for studying nucleon and pion emission in the first stage, which dominates the energy spectra above ~ 40 MeV. The evaporation model has been developed to study compound nucleus reactions. It applies to the evolution of an excited equilibrated system and describes the emission of slow particles and the production of primary residues. A "coupling" between the two models needs be introduced to follow the fate of the system.

3.1.2 The INC model

The INC model has been used for p, π, \bar{p}, \dots -nucleus and heavy ion reactions. The physical picture as well as the performances of the model has been reviewed in refs. 46-49. We will limit ourselves here to a brief outline of the physical picture, of the corresponding space-time evolution of the system and of the theoretical basis.

In short, the INC model pictures the nuclear collision process as a sequence of binary baryon-baryon collisions, occurring as in free space. There are basically two lines of approach (see fig.3). In the first one (used in the Liège cascade⁵⁰), all particles are propagating freely until two of them reach their minimum relative distance of approach d_{min} , when they may

scatter if $d_{min} \leq \sqrt{\sigma_{tot}/\pi}$. In the other line of approach (like in the BERTINI code⁵¹), the target is seen as a continuous medium providing the particles with a mean free path $\lambda = (\rho\sigma)^{-1}$. After a path, the particle is supposed to scatter on a nucleon, which is so promoted from the continuum and which is given a mean free path as well. In the first type of approach, there is a time ordering of the collisions, but not in the second (in more modern versions, like ISABEL⁵², active particles are propagated by small steps).

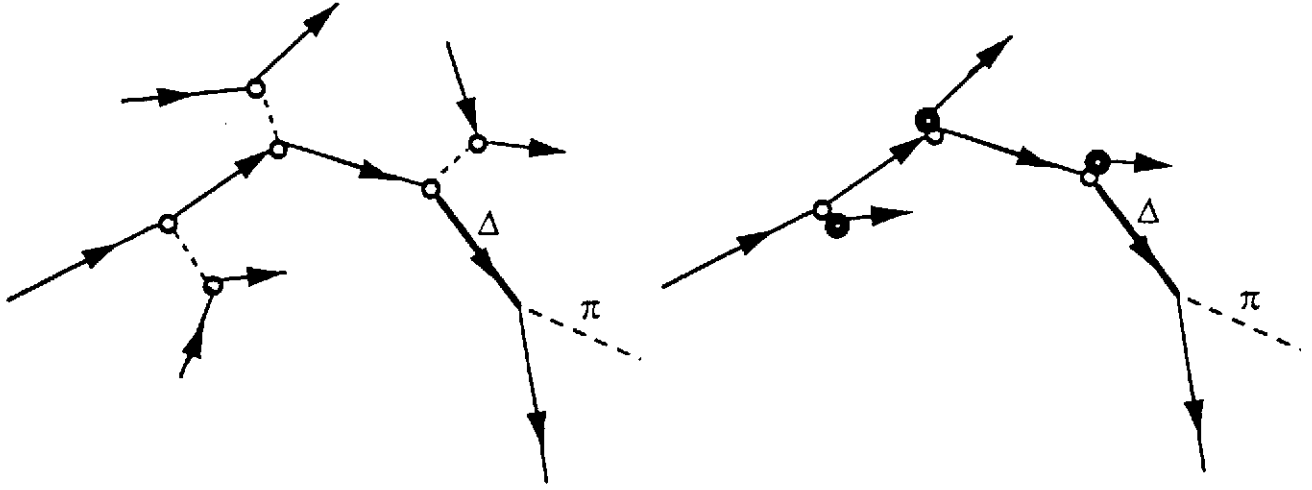


Fig. 3 : Schematic representation of the INC models of the first type (left) and of second type (right). In the latter case, nucleons promoted from the continuum are indicated by heavy dots.

Detailed descriptions of the INC model can be found elsewhere (see refs. 46,53 for the first type and refs. 51,52 for the second type). It is sufficient here to mention that features like target Fermi motion, Pauli blocking of collisions leading to already occupied states, inelastic collisions and pion production (through Δ excitation basically), (constant) mean field in the target volume are included. Collisions are described stochastically, with final states selected according to known data ($\sigma_{inel}/\sigma_{el}$ for inelasticity, $d\sigma/d\Omega$ for the scattering angle). Therefore observables are calculated by ensemble averages.

The most important space-time and physical aspects of the proton-nucleus interaction process in the *GeV* range, as predicted by the INC model, can be summarized as follows.

(1) The available incident energy is progressively shared by the incident particle itself, the ejectiles, the pions and the target:

$$W_p^0 = W_p(t) + K_{ej}(t) + W_\pi(t) + E^*(t), \quad (5)$$

where $E^*(t)$ is the excitation energy of the target (similar conservation law equations can be written for momentum, baryon number and charge). As shown in ref. 50, the proton travels through the target in 10 fm/c or so. It has then transferred a large fraction of its initial energy (given by $W_p^0 - W_p(t \rightarrow \infty)$) to the nucleus, which gets for a while a high excitation energy (see fig.4). The latter is removed to a large extent, and rather quickly (in ~ 20 fm/c) by the emission of a few fast nucleons and some pions. The remaining excitation energy is released further much more slowly by emission of slow neutrons, very much akin to an evaporative process. Let us define E^* as the value of the excitation energy at the time where the slope changes in fig.4.

(2) The nuclear density is depleted slightly when the proton enters the target. A kind of hole is drilled into the latter, where the density is lowered to ~ 0.75 the original value. But the target "heals" quickly, recovering a more or less uniform density much before the ejection of the fast particles is over.

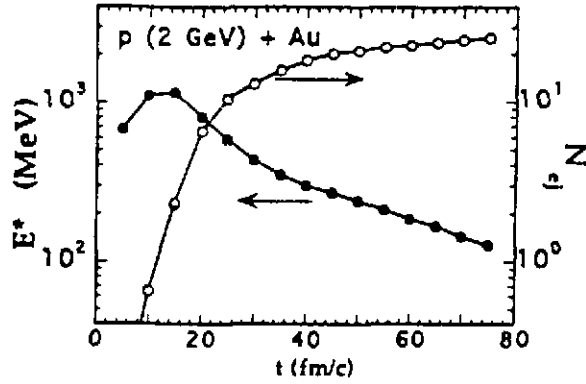


Fig. 4 : Time evolution of the target excitation energy (left scale) and of the number of ejectiles (right scale) in $b = 2$ fm collisions for the indicated system.

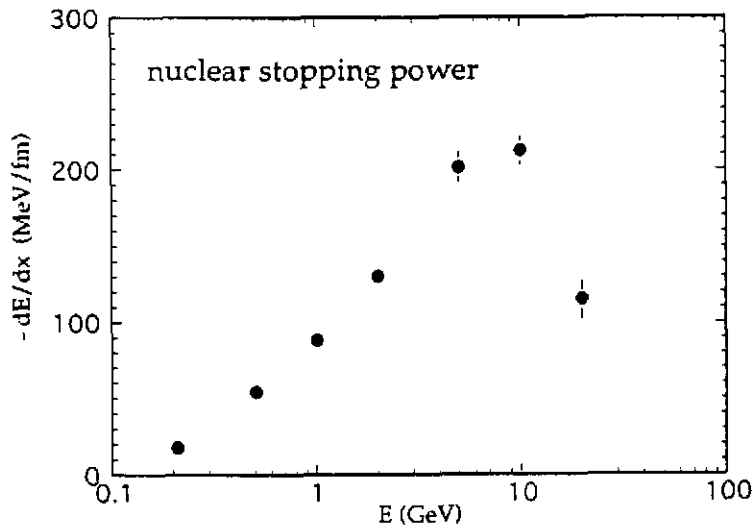


Fig. 5 : Nuclear stopping power for nucleons. From ref. 50.

(3) The relative energy transfer $((W_p^0 - W_p(\infty))/W_p^0)$ is maximum for incident energy between 1 and 2 GeV. The quantity E^* increases smoothly with energy up to 10 GeV.

(4) On the average, the proton loses energy with a rate which is universal; accordingly, we can define a nuclear stopping power, which is given in fig. 5.

(5) The number of fast ejected particles peaks around 2 GeV.

(6) There are large event by event fluctuations in the observables indicated in eq.(5).

The necessary conditions of validity of the INC model are the following

$$\frac{\lambda_B}{v} \ll \tau_{coll} \ll \Delta t, \quad (6)$$

where λ_B is the de Broglie wavelength of the nucleons, v is the average relative NN velocity and Δt is the time interval between successive collisions. This relation expresses the fact that the collisions, involving quasi-classically moving nucleons, are well separated. One has to realize that these conditions, characteristic of a dilute system, are only marginally verified in nuclear physics. They are, of course, reminiscent of the framework of the Boltzmann equation. As a matter of fact, a nuclear Boltzmann equation has recently been derived⁵⁴⁾. It takes the form

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \frac{\vec{p}}{m} \cdot \vec{\nabla} f - \vec{\nabla} U \cdot \vec{\nabla}_p f + \vec{\nabla}_p U \cdot \vec{\nabla} f = \int \frac{d^3 p_2}{(2\pi)^3} \int \frac{d^3 p_3}{(2\pi)^3} \int \frac{d^3 p_4}{(2\pi)^3} |G(12 \rightarrow 34)|^2 \{f_3 f_4 (1-f)(1-f_2) - f f_2 (1-f_3)(1-f_4)\} \delta^3(\vec{p}) \delta(e(p)), \quad (7)$$

where f_i stands for $f(\vec{r}, \vec{p}_i, t)$, the probability of finding a nucleon with momentum \vec{p}_i at time t and place \vec{r} . The δ -functions stand symbolically for momentum and energy conservation. In addition

$$e(p) = \frac{p^2}{2m} + U(p), \quad (8)$$

$$U(p) = \int \frac{d^3 p'}{(2\pi)^3} \langle \vec{p} \vec{p}' | G(\rho(\vec{r})) | \vec{p} \vec{p}' \rangle \quad (9)$$

and G is the Brueckner matrix, solution of

$$G = V + V \frac{Q}{E_{12} - H_{12}} G, \quad (10)$$

where Q is the Pauli operator acting on the intermediate states. This G -matrix describes the in-medium scattering of two nucleons. The Boltzmann equation corresponds to the limit where $U = 0$, the factors $(1 - f)$ are missing and G is replaced by the free T -matrix.

It has been shown that the INC is solving the Boltzmann equation (with the $1 - f$ blocking factors) on the average. Mathematically, the stochastic occurrence of collisions corresponds to a Monte-Carlo evaluation of the collision integral. Let us stress however that the INC is doing more than just solving the Boltzmann equation as it propagates all N-body distributions, whereas the latter deals with the one-body distribution only.

3.1.3 The evaporation model(s)

The plural has been put purposely, as there is a large variety of models, or at least of numerical codes (for a short review, see ref. 55). As far as the basic ideas are concerned, all models (we restrict here to the main body of models entailing successive binary break-up) fall into one of the two following classes:

(a) the Weißkopf-Ewing model⁵⁶⁾. Here, the partial width for the decay $A \rightarrow B + a$, corresponding to the energy conservation equation

$$E^* = E_B^* + S_a + \epsilon_a, \quad (11)$$

where S_a and ϵ_a are the separation energy and the kinetic energy of particle a , is given by

$$d\Gamma = 2\pi |\langle A | T | B a \rangle|^2 \rho(E_B^*) \frac{V k_a^2 dk_a}{(2\pi)^3}. \quad (12)$$

It can also be written as

$$d\Gamma = \sigma(aB \rightarrow A) \frac{2m}{(2\pi)^3 \hbar^2} \frac{\rho(E_B^*)}{\rho(E^*)} \epsilon_a d\epsilon_a, \quad (13)$$

by using

$$\sigma(aB \rightarrow A) = \frac{2\pi |\langle A|T|Ba \rangle|^2 \rho(E^*)}{h \hbar k/mV} \quad (14)$$

In these equations ρ is the density of states and $\sigma(aB \rightarrow A)$ is the inverse capture cross-section. For the sake of clarity, we have disregarded the spin of the particles and the possible excitation of particle a .

(b) the transition state method (TSM). In this case, it is assumed that the transition probability is entirely given by the properties of the barrier appearing in the variation of interaction energy between B and a with the coordinate representing the separation. More precisely, the transition rate is assumed to be given by the ratio of the number of states ($B+a$) at the barrier occupied per unit time in an energy interval and the number of initial states in the corresponding energy interval:

$$\omega = \frac{d\Gamma}{\hbar} = \frac{\rho(\tilde{E}_B^*) d\tilde{E}_B^* (dp_a dq_a / 2\pi\hbar) / dt}{\rho(E) dE} \quad (15)$$

Note that this time, \tilde{E}_B^* and ϵ_a (equal to $p_a^2/2m$) are the energy of the so-called activated complex and the kinetic energy of particle a along the coordinate q_a at the barrier, respectively. One has $E^* = \tilde{B} + \tilde{E}_B^* + \epsilon_a$, where \tilde{B} is the height of the barrier. Because of the latter relation and $dq_a/dt = v_a = p_a/m$, one obtains

$$d\Gamma = \frac{1}{2\pi} \frac{\rho(\tilde{E}_B^*)}{\rho(E^*)} d\epsilon_a \quad (16)$$

This method was originally proposed by Bohr and Wheeler⁵⁷⁾ for the case of fission.

In both methods, a close expression for the total emission width (in channel $B+a$) can be obtained if a simplified expression is assumed for the density of states, namely

$$\rho \propto e^{2\sqrt{aE^*}}, \quad E^* = aT^2 \quad (17)$$

One then obtains

$$\Gamma = \frac{2m\sigma(aB \rightarrow A)}{(2\pi)^3 \hbar^2} T^2 e^{-\frac{S_p}{\hbar}} \quad (18)$$

and

$$\Gamma = \frac{T}{2\pi} e^{-\frac{\tilde{B}}{T}}, \quad (19)$$

for method (a) and method (b), respectively.

Model (b) was extended to any binary decay by Moretto^{58,59)} and by Swiatecki⁶⁰⁾, who first advocates its use for light particle emission. The two methods are differing on three points: (i) In eq. (12), the quantity $\sigma 2m\epsilon_a / 2\pi\hbar^2 = \sigma / (2\pi/k^2)$ is nothing but a transmission factor. The latter is missing in eq. (15). Swiatecki proposed to introduce a similar factor for the transmission of the one-dimensional factor. (ii) The 3D phase space is used in (a), whereas only one degree of freedom is considered in (b). (iii) The density of states of the activated complex is used in (b), whereas the (free) density of states of B is introduced in (a). There is a spectacular difference between the numerical values of the widths (or lifetimes) predicted by the two models, as illustrated in ref. 61. It is not easy to trace back the origin of these differences. Furthermore, especially for model (a), the lifetimes are abnormally small at large excitation energy (note that for calculating the evaporation yields, only relative values are

However, the integrated INC contribution is sizably smaller than the evaporation contribution. To fix the ideas, the ratio between the two contributions is ~ 0.1 at 150° and ~ 0.55 at 30° . In absolute value the agreement on the evaporation is much more important than the agreement on the INC component. Concerning the neutronics of the hybrid systems, deviations of a factor 2 are not acceptable. Therefore these calculations have to be improved (note that the compatibility of the data have also to be improved!). In view of these considerations, it would be more appropriate and more efficient to improve the evaporation model rather than the cascade model. It is however fair to recall that high energy neutrons are producing secondary reactions in a thick target and thence an error on their yield is expected to be amplified in transport calculation in macroscopic matter. The importance of the evaporation contribution is also impressively underlined by ref. 11 : the average total neutron multiplicity is about 4 times the multiplicity of the neutrons coming from the INC stage.

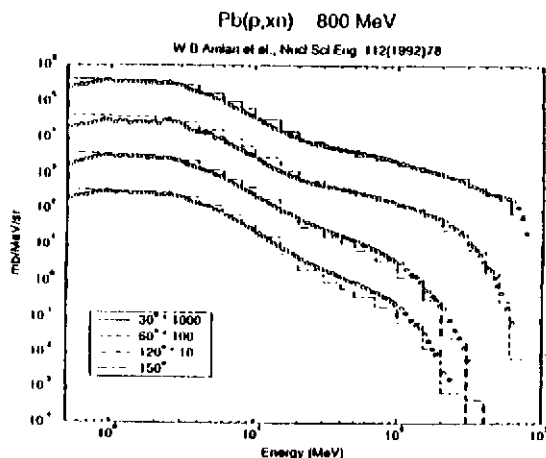


Fig. 6 : Neutron double differential cross-section data (ref. 66) compared with the INC calculations of ref. 64.

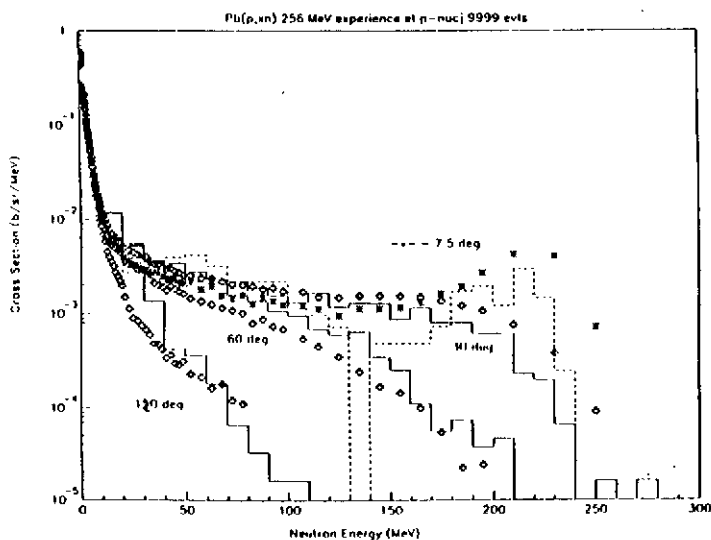


Fig. 7 : Comparison of neutron double differential cross-section data (ref. 14) with the predictions of the Liège INC model (from ref. 84). Only the cascade component is shown.

The importance of the evaporation is even more crucial for the description of the residue mass spectrum. In fig. 1, the results of two calculations⁶⁷⁾, both using the Liège cascade, but different evaporation codes, are shown. Globally, they both give reasonable agreement (in the standards of heavy ion physics, for instance). However, the discrepancy between the two calculations is much larger the accuracy with which the yield of some radioactive isotopes need to be known for radiotoxicity evaluations⁶⁾.

needed). Obviously, what is missing in the derivation of both models (a) and (b) is the time description of the system. Indeed, it is implicitly assumed that the system does not change significantly on the time scale t_{ev} for evaporating a particle. Furthermore, it is assumed that the initial state can be described by a stationary state. These assumptions require

$$t_{ev} \ll t_{eq}, t_{sp}, \quad (20)$$

where t_{eq} is the equilibration time, i.e. the time necessary for a fluctuation to be damped and $t_p \simeq R/v_F$ is the time necessary for a nucleon to cross the system. This is a very stringent condition at high excitation energy. An additional condition is that the system is not too much perturbed by the evaporation process itself. This does not seem to be the case when neutron emission competes with slow fission⁵⁵⁾.

Another missing ingredient is the probability for preformation of the emitted particle. This is probably more and more important as the mass of the emitted particle is increasing. This is presumably one of the reasons for the difference between the results for the mass yields in the two models. In general, models (a) give satisfactory results for light particles but underestimates the yield for intermediate mass fragments. The converse is true for models (b) in general.

Apart from these open problems, the evaporation models are crucially sensitive to the parametrization of the density of states. At very low excitation energy, this quantity has been determined systematically by counting narrow resonances⁶²⁾. Otherwise, one has to rely on calculations. Only very limited microscopic calculations have been done. Most of other theoretical investigations are based on the single-particle model. Except at very low energy, all predict the following form:

$$\rho = C a^\alpha \frac{e^{2\sqrt{aE^*}}}{E^{*\beta}}, \quad (21)$$

but disagree on the exponents α and β . Pure single-particle models predict $E^* = aT^2$ and $a = A/16$. The systematics at low energy⁶²⁾ shows important shell effects and strong structure effects: it indicates $a \simeq A/8$ when shell effects are averaged out. Using single-particle model with a realistic potential gives a more reasonable value of a ⁶³⁾ and predicts a decrease with increasing value of T . However, one has to stress that this parameter enters through the exponential and only a small modification of it may induce a strong effect on the results.

3.1.4 Practical applications. Possible improvements

An extensive comparison between the predictions of the INC + evaporation model and the experimental data described in Sect. 2 is beyond the scope of this review. We will only give an idea of the kind of agreement that can be achieved, indicate how INC effects can be disentangled from evaporation effects and look for possible improvements.

Fig. 6 shows the predictions of a calculation⁶⁴⁾ based on the Bertini cascade and a standard evaporation code⁶⁵⁾, compared to the standard data of ref. 66. The agreement is globally satisfactory. Results with the Liège cascade are equally good⁶⁷⁾, as shown in fig. 7 on another example. It is interesting to note (see fig. 8) that the neutron spectrum can be split almost abruptly in a low energy component due to the evaporation and a high energy component due to the INC stage. A close examination of fig.8 reveals that taking the INC contribution alone for neutron energy larger than 15 MeV and the evaporation contribution alone for less than 15 MeV would give an agreement of as good quality (if not better in this particular case) as the one obtained with the full calculation. The agreement seems to be equally good for the INC component and the evaporation component as well, deviations being not larger than a factor 2.

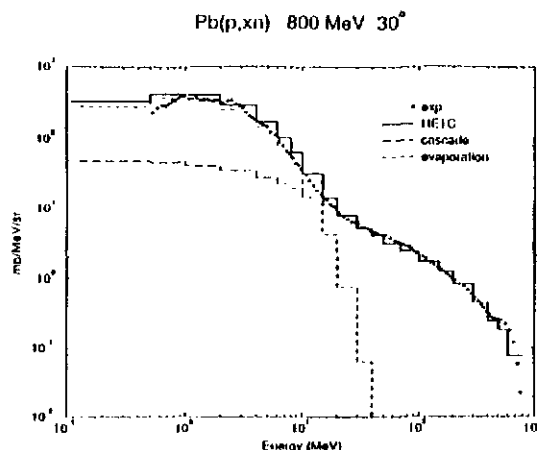


Fig. 8 : Splitting of the neutron spectrum in cascade and evaporation contributions (from ref. 64).

Of course, the separation between INC and evaporation is somewhat artificial and model dependent. This brings us to the discussion of the “coupling” between the INC code and the evaporation one. Usually, a criterion is chosen to stop the cascade process at some stage. The residue mass, charge, excitation energy and sometimes angular momentum are evaluated and used as input for the subsequent evaporation calculation. This should be done event by event in principle. The necessity to flip to evaporation model is not just a matter of convenience (running the cascade for a long time would be time-consuming) but is dictated by the fact that the evaporation process involves structure effects (shell effects and configuration mixing, as we mentioned above) that are not taken into account by the cascade, which embodies average single-particle properties only. For the Liège cascade, the arbitrariness in the choice of the stopping criterion has tentatively been minimized, as it is based on physical arguments. In the careful analysis of ref. 68, it is noticed that the time evolution of the excitation energy is changing slope at a rather well defined time t_{sl} (~ 30 fm/c in the case of fig. 4) and that this change is correlated in the time variation of other quantities like the number of ejectiles, the number of participants and the mean energy of the ejectiles. At this time, the target density is more or less uniform again and the emission of nucleons is fairly isotropic. The further evolution of the system within the cascade is akin to evaporation (see fig. 4). However the time scale is too short, compared to the one predicted by the Weißkopf-Ewing model for instance. The quantity t_{sl} thus looks as the appropriate stopping time. It cannot be defined more accurately than, say, 5 fm/c. It has been checked that the particle spectra are not sensitive to such a variation. Stopping a little bit earlier (later) generates a little bit less (more) neutrons of energy around 20 MeV in the cascade, but leaves a little more (less) excited residue, which evaporates a little bit more (less) neutrons in the same energy range. As for the residues, the effect is presumably more important.

The stopping criteria in the Bertini model (also in ISABEL) pertains to the largest kinetic energy of the nucleons remaining in the target. The process is stopped when this quantity is smaller than a certain value, chosen freely (40 MeV is often quoted). It is not clear whether this criterion can be translated in a time criterion in the Liège cascade. It seems that this would correspond to a value of t_{sl} much smaller than the one recommended in ref. 68, too short for the remnant to be considered as equilibrated. This might be the origin of the peak predicted by the LAHET calculation (see fig. 2). In this cascade calculation, the remnant is left most of the time with a huge excitation energy, leading to a strong depletion of the mass spectrum below this peak.

Let us discuss briefly the possible improvements of the INC + evaporation model. For the INC itself, one may distinguish the intrinsic possible improvements, remaining in the basic

semi-classical framework of the models and those that are supposed to enlarge this framework. Most of the first ones can be guessed from the nuclear Boltzmann equation (7). They involve using in-medium cross-sections⁶⁹⁻⁷¹⁾ for both elastic and inelastic scattering, using energy (and density) dependent mean field and the corresponding phase space distortion in the final states of binary collisions⁷¹⁾. Additional improvements pertain to in-medium properties of the resonances and to the treatment of the Pauli principle, which works on the average only. The improvements of the second type mentioned above have not been investigated yet, but they can be identified as coming from the properties of strongly interacting fermions. Some of them have been studied in detail for nuclear matter at equilibrium and even to some extent for ground state nuclei^{72,73)}. Nucleons are no longer on the energy shell: there is no definite relation between their energy and momentum. For a given value of the latter, there is a distribution of the values of the former, and conversely. For our purpose, this has at least two consequences. The momentum distribution of the target nucleons has a tail above the Fermi momentum (even though the energy does not extend above the Fermi energy). Collisions between off energy-shell nucleons induce memory effects in the collision process^{74,75)}. Related effects may influence the quasi-elastic and quasi-inelastic processes.

3.2 Alternative approaches

In heavy ion physics, the INC model has given way to other approaches like QMD⁷⁶⁾ or AMD⁷⁷⁾, which present improvements of the mean field treatment, as especially for the first one, and of the Pauli principle as for the second one. In spallation reactions, where the motion in phase space is much more modest these improvements are not as crucial. Furthermore, the calculations in these new approaches are very time-consuming and it is not realistic to insert them in large transport codes. Of more direct interest are the exciton (or pre-equilibrium) model and the FKK model. We will discuss the latter shortly.

The exciton model was initiated by Griffin⁷⁸⁾ and Blann⁷⁹⁾ and exists now with many degrees of sophistication (see ref. 80). The essential feature is the description of the time dependent excitation energy of the nucleus by a evolving population of the particle-hole pairs. A single-particle density has to be postulated, as well as an initial population. The population of the n exciton state follows a set of master equations of the type

$$\begin{aligned} \frac{dP_n(t)}{dt} = & P(n-2, t) \lambda_+^{n-2}(E) + P(n+2, t) \lambda_-^{n+2}(E) \\ & - P(n, t) [\lambda_+^n(E) + \lambda_-^n(E)] - P(n, t) \lambda_{ev}^n(\varepsilon), \end{aligned} \quad (22)$$

where λ_+^p (λ_-^p) is the transition from state p to state $p+2$ ($p-2$), and where λ_{ev}^n is the probability to evaporate a particle of energy ε from state n . Only $p \rightarrow p \pm 2$ transitions are allowed in reminiscence of the two-body character of nucleon-nucleon interaction. This model has been applied only below 100 MeV where the initial configuration may be chosen rather simply. According to a suitable choice for the end of the process, a good agreement with the experiment may be achieved. The latter is often obtained with an adjustable choice of the transition probabilities. Let us notice that more sophisticated master equations may be used, based on a realistic single-particle spectrum and single-particle state occupation numbers. Recently, the exciton model has been used as an intermediate step between the INC and the evaporation model⁸¹⁾. This procedure introduces several extra parameters, as the times for passing from one stage to the other and the transition probabilities. The only advantages are the use of a discrete single-particle spectrum (instead of a continuous one in the INC) and the possibility to include in a simple (but non parameter free) way the emission of composites.

The multistep compound and multistep direct theory of Feshbach, Kerman and Koonin⁸²⁾, also assumes that the collision process proceeds by stages of increasing complexity, but tries to preserve some quantum mechanics features. The projectile enters the nucleus and produces a $2p - 1h$ state. By further interactions it can produce $(n + 1) p - nh$ configurations, increasing (or decreasing) the value of n by one unit at each step. A distinction is made between multistep compound process where all particles are bound and multistep direct where at least one particle is in the continuum. For multistep compound processes, the transition probabilities are assumed to have random phases whereas a constructive interference is assumed for transition keeping the same direction for the nucleons. Complicated expressions can be written for the cross-sections (see ref. 80). In practice only two or three steps can be handled microscopically in as much as the transition probabilities should be calculated by the DWBA method. Very promising results⁸³⁾ are obtained below 50 MeV or sometimes 100 MeV, an energy range where this method is expected to be restricted for practical reasons.

4 Conclusion

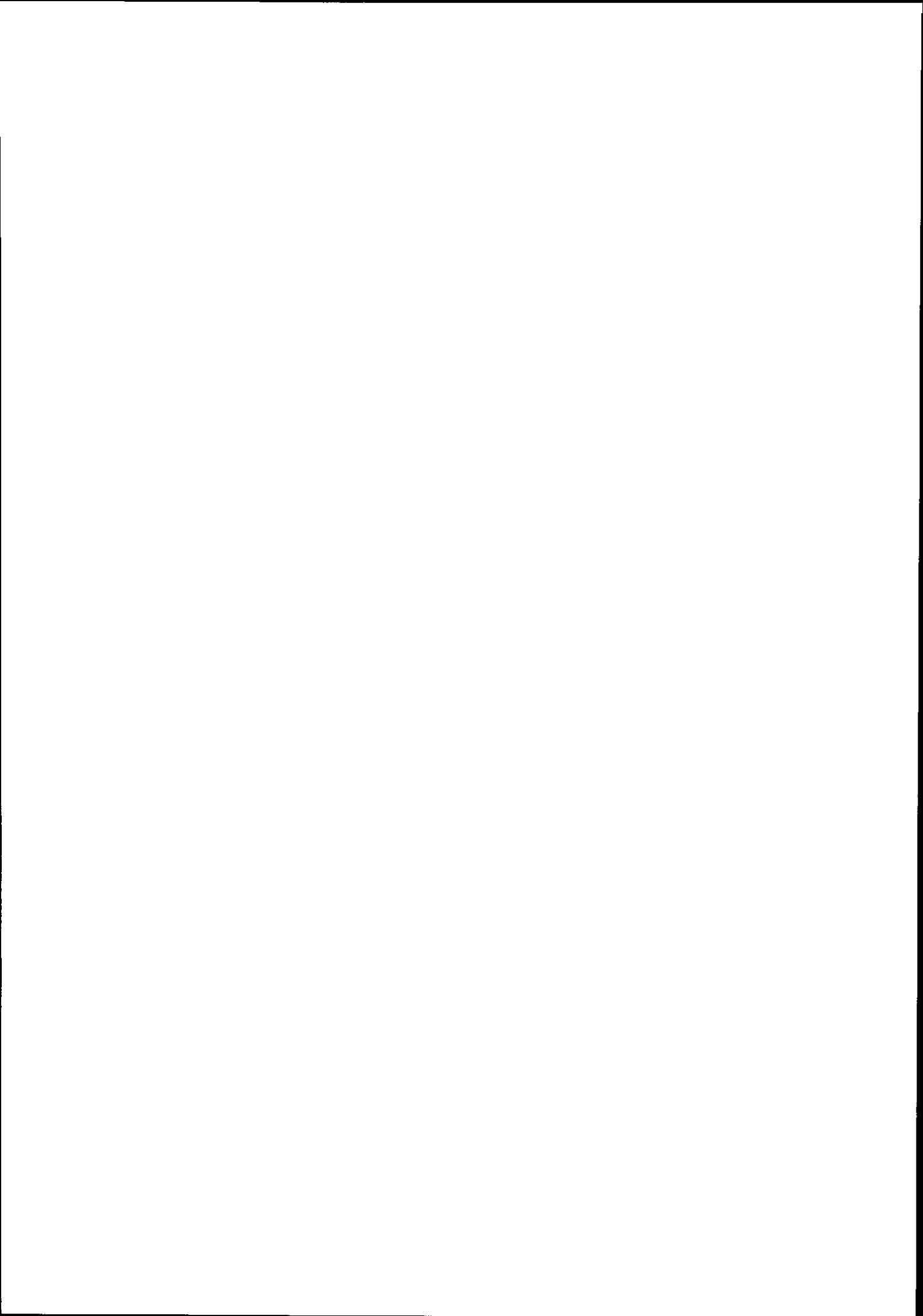
We have seen that the bulk of the experimental data concerning spallation reactions can be understood in the frame of the INC + evaporation model, which embodies the division into a first rapid cascade stage (dominated by nucleon-nucleon collisions) and a slow evaporation stage. However finer details, necessary for building a reliable highly predictive transport code for propagation inside matter, are still to be worked out, both experimentally and theoretically. Discrepancies between overlapping data may be as large as a factor 2 and have to be removed. On the theoretical side, the INC model has to be improved, particularly concerning the quasi elastic and quasi inelastic components. But a more important effort has to be put on the improvement of the evaporation codes, both on the formulation of the model and on the ingredients. Finally, one should not forget that good models for composite production are still lacking.

I would like to thank S. Vuillier and C. Volant for their help in the preparation of the manuscript.

References

- 1) C.D. Bowman et al., NIM A320 (1992) 336.
- 2) C. Rubbia et al., "Conceptual design of a fast neutron operated high power energy amplifier, preprint CERN/AT/95-44 (ET), 1995.
- 3) C.M. Van Atta, "A brief history of the MTA project", unpublished.
- 4) W.B. Lewis, Atomic energy of Canada report DR-24, 1952.
- 5) M. Spiro et al., "The INCA project", Journées GEDEON, Jouy-en-Josas, France, May 1996.
- 6) F. Atchison, Proc. Meeting on Targets for neutron beam spallation sources, KFA-Jülich, Jülich-Conf. 34 (1980) 17.
- 7) The TRISPAL Project, CEA-DAM (19xx).
- 8) R. Michel et al., NIM B103 (1995) 183.
- 9) P.G. Hansen, Ann.Rev.Nucl.Sci. 29 (1979) 69.
- 10) B. Johnson and D.D. Warner, in "Physics and techniques of secondary nuclear beams", ed. by J.F. Bruandet, B. Fernandez and M. Bex, Editions Frontières, Gif-sur-Yvette, 1992.
- 11) L. Pienkowski et al., Phys.Lett. B336 (1994) 147.
- 12) N.T. Porile et al., Phys.Rev. C39 (1989) 1914.
- 13) S. Stamer et al., Phys.Rev. C47 (1993) 1647.
- 14) M.M. Meier et al., Radiat.Eff. 96 (1986) 73.
- 15) R. Serber, Phys.Rev. 72 (1947) 1114.
- 16) D.R.F. Cochran et al., Phys.Rev. D6 (1972) 3085.
- 17) R. Büchle et al., Nucl.Phys. A515 (1990) 541.
- 18) X. Ledoux, Ph.D. Thesis, University of Caen (1994).
- 19) G.D. Westfall et al., Phys.Rev. C17 (1978) 1368.
- 20) S. Nagamiya et al., Phys.Rev. C24 (1981) 971.
- 21) M. Mahi et al., Phys.Rev.Lett. 60 (1988) 1936.
- 22) A.I. Warwick et al., Phys.Rev. C27 (1983) 1083.
- 23) J.P. Alard et al., Il Nuovo Cimento 30A (1975) 320.
- 24) R.E.L. Green, R.G. Korteling and K.P. Jackson, Phys.Rev. C29 (1984) 1806.
- 25) J. Franz et al., Nucl.Phys. A510 (1990) 774.
- 26) M.L. Brookes et al., Phys.Rev. C45 (1992) 2343.
- 27) R.D. McKeown et al., Phys.Rev. C24 (1981) 211.
- 28) J. Cugnon and J. Vandermeulen, Ann.Phys. (Fr.) 14 (1989) 49.
- 29) D. Polster et al., Phys.Rev. C51 (1995) 1167.
- 30) F. Goldenbaum et al., HMI preprint, April 1996.
- 31) B. Van den Bossche and J. Vandermeulen, Z.Phys. A348 (1994) 281.
- 32) L. Anderson et al., Phys.Rev. C28 (1983) 1224.
- 33) K. Kwiatkowski et al., Phys.Rev. C49 (1994) 1516.
- 34) R.R. Doering et al., Phys.Rev.Lett. 40 (1978) 1433.
- 35) W.G. Lynch, Ann.Rev.Nucl.Sci. 37 (1987) 493.
- 36) M. Lindner and R.N. Osborn, Phys.Rev. 103 (1956) 378.
- 37) R. Wolfgang et al., Phys.Rev. 103 (1956) 394.
- 38) S.B. Kaufmann and S.P. Steinberg, Phys.Rev. C22 (1980) 167.
- 39) L. Kadi, Ph.D. Thesis, unpublished.
- 40) J. Fréhaut et al., to be published.
- 41) S.B. Kaufmann, E.P. Steinberg and G.W. Butler, Phys.Rev. 20 (1979) 2293.
- 42) G. Rudstam, Z.Naturforschung 21A (1966) 1027.
- 43) R. Silberger and C.H. Tsao, Astrophys.J. Suppl. 25 (1973) 315 ; 25 (1973) 335.
- 44) K. Sümmerer et al., Phys.Rev. C42 (1990) 2546.

- 45) A.Y. Abul-Magd, W.A. Friedman and J. Hüfner, Phys.Rev. C34 (1986) 113.
- 46) J. Cugnon, Nucl.Phys. A389 (1982) 191c.
- 47) G.D. Harp et al., Phys.Rev. C8 (1973) 581.
- 48) D. L'Hôte and J. Cugnon, in "Relativistic heavy ion collisions", ed. by L.P. Csernai and D. Strottman, Int.Rev.Nucl.Phys., WSPC, 1991.
- 49) J. Cugnon, T. Mizutani and J. Vandermeulen, Nucl.Phys. A352 (1981) 505.
- 50) J. Cugnon, Nucl.Phys. A462 (1987) 721.
- 51) H.W. Bertini et al., Phys.Rev. 131 (1963) 1801.
- 52) Y. Yariv and Z. Fraenkel, Phys.Rev. C20 (1979) 2227.
- 53) J. Cugnon and M.-C. Lemaire, Nucl.Phys. A489 (1988) 781.
- 54) W. Botermans and R. Malfliet, Phys.Rep. C198 (1990) 115.
- 55) R.G. Stokstad, in "Treatise on heavy ion science", ed. by D.A. Bromley, Plenum Press, New York, 1984, vol. 3, chap. 2.
- 56) V.F. Weißkopf and D.H. Ewing, Phys.Rev. 57 (1940) 472, 935.
- 57) N. Bohr and J.A. Wheeler, Phys.Rev. 56 (1939) 426.
- 58) L.G. Moretto, Nucl.Phys. A247 (1975) 211.
- 59) L.G. Moretto, Prog.Part.Nucl.Phys. 21 (1988) 401.
- 60) W.J. Swiatecki, Aus.J.Phys. 36 (1983) 641.
- 61) J. Richert and P. Wagner, Z.Phys. A341 (1992) 171.
- 62) J. Garg, in "Statistical properties of nuclei", ed. by J.R. Huizenga, Plenum Press, New York, 1972.
- 63) S. Shlomo and J.B. Natowitz, Phys.Rev. C44 (1991) 2878.
- 64) O. Bersillon, unpublished.
- 65) L. Dresner, Oak Ridge report ORNL-TM-196 (1962).
- 66) W.B. Amian et al., Nucl.Sci.Eng. 112 (1992) 78.
- 67) S. Vuillier, private communication, 1996.
- 68) L. Pienkowski et al., Proc. Winter Meeting on Nuclear Physics, Bormio, 1993, ed. by I. Iori, RSEP Milano.
- 69) J. Cugnon, A. Lejeune and P. Grangé, Phys.Rev. C35 (1987) 861.
- 70) Q.G. Li and R. Machleidt, Phys.Rev. C49 (1994) 566.
- 71) J. Cugnon and R. Sartor, to be published.
- 72) J.-P. Jeukenne, A. Lejeune and C. Mahaux, Phys.Rep. 25C (1976) 83.
- 73) C. Mahaux and R. Sartor, Adv.Nucl.Phys.Rev. 20 (1991) 1.
- 74) L.P. Kadanoff and G. Baym, "Quantum statistical mechanics", W.A. Benjamin, New York, 1962.
- 75) R. Malfliet, Nucl.Phys. A545 (1992) 3c.
- 76) J. Aichelin, Phys.Rep. 202 (1991) 233.
- 77) A. Ono and H. Horiuchi, Phys.Rev. C51 (1995) 299.
- 78) J.J. Griffin, Phys.Rev.Lett. 17 (1966) 478.
- 79) M. Blann, Ann.Rev.Nucl.Sci. 25 (1975) 123.
- 80) P.E. Hodgson, Proc. Varenna Conference on Nuclear reaction mechanisms, Editrice Compositori, Bologna, 1982.
- 81) S. Mashnik, unpublished.
- 82) H. Feshbach, A. Kerman and S.E. Koonin, Ann.Phys. (New York) 125 (1980) 429.
- 83) A. Koning, RCN Petten report, to be published.
- 84) C. Volant, unpublished.



PHYSIQUE DES CIBLES DE SPALLATION : LES CODES ET LEUR VALIDATION

Joël FRÉHAUT

*Service de Physique Nucléaire
CEA/Bruyères-le-Châtel
BP 12, 91680 BRUYERES-LE-CHÂTEL*

RÉSUMÉ

Des systèmes de codes permettent d'étudier les différents aspects du développement et de l'optimisation des cibles de spallation. Après une présentation de la physique de base de ces codes, nous discutons les développements en cours et les perspectives qui s'offrent. Nous montrons ensuite que la base de données actuelles est trop incomplète pour assurer une validation satisfaisante des codes et nous présentons le programme expérimental qui a été mis en place pour répondre aux besoins.

ABSTRACT

Different code system are devoted to development and optimization of spallation targets. The basic physics included in these codes, as well as improvements in progress and new perspectives, are presented. The existing data basis available for code validation is reviewed, as well as the recent experimental programs developed to extend and improve it.

1 - INTRODUCTION

La spallation est une interaction entre une particule énergétique et un noyau dans laquelle plusieurs nucléons rapides sont émis, en laissant un noyau résiduel qui se désexcite par évaporation, ou subit éventuellement une fission binaire. Elle a été observée dès la fin des années 40, quand les accélérateurs ont pu fournir des projectiles d'énergie supérieure à la centaine de MeV. Les principes généraux de l'interaction ont été établis par Serber¹⁾, les premiers calculs ont été effectués par Goldberger²⁾.

La spallation se prête particulièrement bien à des simulations par la méthode de Monte Carlo. Les premiers calculs ont été effectués dès 1958 par l'équipe de Metropolis³⁾, et ont bien mis en lumière les principales caractéristiques de la spallation. Un programme plus général a été écrit par Bertini en 1963⁴⁾ et étendu aux énergies de projectiles inférieures à 2 GeV en 1969⁵⁾. C'est cette dernière version qui a été incluse dans le code HETC (High Energy Transport Code) en 1972⁶⁾ qui est encore largement utilisé de nos jours.

La spallation est l'un des mécanismes les plus efficaces pour produire des neutrons. Elle offre aujourd'hui une alternative plus sûre que la fission pour de nouvelles applications telles que l'incinération des déchets radioactifs, la production d'énergie dans des réacteurs hybrides avec le développement de nouvelles filières, la production de tritium,

La conception et l'optimisation des cibles de spallation, qui sont très complexes, nécessite des simulations numériques multiples. Il ne s'agit plus maintenant d'étudier un phénomène physique, mais de fournir des réponses quantitatives qui vont guider la conception des cibles et définir les performances ultimes. Dans le passage de la recherche aux applications, il y a un aspect économique important. Les codes doivent être complets et inclure suffisamment de physique pour fournir des résultats quantitatifs fiables ; mais ils doivent aussi être suffisamment simples pour limiter les temps de calcul et permettre ainsi de multiplier les simulations.

En pratique, plusieurs aspects sont à considérer :

- Il faut optimiser la neutronique de la cible, c'est-à-dire :
 - maximiser la production de neutrons ;
 - améliorer le rendement en réduisant les fuites hors cible et les captures stériles de neutrons.

- Il faut prendre en compte les contraintes liées à la réalisation, la fiabilité et la sécurité de la cible. Les codes doivent notamment fournir :
 - les dépôts d'énergie dans les différentes parties de la cible (refroidissement) ;
 - l'évolution temporelle de la population de noyaux résiduels (corrosion, chaleur résiduelle) ;
 - la fluence et le spectre en énergie des particules ainsi que l'énergie de recul des noyaux dans les différentes parties de la cible (évaluation des dommages) ;
 - la fluence et le spectre en énergie des neutrons et photons gamma de fuite (calculs de protection).

Ces contraintes imposent une structuration de la cible qui peut avoir des répercussions importantes sur la neutronique. Optimiser une cible, c'est trouver le meilleur compromis entre la neutronique, c'est-à-dire les performances, et les contraintes liées à la réalisation. Cela ne peut être obtenu qu'avec un ensemble de codes bien validés. Les différents systèmes de codes actuellement développés dans le monde sont tous basés sur les mêmes approches physiques. Dans ce cours, nous prendrons comme exemple, le système TIERCE mis en place au CEA/DAM pour les études préliminaires du programme TRISPAL (production de tritium par spallation).

Après une présentation générale de TIERCE, on passera en revue les modèles de physique sur lesquels reposent les différents codes, en insistant plus particulièrement sur le code HETC. Le chapitre suivant abordera les développements en cours et les perspectives d'amélioration pour les codes. Ensuite, le chapitre consacré à la validation des codes se continuera tout naturellement par la présentation du programme expérimental et l'apport des premiers résultats. Les perspectives d'évolution, à court terme et à plus longue échéance, seront présentées en guise de conclusion.

II - LE SYSTEME DE CODES TIERCE

II.1 - Généralités

Le système de codes TIERCE⁷⁾ (Transport des Ions Et du Rayonnement en Cibles Epaissees) a été mis en place au CEA/DAM dans le cadre des études du projet TRISPAL, qui envisage la production de tritium à partir de neutrons de spallation. Il est articulé autour de 2 codes d'usage général : HETC (High Energy Transport Code)⁶⁾ et MCNP (Monte Carlo Code for Neutron and Photon transport)⁸⁾.

Cette dualité résulte du très large domaine d'énergie à couvrir, du thermique (0,025 eV) à quelques GeV. En dessous de 20 MeV, domaine des réacteurs à fission et de la fusion contrôlée, il existe des jeux de sections efficaces complets pour la plupart des isotopes stables. Des bibliothèques internationales constamment mises à jour et améliorées sont disponibles (ENDF, JEF, JNDL, ...) : MCNP s'appuie sur ces bibliothèques pour traiter le transport. Au-dessus de 20 MeV, les données de sections efficaces sont de plus en plus rares, et en tout cas plus fragmentaires. Les sections efficaces nécessaires pour le transport doivent alors être calculées par des modèles inclus dans le code. HETC est l'un des codes les plus complets dans ce domaine. L'amélioration des performances passe ici par l'amélioration des modèles physiques, qui sera plus particulièrement abordée dans la présente étude.

Le couplage de ces deux codes implique une description géométrique compatible, sinon commune, des cibles complexes qu'on sera amené à modéliser, ainsi que la gestion des interfaces pour la transmission des données. Des traitements complémentaires sont également nécessaires pour obtenir l'ensemble des informations utiles pour la conception et l'optimisation des cibles. La structure du système TIERCE est présentée sur la figure 1.

La géométrie de la cible est définie de façon compatible à partir d'éléments de surface pour MCNP et d'éléments de volume pour HETC, avec gestion de l'interface. La version actuelle de HETC accepte aussi la description par éléments de surface de MCNP pour les cibles ne comprenant pas de motifs répétitifs, ce qui simplifie notablement l'interface. La cible est généralement découpée en blocs pour lesquels on peut obtenir des informations spécifiques (spectres de neutrons, dépôts d'énergie, résiduels, taux de différentes réactions nucléaires ...).

HETC effectue le transport des particules incidentes et de toutes les particules secondaires d'énergie supérieure à 20 MeV. Le libre parcours des particules chargées est alors très court, on admet qu'elles perdent leur énergie sur place, sans transport. Les neutrons sont ensuite transportés par MCNP. Un module spécifique rajouté dans HETC permet, pour chaque interaction nucléaire, d'extraire la fraction de l'énergie de recul des noyaux qui conduit à des déplacements d'atomes (évaluation des dommages).

La désexcitation des noyaux résiduels de HETC (après évaporation de nucléons) et leur décroissance ultérieure est traitée séparément (DESEX et DECROI). Les photons gamma qui en résultent peuvent être transportés par MCNP. Le code MCNP ne fournit pas la population de résiduels créés essentiellement par

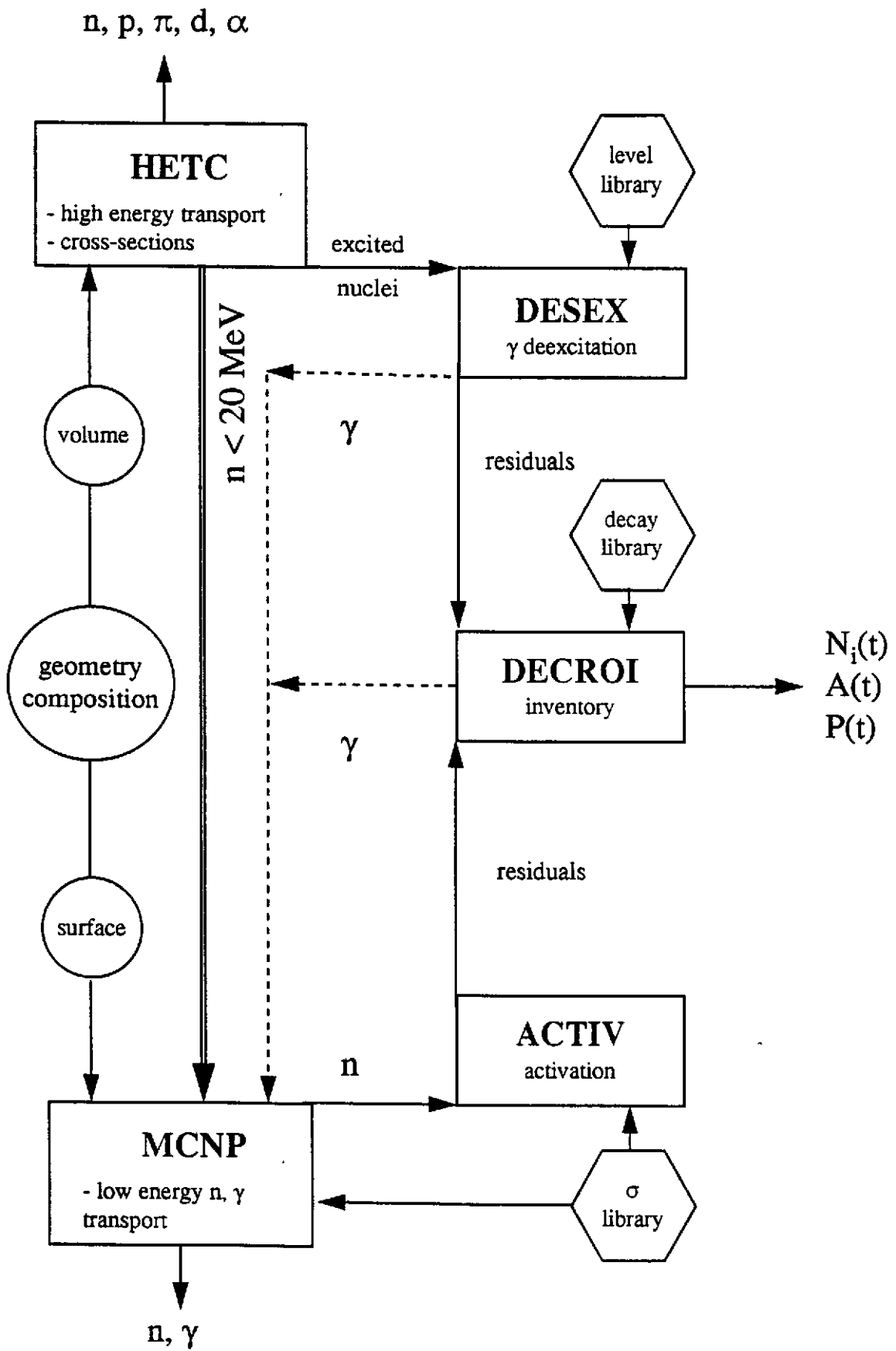


Figure 1 - Organigramme du système de codes TIERCE.

activation (réactions (n, xn) et captures neutroniques). Celle-ci est calculée séparément en utilisant les fluences de neutrons fournies par MCNP et les sections efficaces de réaction correspondantes (ACTIV). Les dommages induits par les neutrons sont déterminés par une procédure similaire, à partir d'une bibliothèque de sections efficaces de déplacement disponible pour les neutrons d'énergie inférieure à 20 MeV.

Cet ensemble complexe, mais complet, fournit les données nécessaires pour la conception de cibles de spallation opérationnelles, dans lesquelles les contraintes thermiques et la tenue des matériaux jouent un rôle important, à côté des performances nucléaires.

II.2 - Le code MCNP

Le code MCNP est essentiellement un code de transport de neutrons et de photons basé sur la technique de Monte Carlo. Développé récemment, il incorpore toutes les possibilités des techniques de biaisage qui permettent d'améliorer localement la précision statistique. Les probabilités d'interaction et les distributions en angle et en énergie des produits de réaction sont déterminées à partir de sections efficaces tabulées et disponibles dans des banques de données (ENDF, JEF, JENDL ...) qui, pour les neutrons, couvrent la plupart des isotopes stables dans le domaine d'énergie inférieur à 20 MeV. Il est donc particulièrement adapté au domaine des réacteurs à fission et de la fusion. Dans ce domaine d'énergie, les particules chargées ont un libre parcours moyen faible, et en toute logique leur transport n'a pas été prévu. Les améliorations possibles concernent essentiellement les données de base. Celles-ci sont en général d'excellente qualité pour les éléments utilisés dans les réacteurs, mais probablement moins bonnes pour les autres éléments. En tous cas, cet aspect est à regarder pour les matériaux nouveaux utilisés dans le cadre de la spallation.

L'extension du code à plus haute énergie pour les neutrons ne pose d'autre problème que l'extension des bibliothèques de données et quelques aménagements. Mais il deviendra alors nécessaire de prendre en compte le transport des particules chargées. C'est une modification importante, surtout si l'on veut bénéficier des mêmes possibilités que pour les neutrons.

II.3 - Le code HETC

Le code HETC assure le transport et l'interaction dans des cibles complexes des projectiles de haute énergie et des secondaires émis, tant que leur énergie est supérieure à un seuil donné généralement fixé à 20 MeV. De conception ancienne et d'une utilisation limitée jusqu'ici, il n'a pas beaucoup évolué. Ce sont les perspectives nouvelles, liées aux développements techniques, offertes par les sources intenses de neutrons de spallation qui justifient l'intérêt nouveau pour ce code.

Toutes les données nucléaires nécessaires sont calculées dans le code à partir de modèles. Les seules données extérieures concernent les sections efficaces nucléon-nucléon. La physique de HETC n'est pas bien connue, l'information est très dispersée. C'est pourquoi nous la présenterons en détail : la cascade intranucléaire qui traite l'interaction des particules de haute énergie avec le noyau ; la désexcitation du noyau résultant par

évaporation de nucléons en compétition avec la fission ; enfin le transport des particules primaires et secondaires dans une cible épaisse.

Un chapitre séparé traitera des développements en cours ou en projet pour améliorer ce code à partir de modèles physiques plus performants.

II.3.1 - La cascade intranucléaire

A haute énergie, au-dessus de quelques centaines de MeV, la longueur d'onde associée à un nucléon est du même ordre de grandeur que la dimension des nucléons dans le noyau. Pour le nucléon incident, le noyau devient relativement transparent, et ressemble plutôt à une sphère de gaz dilué, dans laquelle il va interagir avec les nucléons individuels que l'on peut considérer comme indépendants moyennant certaines précautions. Une cascade de collisions va se développer, conduisant à l'émission de nucléons et laissant un noyau résiduel excité : c'est la cascade intranucléaire, dont le temps caractéristique est de l'ordre de 10^{-22} s, tandis que le noyau résiduel va se désexciter par évaporation de nucléons avec un temps caractéristique de l'ordre de 10^{-16} s.

De par sa nature, la cascade intranucléaire se prête bien à une simulation par la méthode de Monte Carlo. HETC incorpore le programme développé par Bertini⁴⁾ dont nous présentons ici les principales caractéristiques. Le cours de J. Cugnon développe par ailleurs les aspects plus fondamentaux de la cascade intranucléaire.

Densité de nucléons dans le noyau

Pour les noyaux lourds et de masse moyenne, la densité de charge peut se mettre sous la forme :

$$\rho(r) = \frac{\rho_1}{e^{\frac{r-c}{a}} + 1}$$

avec $a = 0.545$ fm et $cA^{-1/3} = 1.07$ fm. A est le nombre de masse et ρ_1 un paramètre de normalisation.

Dans le code, le noyau se compose de 3 sphères concentriques de rayon correspondant à 0.9, 0.2 et 0.01 de la densité maximale. Dans chaque région, la densité est uniforme et définie par la valeur moyenne obtenue à partir de la distribution continue. La normalisation est telle que l'intégrale pour les trois régions donne le nombre de protons du noyau. Le même découpage est adopté pour les neutrons avec une normalisation similaire, c'est-à-dire que le rapport du nombre de neutrons au nombre de protons est identique dans chaque région et égal à N/Z.

Distribution de l'impulsion des nucléons

On néglige l'interaction entre nucléons, la distribution des impulsions est une distribution de Fermi à température nulle, c'est-à-dire que l'on a dans chaque région :

$$f(p) = c p^2, \quad \text{avec} \quad \int_0^{p_f} f(p) dp = n_p \quad \text{ou} \quad n_n, \quad \text{nombre de protons ou neutrons dans la région.}$$

P_f est l'impulsion correspondant à l'énergie de Fermi :

$$\left(E_f = \frac{P_f^2}{2m} = \frac{\hbar^2}{2m} \left(\frac{3\pi^2 n}{v} \right)^{2/3} \right)$$

qui dépend de la densité $\frac{n}{v}$ de particules, et qui est donc différente pour chaque zone et chaque type de particules. La distribution composite qui en résulte pour la totalité du noyau (figure 2) n'est pas une distribution de Fermi à température nulle.

Distribution de l'énergie potentielle dans le noyau

L'énergie de liaison du nucléon le moins lié est prise systématiquement égale à 7 MeV quels que soient le noyau et la zone considérée. En ajoutant l'énergie de Fermi des nucléons de chaque zone à cette quantité, on obtient la distribution de l'énergie potentielle, qui est donc différente pour les protons et les neutrons.

Sections efficaces nucléon - nucléon

La probabilité d'interaction au cours de la cascade est obtenue à partir des sections efficaces nucléon - nucléon libres. Elles ont été introduites sous forme paramétrisée à partir d'ajustements sur les résultats expérimentaux alors existants, notamment pour les distributions angulaires. Les sections efficaces nucléon - nucléon introduites sont la section efficace élastique et les sections efficaces de production de 1 et 2 pions.

L'interaction des pions avec les nucléons est également traitée (diffusion élastique, échange de charge, absorption). Une présentation détaillée des sections efficaces en dessous de 740 MeV et des distributions angulaires correspondantes est donnée dans la référence 4, une extension jusqu'à 2 GeV apparaît dans la référence 5.

Principe d'exclusion de Pauli

Le principe d'exclusion de Pauli interdit toute interaction dans laquelle l'un des produits correspondrait à un état déjà occupé. Pour un gaz de Fermi dégénéré, tous les états jusqu'à l'énergie de Fermi sont occupés. En conséquence, le principe d'exclusion de Pauli est pris en compte dans le calcul en négligeant a posteriori toute collision dans laquelle l'un des produits a une énergie inférieure à l'énergie de Fermi.

Déroulement de la cascade intranucléaire

On peut suivre le déroulement de la cascade à partir de la figure 3 qui correspond à l'interaction d'un proton de 400 MeV avec un noyau ne comportant qu'une seule zone de densité uniforme pour simplifier. Dès qu'il pénètre dans le noyau, le proton a une énergie augmentée de l'énergie potentielle, 31 MeV. La première interaction conduit à 2 nucléons de 131 et 313 MeV et est donc autorisée. La différence (313 + 131 - 431 = 13 MeV) correspond à l'énergie du nucléon rencontré (gaz de Fermi dégénéré). L'un des nucléons s'échappe du noyau en perdant les 31 MeV de l'énergie potentielle.

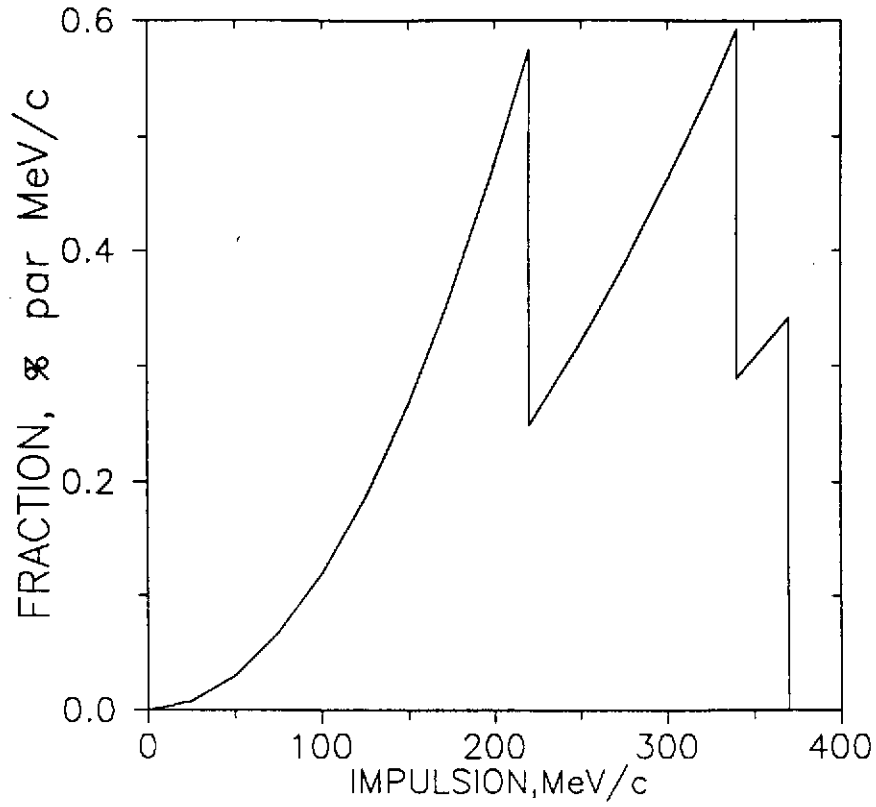


Figure 2 - Distribution de l'impulsion des nucléons à l'intérieur d'un noyau de masse $A = 120$, d'après (référence 4)

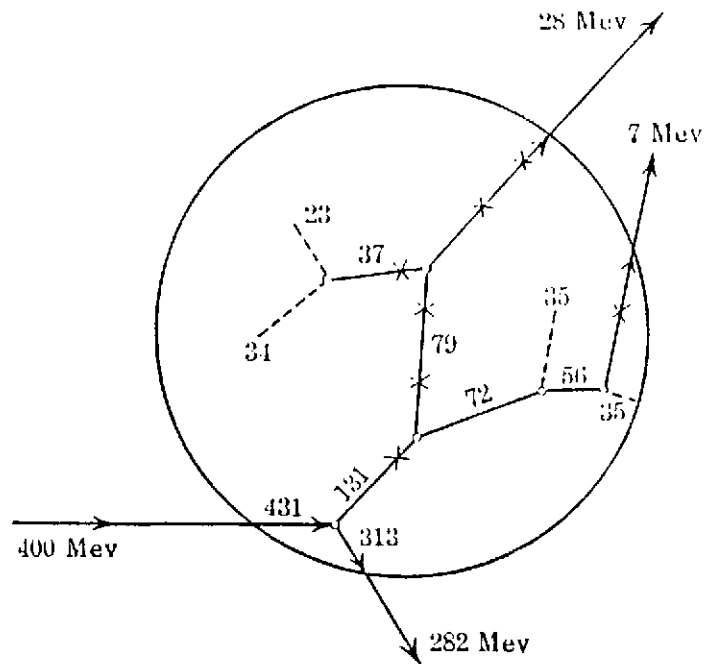


Figure 3 - Projection plane d'une cascade intranucléaire simulée par la méthode de Monte Carlo, d'après (référence 9).

L'autre nucléon poursuit sa course par une interaction interdite par le principe d'exclusion (croix) et continue donc en ligne droite jusqu'à l'interaction suivante, autorisée, et ainsi de suite.

Les nucléons d'énergie inférieure à 35 MeV restent dans le noyau. Les 4 MeV au-dessus de l'énergie potentielle correspondent à la prise en compte d'une barrière coulombienne moyenne pour les nucléons. Dans HETC, les neutrons sortent s'ils ont une énergie au moins égale à l'énergie potentielle, et on rajoute pour les protons un seuil égal à la moitié du maximum de la barrière coulombienne pour tenir compte qualitativement de la transmission de celle-ci.

En fin de compte, trois nucléons résultent de la cascade, et le noyau résiduel est excité à 67 MeV, en prenant une énergie de liaison de 8 MeV par nucléon.

De façon générale, le nucléon incident perd peu d'énergie dans une collision. Le transfert d'impulsion est de l'ordre de $\frac{\hbar^2}{R}$ où R est la portée des forces nucléaires, ce qui implique des transferts d'énergie de l'ordre de quelques centaines de MeV tout au plus.

Les nucléons très rapides issus de la cascade correspondent surtout à des collisions périphériques dans lesquelles le nucléon incident ne subit qu'un très petit nombre de collisions, comme dans l'exemple présenté ici.

II.3.2 - L'évaporation

L'évaporation dans HETC est basée sur la théorie de Weisskopf¹⁰⁾ et utilise pour l'essentiel le code EVAP de Dresner¹¹⁾, qui s'appuie lui-même sur les travaux de Dostrovsky et al.¹²⁾.

La probabilité $P_i(\varepsilon)$ qu'un noyau excité à une énergie U émette une particule de type i, de masse m_i et d'énergie ε est :

$$P_i(\varepsilon) \sim g_i m_i \varepsilon \sigma_{ci}(\varepsilon) \rho(E)$$

où g_i est le nombre d'états de spin et E est l'énergie d'excitation du noyau résiduel :

$$E = U - B_i - \varepsilon$$

B_i est l'énergie de liaison de la particule i, que l'on déduit à partir de tables de masses, et ρ est la densité de niveaux dans le noyau résiduel. σ_{ci} est la section efficace de réaction inverse, c'est-à-dire la section efficace de formation du noyau composé à partir du noyau résiduel bombardé par la particule i d'énergie ε .

La densité de niveaux est prise de la forme :

$$\rho(E) \sim e^{2\sqrt{a(E-\delta)}}$$

où δ est l'énergie d'appariement et
$$a = \frac{A}{8} \left[1 + 1.5 \left(1 - \frac{27}{A} \right)^2 \right].$$

Les sections efficaces de réaction inverse sont des sections géométriques avec un terme empirique pour la dépendance en énergie et une prise en compte simplifiée de la barrière coulombienne pour les particules chargées.

Pour les neutrons, $\sigma_{cn}(E) = \pi R^2 \alpha \left(1 + \frac{\beta}{E} \right)$

avec $\alpha = 0.76 + 1.93 / A^{1/3}$, $\alpha\beta = 1.66 / A^{1/3} - 0.05$, $R = 1.7 A^{1/3}$.

Pour les particules chargées, $\sigma_{ci}(E) = \pi R^2 (1 + c_i) \left(1 - \frac{K_i V_i}{E} \right)$ pour $E > K_i V_i$ et $\sigma_{ci} = 0$ pour $E < K_i V_i$.

Cinq particules chargées sont considérées : p, d, t, ^3He , α , et les valeurs de c_i et K_i sont les suivantes, en fonction de la charge Z du noyau cible :

Z	K_p	C_p	K_α
10	0.6	0.08	0.77
20	0.51	0.00	0.81
30	0.60	-0.06	0.85
40	0.66	-0.10	0.89
50	0.68	-0.10	0.93
60	0.69	-0.10	0.97
>70	0.69	-0.10	1.00

$$K_d = K_p + 0.06 \quad C_d = C_p / 2$$

$$K_t = K_p + 0.12 \quad C_t = C_p / 3$$

$$K_{^3\text{He}} = K_\alpha - 0.06 \quad C_{^3\text{He}}, C_\alpha = 0$$

V_i est déterminé par la relation : $V_i = Z_i Z e^2 / (R + R_i)$, avec $R_i = 0$ pour les protons et 1.2 fm pour les autres particules.

La probabilité d'évaporer la particule i est donnée par :
$$P_i = \frac{p(i)}{\sum_{i=1}^6 p(i)}$$

avec $p(i) = \int_{K_i V_i}^{U - B_i - \delta} P_i(\epsilon) d\epsilon$ (5 particules chargées + neutron).

Le spectre en énergie de la particule évaporée est : $P(\epsilon_i) = \frac{E_i e^{-\frac{E_i}{T_i}}}{T_i^2}$

avec $E_i = \epsilon_i - K_i V_i$ et $\langle \epsilon_i \rangle = 2 T_i = \frac{1}{p(i)} \int_{K_i V_i}^{U - B_i - \delta} \epsilon P_i(\epsilon) d\epsilon$.

Les intégrales ont une solution analytique et l'on obtient :

pour les neutrons $p(i) = A^{2/3} \alpha (I_1(S) + \beta I_0(S))$

pour les particules chargées $p(i) = \frac{g_i m_i}{2} A^{2/3} (1 + C_i) I_1(S)$.

$$2 T_i = \frac{I_2(S) + \beta I_1(S)}{I_1(S) + \beta I_0(S)}, \text{ avec } \beta = 0 \text{ pour les particules chargées.}$$

avec : $S = 2 \sqrt{a[U - K_i V_i - B_i - \delta]}$

$$I_0(S) = \frac{1}{2a} [1 + (S-1) e^S]$$

$$I_1(S) = \frac{1}{8a^2} [S^2 - 6 + (6 - 6S + 2S^2) e^S]$$

$$I_2(S) = \frac{1}{32a^3} [S^4 - 12S^2 + 120 + (8S^3 - 48S^2 - 120S - 120) e^S].$$

II.3.3 - La fission

La fission a été introduite dans HETC par F. Atchinson en 1976 dans le but d'optimiser la source pulsée de neutrons ISIS pour laquelle l'uranium naturel était une cible possible pour la production de neutrons de spallation¹³⁾.

Probabilité de fission

La fission entre directement en compétition avec l'évaporation de particules. La probabilité de fission peut donc

s'écrire : $P_f = \frac{\Gamma_f}{\Gamma_f + \Gamma_e}$ où Γ_f est la largeur de fission et Γ_e la largeur pour l'évaporation. La probabilité

d'évaporation d'une particule est alors $1 - P_f$. En pratique l'évaporation de neutrons est largement prédominante et on remplace généralement Γ_e par Γ_n pour le calcul de P_f . Expérimentalement, on a accès au rapport Γ_n / Γ_f par l'intermédiaire de mesures de sections efficaces de fission et de sections efficaces de réaction (p,x n) ou ($\alpha, x n$)¹⁴⁾.

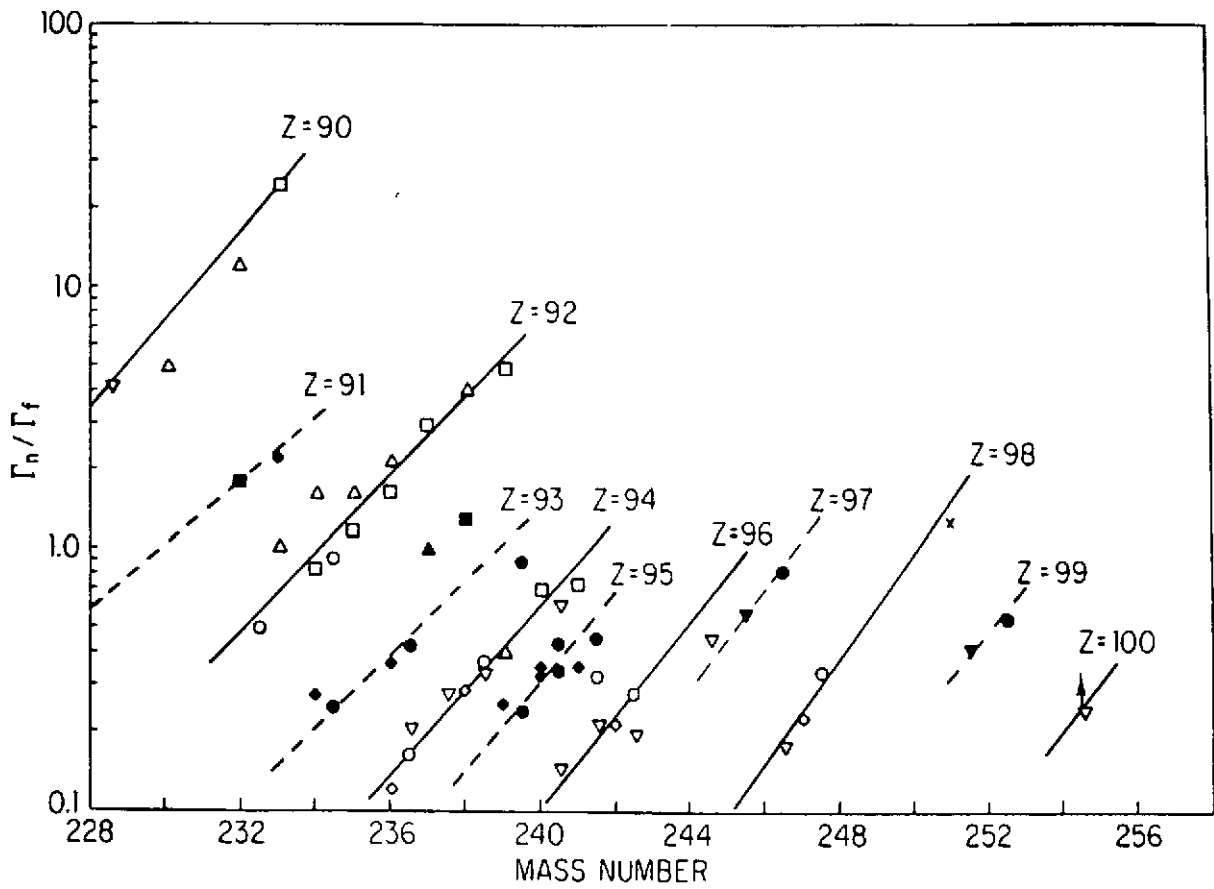


Figure 4 : Rapport de la largeur d'évaporation de neutrons à la largeur de fission en fonction du nombre de masse pour les actinides¹⁵⁾.

Z	89	90	91	92	93	94
A ₀	221.6	225.8	230.1	234.4	238.63	241.34
C	0.154	0.175	0.169	0.165	0.165	0.15735

Z	95	96	97	98	99	100
A ₀	243.04	245.52	246.84	250.18	254.0	257.8
C	0.16597	0.17589	0.18018	0.19568	0.16313	0.17123

Table I : Constantes A₀ et C en fonction de Z pour le lissage de Γ_n/Γ_f

par la loi $\log_{10} \frac{\Gamma_n}{\Gamma_f} = C (A - A_0)$

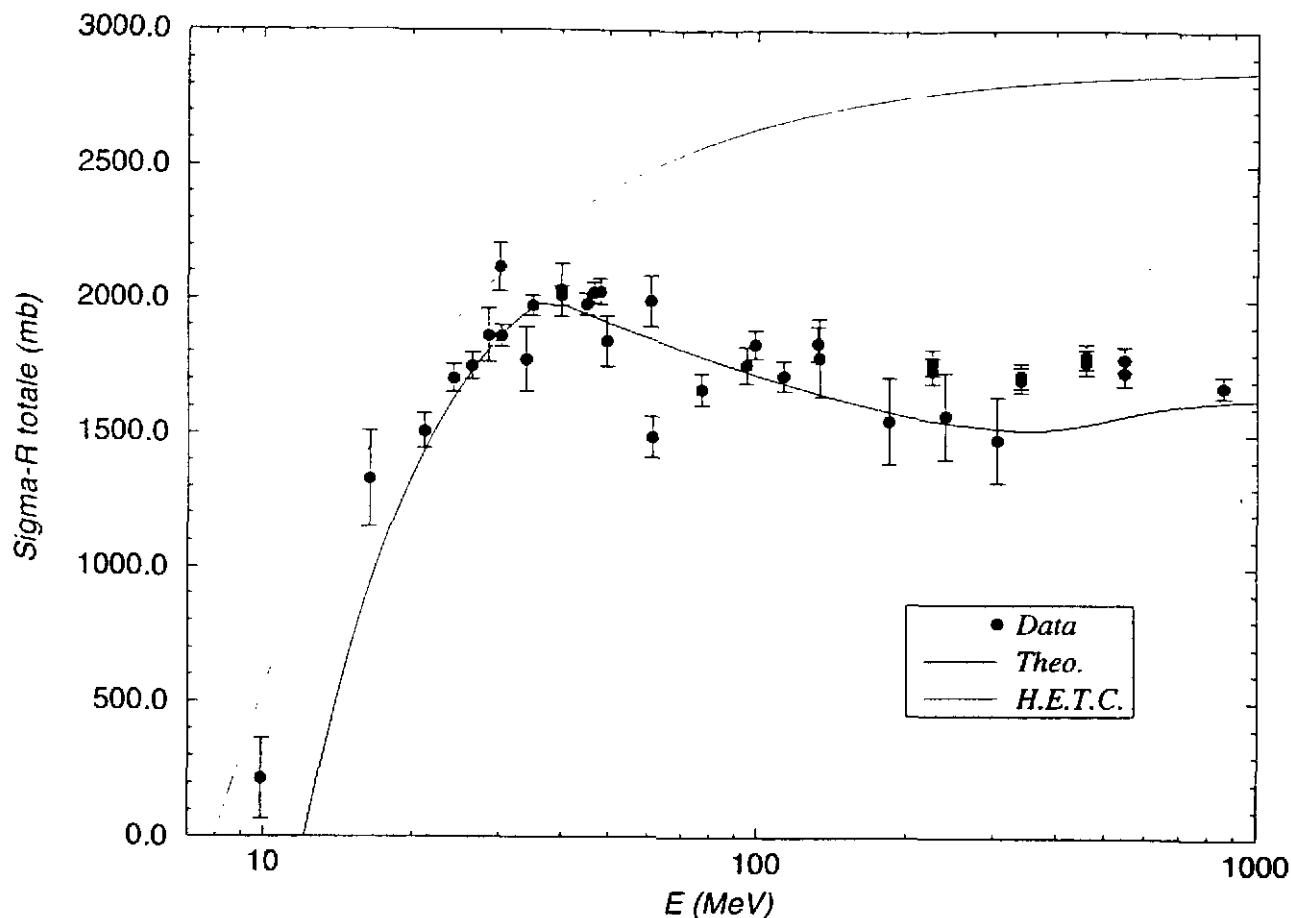


Figure 5 - Section efficace de réaction pour ^{208}Pb .

Comparaison des résultats expérimentaux avec le calcul basé sur le modèle de Glauber.

La courbe supérieure est la section efficace de la version standard de HETC.

Pour le calcul des sections efficaces de diffusion élastique et d'excitation des niveaux collectifs discrets, le modèle optique et le formalisme des voies couplées sont tout à fait adaptés. Le code ECIS 88 est particulièrement bien adapté pour ces calculs³²⁾.

Le modèle de pré-équilibre quantique permet de traiter l'émission dans le continuum et de calculer les sections efficaces doublement différentielles en angle et énergie. Le code MINGUS³³⁾ est un excellent outil dans ce domaine.

Ces deux codes ont été utilisés pour établir la base de données pour le ^{208}Pb . La figure 6 montre l'amélioration qu'apporte MINGUS par rapport à HETC pour les sections efficaces doublement différentielles d'émission de neutrons pour une cible mince de Pb irradiée par des protons de 113 MeV.

Dans le domaine d'énergie considéré, le nombre de voies de sortie possibles est important, et il n'est pas réaliste de fournir des données détaillées pour chacune d'elles.

Lorsqu'on étudie la fission en fonction du paramètre de fissibilité Z^2/A , on constate un comportement très différent selon que Z^2/A est supérieur ou inférieur à 34, ce qui correspond à $Z = 89$. Pour les actinides, la barrière de fission est approximativement constante et égale à 6 MeV. La probabilité de fission est pratiquement indépendante de l'énergie d'excitation au-dessus de la barrière, et la fig.4 montre qu'on peut exprimer Γ_n / Γ_f sous

la forme ¹⁵⁾ : $\log_{10} \frac{(\Gamma_n)}{(\Gamma_f)} = C(A - A_0)$ où A est le nombre de masse du noyau, et C et A_0 des constantes

dépendant de Z données dans la table I.

Dans HETC, la probabilité de fission pour les actinides est nulle pour une énergie d'excitation inférieure à 6 MeV et déduite à partir de la formule ci-dessus au-delà de 6 MeV.

Pour les noyaux plus légers, Γ_n/Γ_f dépend fortement de l'énergie d'excitation E et est évalué à partir du modèle statistique ¹⁴⁾ :

$$\frac{\Gamma_n}{\Gamma_f} = \frac{2gm}{\pi \hbar^2} \frac{\int_0^{E-E_n} \varepsilon \sigma(\varepsilon) \rho(E-E_n-\varepsilon) d\varepsilon}{\int_0^{E-E_f} \rho_s(E-E_f-\varepsilon) d\varepsilon}$$

où g est un facteur statistique de spin, m la masse du neutron, E_n l'énergie de liaison du neutron, E_f la barrière de fission, $\sigma(\varepsilon)$ la section efficace de réaction inverse pour le neutron, ρ et ρ_s les densités de niveaux dans le puits et au point selle.

En utilisant les densités de niveaux et la section efficace de réaction inverse pour les neutrons définies pour l'évaporation, la relation est intégrable et l'on obtient, avec les mêmes définitions pour $I_0(a, S)$ et $I_1(a, S)$:

$$\frac{\Gamma_n}{\Gamma_f} = \frac{2gm r_0^2 A^{2/3}}{\hbar^2} \cdot \frac{\beta I_0(a_n, S_n) + I_1(a_n, S_n)}{I_0(a_f, S_f)}$$

avec $S_n = 2\sqrt{a_n(E-E_n)}$, $S_f = 2\sqrt{a_f(E-E_f)}$, et $a_n = \frac{A-1}{8}$.

L'énergie E_n de liaison du neutron est connue d'après les tables de masses, la barrière de fission E_f et la densité de niveaux au point selle a_f sont obtenues par ajustement sur les données expérimentales existantes :

$$E_f - E_n = 1.9624 + 0.2185 \left(38.222 - \frac{Z^2}{A} \right)^2$$

$$\frac{a_f}{a_n} = 1.0893 + 0.011 \left(\frac{Z^2}{A} - 31.086 \right)^2$$

L'utilisation de ces résultats pose des problèmes.

Comme $a_f > a_n$, la probabilité de fission tend vers 1 à haute énergie d'excitation, alors qu'il serait plus raisonnable d'utiliser dans cette région $a_f = a_n$ comme le suggèrent les études sur les densités de niveaux¹⁶⁾. Cela a conduit Atchinson à introduire une limitation arbitraire de la probabilité de fission en la multipliant par le facteur : $\min\left(1, \frac{Q_e}{E}\right)$, où Q_e est la somme de la chaleur de réaction et de l'énergie cinétique des fragments de fission, et E l'énergie d'excitation initiale.

D'autre part, l'émission de particules chargées étant très réduite par l'introduction de la fission, Atchinson a introduit une diminution de la barrière coulombienne avec l'énergie d'excitation. De plus, les particules chargées ne sont en compétition qu'avec les neutrons dans le modèle d'évaporation, la compétition de la fission ne jouant qu'avec l'émission de neutrons dans une étape ultérieure.

Fragments de fission

Pour les actinides, la fission est asymétrique à faible énergie d'excitation. En accord avec les résultats expérimentaux, le fragment lourd est choisi sur une gaussienne de variance 6,5 centrée sur $A = 140$.

A plus haute énergie d'excitation E , une composante asymétrique apparaît avec une proportion :

$$\frac{\Gamma_f^{\text{sym}}}{\Gamma_f^{\text{asym}}} = 2.05 \cdot 10^{-4} e^{0.36E}$$

La distribution en masse est alors une gaussienne centrée sur $\frac{A}{2}$ et de variance.

$$\sigma = 0.397 + 0.425 (E - E_f) - 0.0021 (E - E_f)^2$$

$$\text{avec } E_f = 18.1 - 0.36 \frac{Z^2}{A} + \varepsilon.$$

$\varepsilon = 0.4$: fragments pair - pair

0.7 : fragments impair - impair

0 : fragments pair - impair

En dessous des actinides, la fission est toujours symétrique, avec la variance définie ci-dessus, mais les valeurs de E_f utilisées sont celles des calculs de probabilité de fission.

La charge des fragments est définie en assurant une distance égale par rapport à la vallée de stabilité définie par :

$$Z_s(A) = \frac{A}{2 + 0.0153 A^{2/3}}$$

La charge du premier fragment est alors :

$$Z_1 = Z_s(A_1) + \frac{1}{2} [Z - Z_s(A_1) - Z_s(A_2)]$$

avec un lissage par une gaussienne de largeur à mi-hauteur 2 centrée sur Z_1 .

Dans tous les cas, la masse et la charge du deuxième fragment sont déterminées par les lois de conservation. L'énergie d'excitation est répartie proportionnellement à la masse des fragments.

L'énergie cinétique totale des 2 fragments résulte de la répulsion coulombienne après la scission et est donnée par la relation¹⁴⁾ :

$$E_{Kt} = 0.1065 \frac{Z_1 Z_2}{A_1^{1/3} + A_2^{1/3}} + 20.1 \text{ MeV.}$$

En accord avec les résultats expérimentaux, la distribution est gaussienne, avec une largeur à mi-hauteur de 15 %. La répartition entre les 2 fragments résulte de l'application de la conservation de l'énergie et de l'impulsion dans le référentiel du centre de masse. La désexcitation des fragments est alors traitée de façon standard par évaporation de particules.

II.3.4 - Transport dans une cible épaisse

HETC assure le transport des particules dans des cibles à géométrie complexe. L'aspect géométrique ne sera pas détaillé. Disons simplement que la cible est divisée en un certain nombre de blocs, de composition homogène (qui peut être un mélange), qui constituent les volumes élémentaires pour lesquels on peut avoir accès à une information particulière.

Toutes les particules du faisceau incident sont transportées, ainsi que toutes les particules secondaires issues des cascades intranucléaires. Les particules sont suivies jusqu'au moment où elles atteignent une énergie seuil, généralement fixée à 20 MeV, si elles n'ont pas quitté la cible.

Le transport d'une particule commence par déterminer à quelle distance aura lieu la prochaine interaction avec un noyau, en utilisant une section efficace géométrique moyenne déterminée pour le bloc où se trouve cette particule. La géométrie intervient à ce niveau. La particule change - t'elle de bloc ? Si oui on la place à l'interface entre les 2 blocs, on détermine sa perte d'énergie sur le trajet et on boucle le processus. La particule sort-elle de la cible ? Si oui on détermine son énergie à la sortie et ses coordonnées sont entrées dans le fichier adéquat. On passe alors à la particule suivante.

Dans les autres cas, la particule interagit dans le bloc considéré et on détermine sa perte d'énergie sur le parcours. Dans le cas d'un mélange, on détermine le noyau cible en fonction de la composition. L'interaction est traitée par la cascade intranucléaire : ce sont donc en définitive les sections efficaces nucléon - nucléon qui déterminent la probabilité d'interaction dans le transport ; la section efficace géométrique ne détermine que la probabilité de rencontre de la particule avec le noyau cible. HETC fournit en fait la section efficace de réaction à

partir des sections efficaces nucléon - nucléon. Toutes les particules issues de la cascade et de la désexcitation par évaporation ou fission du noyau résiduel sont transportées de la même façon.

La perte d'énergie des particules chargées par diffusion inélastique est traitée par le formalisme classique avec prise en compte de la dispersion angulaire. Si l'énergie de la particule descend en dessous de 20 MeV, on considère qu'elle est arrêtée dans la cible et le point d'arrêt est déterminé en tenant compte de la fluctuation de parcours ("straggling"). Pour les neutrons d'énergie inférieure à 100 MeV, la diffusion élastique peut être traitée à condition d'entrer les données de base correspondantes. A défaut, et pour les neutrons de plus haute énergie, le transport a lieu sans perte d'énergie entre les cascades. Tout neutron émis avec une énergie inférieure à 20 MeV, ou qui passe en dessous de cette énergie au cours du transport, est abandonné. Ses coordonnées spatiales et son énergie sont stockées dans un fichier ad hoc pour traitement ultérieur.

A chaque étape, l'énergie déposée est comptabilisée par bloc. On établit la table des noyaux résiduels, avec leur énergie d'excitation après émission de particules. L'énergie de recul de tous les noyaux est systématiquement déterminée et peut être utilisée pour les calculs de dommages (d p a, déplacements par atome).

II.4 - Désexcitation gamma des noyaux résiduels

HETC ne traite pas la désexcitation des noyaux résiduels après évaporation de nucléons. L'énergie disponible est néanmoins comptabilisée et on peut considérer qu'elle est déposée sur place dans une première approche. Cependant la désexcitation se produit essentiellement par émission de photons gamma dont le libre parcours n'est pas négligeable.

L'énergie peut donc être déposée assez loin du lieu de production des résiduels, et cet aspect doit être traité plus correctement si l'on s'intéresse au dépôt d'énergie dans la cible. Le programme DESEX a été développé pour traiter la désexcitation gamma des noyaux. Le transport de ces photons est ensuite assuré par le code MCNP. A basse énergie d'excitation, les transitions sont déterminées à partir d'un fichier de niveaux répertoriés. A plus haute énergie les probabilités de transition sont évaluées à partir de distributions continues classiques de densités de niveaux dépendant du moment angulaire, et l'énergie des photons est obtenue par la méthode de Monte-Carlo. Cela conduit à une allure générale typique d'exponentielle négative pour le spectre en énergie des photons émis, sur lequel se superposent quelques raies discrètes à basse énergie.

II.5 - Décroissance des noyaux résiduels

HETC fournit la distribution des résiduels de spallation et de fission, MCNP les produits d'activation. Une partie de ces résiduels sont des noyaux radioactifs dont il faut suivre l'évolution au cours du temps pour déterminer l'activité de la cible et la chaleur résiduelle. Cet aspect est traité dans le code DECROI. Il fait appel à des bibliothèques de données de décroissance : la bibliothèque américaine ENSDF, complétée par la bibliothèque locale NUBASE¹⁷⁾, qui contient des informations pour 2923 nucléides et prend en compte les états isomériques de période supérieure à la milliseconde.

On aboutit à un système d'équations différentielles linéaires couplées, les équations de Bateman généralisées, qui incluent à la fois des termes de décroissance et des termes d'alimentation. Ce système est résolu par une approche matricielle très générale qui donne la population de noyaux radioactifs en fonction du temps. On peut en déduire l'activité radioactive de la source et la chaleur correspondante déposée en fonction du temps. Pour l'instant, le traitement des produits de fission issus de MCNP n'est pas inclus (cas de cibles fissiles ou fissionables). Il pourrait être traité au même niveau que les produits d'activation.

II.6 - Evaluation des dommages d'irradiation

Toute modification du réseau cristallin d'un matériau peut être considérée comme un dommage. A ce titre, les noyaux résiduels participent aux dommages. La production de gaz (réactions (n,p) et (n,α) en particulier) est particulièrement néfaste. Nous aborderons ici le déplacement d'atomes de façon succincte, car les données de base doivent être fournies par les codes. Dans toute réaction nucléaire, le noyau recule, des particules chargées peuvent être émises. Un ion perd essentiellement son énergie par ionisation le long de sa trajectoire.

Toutefois, ce mécanisme est beaucoup moins efficace à basse énergie, et en dessous d'une énergie de l'ordre du KeV par nucléon, c'est la diffusion élastique sur les noyaux qui devient prépondérante. Si l'énergie cédée est supérieure à l'énergie de liaison dans le réseau (de 10 eV pour Al à 90 eV pour W) on a de nouveaux noyaux de recul en cascade et en fin de compte un ensemble de noyaux interstitiels et de lacunes complémentaires.

Les sections efficaces de diffusion élastique et d'ionisation sont calculables. A partir de l'énergie de recul T d'un noyau initial, on peut donc en déduire la fraction $E_0 = \xi T$ cédée par diffusion élastique et le nombre moyen d'atomes déplacés, $n = \frac{0.4 E_0}{\epsilon_0}$, où ϵ_0 est l'énergie de liaison des atomes dans le réseau. Le facteur 0.4 résulte

des interactions pour lesquelles l'énergie transférée est inférieure à ϵ_0 . C'est l'énergie E_0 qui est calculée pour chaque réaction nucléaire dans HETC en utilisant le code TRIM¹⁸⁾ comme intermédiaire.

Une autre façon de procéder est de calculer la section efficace d'énergie de dommage (barn KeV) :

$$\sigma_E = \sum_i \int \sigma_i(E, E_0) E_0 dE_0$$

qui prend en compte les différentes réactions i possibles pour un projectile d'énergie E et les distributions d'énergies de dommages E_0 correspondantes. Ces dernières sont établies à partir du formalisme précédent et des sections efficaces de réaction tirées des bibliothèques.

On peut en déduire la section efficace de déplacement : $\sigma_D = \frac{0.4}{\epsilon_0} \sigma_E$ et le nombre de déplacements

par atome (dpa), dans une fluence de particules $\phi(E)$, est alors : $dpa = \int \sigma_D \phi(E) dE$. C'est cette dernière procédure qui est utilisée dans le cadre de MCNP.

Les neutrons sont une source importante de déplacements, car ils ne perdent leur énergie que par réactions nucléaires, diffusion élastique et inélastique pour l'essentiel.

Le nombre de dpa est la référence pour l'évaluation des dommages. Typiquement le nombre de dpa par an est de 1 pour la source de spallation LANSCE de Los Alamos (80 μ A de p sur W) de 10 pour la cible Trispal (40 mA de p de 600 MeV) et de 50 pour un réacteur rapide.

III - DEVELOPPEMENTS EN COURS ET PERSPECTIVES

Le code HETC a été conçu il y a plus de trente ans, à une époque où les moyens de calcul étaient encore limités, notamment la mémoire disponible. Le formalisme mathématique a été simplifié, dans l'évaporation par exemple, pour éviter le calcul d'intégrales qui augmentait les temps de calcul. Il y a peu de tableaux explicites pour les données de base, celles-ci apparaissent le plus souvent dans des constantes numériques où elles ne sont plus explicites, ou sous la forme d'expressions analytiques paramétrisées.

Il est toujours difficile de reconnaître le formalisme physique à travers la programmation Fortran compacte, évidemment sans commentaires. Dès lors l'intervention directe, pour changer une donnée de base ou améliorer le formalisme, est délicate, surtout dans le module de cascade intranucléaire. Cela explique en grande partie l'évolution lente de ce code et les multiples versions existantes, résultant de petites modifications successives dans chaque laboratoire, dont il est difficile de faire la synthèse.

III.1 - Données de base

La spallation, puis l'évaporation et la fission, font apparaître un nombre important de nucléides intermédiaires, souvent loin de la vallée de stabilité. De bonnes tables de masses sont indispensables pour évaluer correctement les énergies de liaison. Nous avons adopté l'évaluation expérimentale de Audi¹⁹⁾ complétée par l'évaluation théorique de Duflo²⁰⁾. L'extrapolation semi-empirique d'origine a été abandonnée. D'autre part, la limite de stabilité (drip line) est prise en compte en interdisant toute émission de particule qui conduirait à la dépasser.

Dans la version d'origine, le bilan en énergie était déplorable, avec des écarts pouvant atteindre 20%. Une comptabilisation plus rigoureuse des bilans d'énergie à chaque étape, sans changer le formalisme des interactions, a permis de résoudre ce problème. L'énergie est maintenant conservée à 10^{-5} près.

III.2 - Cascade intranucléaire

Il a été décidé de ne pas intervenir sur la cascade de Bertini telle qu'elle existe actuellement, mais de la remplacer en bloc par des versions plus modernes que l'on pourra éventuellement faire évoluer par la suite :

- La cascade du code CEM 95^{21,22)} dont le formalisme est très proche de la cascade de Bertini.
- La cascade développée par J. Cugnon²³⁾ décrite comme une succession de collisions binaires bien séparées dans l'espace et dans le temps. Les nucléons se déplacent dans un puits de potentiel sphérique et ont une certaine probabilité de transmission lorsqu'ils heurtent sa surface.

L'introduction d'un mécanisme intermédiaire de pré-équilibre entre la cascade et l'évaporation, pour traiter l'émission de nucléons par le noyau non complètement en équilibre thermique, a souvent été évoquée. En pratique, sa nécessité n'est pas prouvée, son introduction n'est pas toujours bénéfique quand on essaie de reproduire les spectres en énergie de neutrons émis par des cibles minces à différents angles par rapport à la particule incidente²⁴⁾. Le pré-équilibre est inclus dans le code CEM 95.

Les cascades de Bertini et de CEM 95 utilisent les sections efficaces nucléon - nucléon libres, tandis que la cascade de J. Cugnon utilise les sections efficaces nucléon - nucléon dans la matière, notablement inférieures aux précédentes en dessous de 400 MeV, et qui semblent plus justifiées. Ces dernières sections efficaces ont été introduites dans une version de HETC²⁵⁾ et conduisent à des effets similaires à l'introduction du pré-équilibre sur la forme des spectres en énergie de neutrons. Il paraît donc logique de faire porter les efforts à court terme sur la cascade intranucléaire et sur l'évaporation et de ne revenir au pré-équilibre que dans une étape ultérieure si cela s'avère nécessaire.

III.3 - Les noyaux légers après la cascade :

Pour les noyaux légers, le modèle statistique de l'évaporation n'est pas du tout adapté. Le modèle plus réaliste du « Fermi break-up » a été introduit²⁶⁾ pour les noyaux de masse $A \leq 21$. Si on considère une fragmentation du noyau initial énergétiquement possible en m corps de masse M_j et spin I_j , qui peuvent être éventuellement dans un état excité, le poids statistique de la voie est :

$$w_k = \frac{\left(\frac{V}{h^3}\right)^{m-1} \left(\prod_{j=1}^m M_j\right)^{3/2} \prod_{j=1}^m (2I_j + 1)}{(2\pi)^{\frac{3(m-1)}{2}} \left(\sum_{j=1}^m M_j\right)^{3/2} \prod_{s=1}^g m_s! \Gamma\left(\frac{3(m-1)}{2}\right)} T^{\frac{3m-5}{2}}$$

où V est le volume nucléaire du noyau initial et T est l'énergie cinétique disponible.

Seules les fragmentations à 2 ou 3 corps ont un poids statistique important. Le choix de la voie est déterminé aléatoirement avec une probabilité proportionnelle à son poids.

A titre d'exemple, la table II montre l'amélioration obtenue pour la production d'isotopes de Be par l'oxygène irradié par des protons de 800 et 1200 MeV.

Isotope	$E_p, \text{ MeV}$	$\sigma_{\text{evap}}, \text{ mb}$	$\sigma_{\text{bu}}, \text{ mb}$	$\sigma_{\text{exp}}, \text{ mb}$	$\frac{\sigma_{\text{evap}}}{\sigma_{\text{exp}}}$	$\frac{\sigma_{\text{bu}}}{\sigma_{\text{exp}}}$
^7Be	800	1.27	7.64	11.64 ± 1.0	0.11	0.66
	1200	1.59	7.28	12.6 ± 1.0	0.13	0.58
^{10}Be	800	0.36	2.65	2.87 ± 0.27	0.12	0.92
	1200	0.45	2.22	3.64 ± 0.34	0.12	0.61

Table II - Production de ^7Be et ^{10}Be par l'oxygène irradié par des protons de 800 et 1200 MeV. Comparaison des résultats expérimentaux avec un calcul d'évaporation et un calcul de "Fermi break-up".

III.4 - Evaporation et fission

L'amélioration la plus immédiate a concerné le paramètre de la densité de niveaux qui était pris égal à $A/8$. A faible énergie d'excitation, on a adopté les paramètres a_b de Baba²⁷⁾ qui prennent en compte les effets de couches. A plus haute énergie d'excitation, on a adopté le formalisme d'Ignatyuk²⁸⁾ qui introduit la disparition progressive des effets de couches. La synthèse de cette approche donne :

$$a = (0.154 A - 6.310^{-5} A^2) (1 - x) + a_b x \quad \text{avec} \quad x = \frac{1 - e^{-0.054E}}{0.054 E},$$

où E est l'énergie d'excitation en MeV.

D'autre part, une étude est en cours, en préparation d'une thèse²⁹⁾, pour déterminer la densité de niveaux des noyaux loin de la vallée de stabilité.

Au niveau de la fission, Atchinson avait éprouvé quelques difficultés pour les noyaux ayant $Z < 89$, ce qui l'avait conduit à introduire des remèdes peu justifiés. L'adoption des barrières de fission récemment évaluées dans cette région³⁰⁾ nous a conduits à revenir sur les choix d'Atchinson :

- Adoption provisoire d'une valeur constante $a_f/a_n = 1.05$ pour le rapport des paramètres de densité de niveaux au point selle et dans le puits principal. Une étude plus approfondie est en cours.
- Rétablissement de la compétition évaporation de neutrons, évaporation de particules chargées et fission au même niveau.
- Suppression de la réduction de la barrière coulombienne pour les noyaux excités.

Comme nous le verrons par la suite, cela permet d'obtenir un bien meilleur accord avec nos récents résultats expérimentaux sur les distributions en masse des noyaux résiduels de spallation. Par contre l'incidence est totalement négligeable en ce qui concerne le nombre et la distribution en énergie des neutrons émis.

III.5 - Sections efficaces de réaction inverse

Les sections efficaces de réaction inverse de la version d'origine pour l'évaporation et la fission ont été simplifiées à l'extrême de façon à pouvoir résoudre analytiquement les intégrales. Un ensemble de sections efficaces plus réalistes est en cours de mise au point, mais cela nécessite un remaniement en profondeur de la programmation.

Le formalisme repose sur le modèle microscopique de Glauber, développé par Devries et al³¹⁾ pour être étendu à basse énergie. L'interaction projectile - noyau est considérée comme une somme d'interactions nucléon - nucléon à l'intérieur du volume de recouvrement. Les potentiels nucléaires et coulombiens sont pris en compte, ainsi que le mouvement de Fermi des nucléons et le principe d'exclusion de Pauli. Les distributions de densité de matière nucléaire ont été calculées pour 400 noyaux pair - pair, allant de ^4He à ^{240}Pu , à l'aide du code Hartree-Fock-Bogolyubov avec contraintes de M. Girod et J.F. Berger.

Pour les autres noyaux, la distribution de densité est obtenue par interpolation entre les noyaux pair - pair voisins. Au-dessous de 10 MeV, le formalisme de Glauber n'est plus applicable. Il est remplacé par un modèle géométrique de pénétration coulombienne pour les particules chargées, et par le formalisme du modèle optique pour les neutrons.

Les sections efficaces de réaction inverse peuvent être obtenues pour les projectiles p, n, d, t, ^3He , ^4He dans une gamme d'énergie de 0 à 2 GeV/A. La figure 5 montre le bon accord que l'on obtient avec l'expérience pour ^{208}Pb , par comparaison avec la section efficace d'origine.

III.6 - Cascade internucléaire et transport

Lorsque l'énergie du projectile diminue, le modèle de cascade intranucléaire se justifie de moins en moins. Il n'y a pas de limite nette, mais on peut qualitativement la fixer vers 150 MeV. Une grande partie des nucléons émis au cours de la cascade intranucléaire et la quasi totalité des nucléons évaporés se situent précisément en dessous de cette limite de 150 MeV.

Dans la version actuelle de HETC, ils sont cependant transportés et induisent dans les cibles épaisses des cascades intranucléaires tant que leur énergie est supérieure à 20 MeV. Dans ce domaine d'énergie, le modèle de pré-équilibre est beaucoup mieux adapté. Plusieurs codes sont disponibles, mais leur mise en oeuvre est trop lourde pour qu'on puisse raisonnablement envisager de les utiliser comme modules de calcul au sein de HETC. Une solution plus réaliste est d'utiliser ces codes pour étendre la base de données actuelle entre 20 MeV et 200 MeV. On pourrait alors utiliser le code MCNP pour effectuer le transport en dessous de 200 MeV. Pour les neutrons, c'est une simple extension des possibilités actuelles de MCNP qui ne demande que quelques aménagements techniques.

Par contre, le transport des particules chargées n'existe pas dans MCNP, il faut l'inclure et traiter en particulier le ralentissement par interaction avec les électrons du milieu.

Pour l'émission de neutrons, par exemple, on peut donner les sections efficaces doublement différentielles en angle et en énergie, ainsi que la distribution de multiplicité des neutrons (probabilité d'émission de i neutrons, $1 \leq i \leq i_{\max}$). Ces données, utilisées dans un code Monte-Carlo comme MCNP, permettront de conserver l'énergie en moyenne, et non plus pour chaque interaction. C'est déjà le cas d'ailleurs pour les réactions (n, xn) en dessous de 20 MeV dans ce code.

IV - VALIDATION DES CODES

IV.1 - Introduction

Le code MCNP, développé pour les réacteurs et largement utilisé, peut être considéré comme bien validé. Il fait appel à des sections efficaces microscopiques qui sont issues d'évaluations internationales et sont disponibles en dessous de 20 MeV pour un grand nombre d'isotopes.

Pour HETC par contre, les sections efficaces nécessaires sont calculées en interne. Le renouveau d'intérêt pour ce code est récent et lié aux perspectives de sources intenses de neutrons par spallation basées sur des accélérateurs à fort courant. La crédibilité des simulations numériques repose avant tout sur la fiabilité du code HETC, compte tenu des améliorations qui lui sont apportées. Cette fiabilité peut être démontrée par des validations sur des résultats expérimentaux incontestables et suffisamment diversifiés pour pouvoir tester sans ambiguïté les différentes possibilités du code.

Des mesures de sections efficaces doublement différentielles, en angle et en énergie, pour la production de neutrons et de particules chargées de spallation sont un bon moyen de tester la cascade intranucléaire. Des résultats similaires en neutrons pour des cibles épaisses (capables d'arrêter le faisceau incident) de différents diamètres permettent ensuite de tester le transport dans la cible. Des informations complémentaires sur le transport peuvent être obtenues en mesurant la distribution spatiale de l'énergie déposée dans des cibles épaisses.

Des mesures globales du nombre de neutrons par proton sortant de cibles épaisses permettent de contrôler le bilan en énergie, tout en étant sensibles au transport également. Des mesures de noyaux résiduels sur cibles minces permettent de s'assurer que l'on maîtrise bien la désexcitation des noyaux, après la cascade intranucléaire, par évaporation de neutrons et de particules chargées, en compétition avec la fission. Des distributions de résiduels dans des cibles épaisses sont une autre façon d'aborder le transport, tout en fournissant des données utiles pour évaluer l'activation des cibles.

Après avoir fait le point des données actuelles qui nous paraissent suffisamment fiables, nous présenterons le programme de mesures mis en place au Laboratoire National Saturne.

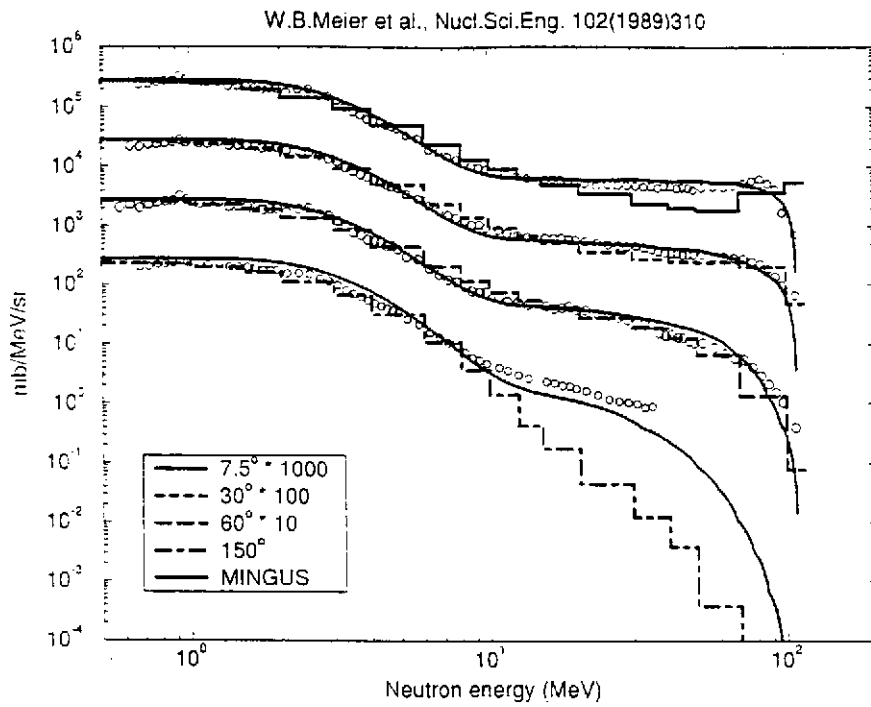


Figure 6 - Section efficace différentielle pour la production de neutrons pour une cible mince de Pb bombardée par des protons de 113 MeV. Comparaison des résultats expérimentaux avec le calcul standard de HETC (histogramme) et avec le calcul du code MINGUS (courbe continue).

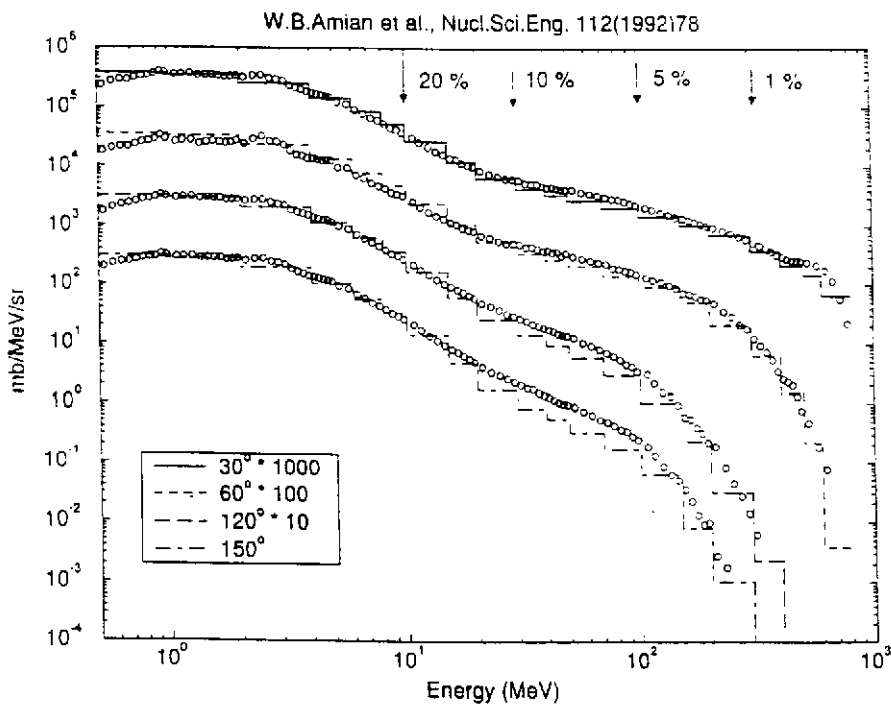


Figure 7 - Section efficace différentielle pour la production de neutrons pour une cible mince de Pb bombardée par des protons de 800 MeV - Comparaison des résultats expérimentaux avec le calcul de HETC.

IV.2 - Base de données expérimentales

IV.2.1 - Neutrons de spallation sur cibles minces

L'ensemble le plus cohérent de données pour les mesures différentielles en angle et en énergie a été obtenu en protons incidents au LAMPF et est détaillé dans la table III.

E_p , MeV	Angles	Cibles	Référence
113	7.5°, 30°, 60°, 150°	Be, C, O, Al, Fe, W, Pb, U	NSE102 (1989) 310
256	7.5°, 30°, 60°, 150°	Be, C, O, Al, Fe, U	NSE 110 (1992) 289
597	30°, 60°, 120°, 150°	Be, B, C, N., O, Al, Fe, Pb, U	NSE 115 (1993) 1
800	30° 60°, 120°, 150°	Be, B, C, N, O, Al, Fe, Cd, W, Pb, U	NSE 112 (1992) 78

Table III - Mesures de sections efficaces différentielles de production de neutrons de spallation à Los Alamos.

C'est l'oeuvre d'une seule équipe, qui a utilisé la méthode du temps de vol. La base de vol est importante (quelques dizaines de mètres), ce qui garantit une bonne résolution en énergie, contrairement à d'autres mesures que nous avons écartées.

Des mesures de la partie haute énergie du spectre de neutrons émis à 0° pour différentes cibles, basées sur l'analyse par spectrométrie magnétique des protons de recul après diffusion quasi élastique des neutrons sur l'hydrogène³⁵⁾ ont servi entre autres de référence pour déterminer l'efficacité de détection des neutrons.

Cette efficacité peut poser problème à haute énergie : des résultats récents obtenus par une autre équipe³⁴⁾ utilisant la même technique, mais des détecteurs différents avec des bases de vol identiques, également au LAMPF, présentent à haute énergie des écarts d'un facteur 2 pour une cible de plomb. Il n'y a pas de mesures pour des protons incidents d'énergie supérieure à 800 MeV.

Les figures 6 et 7 présentent des résultats typiques. Aux angles arrière, les simulations sous-estiment systématiquement l'expérience pour la partie haute énergie du spectre.

IV.2.2 - Protons de spallation

Le spectre en énergie des protons a été mesuré³⁶⁾ au-dessus de 120 MeV à plusieurs angles (20°, 30°, 45°, 60°) dans l'interaction de protons incidents de 450 MeV avec des cibles minces et épaisses de Be, C, Al, Cu, Co, Pb et Bi.

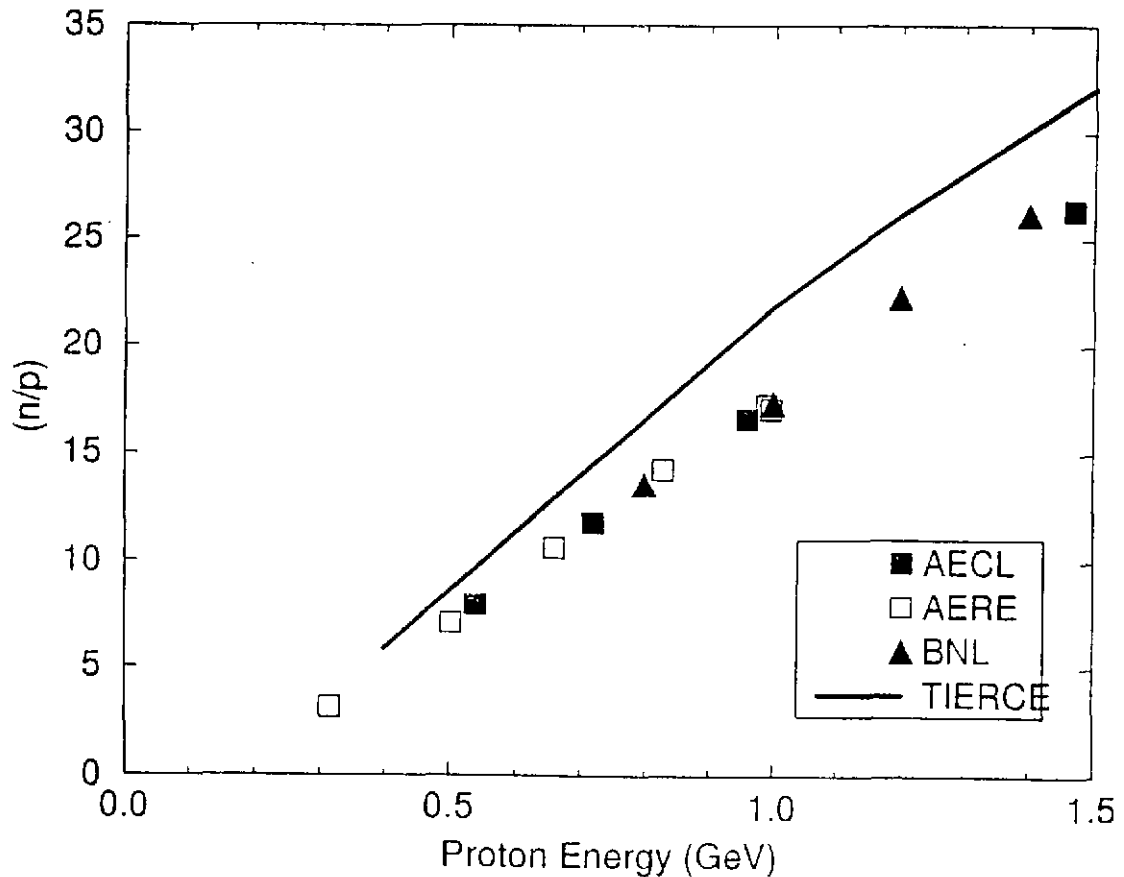


Figure 8 - Nombre de neutrons par proton en fonction de l'énergie des protons incidents pour une cible de plomb de 10 cm de diamètre et 61 cm de longueur - Comparaison du calcul TIERCE avec les résultats expérimentaux.

IV.2.3. - Neutrons de spallation sur cibles épaisses

Des mesures différentielles en angle et en énergie ont été réalisées à 113 et 256 MeV en même temps que les mesures sur cibles minces déjà présentées.

Des mesures intégrales du nombre de neutrons émis par proton ont été réalisées pour une cible de plomb de 10 cm de diamètre et 60 cm de longueur^{37, 38, 39)}.

La figure 8 montre que les calculs surestiment de 15% ces mesures. Par contre, pour une cible de 20 cm de diamètre l'accord est bon⁴⁰⁾ mais les calculs sous-estiment la partie haute énergie du spectre⁴¹⁾.

IV.2.4 - Données intégrales

- Expérience FERFICON, mesure de la distribution axiale dans des cibles épaisses de Th et U de la fission et de la conversion pour des protons incidents de 800 MeV⁴²⁾.

- Mesure de la distribution du dépôt d'énergie pour des protons de 0.8 à 1.2 GeV sur différentes cibles épaisses⁴³⁾. L'interprétation de ces résultats montre un problème sur le pouvoir d'arrêt des protons dans Fe, Cu et U⁴⁴⁾.

IV.2.5 - Noyaux résiduels de spallation

Un programme important de mesures de noyaux résiduels de spallation sur une trentaine de cibles minces pour des protons incidents d'énergie comprise entre 150 MeV et 2,6 GeV est en cours sous l'impulsion de Pr. R. Michel. La technique de l'activation limite la mesure aux seuls noyaux radioactifs de période supérieure à quelques heures. Les mesures sur cibles légères sont publiées⁴⁵⁾, des mesures plus récentes sur cibles lourdes sont en cours de dépouillement.

Des mesures en cinématique inverse sur des cibles d'H, He et C bombardées par une série d'ions de masse inférieure à 58 et d'énergie comprise entre 300 et 1700 MeV/A ont été réalisées par Weber et al⁴⁶⁾ et permettent d'identifier une plus grande variété de noyaux résiduels. Des mesures de la distribution spatiale des résiduels par activation ont été réalisées sur des cibles épaisses de plomb et de tungstène, à 800 MeV à Los Alamos, à 0.84, 1.00 et 1.42 GeV à Brookhaven. Les résultats préliminaires sont disponibles sous forme de rapports techniques^{47,48)}.

V - PROGRAMME EXPERIMENTAL

Les intercomparaisons des codes de calculs en cibles minces et épaisses^{49, 50)} réalisées par OCDE/AEN, conduisent à des résultats peu concordants. Cette situation est due en grande partie à un manque de données expérimentales, surtout au-dessus de 800 MeV, sur lesquelles pourraient être validés les modèles physiques entrant dans ces codes.

C'est pourquoi un important programme expérimental a été mis en place au Laboratoire National Saturne pour améliorer la base de données et l'étendre au-delà de 800 MeV aussi bien sur cibles minces que sur cibles épaisses.

V.1 - Mesures différentielles en angle et en énergie de production de neutrons

Cette expérience est le fruit d'une collaboration entre LNS, DPTA/PN Bruyères-le-Châtel, DPNIA/SPhN, et Université d'Uppsala pour les mesures sur cibles minces à 0°, à laquelle se sont associés la collaboration DEMON et l'IPN Orsay pour les distributions angulaires sur cibles minces et épaisses.

SATURNE n'est pas une machine pulsée, la méthode classique du temps de vol n'est pas utilisable pour mesurer l'énergie des neutrons. Deux méthodes différentes ont été mises en place : temps de vol avec protons incidents étiquetés pour la partie basse énergie du spectre (2 - 400 MeV), spectrométrie magnétique des protons de recul après diffusion (n, p) sur une cible d'hydrogène liquide pour la partie haute énergie du spectre (200 MeV à l'énergie faisceau). La possibilité d'accélérer des deutérons et des ions ³He permet d'obtenir des neutrons quasi

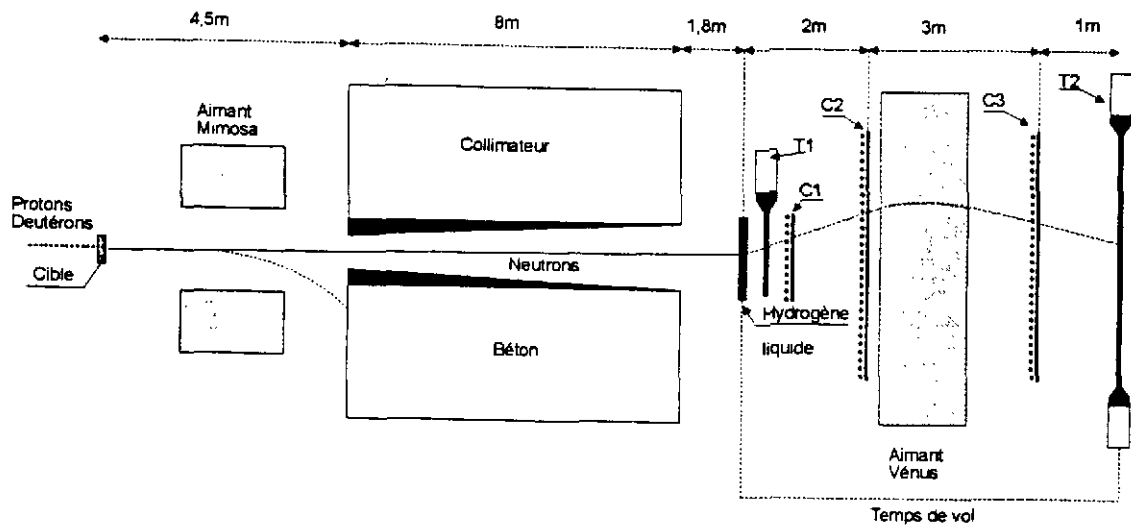


FIGURE 9 : Dispositif expérimental pour la mesure du spectre en énergie des neutrons de spallation d'énergie supérieure à 200 MEV.

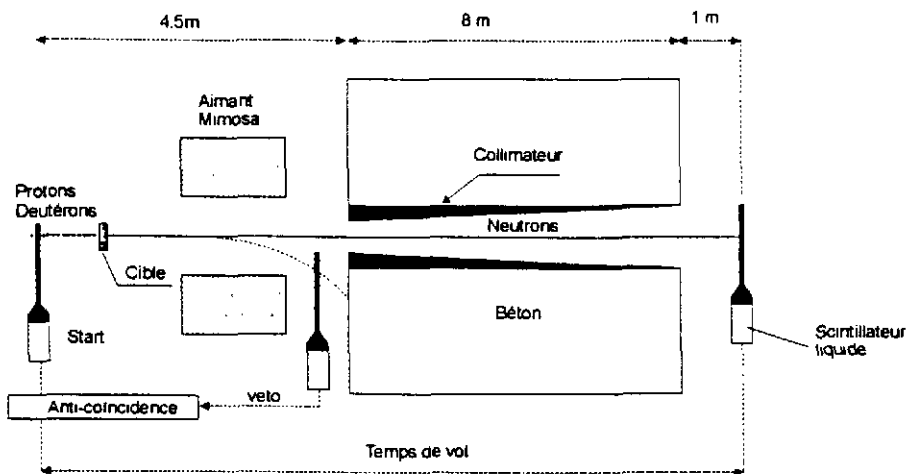


FIGURE 10 - Dispositif expérimental pour la mesure de spectre en énergie des neutrons de spallation d'énergie inférieure à 400 MeV.

monoénergétiques par cassure dans une cible de Be. Les sections efficaces de production de neutrons étant bien connues, cela permet de mesurer la fonction de réponse et l'efficacité des systèmes de détection in situ. C'est un avantage essentiel par rapport aux autres mesures.

V.1.1 - Détection haute énergie⁵¹⁾

Le principe de la mesure à haute énergie est schématisé sur la figure 9. Après interaction dans la cible, le faisceau incident (pour les mesures à 0°) et les particules chargées de spallation sont éliminés par la déviation du dipôle MIMOSA. Après collimation, les neutrons diffusent sur une cible d'hydrogène liquide. La trajectoire et l'impulsion du proton diffusé sont obtenues à l'aide de 3 compteurs à fils proportionnels C₁, C₂, C₃ et d'une déflexion magnétique dans le dipôle VENUS, ce qui permet de remonter à l'énergie du neutron. Un temps de vol entre les scintillateurs S₁ et S₂ permet une discrimination entre les protons et les autres particules chargées de même impulsion, essentiellement des deutérons et des pions.

Les fonctions de réponse mesurées à l'aide de neutrons monocinétiques permettent de tenir compte de la composante de protons de diffusion inélastique pour la déconvolution des spectres expérimentaux. Les pertes d'énergie des protons dans l'air et les détecteurs limitent cette technique aux énergies supérieures à 200 MeV.

V.1.2 - Détection à basse énergie⁵²⁾

Le dispositif utilisé est schématisé sur la figure 10. Un scintillateur plastique mince placé devant la cible permet d'étiqueter les protons du faisceau incident, les neutrons sont détectés à l'aide d'un scintillateur liquide après collimation. Le temps de vol entre les deux détecteurs permet d'obtenir l'énergie des neutrons. Cette technique impose de limiter l'intensité du faisceau incident à environ 10⁶ protons/seconde. Le faisceau incident est dévié par le dipôle MIMOSA après interaction avec la cible.

V.1.3 - Mesures à 0°

Les mesures à 0° ont été réalisées pour des protons de 800 MeV sur une cible de Pb, de 1600 MeV sur des cibles de Pb et Fe, et de 1200 MeV sur des cibles de Al, Fe, Zr, W, Pb et Th. Les résultats préliminaires à 1200 MeV sont présentés sur la figure 11. On constate un excellent recoupement entre 200 et 400 MeV entre deux techniques utilisées, qui sont complètement indépendantes. A haute énergie, l'ensemble des résultats est en assez bon accord avec le code de cascade intranucléaire de J. Cugnon²³⁾. L'évaporation n'étant pas traitée dans ce code, la comparaison en dessous de ≈ 30 MeV est sans objet.

V.1.4 - Distribution angulaire

La figure 12 présente le nouveau dispositif expérimental mis en place pour la mesure de la distribution angulaire. La partie haute énergie du spectre peut être obtenue entre 0 et 85° par rotation du dispositif de spectrométrie. La partie basse énergie peut être mesurée simultanément à 6 angles grâce aux détecteurs de la collaboration DEMON (LPC Caen, CRN Strasbourg, Universités de Louvain et de Bruxelles). La cible est entourée d'un mur de béton semi cylindrique percé de collimateurs permettant des mesures tous les 15° à partir de 10°. Les premières prises de données auront lieu en Octobre 1996. Elles sont prévues sur les mêmes cibles et aux mêmes énergies qu'à 0°.

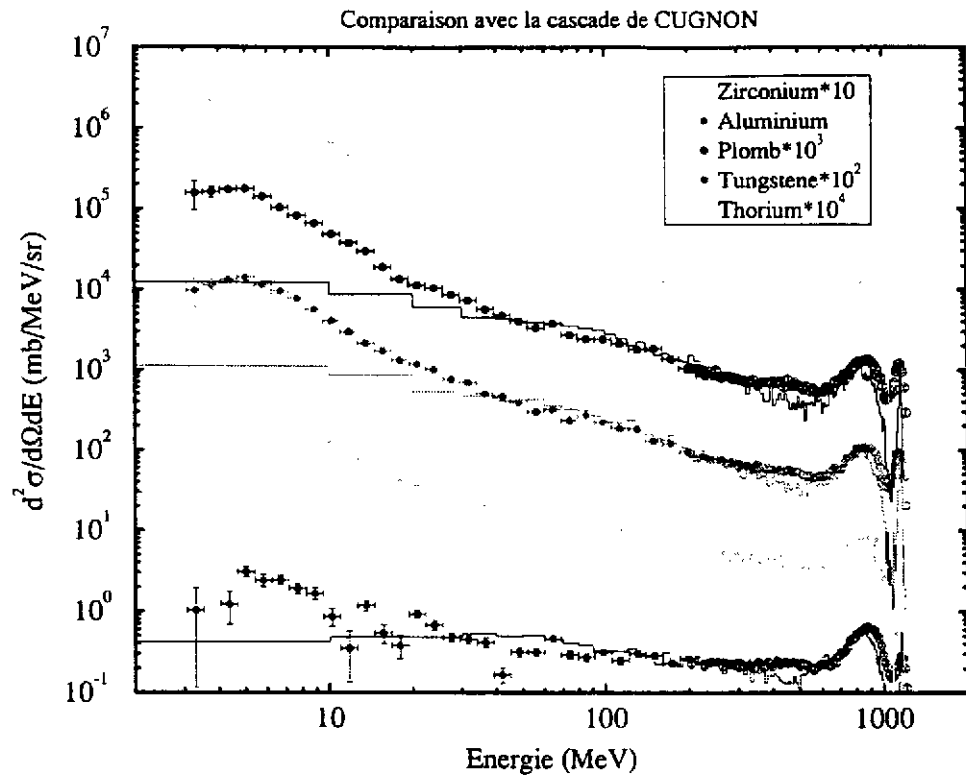


Figure 11 - Spectre en énergie des neutrons de spallation mesuré à 0° sur différentes cibles minces pour des protons incidents de 1.2 GeV - Comparaison avec la cascade de Cugnon²³⁾.

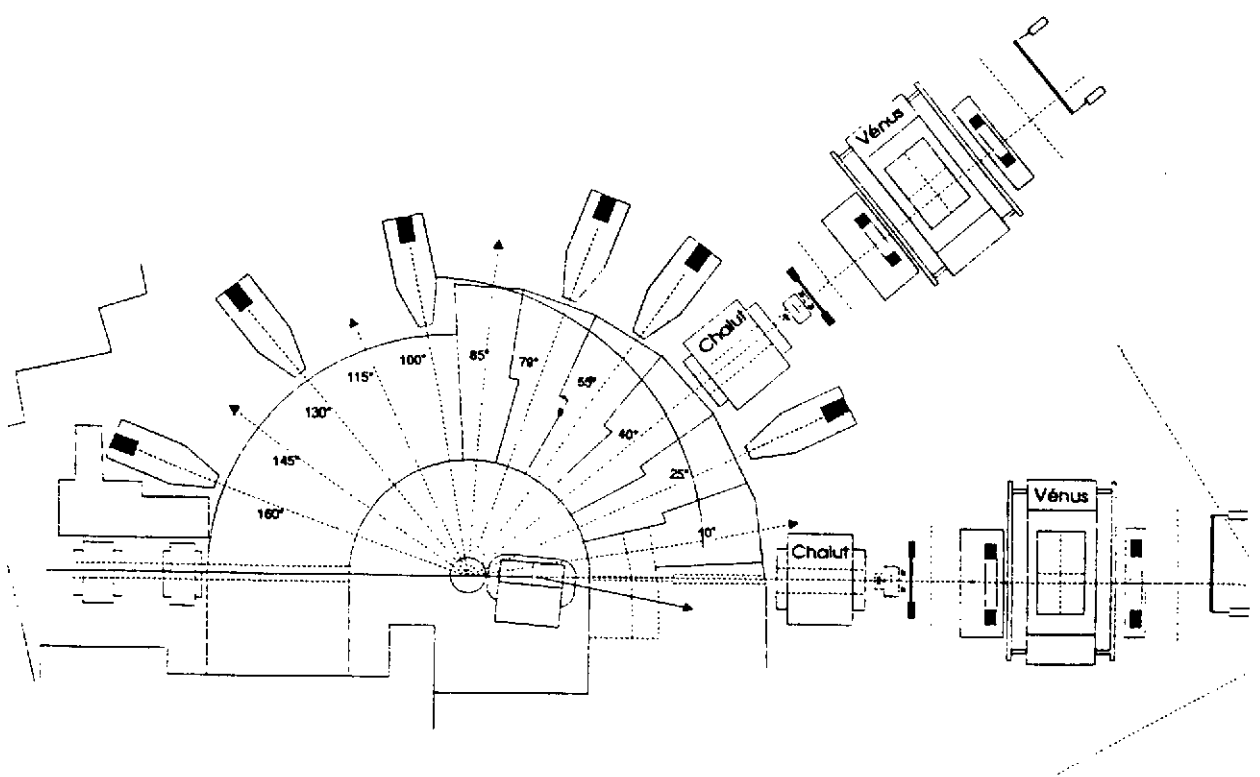


Figure 12 - Dispositif expérimental pour la mesure de la distribution angulaire des neutrons de spallation. Le dipôle CHALUT permet d'éliminer les particules chargées de haute énergie.

V.1.5 - Mesures sur cibles épaisses

Le dispositif précédent peut aussi être utilisé pour des mesures sur cibles épaisses de différents diamètres. Des cibles de Pb et Fe de 10 et 20 cm de diamètre et une cible de W de 15 cm de diamètre sont prévues. En déplaçant les cibles longitudinalement, on pourra mesurer les neutrons émis par différentes parties des cibles, qui seront suffisamment épaisses pour arrêter le faisceau incident. Pour limiter l'activation des cibles, et compte tenu du ralentissement des neutrons dans celles-ci, on n'utilisera que la méthode du temps de vol avec protons étiquetés. Les mesures débuteront en Novembre 1996 et sont prévues pour des protons incidents de 800, 1200 et 1600 MeV.

V.2 - Mesures du nombre de neutrons par proton

Bien qu'effectuées dans un autre cadre, il faut mentionner les mesures de multiplicités de neutrons réalisées à Saturne à l'aide du détecteur 4π de grande efficacité ORION⁵³⁾.

Ces multiplicités, obtenues pour des cibles minces de Ag, Au, Bi et U bombardées par des protons de 475 MeV et 2 GeV et par des ^3He de 2 GeV, donnent la distribution de l'énergie d'excitation des noyaux après la cascade intranucléaire.

La mesure "Sunnyside" du nombre de neutrons par proton, réalisée en 1993 à 800 MeV sur des cibles épaisses de Pb, W et Li à Los Alamos⁴⁰⁾, a été transportée auprès de Saturne pour élargir la plage de mesure aux énergies de protons comprises entre 400 MeV et 2 GeV. Le détecteur est schématisé sur la figure 13.

La cible de plomb de 20 cm de diamètre et 120 cm de longueur est entourée d'un manchon de plomb de 60 cm de diamètre et 200 cm de longueur. L'ensemble est placé dans un réservoir cylindrique de ϕ 250 x 300 cm rempli d'une solution d'eau à 1% en poids de sulfate de manganèse.

Les neutrons émis dans la cible et multipliés dans le manchon sont thermalisés dans l'eau, une fraction est capturée par ^{55}Mn . Le suivi, après une irradiation d'environ 10^{14} protons, de l'évolution temporelle de l'activité gamma du ^{56}Mn (période 2,6 heures) d'un échantillon de solution permet de remonter à la fluence de neutrons capturés. La fluence de protons étant mesurée par ailleurs par activation de l'aluminium (formation de ^{24}Na), on détermine de cette façon le nombre de captures dans le ^{55}Mn par proton, ce qui permet de remonter au nombre de neutrons par proton en utilisant le résultat des simulations.

Une cible de W de 80 cm de longueur, complétée par un culot de Pb de 40 cm de longueur a aussi été étudiée. Les mesures ont été réalisées en Juin 1996 pour des protons incidents de 400, 800, 1600 et 2000 MeV. Les résultats préliminaires indiquent un accord satisfaisant entre calcul et expérience (nombre de captures par proton) pour la cible de plomb, tandis que les calculs surestiment l'expérience de 10 à 15% pour le tungstène. Contrairement au Pb, le W a une section efficace de capture importante pour les neutrons thermiques.

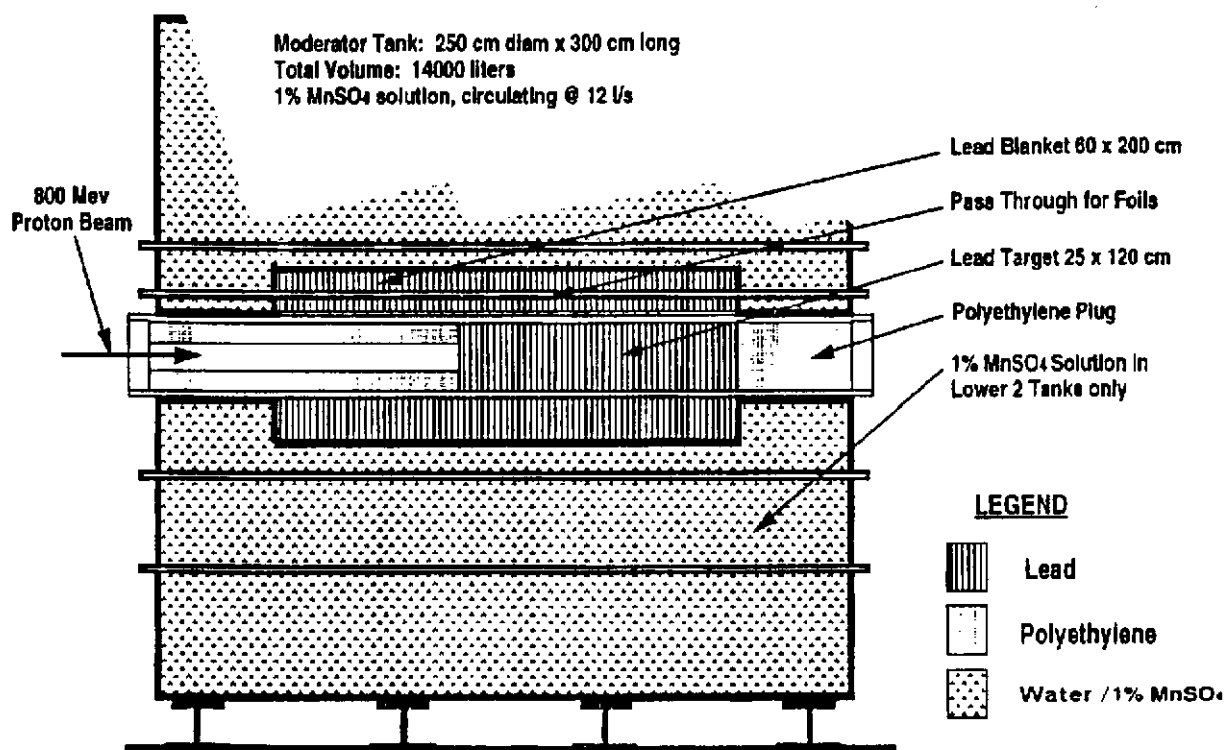


Figure 13 - Dispositif expérimental pour la mesure du nombre de neutrons par proton par la technique du bain de sulfate de manganèse.

V.3 - Résiduels de spallation

Le programme déjà en cours à Saturne⁴⁵⁾ a été étendu aux cibles de spallation potentielles et aux matériaux de structure. Une vingtaine de cibles minces, montées sur un support léger en aluminium et séparées de 20 cm pour limiter les interactions, sont irradiées en même temps. Chaque cible est accompagnée d'échantillons d'Al pour déterminer la fluence de protons incidents par l'intermédiaire de la production de ²²Na. Les éléments C, N, O, Na, Cr, Zn, Cu, Y, Zr, Nb, Rh, Ba, Ta, W, Re, Os, Ir, Au, Pb, Bi, Th, U ont été étudiés pour des protons incidents d'énergie comprise entre 150 MeV et 2,6 GeV. La section efficace de production de noyaux radioactifs est obtenue par spectrométrie gamma quantitative.

Typiquement, une irradiation dure une dizaine d'heures et la décroissance radioactive des cibles est suivie pendant plusieurs mois. Les mesures ne concernent donc que les noyaux radioactifs de période supérieure à quelques heures, directement produits par spallation ou descendant de résiduels de période plus courte. Les sections efficaces données correspondent à la production cumulée des isotopes considérés à la fin de l'irradiation. Les simulations doivent donc tenir compte de la durée d'irradiation et traiter la décroissance de tous les nucléides à courte période pour déterminer la population en fin d'irradiation.

La plupart des dépouillements sont effectués en Allemagne. Les cibles de W, Pb, Th et U sont mesurées à Bruyères-le-Châtel⁵⁴⁾. Quelques mesures de résiduels à vie courte sur Pb et W ont été réalisées pour des

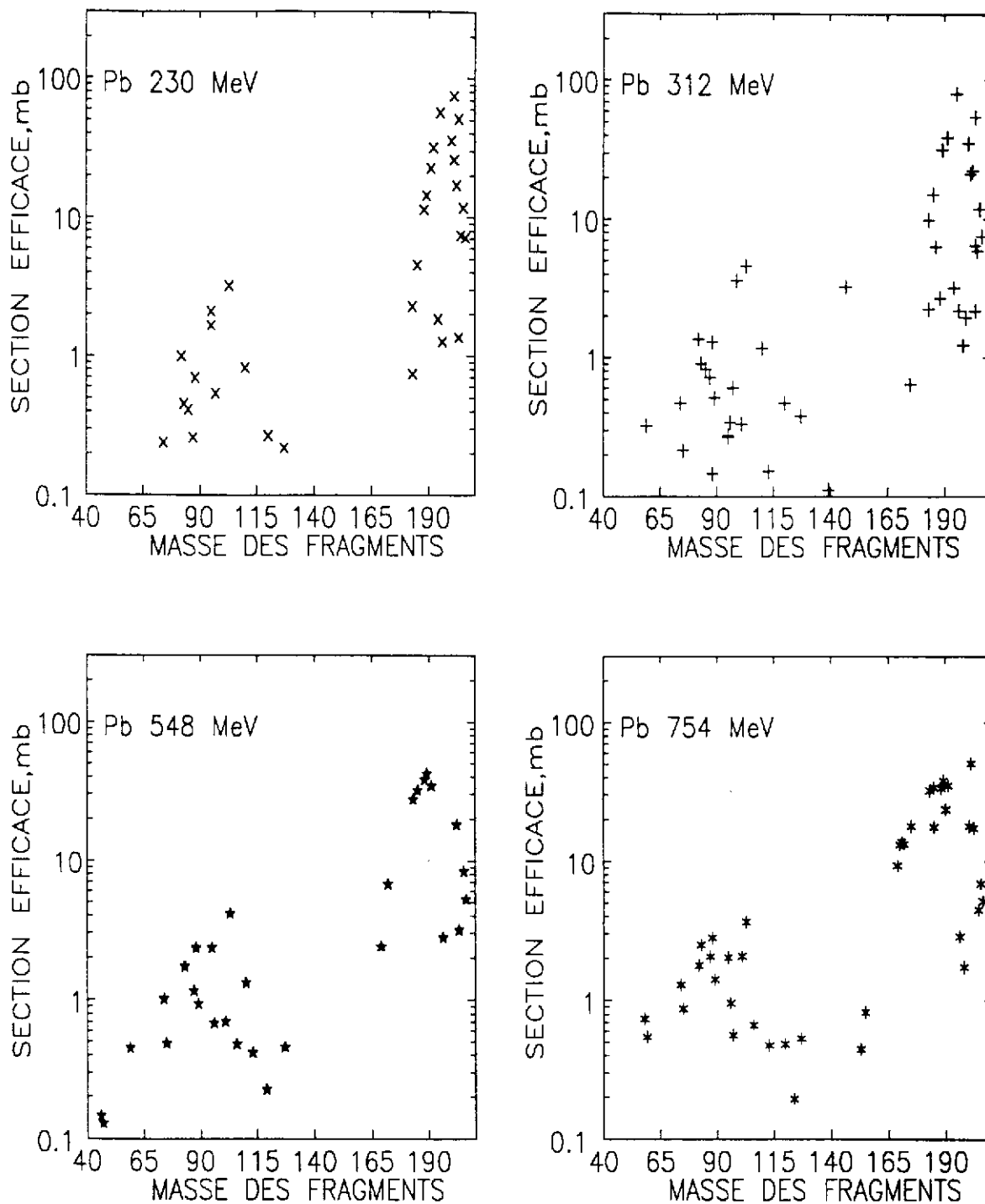


Figure 14 - Section efficace en fonction du nombre de masse pour la production de noyaux résiduels radioactifs pour la spallation induite dans une cible de plomb par des protons de 230, 312, 548 et 754 MeV.

protons de 1,2 GeV dans une expérience séparée. L'irradiation durait typiquement 1 mn, les comptages commençaient 2 mn après l'irradiation, et les cibles ont été suivies pendant plusieurs jours.

La figure 14 montre la distribution en masse de la production de résiduels pour une cible de Pb irradiée par des protons de 230, 312, 512 et 754 MeV. On observe un pic de spallation pour des masses proches de la cible, qui s'élargit quand l'énergie des protons augmente. Quelques noyaux protégés (non alimentés par la décroissance de résiduels à vie courte) apparaissent avec une section efficace faible dans ce pic. Un pic de fission symétrique apparaît, son intensité croît avec l'énergie des protons incidents.

La figure 15 compare calcul et expérience pour des protons de 754 MeV sur des cibles de W et Pb, et des protons de 548 MeV sur une cible d'uranium naturel.

Les modifications apportées dans le traitement de la fission ont des effets importants. Le nouveau jeu de barrières de fission améliore en moyenne les sections efficaces de fission, mais les résultats sont plus dispersés. Une analyse détaillée montre que cette dispersion résulte d'une sous-estimation de la production de fragments de fission riches en neutron, déjà présente auparavant mais accentuée maintenant pour W et Pb.

Le rétablissement de la compétition de l'évaporation de particules chargées avec la fission et l'évaporation de neutrons, ainsi que le rétablissement de la barrière coulombienne à haute énergie d'excitation, permettent de mieux reproduire le pic de spallation pour Pb et U. Celui-ci reste encore trop large pour W.

Une mesure de la distribution radiale et axiale des résiduels de spallation dans une cible de plomb de 20 cm de diamètre et de 80 cm de longueur a également été réalisée pour des protons incidents de 800 MeV. La cible est composée de tronçons de 15 cm d'épaisseur entre lesquels on a intercalé des cibles minces de Pb sur lesquelles sont effectués les comptages. Le dépouillement est en cours.

Enfin une mesure de résiduels de spallation par cinématique inverse est prévue à GSI, en bombardant une cible d'hydrogène liquide par des ions Pb ou ^{238}U d'énergie 1 GeV/A (collaboration GSI, CEA/DAPNIA, CENBG). La détection en ligne de tous les résiduels, qui sont émis dans un petit cône (effet relativiste), devrait fournir des données directement comparables aux calculs.

VI - CONCLUSION

La modélisation de la spallation dans le code HETC d'origine, quoique simplifiée, permet néanmoins de comprendre les processus physiques mis en jeu et leur imbrication. Il n'y a pas de contradictions flagrantes entre les calculs et les résultats expérimentaux, même si localement l'accord n'est que qualitatif. Dans ce sens, le code remplit parfaitement son rôle d'aide aux études de physique.

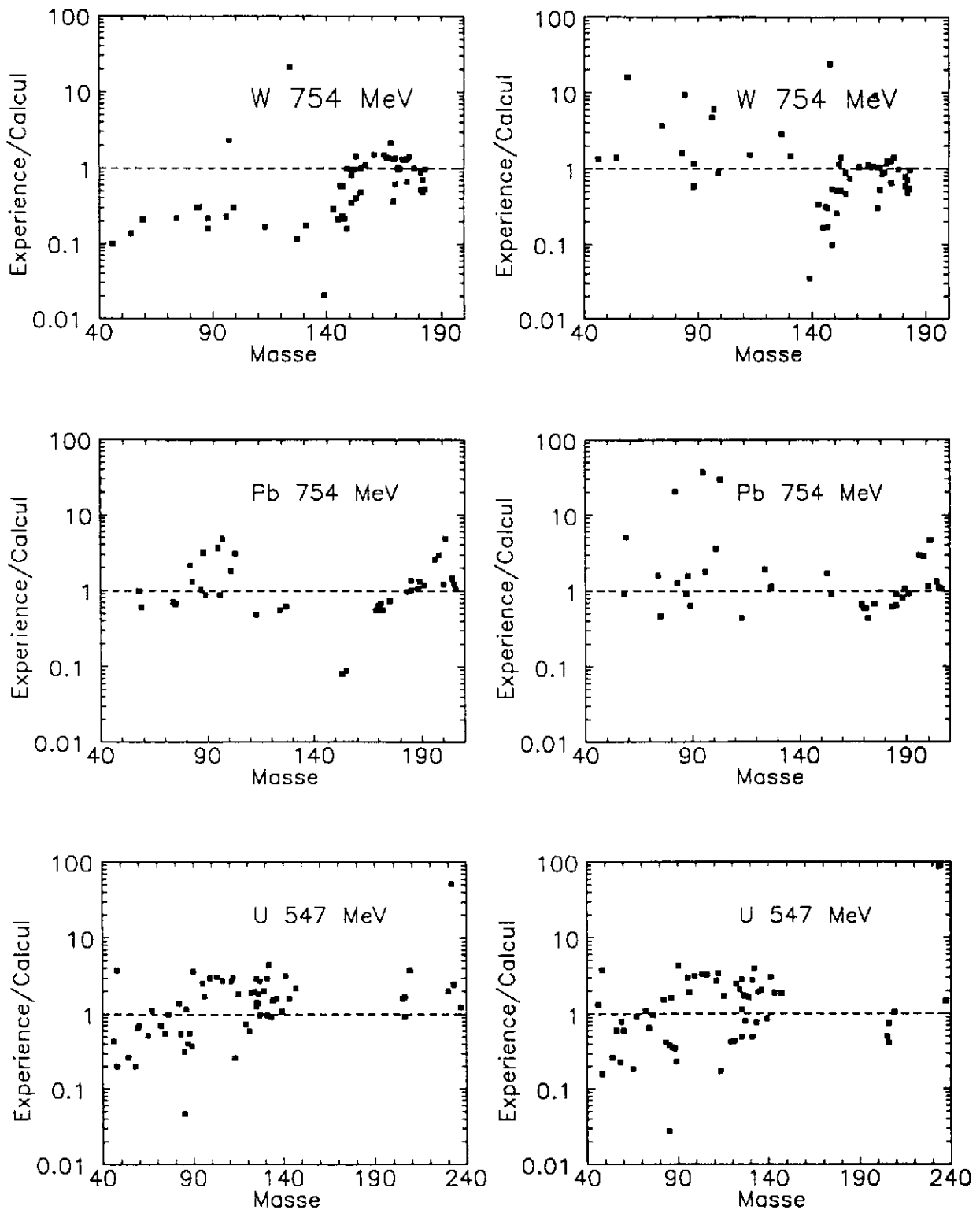


Figure 15 - Rapport expérience / calcul pour la production de résiduels de spallation sur des cibles de W et Pb irradiées par des protons de 754 MeV et une cible de U irradiée par des protons de 547 MeV. A gauche, version initiale de HETC, à droite version modifiée.

L'étape actuelle est tout autre. Elle vise à poursuivre l'amélioration des codes de façon à ce qu'ils fournissent des données quantitatives suffisamment fiables pour qu'ils deviennent prédictifs et puissent être utilisés avec confiance pour la mise au point de cibles complexes.

Deux axes d'études sont en cours. D'abord, l'extension, la modernisation et un affinement des modèles de base. Ensuite, la limitation de HETC au domaine d'énergie supérieur à 150 MeV pour lequel il est bien adapté, et l'extension du transport à l'aide de codes classiques, tels MCNP ou TRIPOLI, de leur limite actuelle de 20 MeV jusqu'à 150 MeV. Cela implique l'extension des bibliothèques de données dans cette gamme d'énergie : des codes performants, comportant une description fine de la physique concernée sont disponibles.

En parallèle, il faut disposer d'une base de données expérimentales fiable et variée pour valider ces améliorations et développements. Un programme expérimental important est en cours auprès de l'accélérateur SATURNE. Il comprend des mesures différentielles en angle et en énergie des neutrons émis par différentes cibles minces et épaisses, des mesures de résiduels de spallation, des mesures intégrales de neutrons sur cibles épaisses. Il couvre le domaine utile d'énergie pour la spallation, de 400 MeV à 2 GeV, essentiellement pour des protons incidents, et complète la base déjà existante mais surtout limitée aux énergies inférieures à 800 MeV. Les données concernant les particules chargées émises restent cependant fragmentaires, et pour l'instant aucun programme expérimental n'est prévu.

L'effort actuel, qui a déjà conduit à des améliorations importantes, devrait déboucher sur la démonstration graduelle de la prédictibilité du code au cours des prochaines années.

REFERENCES

- 1) R. Serber, Phys. Rev. **72** (1947) 1114.
- 2) M.L. Golderberger, Phys. Rev. **74** (1948) 1269.
- 3) N. Metroprolis et al., Phys. Rev. **110**, (1958) 185 ; **110** (1958) 204.
- 4) - H.W. Bertini, Rapport ORNL - 3383
Monte Carlo Calculations on Nuclear Cascades (1963).
- 5) H.W. Bertini, Phys. Rev. **188** (1969) 1711.
- 6) T.W. Armstrong, K.C. Chandler, Nucl. Sci. Eng. **49** (1972) 110.
- 7) O. Bersillon et al., Contribution to 2nd International Conference on Accelerator - Driven Transmutation Technologies and Applications, Kalmar, Suède (1996).
- 8) J.F. Briesmeister Ed, LANL manual LA-7396- M (1986).
- 9) G. Bernardini, E. Booth, S. Lindenbaum, Phys.Rev. **80** (1950) 905.
- 10) V. Weisskopf, Phys. Rev. **52** (1937) 295.
- 11) L. Dresner, ORNL - TM - 196 (1961).
- 12) I. Dostrovsky et al., Phys. Rev. **111** (1958) 1659 ; Phys. Rev. **116** (1959) 683 ; Phys. Rev. **118** (1960) 781.

- 13) F. Atchinson, OCDE Specialist's Meeting, Issy-les-Moulineaux, 30 May - 15 June (1994),
et Jul - Conf - 34 (1980) 17.
- 14) R. Vandenbosch, J.R. Huizenga, Nuclear fission, Academic Press (1973).
- 15) R. Vandenbosch, J.R. Huizenga, Proc. Int.conf. Peaceful Uses At. Energy, Vol 15 (1958) 284.
- 16) L.G. Moretto, S.G. Thompson, J. Routti, R.C. Gatti, Phys. Lett 36, (1972) 471.
- 17) G. Audi, O. Bersillon, J. Blachot, A.H. Wapstra, Nucl. Inst. Meth. A 369 (1996) 511.
- 18) J.F. Ziegler, J.P. Bersack, V. Littmark, "The stopping and Range of Ions in Solids",
Pergamon Press, New-York (1985).
- 19) G. Audi, A.H. Wapstra, Nucl. Phys. A 565 (1993) 1 - 389.
- 20) J. Dufflo, Nucl. Phys. A 576 (1996) 29.
- 21) S.G. Mashik, K.K. Gudima, V.D. Toneev, Nucl. Phys. A 401 (1983) 329.
- 22) S.G. Mashnik, Nucl. Phys. A 568 (1994) 703.
- 23) J. Cugnon, Nucl. Phys. A 462 (1987) 751.
- 24) R.E. Prael, rapport LA-UR-89-3347 (1989).
- 25) E. Suetomi, N. Nishida, M. Kadotani, Phys. Lett. B 333 (1994) 22.
- 26) J.V. Lepore, R.N. Stuart, Phys. Rev. 94 (1954) 1724.
- 27) H. Baba, Nucl. Phys. A 159 (1970) 625.
- 28) A.V. Ignatyuk, G.N. Smirenkin, A.S. Tishin, Sov. J. Nucl. Phys. 21 (1975) 255.
- 29) S. Hilaire. communication privée (1995).
- 30) W.D. Myers, W.J. Swiatecky, Nucl. Phys. A 601 (1996) 141.
- 31) R.M. Devries, J.C. Peng, Phys. Rev C22 (1980) 1055.
- 32) J. Raynal, Applied nuclear theory and nuclear model calculations for nuclear technology applications,
Trieste, 15 Fev - 19 Mars (1988), 506.
- 33) A.J. Koning et al., Proc. NEA Specialist Meeting on Intermediate Energy Nuclear Data,
30 mai - 1er Juin, Issy-les-Moulineaux, p. 87.
- 34) S. Stamer et al., Phys. Rev. C 47 (1993) 1647.
- 35) B.E. Bonner et al., Phys. Rev. C 18 (1978) 1418.
- 36) J.W. Watcher, W.A. Gibson, W.R. Burrus, Phys. Rev. C6 (1972).1496.
- 37) J.S. Fraser et al., Physics in Canada 21 (1965) 17.
- 38) D. West, E. Ward, Can. J. Phys 49 (1971) 2061.
- 39) M.S. Zucker et al., BNL communication privée, proposition d'expérience LNS 297 (1994).
- 40) G. Morgan et al., Proc.Conf. on Accelerator - Driven Transmutation Technologies and Applications,
Las-Vegas, AIP Conf. Proc. 346 (1994) 682.
- 41) R. Vassikov et al., ICANS-XI, KEK, Japon (1990).
- 42) J.S. Gilmore et al., Nucl. Sci. Eng.99 (1988) 41.
- 43) V.I. Belyakov - Bodin et al., Nucl. Inst. Meth. A 295 (1990) 140 ; Nucl. Inst. Meth. A 314 (1992) 508.
- 44) C.A. Beard et al., Nucl. Sci. Eng. 119 (1995) 87.
- 45) R. Michel et al., Nucl. Inst. Meth. B 103 (1995) 183.
- 46) W.R. Weber, J.C. Kish, D.A. Schrier, Phys. Rev.C 41, (1990) 520, 533, 547, 566.

- 47) J.L. Ulmann, Rapport LA-UR-95-3327 (1995).
- 48) C.E. Laird, Final Technical Report, BNL contract 554387, communication privée (1994).
- 49) International Code Comparison for Intermediate Energy Nuclear Data, OECD/NEA (1994).
- 50) D. Filges et al., Report NSC/DOC (95)2, (1995).
- 51) E. Martinez et al., accepté pour publication dans Nucl. Inst. Meth. (1996).
- 52) F. Borne et al., accepté pour publication dans Nucl. Inst. Meth. (1996).
- 53) L. Penkowski et al., Phys. Lett. B 336 (1994) 147.
- 54) Y. Blanchard et al., Contribution to 2nd International Conference on Accelerator - Driven Transmutation Technologies and Applications, Kalmar, Suède (1996).

Dégâts d'irradiation dans les solides

Y. Quéré
Ecole Polytechnique

Résumé

Dès l'été 1942, Wigner s'interroge sur les conséquences du désordre cristallin que devaient produire les neutrons dans le graphite prévu comme modérateur des réacteurs de Hanford et il en confie l'étude à Seitz.

Celui-ci évalue théoriquement l'effet : déplacement des atomes si l'énergie cédée dépasse un certain seuil, d'environ 25 eV, et création de "paires de Frenkel", lacune + interstitiel (*défauts ponctuels*) dans le cristal ; et donc introduction d'énergie interne, avec possibilité que cette énergie se dégage de manière intempestive ("effet Wigner"). Aussitôt des irradiations en cyclotron suivies de mesures calorimétriques sont effectuées, confirmant ces idées et permettant de préciser à quelle température il convient de maintenir le graphite pour éviter l'effet Wigner (par élimination continue des paires de Frenkel). L'ignorance de cet effet, par les Britanniques, conduira à l'incendie du réacteur de Windscale, en 1957.

Après la guerre, expériences et théories se multiplient pour approfondir la connaissance des défauts cristallins créés par le bombardement de particules, chargées ou non, sur les solides. Outre l'effet Wigner, de nombreux phénomènes sont ainsi découverts.

- Par déplacement des atomes, on s'attend à créer du *désordre* dans une phase cristalline ordonnée (par exemple, Ni₃Mn : Aronin), voire de le rendre amorphe (J. Bloch, Blin, Lesueur).

- Les mécanismes élémentaires de *création* des défauts ponctuels sont étudiés en détail soit par choc direct sur les noyaux (cas des neutrons, des électrons ...), soit par recul nucléaire (M.-H. Gély), soit par l'intermédiaire des électrons du solide (création de centres colorés dans les isolants, Pooley ; voire de défauts complexes dans certains métaux, A. Dunlop).

- La mobilité des défauts ponctuels introduit de la *diffusion atomique*, soit induite par l'irradiation, soit accélérée par elle. On observe ainsi l'accroissement, sous irradiation de neutrons, de l'interdiffusion (Moreau, Calais), l'accélération de la précipitation de seconde phase (Blewitt), et même l'apparition de phases ordonnées inconnues (ainsi de l'alliage FeNi : Paulevé, Néel) ou l'apparition de phases normalement hors d'équilibre (Urban, Barbu).

- Le regroupement des défauts ponctuels en amas provoque des variations de propriétés des matériaux, parfois brutales : *durcissement* (Seeger) et *fragilisation*, variations de forme (*croissance*) dans le cas des cristaux anisotropes (uranium : Kittel, Weinberg ; zirconium), *gonflement* par cavités (créées par l'agglomération des lacunes : Bullough)...

- Ces phénomènes ne sont bien compris que si les défauts élémentaires sont correctement connus. Ainsi la mobilité (Blewitt, Corbett), la structure atomique, les propriétés élastiques et anélastiques (Hillairet, B. Beuneu) des *interstitiels* ont-elles été étudiées expérimentalement en détail, mais aussi celles des *lacunes* (Koehler, Balluffi, Wintenberger, Ytterhus, Germagnoli ...), comme celles des *amas* (Hirsch, Silcox, Rhüle, Bourret, M.-O. Ruault...), effort expérimental accompagné par de nombreuses études théoriques (Seitz, Huntington, Fumi, Friedel, Blandin, Eshelby, Seeger ...).

- En parallèle, on applique très tôt la dynamique moléculaire et la méthode de Monte Carlo à l'évaluation de la structure des défauts et surtout à l'étude des phénomènes (Erginsoy, Vineyard, Englert, Doan) : ainsi simule-t-on les trajectoires et le ralentissement des particules, la production de gerbes de déplacements (*cascades*) et les mobilités ainsi induites ...

- Le but de toutes ces études microscopiques est de comprendre et, si possible, de prévoir les modifications des *propriétés macroscopiques* (mécaniques, géométriques, électriques, physico-chimiques ...) des matériaux soumis à irradiation, notamment dans les réacteurs nucléaires (combustibles, gaines, éléments de structure, cuve, isolants électriques ...), dans les couches élaborées par implantation ionique, et dans les dispositifs (diodes, microprocesseurs ...) installés dans les satellites. Il convient par exemple de connaître si, et comment, évoluent globalement les phases constitutives des alliages. Cette évolution dépend avant tout du *flux* de particules (Adda), lequel impose une contrainte dans le traitement thermodynamique de l'alliage et modifie, parfois radicalement, la nature des phases présentes, créant un nouvel "équilibre" souvent différent de l'équilibre à flux nul (Martin, Bellon).

Principes et Normes de Radioprotection

Henri METIVIER

Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire
CEA Fontenay-aux-Roses

Introduction

1) Origine des règles de la radioprotection

- 1.1. Radioactivité et exposition, quelques définitions
- 1.2. La Commission Internationale de Protection radiologique
 - 1.2.1. L'organisation de la CIPR.
 - 1.2.2. Les publications de la CIPR et leur devenir.

2) Enonce des principes

- 2.1. Nature des effets
- 2.2. Le cadre conceptuel de la Protection Radiologique
 - 2.2.1. Les activités
 - 2.2.2. Le système de protection radiologique
 - 2.2.2.1. Justification
 - 2.2.2.2. Optimisation
 - 2.2.2.3. Limitation

3. Définition des quantités utilisées en protection.

- 3.1. Dose absorbée
- 3.2. Dose équivalente
- 3.3. Dose efficace
- 3.4. Grandeurs dosimétriques complémentaires
 - 3.4.1. Doses engagées
 - 3.4.2. Doses collectives
- 3.5. Limites secondaires

4. Les nouvelles recommandations

- 4.1. Les nouvelles bases scientifiques
- 4.2. Les nouvelles normes.

5. Conclusion

6. Bibliographie

Introduction

Il y a un siècle, fin 1895, Konrad Roentgen découvrait les rayons X, quelques mois plus tard, en mars 1896, Henry Becquerel décrivit pour la première fois la radioactivité. On mesure depuis les découvertes de ces deux hommes leurs conséquences pour l'histoire de l'humanité, la radiographie médicale a fait rapidement progresser la médecine, l'énergie nucléaire est aujourd'hui la source principale d'électricité de notre pays.

Rapidement, on a su que les rayonnements provoquaient des effets sur l'homme. Ainsi, trois mois après la découverte des rayons X, on décrivait leur effet irritant pour l'oeil. Peu de temps après sa découverte, Becquerel s'aperçut qu'un tube de matière radioactive gardé dans la poche de sa veste lui avait provoqué un érythème de la peau, comparable à un coup de soleil. Vinrent ensuite les effets néfastes observés chez les radiologues et dès lors il apparut le besoin de réglementer l'utilisation des rayonnements ionisants. Dès 1913 en Allemagne, et 1915 en Grande-Bretagne, on parla de réglementation pour protéger les patients et le corps médical, mais ce n'est qu'en 1925 (Londres) et 1928 (Stockholm) que l'on créa, lors des congrès internationaux de radiologie, deux commissions internationales chargées l'une de définir les unités concernant la radioactivité et leur effets avec la matière (CIUR¹), l'autre de définir des règles de radioprotection (CIPR²). Aujourd'hui ces deux Commissions existent toujours, la Commission Internationale de Protection Radiologique (CIPR) a régulièrement émis des recommandations généralement reprises dans les réglementations nationales. Depuis l'origine cette réglementation est devenue de plus en plus contraignante, pour que l'utilisation des rayonnements ait le moins de conséquences possibles sur l'homme et son environnement.

Pour s'appliquer, cette réglementation s'appuie sur des concepts qui nous permettent d'évaluer les risques que courent les hommes au contact de ces rayonnements et connaissant ces risques d'établir des normes tant pour les travailleurs que pour le public. C'est ce que nous allons expliquer dans ce présent chapitre.

1- Origine des règles de la radioprotection

1.1. Radioactivité et exposition, quelques définitions

Nous allons rappeler ici quelques notions nécessaires pour comprendre et appliquer les règles de radioprotection.

¹ CIUR: Commission internationale pour les Unités de Rayonnements et leur mesure

² CIPR: Commission internationale de Protection Radiologique

La première notion est la **radioactivité**. Elle est liée à la désintégration de noyaux d'atomes, particuliers, appelés pour cette raison radioactifs. Lors de cette désintégration, il y a émission de particules alpha (noyau d'hélium) ou bêta (électron) qui peuvent être accompagnés de rayonnements électromagnétiques gamma lorsque l'atome produit retrouve un état stable. Ces désintégrations peuvent se produire dans des corps rencontrés dans la nature, c'est la radioactivité naturelle, elles pourront être provoquées par des actions de l'homme, c'est la radioactivité artificielle. Qu'elle soit d'origine naturelle ou artificielle, la radioactivité se manifeste de la même façon, se mesure par les mêmes méthodes et produit les mêmes effets sur l'homme. On la définit aujourd'hui en **becquerel (Bq)**³ qui correspond à 1 désintégration par seconde. Si pour un poids égal, un produit est plus radioactif qu'un autre, on dit que sa radioactivité spécifique est plus grande.

Cette radioactivité est partout présente. Notre terre est faiblement radioactive, notre corps aussi. Ainsi le potassium, essentiel pour notre vie, est très faiblement radioactif, notre corps en contient environ 160 grammes, dont la radioactivité est d'environ 6500 Becquerels. Ainsi chaque seconde, 6500 désintégrations dues au potassium se produisent dans notre corps.

Le temps nécessaire pour que la moitié des atomes initialement présents se soit désintégrée s'appelle la **période radioactive**. Au bout d'une période, l'activité d'un radioélément a diminué de moitié, au bout de deux périodes la matière est quatre fois moins radioactive, au bout de trois périodes, huit fois moins et ainsi de suite. Cette durée varie considérablement d'un atome à l'autre. Ainsi, le potassium-40 a une période de 1,3 milliard d'années, l'iode-131, 8 jours, le césium-137, 30 ans, le tritium 12 années, le technétium 99m utilisé pour faire des examens médicaux, 6 heures, le plutonium, 24000 ans.

L'irradiation d'un individu est une **irradiation externe** lorsque la source de rayonnement est à l'extérieur de l'organisme. Cette irradiation s'arrête dès que nous avons quitté le faisceau. A l'inverse, si la source radioactive est à l'intérieur de l'organisme, l'irradiation est appelée **irradiation interne**, elle continue tant que le radioélément n'est pas éliminé. En mangeant ou en respirant, nous incorporons chaque jour des radioéléments présents dans notre environnement. Leur quantité est faible. Dans des zones très contaminées, comme celles autour du réacteur accidenté de Tchernobyl, leur quantité est plus importante; c'est pourquoi il a été interdit la consommation des produits locaux.

Si nous incorporons des radioéléments dans l'organisme, en mangeant des aliments contaminés par exemple, nous retiendrons plus ou moins longtemps les atomes radioactifs. La **période biologique** est le temps nécessaire pour que la moitié

³ L'ancienne unité est le curie (Ci); 1 Ci est égal à 37 milliard de Bq, il correspondait à la radioactivité de 1g de radium.

d'un radioélément absorbé soit éliminé naturellement. Cette période biologique est indépendante de la période radioactive. Ainsi, le tritium s'élimine avec une période biologique d'environ 10 jours, alors que sa période radioactive est de 12,3 ans ; pour le césium, cette période biologique est d'environ une centaine de jours chez l'adulte, moitié moins chez l'enfant, alors que la période radioactive est de 30 ans. A l'inverse, pour certains radioéléments, tel le plutonium, la période biologique est très longue ; environ 30 ans au niveau du foie, 50 ans au niveau de l'os; un individu contaminé garde toute sa vie la trace d'une contamination par ce radioélément.

1.2. La Commission Internationale de Protection Radiologique

Créée en 1928 la Commission Internationale de Protection Radiologique (CIPR) est constituée d'experts entièrement indépendants des gouvernements choisis par cooptation. Elle est constituée d'une commission principale et de quatre comités.

La commission principale comprend une quinzaine de membres. Les comités comprennent 15 ou 16 personnes. Tous ces experts proviennent d'environ une vingtaine de pays. La France a pour la période 1993-1997 huit représentants. Tous les quatre ans la CIPR renouvelle une partie de ses membres, ainsi qu'une partie de ses Comités. Tous les deux ans, la Commission et ses Comités se réunissent ensemble, les autres années, les comités se réunissent séparément.

Les présidents des quatre comités sont obligatoirement membres de la Commission, où ils rapportent les travaux de leur Comité.

La CIPR émet régulièrement des recommandations aux utilisateurs de sources de rayonnement. Destinés à sa création aux médecins radiologues, ils sont maintenant destinés à l'ensemble des professions soumis aux rayonnements ionisants qu'ils soient d'origine naturelle ou artificielle, mais aussi au public pouvant être exposé du fait d'activités industrielles ou par la radioactivité naturelle.

1.2.1. L'organisation de la CIPR

La Commission Internationale de Protection Radiologique est constituée d'un comité général que l'on appelle "la Commission" qui s'appuie sur les quatre comités pour émettre ses recommandations. Le travail de ces comités consiste uniquement à écrire des rapports à partir des données de la littérature scientifique. Ces rapports ne sont publiés qu'avec l'accord de la commission.

Comité 1 sur l'effet des radiations

Le comité 1 étudie l'effet des radiations, il estime les risques de l'exposition aux rayonnements ionisants sur les organismes vivants et tout particulièrement chez l'homme. Il s'appuie pour ce faire sur les études d'autres organismes tel les rapports du comité américain sur les effets biologiques des rayonnements ionisants (BEIR) ou ceux

du Comité scientifique des Nations Unies pour l'étude des effets des rayonnements ionisants (UNSCEAR⁴) ainsi que tout autre documents.

Le Comité 2 calcule les valeurs des limites secondaires pour l'irradiation interne et externe. Les limites primaires sont les limites de doses que la CIPR recommande de ne pas dépasser. Les limites secondaires sont, par exemple, des niveaux d'activité qui conduisent à une irradiation à un niveau de dose égal aux limites recommandées par la CIPR. Nous reviendrons sur ces limites dans le paragraphe 3.5.

La Commission considère que la protection radiologique doit également s'appliquer à l'exercice de la médecine, protection des patients et des travailleurs en radiologie, radiothérapie et médecine nucléaire. Elle s'appuie pour ce faire sur les travaux du comité 3.

Le Comité 4 traite de l'application des recommandations de la Commission. Il est le point de contact avec les autres organisations internationales concernées par la protection: la Commission de l'Union Européenne, l'Agence Internationale pour l'Energie Atomique (AIEA plus connue sous le nom d'agence de Vienne), le Bureau International du Travail, L'Agence pour l'Energie Nucléaire de l'OCDE, etc.

1.2.2. Les publications de la CIPR et leur devenir

L'élaboration des documents peut se faire soit directement par la Commission (Publication 60 par exemple) mais plus généralement ce sont les groupes de travail créés par les Comités qui rédigent. Dans ce cas, le document est d'abord discuté par le Comité et quand celui ci estime le document publiable il le soumet pour approbation définitive à la Commission elle même.

Les recommandations de la CIPR sont généralement reprises par les États. Ainsi pour les Communautés Européennes, elles sont la base d'une Directive Européenne que les états membres sont obligés d'introduire dans leur législation ou réglementation. Pour les autres pays aucune structure similaire existe, c'est pourquoi plusieurs agences se regroupent (Agence Internationale pour l'Energie Atomique, AIEA, l'Organisation de coopération et de Développement Economique, OCDE, l'Organisation Mondiale de la Santé, OMS, le Bureau International du Travail, BIT, etc...) pour les transformer en "Basic Safety Standards" (BSS) utilisables comme tels par les pays qui le souhaitent. Enfin les Etats Unis ont leur propre Commission de Protection Radiologique (NCRP), qui émet des recommandations quelques peu différentes de celles de la CIPR, bien que des représentants des Etats Unis participent activement à la rédaction des BSS et que de nombreux experts américains soient membres de la CIPR.

⁴ A noter qu'à la différence de la CIPR les experts de l'UNSCEAR sont nommés par les représentants nationaux à l'agence de Vienne (AIEA). Ils parlent donc au nom de leur délégation nationale.

A ce jour le niveau de qualité de radioprotection dans le monde est largement imputable à la CIPR. Tous les états adoptent quasiment les mêmes normes en matière de radioprotection, normes issues de ces recommandations.

La Commission a publié son premier rapport en 1928. le premier rapport de la série actuelle, renuméroté *Publication 1* (1959), contenait les recommandations approuvées en septembre 1958. Des recommandations générales ont été présentées ultérieurement dans les *Publications 6* (1964), *9* (1966) et *26* (1977). L'avant dernière recommandation de la CIPR (*Publication 26*) a servi à établir la Directive des Communautés Européennes de Juillet 1982, ayant force de loi actuellement dans les pays de la Communauté. Ces directives sont reprises par le Journal Officiel Français le 12 Octobre 1986 sous la forme d'un décret N° 86 -1103 du 2 octobre 1986 relatif à la protection des travailleurs contre les dangers des rayonnements ionisants.

Depuis, la CIPR tenant compte des nouvelles données concernant la population des survivants des bombardements d'Hiroshima et Nagasaki, et la réestimation des facteurs de risque publiée par l'UNSCEAR en 1986 a émis en 1990 de nouvelles recommandations (*Publication 60*). Ce document a servi de base pour la rédaction des nouveaux "Basic Safety Standards" définitivement acceptées par les organismes internationaux en septembre 1994. Pour l'Union Européenne, des directives prenant en compte les évolutions entre la *Publication 26* et la *Publication 60* seront probablement publiées dans l'année 1995, elles seront, comme toutes directives, contraignantes pour les états de l'Union qui devront, dans les cinq ans les intégrer dans leur législation. Enfin les Etats-Unis, en 1992, ont intégré dans leur législation les limites de doses recommandées par la *Publication 26*. Il sera nécessaire de revenir sur cette particularité plus tard.

Pendant ces dernières décennies, on a constaté une évolution importante des recommandations. Au départ et pendant une partie des années 1950, on avait tendance à considérer le respect des limites de doses individuelles comme un résultat satisfaisant. depuis on a beaucoup insisté sur le besoin de maintenir toutes les expositions aussi basses que possible, compte tenu des facteurs économiques et sociaux. Ceci a eu pour effet de restreindre le nombre de situations dans lesquelles les limites de dose jouent un rôle majeur dans le système de protection. Ceci a aussi changé la finalité des limites de dose, initialement leur principale fonction était d'éviter l'apparition d'effets non-cancéreux, aujourd'hui elles sont destinées à limiter la fréquence de cancers et des effets héréditaires radio-induits.

Les modifications entre les recommandations de 1977 (*Publication 26*) et de 1990 (*Publication 60*) portent essentiellement sur le niveau des limites de doses et la simplification de certaines définitions. Pour les principes généraux le nouveau texte est peu modifié. Vivant une période de transition, nous serons amené à parler parfois de la *Publication 26* pour expliquer les modifications apportées dans la *Publication 60*.

2. Enoncés des principes.

La différence entre la protection et la sûreté est que la sûreté se rapporte à la machine ou à l'installation, la protection se rapporte à l'homme et à son environnement. Celui-ci doit être pris au sens large du terme, c'est à dire l'environnement à l'intérieur des locaux, telle l'atmosphère des locaux, et à l'extérieur dans l'eau, le sol ou l'air. En matière d'environnement, il est acquis qu'un système protégeant l'homme au niveau individuel protège *de facto* l'espèce dans son ensemble et l'environnement dans lequel il vit.

2.1. Nature des effets

La protection contre les rayonnements a pour but de protéger de ses effets les individus, leurs descendants et le genre humain dans son ensemble, tout en permettant d'exercer des activités qui sont jugées nécessaires.

La première notion est le **détriment**. Il définit les effets préjudiciables sur la santé de l'homme, d'une exposition aux rayonnements. Les effets préjudiciables dont il y a lieu de se protéger comprennent les effets **somatiques** lorsqu'ils se manifestent chez l'individu exposé lui-même et les effets **héréditaires** lorsqu'ils affectent sa descendance.

Parmi les effets somatiques les radiations ionisantes causent à la fois des **effets stochastiques** et **déterministes**, dans les tissus irradiés.

Les effets **déterministes** (non stochastiques) sont ceux pour lesquels la gravité de l'effet varie avec la dose et pour lesquels il y a un seuil. Ce sont par exemple, la cataracte, les atteintes non malignes de la peau, l'appauvrissement cellulaire de la moelle osseuse, des dommages cellulaires dans les gonades provoquant une baisse de la fertilité, etc... Pour l'ensemble de ces transformations, la gravité de l'effet dépend de l'importance de la dose reçue et il existe une dose-seuil au dessous de laquelle on n'observe aucun effet nocif. Ces seuils sont différents selon l'effet observé.

Les **effets stochastiques** sont ceux pour lesquels c'est la probabilité d'apparition de l'effet et non sa gravité, qui est considérée comme une fonction, sans seuil de la dose. Ce sont par exemple les effets héréditaires et les cancers. Ainsi la gravité du cancer dépend de sa nature et non de la dose d'exposition, c'est sa fréquence qui dépendra du nombre de personnes exposées et de la dose reçue par chacun.

Pour mieux illustrer la différence entre les effets déterministes et les effets stochastiques, nous pouvons prendre exemple sur les radiations ultraviolettes, non ionisantes. Si des citoyens s'exposent sans précautions et longuement au soleil durant leurs vacances, on observera chez la totalité des personnes exposées, d'abord des "coups de soleil" si l'exposition n'est pas trop forte, puis des brûlures si l'exposition est forte. On peut éviter ces effets si l'on ne dépasse pas un seuil d'exposition. Cependant, parmi ces personnes, certaines développeront plus tard, un cancer de la peau

(mélanome). Heureusement leur nombre est limité, il est directement proportionnel au produit du nombre de personnes exposées et du temps passé au soleil par chacun.

La *Publication 60* introduit dans sa définition du risque un nouveau concept, plus réaliste qui est la notion de perte d'espérance de vie et de qualité de vie. Ainsi un cancer de l'enfant n'aura pas le même poids qu'un cancer du vieillard, c'est ce que ressentent traditionnellement les populations.

2.2. Le cadre conceptuel de la Protection Radiologique

Toute personne dans le monde est exposée à des rayonnements venant de sources naturelles et artificielles. Le but premier de la protection radiologique est de fournir un niveau de protection adapté à l'homme sans limiter indûment les pratiques bénéfiques.

Le système de protection radiologique, appliqué ce jour, dans le monde entier, est basé sur l'hypothèse que même de faibles doses de rayonnement peuvent produire des effets stochastiques nocifs sur la santé. Etant donné qu'il y a des seuils pour les effets déterministes, il est possible de les éviter en limitant les doses délivrées aux individus. L'objectif de la protection radiologique est donc d'empêcher l'apparition d'effets déterministes, en maintenant les doses en dessous des seuils appropriés, et à assurer que toutes les mesures raisonnables sont prises pour limiter l'induction d'effets stochastiques à des niveaux soit imperceptibles soit très faibles et considérés comme acceptables.

2.2.1. Les activités.

La *Publication 60* classe les activités humaines en deux groupes:

a) Certaines activités humaines augmentent l'exposition aux rayonnements soit en augmentant l'exposition des individus soit en augmentant le nombre d'individus exposés. Ces activités sont appelées des "**pratiques**". C'est le cas d'une installation nucléaire.

b) D'autres activités humaines peuvent diminuer l'exposition totale, soit au niveau des individus soit au niveau du nombre d'individus exposés. Ces activités sont appelées "**interventions**". C'est le cas d'une décontamination d'un site pollué.

Les dispositions seront différentes selon qu'elles doivent être appliquées à une pratique conduisant à des expositions ou à une intervention visant à réduire les expositions. Dans le cas d'une nouvelle pratique on peut l'accepter telle quelle, l'accepter après avoir apporté des modifications, ou la rejeter catégoriquement. Les pratiques existantes peuvent être réexaminées à tout moment. On associera donc une pratique à la notion de **réglementation**. Si des accidents se produisent, ils donnent lieu à des situations pour lesquelles la seule action possible est l'intervention. La notion de réglementation ne s'applique plus, il appartient aux acteurs ayant à gérer la crise d'agir dans un concept d'optimisation adapté à la situation. Il en va de même pour

l'irradiation naturelle où la décision de réduire ses éventuels effets (taux de radon dans les habitations par exemple) ne peut découler éventuellement, que d'une décision politique optimisée en termes de Santé Publique.

Pour l'**irradiation médicale**, il faut distinguer clairement l'irradiation du patient qui attend un bénéfice de cette irradiation, et pour lequel il n'y aura donc pas de limites réglementaires, de celle des travailleurs auxquels la réglementation doit s'appliquer. Ce principe énoncé ne doit toutefois pas entraver l'objectif de diminution de doses aux patients tout particulièrement pour les examens de dépistage. Néanmoins il apparaît aujourd'hui nécessaire d'introduire un concept nouveau pour estimer les irradiations des patients si l'on veut comparer l'irradiation médicale des populations. En effet le bon sens nous conduit à préférer une irradiation médicale paraissant "élevée", associée à une espérance de vie longue (pays occidentaux), à une irradiation médicale faible associée à un système médical peu performant (pays en voie de développement). Ceci montre bien que le risque lié aux effets des rayonnements peut être toléré lorsqu'il est limité et justifié.

2.2.2. Le système de protection radiologique

Le système de protection radiologique pour les pratiques existantes ou envisagées est basé sous les trois principes suivants:

2.2.2.1. Justification.

Aucune pratique ne doit être adoptée à moins qu'elle n'apporte un avantage suffisant, aux individus exposés ou à la société. A partir des quelques exemples suivants, il est possible de voir que la réponse peut différer d'un groupe à un autre, d'un pays à un autre compte tenu du contexte socioculturel.

Electronucléaire: la France a choisi cette source d'énergie. elle y trouve un bénéfice, cette activité lui semble justifiée.

Irradiation médicale: personne ne nie les bénéfices apportés par la radiologie non seulement à l'individu mais aussi à la collectivité qui voit l'état de santé de sa population s'améliorer.

Détecteurs d'incendie: il faut se poser la question du risque de cancers associés à la fabrication et à la dissémination accidentelle potentielle des sources d'américium qui sont utilisées dans ces appareils au bénéfice immédiat de la détection précoce d'un incendie, notamment dans les locaux où la population est dense (lieux publics, salles de spectacles, etc.) Ces détecteurs, compte tenu de la comparaison des risques, sont justifiés.

Jouets lumineux: on ne voit aucun bénéfice à procurer aux enfants des jouets radioactifs (luminescents), cette pratique est totalement injustifiée. Elles n'est pas tolérée en France.

2.2.2.2. Optimisation.

Le principe d'optimisation découle directement de l'impossibilité actuelle de fonder sur des bases scientifiques incontestables l'existence ou la non-existence d'un seuil pour les effets stochastiques. Dans ce doute la CIPR a opté pour une politique de prudence qui s'est traduite par l'adoption d'une relation dose-effet linéaire sans seuil. Partant de cette relation sans seuil, il faudra que pour toute source associée à une pratique, le niveau des doses individuelles, le nombre de personnes exposées, ainsi que la probabilité de subir des expositions quand ces dernières ne sont pas certaines d'être reçues, soient maintenus aussi bas qu'il est raisonnablement possible. Ceci a un coût, c'est pourquoi on estime que cette réduction doit tenir compte des facteurs économiques et sociaux. C'est le principe **ALARA: As Low As Reasonably Achievable**.

Ce principe pour être mis en oeuvre nécessite d'introduire un coût à la dose évitée et par là même un coût à la vie. Il est évident aujourd'hui que ce coût n'est pas identique d'une industrie à une autre, les sommes investies pour limiter les risques dans l'industrie nucléaire sont largement au dessus de celles investies dans d'autres activités et il y a lieu de s'interroger sur cette disparité qui induit des inéquités entre différents travailleurs ou individus.

Notons qu'au principe ALARA certains voudraient substituer le principe ALATA (As Low As Technically Achievable), mais on voit rapidement les limites d'un tel système s'il n'y a pas de réflexion économique. Il ne peut qu'augmenter l'inéquité entre travailleurs ou populations.

2.2.2.3. Limitation.

Si une pratique est bénéfique pour un groupe ou un Etat, (justification) si ces groupes ou Etat ont réduit le risque en limitant l'exposition (optimisation), ceci ne doit toutefois pas se faire en sacrifiant l'individu. C'est pourquoi l'exposition des individus qui résulte de la combinaison des pratiques doit être soumise à des limites de dose afin qu'aucun individu ne soit exposé à des risques radiologiques jugés inacceptables dans le cadre de ces pratiques et dans des circonstances normales.

L'application simultanée des trois principes est nécessaire. Une activité peut par exemple se justifier selon des critères socio-économiques propres à une nation dans un moment donné, mais si elle est justifiable pour la collectivité (principe de justification) elle doit respecter l'individu (principe de limitation) et tendre vers un système le plus efficace possible, compte tenu des différents coûts de la protection (principe d'optimisation).

A ces principes, la nouvelle *Publication 60* ajoute, ce qui paraît évident, qu'une bonne protection n'est pas une protection où seules les limites sont basses mais où elles sont respectées. C'est pourquoi il appartiendra aux décideurs d'édicter des règles qui soient applicables et ne pas satisfaire uniquement à des groupes de pression. Ainsi pour revenir à la position des Etats Unis évoquée plus avant, les statistiques de l'OCDE

(ISOE) montrent bien que malgré des limites réglementaires plus élevées, les travailleurs des centrales nucléaires ne reçoivent pas des doses supérieures à leurs collègues européens tant le principe d'optimisation est entré dans les moeurs américaines. A l'inverse l'histoire récente nous a appris que des normes sévères n'étaient pas le gage d'irradiations faibles dans les pays de l'ex URSS.

Il est donc important que les principes fondamentaux soient traités comme un système cohérent. Aucune partie ne doit être prise isolément. Une simple conformité aux limites de dose n'est pas une démonstration pertinente de la performance du système.

3. Définitions des quantités utilisées en protection.

Ce chapitre définit les principales grandeurs permettant la mesure de l'effet du rayonnement sur la matière vivante et les individus. Nous vivons la transition entre un système que nous appellerons "*Publication 26*" et qui régissait encore la législation communautaire, donc française en 1995 et le système proposé par les nouvelles recommandations de la CIPR, que nous qualifierons maintenant "*Publication 60*" et qui sera repris pour l'essentiel dans la future réglementation. Compte tenu du fait que dans de nombreux pays, les nouvelles définitions des unités sont adoptées bien que parfois non encore réglementaires, ce sont donc celles de la *Publication 60* qui seront décrites ci dessous. Il sera donc rappelé lorsque il nous le semblera utile la définition où les valeurs numériques se rapportant au système précédent (*Publication 26*).

3.1. Dose absorbée

La dose absorbée D est l'énergie cédée à la matière (aux tissus) par unité de masse. Elle s'exprime dans le système international d'unités en **gray (Gy)**, qui vaut 1 Joule par kilogramme. L'unité ancienne encore utilisée est le rad qui vaut 10^{-2} gray. La dose absorbée est définie par les physiciens (ICRU) en un point de la matière. Par souci de simplification on la considère en radioprotection comme une moyenne dans un tissu ou un organe. Pour éviter la confusion entre les deux définitions, à été introduit récemment le terme de **Dose absorbée à l'organe**

Cette simplification s'accompagne d'une réserve pour les effets déterministes, liés aux doses élevées, où cette notion de moyenne peut se révéler inexacte. C'est le cas par exemple de l'irradiation superficielle de la peau par des rayonnement bêta. Dans ce cas une définition différente de la dose pourra être employée, ceci devra être spécifié.

3.2. Dose équivalente

La probabilité d'apparition d'un effet stochastique ne dépend pas seulement de la dose absorbée mais aussi du type de rayonnement et de son énergie. Ceci est pris

en compte en pondérant la dose par un facteur lié à la nocivité du rayonnement que l'on appellera désormais **facteur de pondération du rayonnement** W_R . La dose pondérée s'appellera dès lors la **Dose équivalente** H_T , équivalente à la dose délivrée par les rayonnements gamma ou X ($W_R = 1$), qui servent de référence, pour produire le même effet biologique stochastique. Ainsi dans un tissu T la dose équivalente sera

$$H_T = \sum_R W_R \cdot D_{T,R} \quad (1)$$

ou $D_{T,R}$ est la dose absorbée moyenne dans le tissu ou organe T, due au rayonnement R. L'unité de la dose équivalente est le Joule par kilogramme et son nom le **sievert (Sv)**.

Les facteurs de pondération du rayonnement sont portés dans le tableau ci dessous:

Photons de toutes énergies	1
Electrons et muons de toutes énergies	1
Neutrons énergie < 10 kev	5
10 -100 kev	10
100 keV- 2 MeV	20
2 MeV- 20 MeV	10
> 20 MeV	5
Protons autres que protons de recul, énergie > 2 MeV	5
Alpha, Fragments de fission, Noyaux lourds	20

Pour les neutrons, la CIPR autorise si besoin est l'emploi de la loi suivante à la place des valeurs discrètes du tableau

$$W_R = 5 + 17 e^{-(\ln(2E))2/6} \quad (2)$$

La modification principale par rapport à la *Publication 26* est le quasi doublement des facteurs de pondération pour les neutrons.

Il ne faut pas confondre le facteur de pondération du rayonnement W_R et l'EBR (**Efficacité Biologique Relative**), bien que le principe soit le même. L'EBR est le rapport de la quantité d'énergie de rayonnement X de 200 kev nécessaire pour produire un effet biologique quelconque à la quantité d'énergie nécessaire pour un tout autre rayonnement pour produire le même effet biologique. L'EBR est caractéristique de l'effet étudié et des conditions expérimentales; il ne peut être utilisé qu'en radiobiologie. Le facteur de pondération W_R quant à lui ne se rapporte qu'aux effets stochastiques, il y aura donc une différence entre les EBR et les W_R .

3.3. Dose efficace

La relation entre la probabilité d'apparition d'effets stochastiques et la dose équivalente n'est pas la même d'un organe ou tissu irradié à un autre. Ainsi si un groupe d'individus est irradié de manière homogène par un rayonnement gamma (cas de la population d'Hiroshima et de Nagasaki) certains cancers seront plus fréquents que d'autres Il est donc approprié de définir une autre grandeur qui prend en compte la sensibilité de chaque tissu ou organe à l'irradiation. Le facteur par lequel la dose équivalente dans le tissu ou l'organe T est pondéré est appelé **facteur de pondération tissulaire** W_T . Ce facteur représente la contribution relative de l'organe ou du tissu au détriment total dû aux effets d'une irradiation homogène. Il dépend de la radiosensibilité de chaque organe, mais aussi de la gravité, donc de la mortalité de ces cancers radio-induits. Ceci explique la faible importance de la thyroïde. Ces facteurs sont donnés pour une population de tout âge et de tout sexe. Ces facteurs s'appliquent donc aussi bien pour les travailleurs que pour la population.

La dose ainsi obtenue est donc une grandeur doublement pondérée, par le facteur de pondération du rayonnement d'une part et par le facteur de pondération tissulaire d'autre part, elle est appelée **dose efficace**, E. Elle s'exprime ainsi:

$$E = \sum_T W_T.H_T \quad (3)$$

ou si nous la décomposons:

$$E = \sum_R W_R \sum_T W_T.D_T.R \quad (4)$$

Elle s'exprime également en sievert.

Les nouveaux facteurs de pondération pour les tissus sont donnés dans le tableau suivant:

Facteurs de pondération pour les tissus		
Tissus	W_T	(Publication 26)
Gonades	0,20	(0,25)
Moelle Osseuse	0,12	(0,12)
Colon	0,12	
Poumon	0,12	(0,12)
Estomac	0,12	
Vessie	0,05	
Seins	0,05	(0,15)
Foie		0,05
Oesophage	0,05	
Thyroïde	0,05	(0,03)
Peau	0,01	
Surfaces Osseuses	0,01	(0,03)
Reste De L'organisme	0,05	(0,30)

La principale modification par rapport à l'ancien système réside dans l'apparition de nouvelles valeurs pour les coefficients de pondération tissulaires et de nouveaux tissus ou organes. Cette différence est principalement liée à l'observation, depuis la précédente recommandation (Publication 26), de cancers nouveaux, ceux dont le temps de latence est long, parmi la population des survivants des bombardements d'Hiroshima et de Nagasaki.

Alors que les facteurs de pondération pour le rayonnement dépendent du type de rayonnement et de son énergie et non du tissu ou de l'organe, les facteurs de pondération pour les tissus sont indépendants du type de rayonnement et de son énergie. Il est évident que ces concepts ne sont que des approximations simplificatrices et que des situations particulières peuvent être observées, tout particulièrement dans le cas des rayonnements à fort Transfert d'Énergie Linéique, alpha par exemple. Dans l'état actuel des connaissances, cette simplification est souhaitée pour que le système de protection soit simple d'application.

Les conséquences résultant d'une dose absorbée ne dépendent pas seulement de la dose, du type de rayonnement et de son énergie, et de la sensibilité intrinsèque des tissus. Ils dépendent également de la distribution de dose dans le temps (débit de dose). Dans la formulation de la Publication 26 un facteur appelé N était prévu pour prendre en compte ce phénomène. Il n'a jamais été utilisé et a toujours été égal à 1. C'est pourquoi la CIPR a préféré l'abandonner et prendre en compte cet effet de débit de dose dans l'établissement du facteur de risque lié à l'irradiation (voir plus loin).

La dose équivalente et la dose efficace sont destinées à être utilisées en protection radiologique, ce qui inclut l'estimation de risques en termes généraux. Elles fournissent une base pour l'estimation de la probabilité d'apparition des effets stochastiques uniquement pour les doses absorbées se trouvant bien en dessous des seuils pour les effets déterministes. Elles ne sont donc applicables que pour les faibles doses. Les radiothérapeutes, par exemple, devront parler de dose absorbée uniquement (Gy)

3.4. Grandeurs Dosimétriques complémentaires.

3.4.1. Doses engagées

Après incorporation de radionucléides dans l'organisme, par inhalation ou ingestion, l'irradiation ne cesse pas après l'arrêt de l'exposition. Il faudra pour exprimer

la dose reçue en tenir compte. Pour des radionucléides dont le séjour dans l'organisme est bref (tritium par exemple) il est facile de déterminer la dose totale délivrée et de l'imputer dans l'année de la contamination. A l'inverse, pour des éléments tel le plutonium, l'irradiation continuera toute la vie du contaminé puisque le plutonium déposé dans l'os ne s'élimine qu'avec une période de 50 ans. Deux méthodes sont possibles pour attribuer la dose à la personne contaminée. La première consisterait à calculer chaque année la dose délivrée par la contamination antérieure. on peut alors redouter que l'information s'oublie avec le temps, d'autant plus si le travailleur change d'employeur ou de profession. C'est pourquoi il est proposé de calculer l'intégrale dans le temps du débit de dose équivalente $H_T(\tau)$ ou τ est le temps d'intégration (en années) et l'imputer l'année de la contamination. La valeur calculée est appelée "**dose équivalente engagée**". Le temps d'intégration sera implicitement de 50 ans pour les adultes à partir de l'incorporation quel que soit l'âge lors de la contamination. Cette valeur pourra se calculer sur 70 ans pour les nourrissons.

Par extension la **dose efficace engagée** est définie de la même façon pour l'irradiation consécutive à une incorporation de radionucléides.

Il est évident que l'année où cette dose est calculée (année de l'incorporation), la dose qui en résulte peut être supérieure, pour le plutonium par exemple, à la dose réelle délivrée. Il n'en demeure pas moins que cette méthode a le mérite de la simplicité et responsabilise l'année de la contamination, le responsable de celle ci pour les années à venir. Elle évite tout oubli ultérieur.

3.4.2. Doses collectives.

Toutes les grandeurs dosimétriques décrites ci dessus sont des doses individuelles et ne concernent qu'un individu. Il est parfois pratique d'avoir d'autres indicateurs pour juger de la qualité d'une pratique. Ainsi pour des groupes ou populations, il est proposé de prendre en compte le nombre de personnes exposées en multipliant la dose moyenne du groupe par le nombre d'individus. Nous obtiendrons alors la **dose équivalente collective**, S_T , qui se rapporte à un tissu ou un organe précis et la **dose efficace collective**, S qui se rapporte à l'individu. L'unité de ces grandeurs collectives est l'homme-sievert.

Leur application est différente. Ainsi si une pratique conduit a une exposition individuelle moyenne de 10 mSv, on pourrait pour répondre aux objectifs de baisse de l'irradiation doubler le nombre des travailleurs. Mais si pour effectuer la tâche en question une partie de l'irradiation est liée au trajet vers la source, il est facile d'imaginer que la diminution du temps de travail d'un facteur 2 ne diminuera pas la dose d'autant. Finalement les travailleurs exposés recevront par exemple, chacun 6 mSv, mais en terme de dose collective on sera passé de $10 \cdot 100 = 1000$ h.Sv dans le premier cas (avec 100 travailleurs) à $6 \cdot 200 = 1200$ h.Sv dans le second cas. La dose

collective s'est élevée. La probabilité d'apparition d'un cancer dans le groupe augmentera aussi, si l'on s'en tient à l'hypothèse d'une relation linéaire sans seuil. Il faudra donc réfléchir à une autre technique si l'on veut concilier les deux objectifs.

Si l'on veut maintenant, non plus se limiter dans le temps au risque pour les individus (on dit alors que la dose collective est tronquée) mais pour l'ensemble des générations (cas d'un stockage de déchets) une nouvelle grandeur sera utile pour comparer les options proposées. C'est l'**engagement de dose** (H_C, T ou E_C). Il est défini comme l'intégrale sur un temps infini du **débit de dose par tête** (H_r ou E).

Ces doses collectives n'ont aucun intérêt pour le suivi individuel des travailleurs ou pour estimer les doses reçues par les membres du public. Elles sont essentiellement un outil de comparaisons de pratiques; combien d'hommes-sievert seront délivrés par tel ou telle option dans le choix d'une stratégie de gestion de déchets par exemple? Elles sont les seules valeurs permettant de juger la mise en oeuvre du principe d'optimisation ALARA.

3.5. Limites secondaires

Une fois les limites de doses fixées, il est défini pour la contamination interne, des **limites secondaires**: les Limites Annuelles d'Incorporation par ingestion et par inhalation (LAI) et les limites dérivées de concentration des radionucléides dans l'air pour l'exposition professionnelle (LDCA).

La limite annuelle d'incorporation est la quantité de radionucléide qui, si elle est incorporée, délivre dans l'organisme les doses limites fondamentales définies ci-dessus.

La LDCA est la concentration dans l'air qui conduirait pour un travailleur travaillant 2000 heures par an dans cette atmosphère à la LAI inhalation, et par conséquent à recevoir la limite de dose.

Ces limites sont calculées à partir de modèles dosimétriques qui prennent en compte: la fraction que retient l'individu lorsqu'il inhale ou ingère un radioélément, le cheminement de ce radionucléide (du site de dépôt vers le sang puis du sang vers les organes), les vitesses de ces migrations puis enfin le taux d'élimination de ces radionucléides, par les voies urinaires et fécales. Ces modèles prennent en compte également les caractéristiques physiques des radionucléides que sont leurs périodes radioactives, et l'énergie qu'ils libèrent dans un organisme vivant. Les calculs sont fait pour un engagement de dose sur 50 ans. Ils s'appliquent aux travailleurs, adultes.

Les LAI ne sont plus données dans les nouvelles recommandations des organismes internationaux. Il est fournit uniquement des facteurs de Doses Par Unité d'Incorporation (DPUI) qui correspondent à la dose efficace délivrée par l'incorporation de 1 Bq d'un radionucléide. Pour faire ces calculs, on se base sur l'état le plus récent des connaissances publiées dans la littérature scientifique. Il appartient ensuite aux autorités compétentes d'effectuer la transcription en LAIs en divisant tout

simplement la valeur de la limite de dose (qui est fixée à 20 mSv/an dans le cas de la contamination interne) par la dose par unité d'incorporation.

Si un opérateur, connaît exactement la biocinétique des matériaux qu'il utilise, il pourra calculer des DPUI correspondant réellement à ces matériaux et proposer aux autorités de sûreté des LAI spécifiques aux ateliers où sont manipulés ces matériaux. Il appartiendra à ces autorités de vérifier le bien fondé de ces calculs avant d'autoriser l'utilisation de ces LAI spécifiques.

En matière de sûreté, l'avantage de cette démarche spécifique est de constituer un dossier d'expertise précis. Elle apporte un plus à la qualité de la radioprotection, l'expérience montre qu'elle est en général mieux perçue par les partenaires sociaux.

4. Les nouvelles recommandations

Pour établir la corrélation entre le risque et la dose, la Commission s'est surtout appuyée sur les connaissances actuelles des causes de mortalité des survivants d'Hiroshima et de Nagasaki.

4.1. Les nouvelles bases scientifiques.

Depuis les recommandations de la Publication 26, le réexamen dosimétrique des populations a conduit en 1986 à diminuer les doses reçues d'un facteur 2,5. Sont apparus également des cancers du tube digestif (estomac et colon) qui n'étaient pas encore recensés lors des recommandations de 1977. A l'inverse, il n'a toujours pas été mis en évidence d'effets héréditaires, la probabilité d'induction de tels effets a donc été révisée à la baisse. Enfin pour extrapoler les résultats des observations sur ces populations qui ont reçu leur dose (forte) en un temps très court (fort débit de dose) au cas des travailleurs et populations qui ne reçoivent que des faibles doses à des débits faibles, la CIPR a choisi par prudence un facteur de réduction⁵ à l'intérieur d'une fourchette allant de 2 à 10 proposée dans les rapports UNSCEAR. La relation linéaire sans-seuil a été maintenue. L'hypothèse d'un risque relatif⁶ également.

Sur ces bases la CIPR évaluent les nouveaux coefficients de probabilité nominaux pour les effets stochastiques (cancers et effets héréditaires).

Population exposée	Détriment (10 ⁻² /Sv)			Total
	Cancer mortel	Cancer non mortel	Effets Héréditaires	
Travailleurs adultes	4,0	0,8	0,8	5,6
Population entière	5,0	1,0	1,3	7,3

⁵ Ce facteur s'appelle le DDREF, Dose and Dose Rate Effectiveness Factor

⁶ On définit le risque relatif comme une augmentation des effets, proportionnelle au taux de la population de référence. A l'inverse le risque absolu, ou additif, est une addition d'effet, limitée dans le temps, à ceux observés dans la populations de référence.

4.2. Les nouvelles normes

Les valeurs proposées dans les précédentes recommandations étaient de 50 mSv/an pour les travailleurs et de 5 mSv/an pour les membres du public. Basées sur les coefficients de probabilité énoncés ci dessus, les nouvelles recommandations sont les suivantes:

- La commission recommande pour les travailleurs une limite de 20 mSv par an moyennée sur 5 ans (100 mSv en 5 ans) pour la dose effective à la condition que la dose effective n'excède pas 50 mSv par an pour une année donnée au cours de cette période.

- Pour les membres du public la limite de 1 mSv par an et recommandé. La Commission accepte que ce niveau soit dépassé dans des circonstances spéciales si la moyenne de 1 mSv sur 5 ans est respectée.

La limite pour les travailleurs correspond à un objectif de dose sur la vie de 1 Sv pour une durée de vie professionnelle de 50 ans.

La diminution des limites pour la dose effective est selon la commission suffisantes pour éviter un quelconque effet déterministe dans tous les tissus ou organes de l'organisme à l'exception du cristallin, qui contribue faiblement au calcul de la dose effective, et pour lequel la commission recommande une limite de dose équivalente de 150 mSv par an. La peau pouvant faire l'objet d'irradiations localisées sera soumise également à une limite de dose équivalente de 500 mSv/cm² par an. Pour les populations les valeurs seront divisées par 10; 15 mSv pour le cristallin, 50 mSv pour la peau.

Dans sa directive 96/29 en date du 13 mai 1996, la communauté européenne a repris globalement les recommandations de la CIPR 60. Les états membres devront transcrire cette directive en réglementation nationale avant le 13 mai 2000.

5. Conclusion

Dans ses nouvelles recommandations la CIPR a réaffirmé les principes à la base du système de radioprotection, la justification, l'optimisation et la justification. Elle a clarifié la terminologie et la définition des normes, revenant à des définitions plus naturelles telles la dose équivalente et la dose efficace. Elle a actualisée les facteurs de pondération des rayonnements aggravant d'environ un facteur 2 la nocivité des neutrons. Les facteurs de pondération tissulaires ont été modifiés, prenant en compte l'apparition de nouveaux cancers parmi la population des survivants des bombardements d'Hiroshima Nagasaki et la diminution de la probabilité d'apparition

d'effets héréditaires. Se basant notamment sur les travaux de l'UNSCEAR ou du comité américain BEIR la commission a proposée d'abaisser les limites de doses, aussi bien pour les travailleurs que pour le public.

Depuis la publication en 1990 de ces recommandations, son Comité 2 a considérablement remanié les limites secondaires. Les modèles dosimétriques ont été pour la plupart entièrement repensés. La notion de LAI a été modernisée et devient plus pragmatique, elle devient un instrument d'incitation à l'amélioration de la radioprotection dans les ateliers où l'exposition découle de l'incorporation par inhalation de radionucléides. Les doses aux populations sont calculées pour différentes tranches d'âge du nourrisson à l'adulte.

En conclusion on peut affirmer que modernisé, le nouveau système de protection est à la fois plus rigoureux et plus souple.

Bibliographie

Commission Internationale de Protection Radiologique

ICRP Publication 26 (Annals of the ICRP Vol 1 N° 3) Recommendations of the ICRP, Pergamon Press, Oxford, 1977.

ICRP Publication 56 (Annals of the ICRP Vol 20 N° 2) Age-dependent Doses to members of the Public from Intakes of radionuclides: Part 1. Pergamon, Oxford, 1989

ICRP Publication 60 (Annals of the ICRP Vol 21 N° 1-3). 1990 recommendations of the International Commission on radiological Protection. Pergamon Press, Oxford, 1991. Edition française publiée sous le titre "Recommandations 1990 de la Commission Internationale de Protection Radiologique", CIPR Publication 60, Pergamon Press, Oxford, 1993

ICRP Publication 1966 (Annals of the ICRP Vol N° 24) Human respiratory tract Model. Elsevier Science Ltd, Oxford, 1994.

ICRP Publication 67 (Annals of the ICRP Vol 23 N° 3/4) Age-dependent Doses to members of the Public from Intakes of radionuclides: Part 2 Ingestion Dose Coefficients. Elsevier Science Ltd, Oxford, 1994.

ICRP Publication 68 (Annals of the ICRP Vol 24 N° 4) Dose Coefficients for Intake of Radionuclides by Workers- Replacement of ICRP Publication 61.. Elsevier Science Ltd, Oxford, 1995.

ICRP Publication 69 (Annals of the ICRP Vol 25 N° 1) Age-dependent Doses to members of the Public from Intakes of radionuclides: Part 3 Ingestion Dose Coefficients. Elsevier Science Ltd, Oxford, 1995.

ICRP Publication 71 Conversion Coefficients for use in Radiological Protection against External Radiation, Joint ICRP-ICRU Publication, à paraître.

United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR)

Genetic and somatic effects of ionizing radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 1986 report to the General Assembly, with Annexes. United Nations sales publication E.86.IX.9. United Nations, New York, 1986.

Influence of dose and dose rate on stochastic effects of radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 1993 report to the General Assembly, with Annexes. United Nations sales publication E.94.IX.2. United Nations, New York, 1993.

Epidemiological studies of radiation carcinogenesis. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 1984 report to the General Assembly, with Annexes. United Nations sales publication E.94.IX.11. United Nations, New York, 1994.

Committee of the Biological Effects of Ionizing Radiation (BEIR)

Health Risks of Radon and other internally deposited alpha-emitters, BEIR IV, National Academy Press, Washington, 1988.

Health Effects of Exposure to Low levels of Ionizing Radiation, BEIR V, National academy press, Washington, 1990.

Autres sources.

International basic safety Standards for Protection against ionizing radiation and for safety of radiation sources. Interim edition. Safety Series N° 115-I, International Atomic Energy Agency, Vienna, 1994.

Quantities and Units in Radiation Protection Dosimetry. International Commission on Radiation Units and Measurements ICRU Report 51, ICRU Publications, Bethesda, 1993.

ALARA. From theory towards practice. P.J.Stokell, J.R.Croft, J.Lochar, J.Lombard, EUR 13796 EN, Commission of the European Communities, Luxembourg, 1991.

La radioprotection au seuil du XXI^e siècle. Compte rendu d'une réunion de travail de l'AEN. Agence pour l'Energie Nucléaire, OCDE, Paris 1993.

La radioprotection aujourd'hui et demain. Opinion collective du Comité de protection radiologique et de santé publique de l'agence de l'OCDE pour l'énergie nucléaire. OCDE, Paris, 1994.

Les effets biologiques des rayonnements ionisants, M.Bertin, Electricité de France, Paris, 1994.

Directive européenne 96/29 Euratom du Conseil, du 13 mai 1996, fixant les normes de base relatives à la protection sanitaire de la population et des travailleurs contre les dangers résultant des rayonnements ionisants. Journal officiel des communautés européennes, L59, 39^e année, 29 juin 1996.

Réglementation française

La transposition en droit français des directives du Conseil des Communautés européennes (n° 80_836 du 15 juillet 1980 et n° 84-467 du 3 septembre 1984 explicitées par la commission n° 85-C 345-03 du 31 décembre 1985), qui prennent elles-mêmes en compte les recommandations de la commission internationale de protection radiologique (CIPR), a été menée à son terme essentiellement par l'adaptation de trois décrets:

- le décret n° 66-450 du 20 juin 1966 relatif aux principes généraux de protection contre les rayonnements ionisants qui a été modifié par le décret n°88-251 du 18 avril 1988.
- le décret n° 67-228 du 15 mars 1967 relatif à la protection de stravaillleurs contre les rayonnements ionisants hors des installations nucléaires de base qui a été abrogé et remplacé par le décret n° 86-1103 du 2 octobre 1986.
- le décret n° 75-306 du 28 avril 1975 relatif à la protection des travailleurs contre les rayonnements ionisants dans les installations nucléaire de base qui a été modifié par le décret n° 88-362 du 6 mai 1988.

Grandeurs et Unités Utilisées en Radioprotection	
Selon les publications 60 de la CIPR et 51 de l'ICRU	
GRANDEUR	UNITE
Quantités Physiques	
<p>Activité: le nombre de désintégrations par unité de temps</p>	le becquerel (Bq) est le nom spécial de l'unité de désintégration: $1 \text{ Bq} = 1 \text{ s}^{-1}$.
<p>Fluence: La fluence de particules, Φ, est le quotient du nombre de particules dN pénétrant dans une sphère de centre M, par l'aire du plan diamétral de cette sphère, da.</p> <p style="text-align: center;">$\Phi = dN/da$</p>	m^{-2}
<p>Kerma: Le kerma (acronyme de Kinetic Energy Released in Matter) est le quotient dE_{cin}/dm où E_{cin} représente la somme des énergies cinétiques initiales de toutes les particules chargées mises en mouvement dans le volume de référence de masse dm. Il traduit le premier acte du transfert d'énergie: la mise en mouvement par collision des particules secondaires.</p>	le Kerma s'exprime en J.kg^{-1} . Son unité est le gray (Gy)
<p>Dose absorbée: La dose absorbée est la quantité d'énergie $d\epsilon$ délivrée par les radiations ionisantes à la matière de masse dm, ainsi</p> <p style="text-align: center;">$D = d\epsilon/dm$.</p>	le nom spécial pour l'unité de dose absorbée est le gray (Gy).
Quantités de Radioprotection	
<p>Dose absorbée à l'organe: la dose absorbée étant définie en un point, la CIPR a introduit (Publication 71) la notion de la dose absorbée à l'organe qui est la moyenne de la dose absorbée en chaque point de l'organe. Cette définition s'avère utile pour mieux définir la dose moyenne à l'organe lorsque l'irradiation est hétérogène; irradiation neutronique ou alpha</p>	
<p>Dose équivalente à l'organe: La dose équivalente à l'organe $H_{T,R}$ dans un tissu T liée à l'irradiation par le rayonnement R est donnée par l'équation</p> <p style="text-align: center;">$H_{T,R} = W_R D_{T,R}$</p> <p>où $D_{T,R}$ est la dose absorbée à l'organe T par l'irradiation R et W_R le facteur de pondération lié à la nature du rayonnement R.</p> <p>la dose équivalente totale, H_T, est la somme de $H_{T,R}$ pour tous les types de rayonnement.</p>	Le facteur de qualité étant sans dimension, l'unité est la même que pour la dose absorbée; J.kg^{-1} et son nom spécial est le sievert (Sv).

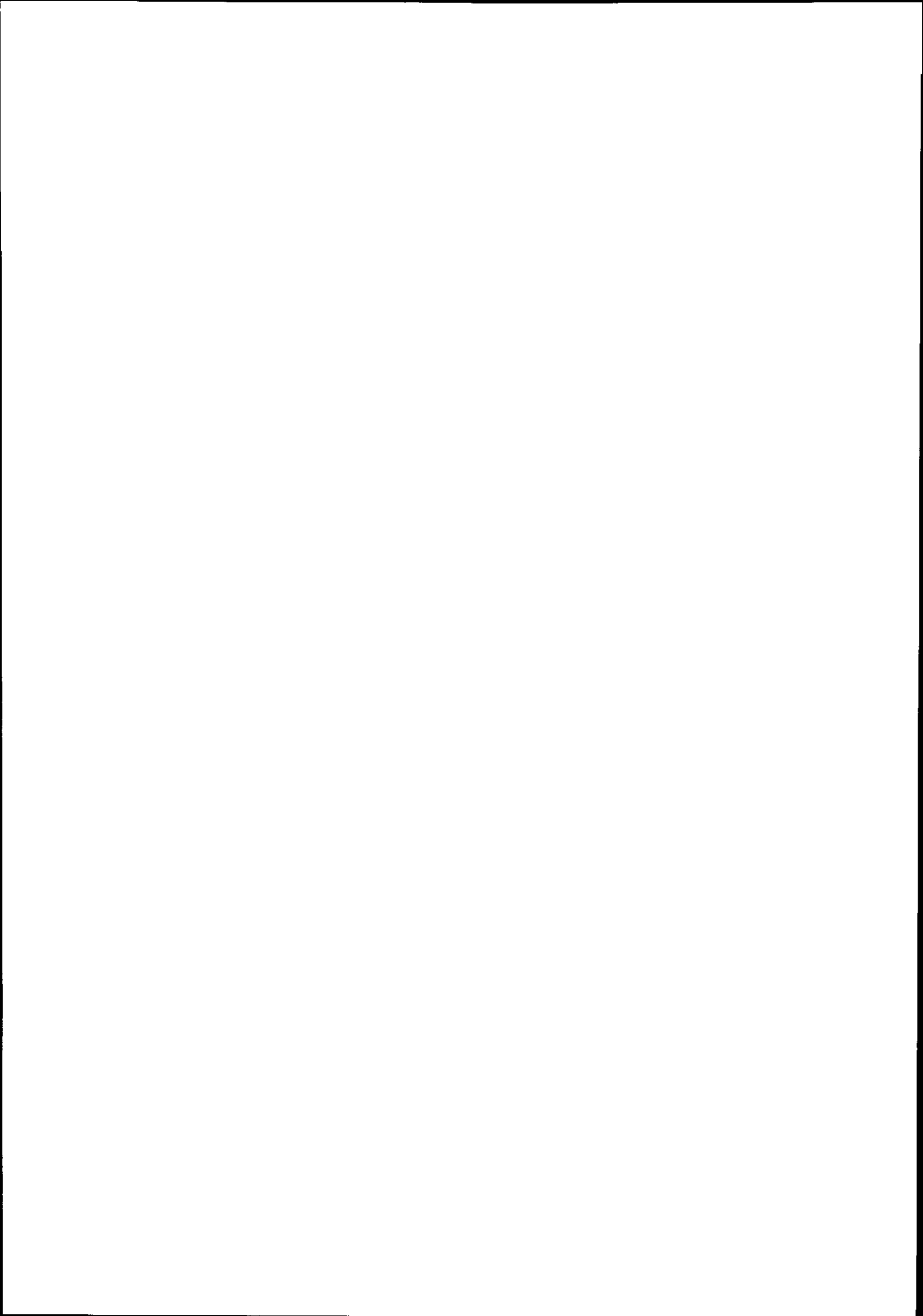
<p>Il faut noter que l'ICRU définit la dose équivalente comme le produit</p> $H = QD$ <p>ou Q est le facteur de qualité du rayonnement en un point et D la dose absorbée en un point.</p>	<p>L'unité est le $J.kg^{-1}$, le nom spécial est le sievert (Sv).</p>
<p>Dose efficace: La dose efficace est la somme des doses équivalentes pour chaque organe ou tissus de l'organisme pondérées par un facteur dépendant de la sensibilité aux effets stochastiques du tissu irradié W_T. Ces facteurs de pondération étant normalisés leur somme est égale à 1. La dose efficace s'exprime donc par l'expression</p> $E = \sum_T W_T H_T$	<p>Le facteur de pondération tissulaire étant sans dimension, l'unité est la même que pour la dose absorbée et la dose équivalente à l'organe; $J.kg^{-1}$ et son nom spécial est comme pour la dose équivalente à l'organe le sievert (Sv).</p>
<p>Quantités de Radioprotection spécialement liées à la contamination interne</p>	
<p>Dose équivalente engagée: La dose équivalente engagée $H_r(\tau)$ est l'intégrale dans le temps du débit de dose équivalente dans un tissu ou organe particulier, où τ est le temps d'intégration en années, de 50 ans pour les adultes et de l'incorporation à l'âge de 70 ans pour les enfants.</p>	<p>sievert</p>
<p>Dose efficace engagée: la dose efficace engagée est la somme des doses équivalentes engagées où τ est le temps d'intégration en années, de 50 ans pour les adultes et de l'incorporation à l'âge de 70 ans pour les enfants.</p>	<p>sievert</p>
<p>Limite Annuelle d'Incorporation (LAI): Pour un radionucléide donné, c'est l'activité incorporée en un an conduisant à la dose efficace engagée de 20 mSv.</p>	<p>becquerel. La LAI n'est plus donnée dans les publications de la CIPR les plus récentes (67, 68, 69 et 74). Sont données les Doses Par Unité d'Incorporation (DPUi) que le législateur peut transformer en LAI en faisant le rapport avec la limite de 20 mSv. Cette modification dans l'expression des facteurs de doses est faite pour rappeler qu'une LAI peut être spécifique à une pratique si le calcul des DPUi a conduit pour ces pratiques spécifiques à des valeurs différentes de celles données par défaut par la CIPR. Il appartient aux autorités nationales de valider le mode d'établissement de ces LAIs spécifiques.</p>

Limite dérivée de concentration d'un radionucléide dans l'air (LDCA): C'est la concentration moyenne annuelle dans l'air inhalé qui pour 2000 heures de travail par an, entraîne une incorporation égale à la LAI	Bq/m ³
---	-------------------

¹ Les facteurs de pondération tissulaires sont donnés dans le textes. Pour des raisons de calcul, les "autres tissus ou organes" comprennent la glande surrénale, le cerveau, l'intestin grêle, les reins, les muscles, le pancréas, la rate, le thymus, et l'utérus.

Si dans un cas exceptionnel où un seul des tissus ou organes de la rubrique "Autres organes" reçoit une dose équivalente supérieure à la dose la plus élevée dans n'importe lequel des douze organes pour lesquels un facteur de pondération est précisé, un facteur de pondération de 0,025 est appliqué à ce tissu où à cet organe et un facteur de pondération de 0,025 est appliqué à la dose moyenne dans le reste des "autres tissus ou organes".

Le caractère exceptionnel de cette déclaration est actuellement remis en cause, c'est pourquoi la CIPR a autorisé que pour les calculs suivant une irradiation externe, cette règle ne soit pas appliquée (Publication 71 de la CIPR). Son application demeure pour la contamination interne.



LES DIFFERENTS ASPECTS DU CYCLE ACTUEL, DE L'EXTRACTION DE L'URANIUM AU STOCKAGE DES DECHETS

J.P. SCHAPIRA

Institut de Physique Nucléaire, 91406 Orsay cedex

RESUME:

L'ensemble des opérations du cycle du combustible est décrit, dans le cadre de la filière à uranium enrichi et à eau pressurisée adoptée aujourd'hui en France. L'accent est mis sur la production de déchets et les flux de matières nucléaires aux diverses étapes du cycle, dans le cadre du retraitement et du recyclage du plutonium. Les données présentées sont normalisées à l'électricité produite par un réacteur du palier 900 MWé. On décrit, dans une deuxième partie, les politiques de gestion des combustibles usés en France et à l'étranger, fondées sur le retraitement et le monorecyclage du plutonium ou sur l'entreposage, suivi éventuellement du stockage définitif en l'état.

ABSTRACT:

The nuclear fuel cycle, related to the actual pressurized reactor used in France, is presented. Emphasis will be put on the amount of nuclear wastes produced and nuclear material fluxes at each step of the fuel cycle, in the framework of the reprocessing and plutonium recycling scheme adopted so far in France. These data will be normalized to the amount of electricity produced by one 900 MWe reactor. In a second part, spent fuel management and nuclear waste policies in France and other countries will be described and compared.

1. INTRODUCTION

Un certain nombre d'activités industrielles, médicales ou de recherche portent sur des matières contenant des corps radioactifs ou mettent en oeuvre des rayonnements nucléaires. Elles engendrent des déchets dits radioactifs, qui peuvent être sous forme gazeuse, liquide ou solide. L'Agence de l'énergie nucléaire de l'OCDE en a donné une définition, communément adoptée:

"Toute matière contenant des radionucléides en concentration supérieure aux valeurs que les autorités compétentes considèrent comme admissibles dans les matériaux propres à une utilisation sans contrôle et pour laquelle aucun usage n'est prévu".

Le terme déchet nucléaire est souvent employé pour désigner les déchets radioactifs engendrés par la mise en oeuvre de l'énergie de fission (ou de fusion) nucléaire (production d'énergie, armes nucléaires).

Cette définition renvoie à deux idées, celle de nocivité, qui nécessite un contrôle, et celle d'absence d'usage. Aussi, la notion de déchet est-elle essentiellement contingente. En effet, la nocivité est évidente dès lors que l'on a affaire à des matériaux très contaminés ou irradiants, comme le sont par exemple pratiquement tous les déchets issus des réacteurs nucléaires. Du côté des faibles et très faibles activités, la limite est plus difficile à établir, et dépend très largement du contexte socio-économique et de la perception des risques. C'est ainsi que, par mesure de précaution, des matériaux soupçonnés de contamination peuvent être considérés comme des déchets. Par ailleurs, la référence à un usage (ou à une valorisation) est également sujette à variation et renvoie à des critères essentiellement économiques qui tiennent compte, par exemple, de la situation énergétique. C'est le cas du plutonium qui est considéré comme une matière nucléaire précieuse dans un contexte de développement fort du nucléaire pouvant conduire à des risques de raréfaction de l'uranium, ou, au contraire, comme un simple déchet lorsque l'on envisage, comme c'est le cas aujourd'hui aux Etats-Unis ou en Suède, de le laisser dans les combustibles usés pour être stocké définitivement en couches géologiques profondes. En d'autres termes des matières nucléaires nocives, comme le plutonium ou l'uranium irradié, peuvent voir leur statut changer et devenir de fait des déchets. La

politique de gestion de ces matières provenant des combustibles usés déchargés des réacteurs nucléaires reflète dans une large mesure des choix énergétiques d'un pays, qui peuvent ainsi conditionner indirectement tout un pan de la politique des déchets nucléaires.

Le problème des déchets nucléaires est devenu aujourd'hui un enjeu très important : il en va, pour une large part, de la crédibilité des promoteurs et exploitants de l'énergie nucléaire, ainsi que des pouvoirs publics, et, au-delà, de la possibilité de poursuivre, voire entreprendre, un programme électronucléaire. La mise en oeuvre d'une politique de gestion des déchets nucléaires, rigoureuse, ouverte et débattue démocratiquement s'impose aujourd'hui aux décideurs. En France notamment, une loi, votée par le Parlement le 30 décembre 1991, stipule les conditions pour la mise en oeuvre d'une telle politique, et définit à cette occasion les trois axes autour desquels les recherches (séparation-transmutation, stockage profond, conditionnement et entreposage) devront être simultanément conduites en vue d'une décision à prendre en 2006 pour une gestion définitive des déchets de haute activité et à vie longue issus des réacteurs.

Un sondage récent, réalisé en France, montre que les déchets nucléaires sont considérés comme la première cause de risque pour l'environnement. La perception que le public a de la nocivité des déchets nucléaires ne saurait se réduire à la seule manifestation d'une peur irrationnelle, fondée sur l'ignorance de données scientifiques; elle résulte également de la connaissance diffuse, parfois déformée, de faits et situations réelles, notamment :

- la présence dans certains déchets de corps radioactifs hautement radiotoxiques et à vie très longue, qui nécessite un confinement par rapport à la biosphère pendant des durées dépassant largement celles des sociétés humaines et pouvant se chiffrer en milliers de siècles ;

- l'existence d'un passif résultant de pratiques anciennes, peu soucieuses de la préservation de l'environnement, qui laissent aujourd'hui quelques situations peu satisfaisantes. Citons la contamination de l'environnement par des rejets radioactifs et déchets de toute sorte, en provenance des programmes nucléaires militaires qui se mirent en place à l'époque de l'après guerre, essentiellement aux Etats-Unis et dans l'ex-Union Soviétique. Dans une moindre mesure, cela est également le cas de l'entreposage en vrac de déchets très irradiants à Marcoule et la Hague provenant du retraitement passé de combustibles de la filière graphite-gaz, et notamment des premiers réacteurs plutonigènes de Marcoule. Récemment, une controverse est apparue à propos de la fermeture de l'ancien Centre de Stockage de la Manche (CSM) dont le remplissage a débuté au début des années 60, à l'occasion du rapport de la Commission Turpin¹.

- plus généralement, le constat d'un certain déficit démocratique pour ce qui concerne l'information et les décisions dans le domaine nucléaire, alimentant une méfiance du public vis-à-vis des acteurs concernés par la production ou la gestion des déchets nucléaires, soupçonnés souvent de cultiver le secret en la matière

Cela étant, il convient de souligner que, tant que l'on raisonne sur des échelles de temps court, qui permet toujours un certain degré de réversibilité, la gestion des déchets nucléaires ne pose pas en principe de problèmes techniques insurmontables, et se présenterait même sous un jour plutôt favorable :

- contrairement au cas de la plupart des déchets industriels toxiques, les déchets nucléaires peuvent en effet être classés en un nombre limité de catégories bien définies, comme nous le verrons plus loin en détail ; mis à part les résidus de l'extraction de l'uranium, les quantités mises en jeu (environ 80 fois plus faibles que celles des déchets classés toxiques) occupent des volumes et des emprises au sol limités, même si certains d'entre eux présentent des nuisances bien plus importantes que celles des déchets industriels ; elles peuvent enfin être facilement corrélées à la production d'électricité d'origine nucléaire, et donc prévisibles ;

- les producteurs de déchets nucléaires (électriciens, industriels du cycle) sont également peu nombreux, identifiés et souvent dotés d'un statut public ou parapublic. L'exercice du contrôle technique de leurs activités devrait de ce fait être plus aisé que dans le cas d'une myriade de producteurs, dès lors que le principe de séparation des responsabilités est clairement appliqué entre producteurs, gestionnaires des déchets et autorités réglementaires ;

- les connaissances scientifiques et techniques concernant les déchets sont aujourd'hui très développées et font l'objet d'efforts importants au sein des organismes nationaux et internationaux en charge de ces problèmes, très supérieurs à ce qui est consenti dans d'autres secteurs industriels présentant également un

impact sur l'homme et l'environnement. Par exemple, les effets biologiques des rayonnements, étudiés depuis les années 20, font l'objet d'une mise à jour permanente de la part de la CIPR (Commission Internationale de Protection radiologique), qui recommande des normes de protection, généralement adoptées par les Etats.

Aussi devrait-il être possible de gérer techniquement les déchets, du moins sur le moyen terme, c'est à dire sur une durée pendant laquelle une organisation de la société devrait permettre une surveillance et l'application, le cas échéant, de mesures correctives. C'est le domaine typique de l'entreposage surveillé de longue durée, ou encore celui du stockage définitif en surface, comme celui qui a été récemment mis en activité à Soulaines dans l'Aube. Dans ce dernier cas, la sûreté à long-terme repose essentiellement sur une limitation de l'inventaire en corps à vie longue dans les fûts de déchets stockés, telle qu'une banalisation devient possible après une période de surveillance de 300 ans. La qualité d'une telle gestion repose pour l'essentiel sur la capacité politique d'appliquer effectivement les concepts techniques sur le terrain. On observe, malgré tout, des limites à cette qualité en raison des contraintes économiques.

En revanche, la gestion à long-terme des déchets nucléaires à vie longue pose des problèmes d'une autre dimension. On doit en effet apporter la preuve que l'on est capable de neutraliser l'action nocive de ces déchets durant des périodes de temps durant lesquelles on ne peut raisonnablement compter sur une surveillance institutionnelle. Ceci pose des problèmes majeurs à la fois scientifiques (matériaux, géologie), techniques et éthiques. Ces problèmes du long-terme apparaissent surtout pour les déchets hautement radioactifs et à vie longue produits dans les réacteurs, pour lesquels le stockage en couches géologiques profondes est partout envisagé dans le monde.

Nous allons tenter dans ce dossier d'identifier dans un premier temps les caractéristiques de production des déchets nucléaires et les options de gestion envisagées, en s'appuyant sur celles mises en oeuvre en France, puis dans un deuxième temps de décrire des données géopolitiques relatives aux principaux pays concernés par ce problème.

2. PRODUCTION ET GESTION DES MATIERES NUCLEAIRES ET DES DECHETS EN AMONT DU REACTEUR

2.1. Généralités et risque liés aux déchets

Pour fonctionner, un réacteur nucléaire utilise un combustible qui contient la matière fissile nécessaire à l'entretien des réactions en chaîne. La fabrication d'un tel combustible n'est pas triviale et nécessite la mise en oeuvre de toute une série d'opérations industrielles en amont du réacteur. D'autre part, la gestion des mêmes combustibles, une fois irradiés pendant un temps de séjour plus ou moins long en réacteur, implique, en aval du réacteur, une autre série d'opérations industrielles.

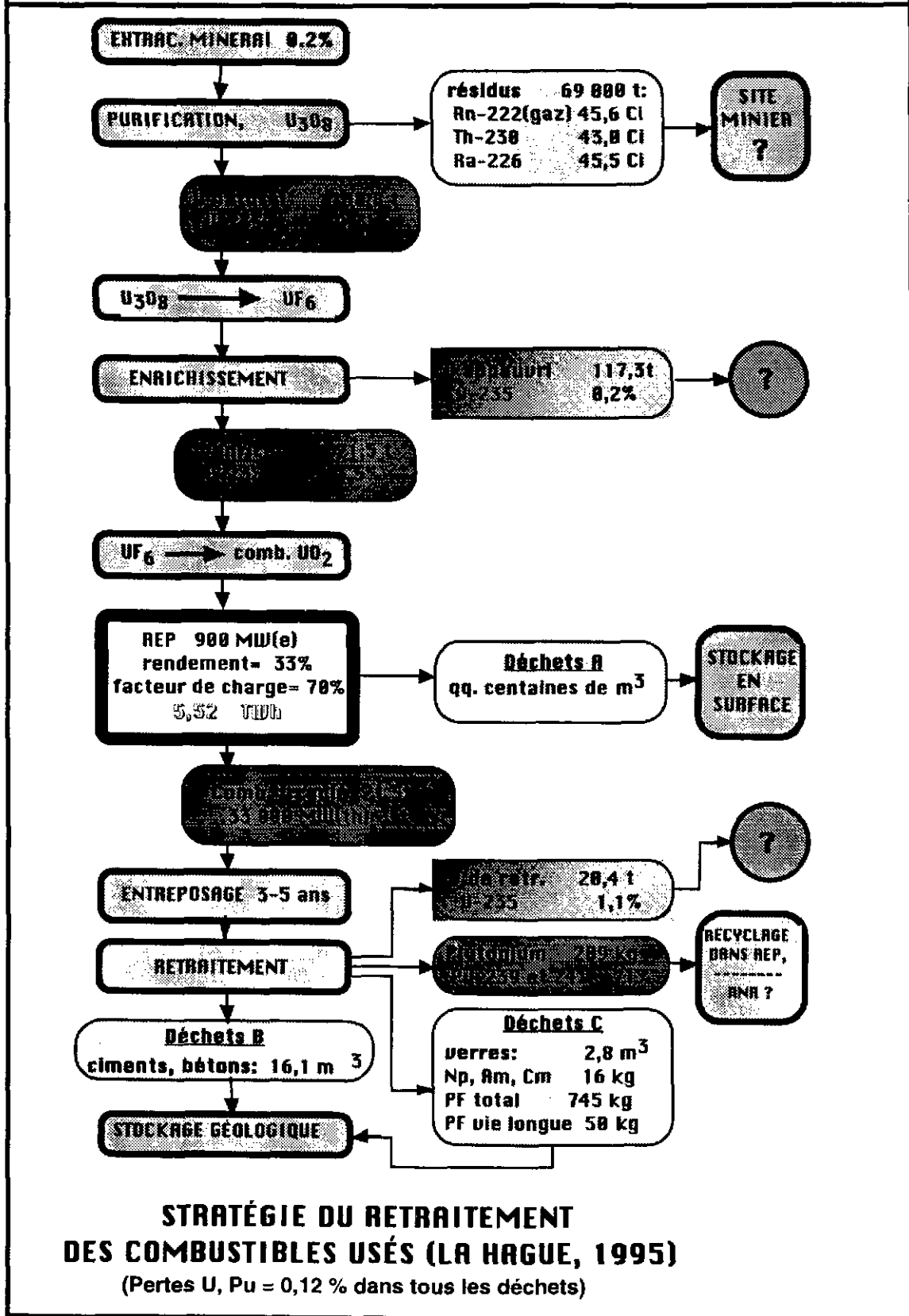
La mise en oeuvre de l'ensemble de ces opérations est complexe. Elle porte sur les matières nucléaires nécessaires à la fabrication des combustibles et s'accompagne d'une production de déchets et de nouvelles matières nucléaires, en principe utilisables.

Il est naturel de comparer les flux de matières nucléaires et de déchets au service rendu, ce qui peut être fait en les normalisant à la production d'électricité. Cette normalisation dépend évidemment des caractéristiques de la filière utilisée (type de réacteur et de combustible), du cycle associé, ainsi que des performances des diverses opérations (notamment taux d'irradiation en réacteur, durée des entreposages intermédiaires, facteur de décontamination des divers déchets produits). Compte tenu de ce que la filière à eau est la plus répandue au plan mondial, et notamment en France, on prendra comme cas de référence:

celui d'un réacteur à eau pressurisée REP de 900 MWé du parc E.D.F. qui fonctionnerait avec un facteur de charge de 70%, produisant donc 5,52 milliard de kWhé (ou 5,52 TWhé) par an.

Le tableau I résume la succession des opérations de la mine au stockage et indique les flux de déchets et matières nucléaires associés au fonctionnement annuel d'un tel réacteur, dans le cas de référence retenu en France, qui est celui du retraitement tel qu'il est pratiqué aujourd'hui à l'usine de la Hague.

Tableau 1: Les diverses opérations du cycle fermé



**STRATÉGIE DU RETRAITEMENT
DES COMBUSTIBLES USÉS (LA HAGUE, 1995)**

(Pertes U, Pu = 0,12 % dans tous les déchets)

Les flux de matières ne suffisent pas pour caractériser les risques que peuvent présenter les déchets ou les matières nucléaires. Ces risques peuvent être de nature différente:

- risques liés aux effets biologiques des rayonnements qu'émettent les corps radioactifs contenus dans ces matières - c'est le risque radiologique;

- risques liés aux effets biologiques ou physiques (par exemple explosion) liés à la nature chimique de certains corps contenus dans ces matières - c'est le risque chimique;

- risques liés à certaines propriétés physiques, dont la plus importante est la chaleur que dégagent par exemple les déchets de haute activité ou encore, dans certaines conditions de mélange isotopique, le plutonium.

Tous les déchets produits par le cycle électronucléaire ne présentent pas les mêmes risques. On a été amené à les classer en fonction de deux critères principaux: le niveau d'activité, essentiellement β, γ , et la teneur en corps à vie longue, émetteurs α . C'est ainsi que l'on classe les déchets radioactifs en trois grandes catégories A, B et C, une quatrième, aujourd'hui à l'étude, se réfère aux grandes quantités, mais à vie longue (résidus miniers, certains déchets de démantèlement). Cette classification figure au tableau 2.

CATEGORIE A	Déchets de faible et moyenne activité ne renfermant que les émetteurs β, γ à vie courte et moyenne (< 30 ans) et $\alpha < 0,01$ Ci/tonne
CATEGORIE B	Déchets de faible et moyenne activité renfermant des émetteurs de longue période $\alpha > 0,01$ Ci/tonne
CATEGORIE C	Déchets de haute activité renfermant des quantités importantes de produits de fission, d'activation et d'actinides, et générant souvent une énergie thermique notable (déchets vitrifiés, combustibles irradiés non retraités)
CATEGORIE TFA	Déchets de très faible activité α , mais à vie longue (résidus miniers et certains déchets de démantèlement)

Dans ce dossier nous nous référons au risque radiologique, que l'on peut appréhender à l'aide de deux indicateurs :

- le risque potentiel, qui est celui encouru par l'incorporation d'une quantité donnée de radionucléides. On l'exprime aujourd'hui à l'aide du facteur de dose par ingestion ou inhalation, associé à un radionucléide donné. Il mesure la dose engagée sur 50 ans suite à l'incorporation d'un becquerel de ce radionucléide et s'exprime en sievert/becquerel (Sv/Bq) (voir la contribution de M. Métivier). La radiotoxicité d'un produit donné, qui est la somme pondérée des facteurs de dose de ses constituants, varie avec le temps, en raison de la décroissance radioactive.

- le risque résiduel (ou réel) qui est celui effectivement encouru lorsque des mesures de protection sont adoptées pour éviter (ou réduire au maximum) le contact entre l'homme et les déchets. C'est le cas du

stockage géologique profond, dont les barrières jouent un rôle de rétention et de retard à la migration des radionucléides contenus dans les déchets stockés. Comme la radiotoxicité, le risque résiduel varie avec le temps, non seulement en raison de la décroissance radioactive mais également de la cinétique des phénomènes de migration.

Il existe en amont du réacteur essentiellement deux opérations de transformation de matières nucléaires qui sont génératrices de déchets:

- la production de l'uranium naturel au niveau de la mine;
- l'enrichissement isotopique

2.2. La production de l'uranium naturel au niveau de la mine

Dès le début de l'ère nucléaire, l'uranium a été choisi comme combustible de base des réacteurs nucléaires, car il est le seul élément chimique possédant un isotope fissile à l'état naturel. Cet isotope, ^{235}U , se trouve dans la nature à un faible teneur de 0,71%, l'autre isotope ^{238}U étant donc le plus abondant. Cet isotope joue également un rôle dans les réacteurs, car il est fertile, c'est à dire susceptible de se transformer, sous irradiation neutronique à l'intérieur d'un réacteur, en l'isotope fissile ^{239}Pu d'un élément chimique artificiel, le plutonium.

L'uranium est l'élément naturel le plus lourd et se trouve répandu dans la croûte terrestre à une teneur en masse de 3 à 4 ppm (parties par millions). Il apparaît dans plus de 150 minerais, que l'on peut classer en deux grandes catégories: les espèces réduites à la valence IV (par exemple pechblende, uraninite, silicates) et les espèces oxydées à la valence VI (par exemple les phosphates comme les monazites)². Il s'ensuit des teneurs très variables, les espèces à la valence IV possédant les teneurs les plus élevées, mais étant aussi plus rares.

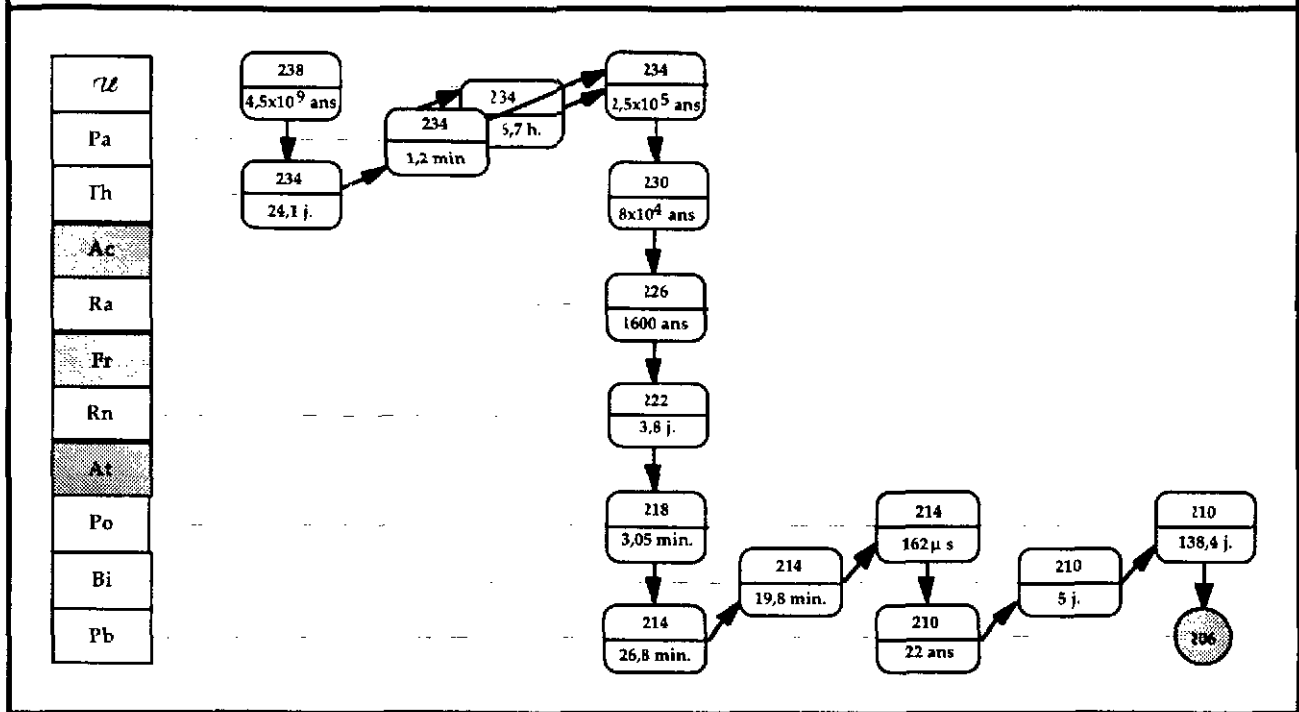
Les ressources connues, à un coût d'extraction inférieur à 130 \$/kg, sont à ce jour de l'ordre de 5 millions de tonnes (ressources raisonnablement assurées et ressources supplémentaires estimées). Ces ressources sont classés en minerais dits riches (2000 à 5000 ppm), minerais dits pauvres (200 à 1000 ppm) et minerais exceptionnels (au delà du %) dont les gisements découverts récemment au Canada (Cigar Lake, 135 000 tonnes à 8%). A part ces minerais, exploités aujourd'hui, il y a des ressources de mêmes teneurs, dites spéculatives (entre 7 et 15 millions de tonnes) résultant d'extrapolation géologique. On connaît enfin d'autres ressources à des teneurs nettement plus faibles, telles que les phosphates (10 à 150 ppm), certains charbons (10 à 100 ppm), les schistes bitumineux (60-80 ppm), les résidus de l'exploitation des monazites (15 à 50 ppm), les boues noires des fonds de mer (< 20 ppm) et, enfin, un réservoir de l'ordre de 4,5 milliard de tonnes représenté par l'eau de mer (de l'ordre de $3 \cdot 10^{-3}$ ppm). Rappelons pour mémoire que la consommation annuelle mondiale d'uranium naturel est actuellement comprise entre 50 000 et 60 000 tonnes.

Dans le cas courant de l'extraction de l'uranium d'un minerai dit riche, celui-ci, une fois concassé et broyé, est attaqué, dans la plupart des usines, à l'acide sulfurique en vue de solubiliser préférentiellement l'uranium. La solution uranifère qui en résulte (de l'ordre de quelques centaines de mg d'uranium par litre) est ensuite concentrée à une teneur en uranium de l'ordre de 70% et conduit à ce que l'on appelle le "yellow cake" destiné aux usines de raffinage et de conversion de l'uranium. L'uranium non extrait (quelques %) et la totalité des descendants se retrouvent dans les résidus solides de cette solubilisation du minerai d'uranium et du traitement des effluents liquides; stockés sur place, ils représentent les premiers déchets nucléaires du cycle du combustible. Citons également le cas de minerais dits pauvres (entre 0,02 et 0,1 % en uranium) qui sont directement lixivés en tas par l'acide sulfurique qui se charge en uranium; le minerai, après lixiviation, constitue le déchet, appelé "résidu de lixiviation".

Rappelons que l'uranium est en équilibre séculaire dans le minerai avec ses descendants (voir tableau 3), et que cet équilibre est rompu au cours de l'extraction sélective de l'uranium, portant sur les trois isotopes 238, 234, appartenant à la série $4n+2$, et 235 à la série $4n+3$. L'isotope 238 étant le plus abondant (99,3

%), la décroissance de la radioactivité des résidus est gouvernée par la période de 77 000 ans du ^{230}Th qui devient la tête de la série $4n$ dans les résidus.

Tableau 3: Les descendants de ^{238}U (famille $4n+2$)



Par ailleurs, dans une tonne d'uranium, l'activité de ^{238}U représente 0,336 Curies; il en résulte que l'activité par émission alpha des descendants de ^{238}U correspondant à l'extraction d'une tonne d'uranium est 6 fois plus importante, soit de l'ordre de 2 Curies (en supposant négligeable l'exhalation du radon, ^{222}Rn). Cette activité se retrouve dans les résidus d'extraction de l'uranium. A titre d'exemple, la mine d'uranium de l'Ecarpière a produit, si l'on écarte les 1500 tonnes produits par lixiviation statique, près de 13 500 tonnes d'uranium de 1957 à 1991, qui ont généré environ 7,6 millions de tonnes de résidus (source: Inventaire National des Déchets Radioactifs, ANDRA, 1996), contenant en moyenne une activité alpha de 27 000 Curies maximum (en supposant que le radon est maintenu sur place). Ce chiffre correspond à une activité spécifique moyenne de 3,5 mCi par tonne, soit dix fois moins que celle des déchets de faible activité stockable en surface. Ce chiffre tombe à 1 mCi par tonne, si l'on ne considère que la présence de ^{230}Th et ^{226}Ra , ascendants de ^{222}Rn (exhalation totale du radon).

En conclusion, les déchets liés à l'extraction de l'uranium sont caractérisés par:

- des volumes très importants, liés à la faible teneur des minerais (ils représentent actuellement environ 50 millions de tonnes en France);
- une très longue durée de vie (celle du ^{230}Th);
- et donc par une très faible activité spécifique.

Le principal risque radiologique est lié à l'exhalation permanente du gaz Radon (^{222}Rn) dont les descendants peuvent être fixés dans les poumons suite à son inhalation (risques aux mineurs et, le cas échéant, à des personnes du public). Il existe également un risque dû au transport du radium par l'eau. Dans la nouvelle classification proposée par la DSIN (Direction de la Sécurité des Installations Nucléaires), ces déchets appartiennent à ceux de très faible activité et à vie longue, pour lesquels un mode de gestion adapté aux caractéristiques de ces déchets (volumes importants, radon) consiste essentiellement à surveiller, stabiliser le site et à le recouvrir avec un matériau de faible perméabilité (argile par exemple) et suffisamment

épais (environ 1 mètre) pour stopper les émanations de radon . Le risque résiduel qui en résulterait peut être estimé à partir de scénarios plausibles d'évolution physique du site et d'intrusion humaine. L'impact de tels scénarios pourrait, selon des premières estimations effectuées à l'Institut de Protection et de Sécurité Nucléaire, dépasser limite 1 mSv par an, recommandée dans la CIPR-60 pour le public. Une telle valeur est à comparer aux impacts long terme, apparemment plus faibles, des autres activités du cycle nucléaire sur le public.

Le concentré d'uranium est successivement transformé en dioxyde d'uranium puis fluoré pour l'étape importante de l'enrichissement de l'uranium.

2.3. L'enrichissement isotopique de l'uranium

Le fonctionnement des réacteurs à eau nécessite un combustible d'oxyde d'uranium, enrichi en son isotope 235, entre 3 et 5 % selon le taux d'irradiation que l'on veut atteindre. Ainsi, dans le cas de référence considéré ici, un enrichissement de 3,5 % est nécessaire pour atteindre un taux de combustion de 33 000 MWjt.

Il existe à ce jour deux procédés d'enrichissement utilisés industriellement au plan mondial : la diffusion gazeuse et l'ultracentrifugation, la première étant la plus importante, comme l'indique le tableau 4. C'est en France sur le site de Tricastin que fonctionne la plus importante usine d'enrichissement par diffusion gazeuse, et nous ne considérerons ici que ce procédé.

Tableau 4: Les principales usines d'enrichissement en fonctionnement dans le monde ³

Pays	Site	Exploitant	Procédé	Capacité [million UTS]
France	Tricastin	Eurodif	diffusion gazeuse	10,8
Etats-Unis	Paducah	DOE	diffusion gazeuse	11,3
	Portsmouth	DOE	diffusion gazeuse	7,9
Russie	Sibérie		diffusion gazeuse ultracentrifugation	> 10
Royaume-Uni	Capenhurst	Urenco	ultracentrifugation	1,0
Pays-Bas	Almelo	Urenco	ultracentrifugation	1,0
Japon	Rokashomura	JNFI	ultracentrifugation	1,5

Du point de vue des déchets, une usine d'enrichissement peut rejeter de faibles quantités de produits chimiques intervenant dans le procédé. A ce stade il n'y a cependant pas de production de déchets nucléaires, si ce n'est indirectement ceux liés à l'importante consommation d'énergie électrique, lorsque celle-ci est d'origine nucléaire, comme c'est le cas sur le site de Tricastin. En revanche la plus grosse partie de l'uranium naturel entrant dans une telle usine sous forme d'hexafluorure d'uranium, se retrouve sous forme d'uranium appauvri en ²³⁵U. Cet uranium dit "de rejet" peut être réutilisé comme support dans des combustibles chargés en plutonium (cas des combustibles MOX) ou comme matière fertile placée dans les couvertures des surgénérateurs. Mais aujourd'hui, ces usages ne concernent que quelques pour-cent de la totalité de l'uranium de rejet, qui est "de facto" considéré comme une matière nucléaire en attente de valorisation ou de transformation à terme en déchet de très faible activité, mais à vie très longue ; on doit

dans cette dernière hypothèse tenir compte de cet uranium, comme d'ailleurs des résidus miniers, dans le bilan de radiotoxicité à très long terme, associé à la production électronucléaire.

La quantité d'uranium appauvri associée à celle d'uranium enrichi utilisé dans un réacteur se déduit aisément de relations de conservation entre la masse d'uranium naturel (M_n) et la somme des masses d'uranium enrichi (M_e) et appauvri (M_a), ainsi qu'entre les masses de ^{235}U en entrée et sortie de l'usine. Désignant respectivement par e et a les pourcentages isotopiques de ^{235}U respectivement dans l'uranium enrichi et appauvri, on obtient les deux relations de conservation suivantes:

$$M_n = M_e + M_a \quad (1.a)$$

$$0,711 M_n = e M_e + a M_a \quad (1.b)$$

On en déduit aisément le rapport R entre la masse d'uranium appauvri et la masse d'uranium enrichi, soit:

$$R = (e - 0,711) / (0,711 - a) \quad (2)$$

Le choix du taux de rejet a dépend d'une optimisation économique entre le coût de l'uranium naturel (après conversion en UF_6) et le coût de l'enrichissement. Le premier est directement proportionnel à M_n et augmente avec le taux de rejet a , comme l'indique les équations 1.a et 1.b. En revanche, le coût de l'enrichissement est d'autant plus faible que a est élevé. Ce coût dépend essentiellement de l'énergie électrique dépensée dans la cascade d'enrichissement, et on démontre que, pour une cascade optimisée, cette énergie est proportionnelle à une quantité U , appelée UTS (Unité de Travail de Séparation), qui s'exprime en fonction des masses et enrichissements mis en jeu, par l'expression suivante, où les masses sont exprimées en kg:

$$U = M_e V(e) + M_a V(a) - M_n V(0,711) \quad (3)$$

où la fonction $V(x)$ est définie par:

$$V(x) = (1 - 0,02 x) \text{Log}(100/x - 1) \quad (4)$$

L'optimisation actuelle, compte tenu du prix de l'uranium naturel, conduit à adopter dans les usines d'enrichissement un taux de rejet de l'ordre de 0,2 %. Dans ces conditions, on rejettera 5,458 tonnes d'uranium appauvri pour produire 1 tonne d'uranium enrichi à 3,5 %, et dépensera 5415 UTS. On voit que le fonctionnement annuel d'un réacteur nécessite environ 100 000 UTS, soit environ 0,24 milliard de kWh d'énergie électrique, sachant que l'on dépense environ 2400 kWh par UTS ⁴ Cette énergie représente une fraction de l'ordre de 4 % de l'énergie fournie par le réacteur et induit une augmentation globale de 4% des déchets produits dans le cycle, normalisés à l'énergie nette produite. Ceci peut être considéré comme négligeable. A cet égard, le procédé par ultracentrifugation est beaucoup plus économe en électricité.

L'impact de l'enrichissement sur les déchets peut à terme provenir de l'uranium appauvri, qui représente des quantités 5 à 6 fois plus importantes que celles d'uranium enrichi utilisé dans les réacteurs. A cela s'ajoute, pour le procédé par diffusion gazeuse, 4% environ des déchets associés en amont et en aval au fonctionnement des réacteurs que l'on alimente.

L'uranium enrichi sortant de l'usine d'enrichissement sous forme de UF_6 est transformé en dioxyde d'uranium qui constitue le combustible des réacteurs à eau.

3. PRODUCTION ET GESTION DES MATIERES NUCLEAIRES ET DES DECHETS EN AVAL DU REACTEUR

3.1. Les déchets et matières nucléaires produits par les réacteurs

Environ 21,5 tonnes de combustibles enrichi à 3,5 %, sont chargés chaque année dans le réacteur de référence (voir tableau 1). Celui-ci voit sa composition fortement modifiée suite à l'irradiation en réacteur qui dure 3 ans et s'arrête lorsque le taux de combustion a atteint 33 000 MWj/t. C'est dans le combustible usé, que l'on décharge alors du réacteur, que se trouve la quasi-totalité de la radioactivité engendrée dans le cycle. Par ailleurs, une centaine de m³ de déchets de faible activité et ne contenant en principe pas de corps à vie longue sont produits par le réacteur (résines échangeuses d'ions, vannes, pièces mécaniques défectueuses, vêtements etc.). Le volume de ces déchets dits de catégorie A (peu actifs, faibles teneurs en corps à vie longue) tend aujourd'hui à diminuer. Ils sont destinés, en France, au centre de stockage en surface de Soulaïnes dans l'Aube.

Deux catégories de corps radioactifs, formés lors de l'irradiation, sont présents dans les combustibles usés au déchargement:

- les résidus de la fission, désignés improprement sous le nom de produits de fission (PF). Ils proviennent de la fission de l'uranium, puis du plutonium qui s'est formé. Leur masse totale est égale (à l'équivalent en masse de l'énergie de fission près) à la variation de masse des corps lourds durant l'irradiation. Cette masse peut également être calculée à partir de l'énergie produite, sachant qu'une fission libère 200 MeV environ, ce qui correspond à 46 kg de corps fissionnés par TWh thermique produit. Les PF se répartissent selon un spectre de masse allant de A=80 à A=150. Au bout de 3 ans de refroidissement, les PF présents dans le combustible sont pour la plupart des résidus stables, des PF à vie moyenne (PFVM), ¹³⁷Cs et ⁹⁰Sr d'environ 30 ans de période, et enfin des PF à vie très longue (PFVL), qui peuvent avoir un impact radiologique dans les stockages de déchets. Ce spectre dépend de la nature du noyau fissile (décalage en A des courbes de fission), du spectre en énergie des neutrons (degré d'asymétrie des courbes de fission) et du taux de combustion (transmutation interne et partielle de certains produits de fission à forte section efficace de capture). Les caractéristiques de spectre de PF sont données par isotope au tableau 6, dans le cas de la filière REP 900.

- les noyaux lourds formés par capture successive de neutrons à partir des isotopes 235 et 238 de l'uranium, et, dans une moindre mesure, par des réactions (n,2n), suivies, le cas échéant, par des désintégrations β⁻ (tableau 5). Ils sont classés en deux catégories:

- les actinides *majeurs*: uranium (U) et plutonium (Pu)
- les actinides *mineurs*: neptunium (Np), américium (Am) et curium (Cm).

Cette distinction entre actinides se justifie par les quantités bien plus importantes pour les actinides majeurs et le caractère fissile de certains de leurs isotopes (d'où la possibilité de les utiliser comme combustible nucléaire), alors que les actinides mineurs sont toujours considérés comme des déchets. Evidemment, comme ceci a été souligné plus haut, l'absence de valorisation économique des actinides majeurs peuvent conduire à les considérer comme des déchets, ou du moins comme des matières dont le statut est en attente de définition (voir §3.2).

Tableau 5: Chaîne de formation des noyaux lourds dans le cas des filières uranium-plutonium ⁵

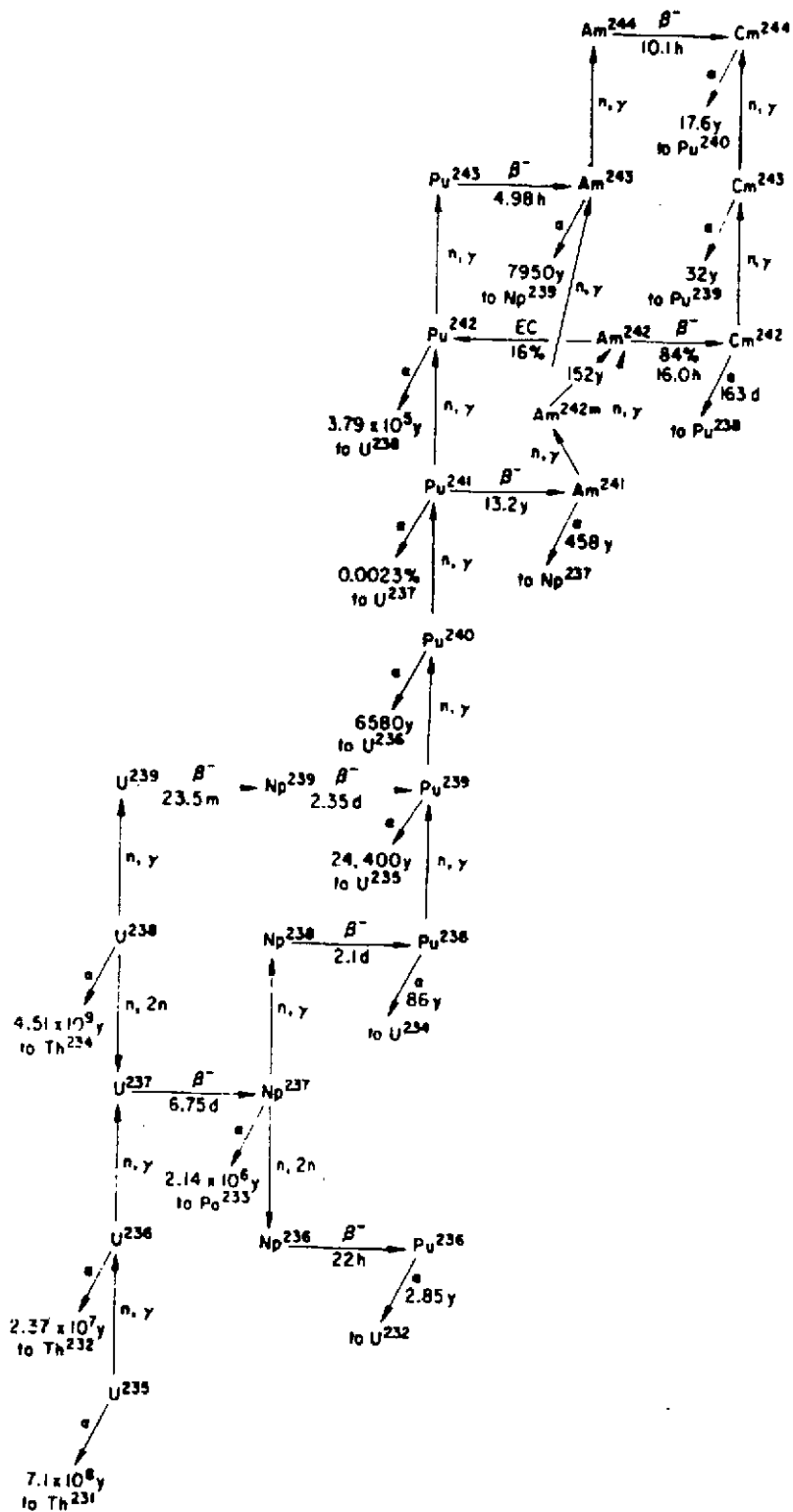


Tableau 6: Inventaire des matières au chargement et déchargement du réacteur⁶
Cas d'un REP 900, à un taux de combustion de 33 000 MWj/t et à 3,5 % d'enrichissement

RADIONUCLEIDES:	Période (année)	-----Chargement -----		---Déchargement a)-----	
		(kg/TWhé)	(kg/an) ^{b)}	(kg/TWhé)	(kg/an) ^{b)}
Uranium					
²³⁵ U	7,08 10 ⁸	136(3,5 %)	751	40 (1,1 %)	221
²³⁶ U	2,34 10 ⁷	/	/	16	88
²³⁸ U	4,47 10 ⁹	3757	20734	3661	20204
<i>Total Uranium:</i>		3893	<u>21485</u>	3717	<u>20425</u>
Plutonium					
²³⁸ Pu	87,7			0,6	3,3
²³⁹ Pu	24119			22,3	123,1
²⁴⁰ Pu	6569			8,6	47,5
²⁴¹ Pu	14,4			4,6	25,4
²⁴² Pu	3,7 10 ⁵			1,9	10,5
<i>Total Plutonium:</i>				38,0	<u>209</u>
Actinides mineurs					
²³⁷ Np	2,14 10 ⁶			1,6	8,8
²⁴¹ Am	432,2			0,8	4,4
²⁴³ Am	7380			0,4	2,2
²⁴³ Cm	28,5			=0	=0
²⁴⁴ Cm	18,1			0,09	0,5
²⁴⁵ Cm	8500			0,01	0,06
<i>Total actinides mineurs:</i>				2,9	<u>16,0</u>
PFVM^{c)}					
⁹⁰ Sr	28			1,9	10,5
¹³⁷ Cs	30			4,4	24,3
<i>Total PFVM:</i>				6,3	<u>34,8</u>
PFVL^{c)}					
⁷⁹ Se	70 000			0,02	0,11
⁹³ Zr	1.5 10 ⁶			2,8	15,5
⁹⁹ Tc	2.1 10 ⁵			3,2	17,7
¹⁰⁷ Pd	6.5 10 ⁶			0,8	4,4
¹²⁶ Sn	10 ⁵			0,08	0,44
¹²⁹ I	1.57 10 ⁷			0,7	3,9
¹³⁵ Cs	2 10 ⁶			1,4	7,7
¹⁵¹ Sm	93			0,06	0,33
<i>Total PFVL:</i>				9,1	<u>50,0</u>
<i>Total PF:</i>				135	<u>745</u>

a) l'inventaire au déchargement est celui à 3 ans après le déchargement du réacteur
b) on a supposé un facteur de charge de 70 %, soit une production de 5,52 TWhé/an.
c) PFVM: principaux produits de fission à vie moyenne (≤ 30 ans) à 3 ans de refroidissement;
PFVL: produits de fission à vie longue (≥30 ans).

3.2. Les options de gestion des combustibles usés

Au moment de leur déchargement, les combustibles usés dégagent une importante quantité de chaleur et émettent un intense rayonnement β et γ . Aussi doit-on d'abord les laisser refroidir en piscine, pendant une période pouvant s'étendre sur plusieurs années (3 à 5 ans dans la pratique). Après une telle période de refroidissement, deux modes de gestion des combustibles irradiés sont actuellement envisagés au plan mondial.

Le premier consiste à retraiter (voir tableau 1 et §3.3) ces combustibles de manière à récupérer l'uranium et le plutonium qui représentent 96% de la masse du combustible usé, les 3 % restants étant conditionnés sous forme de colis de déchets destinés, pour la plupart, au stockage en profondeur. La voie du retraitement, mise en oeuvre actuellement en France (La Hague), Royaume-Uni (Sellafields), Japon (Tokai-Mura, Rokasho) et en Russie, vise à recycler l'uranium et le plutonium ou à utiliser ce dernier comme combustible de base des futurs surgénérateurs. Elle s'inscrit donc dans une perspective de développement du nucléaire, avec une utilisation spécifique du plutonium.

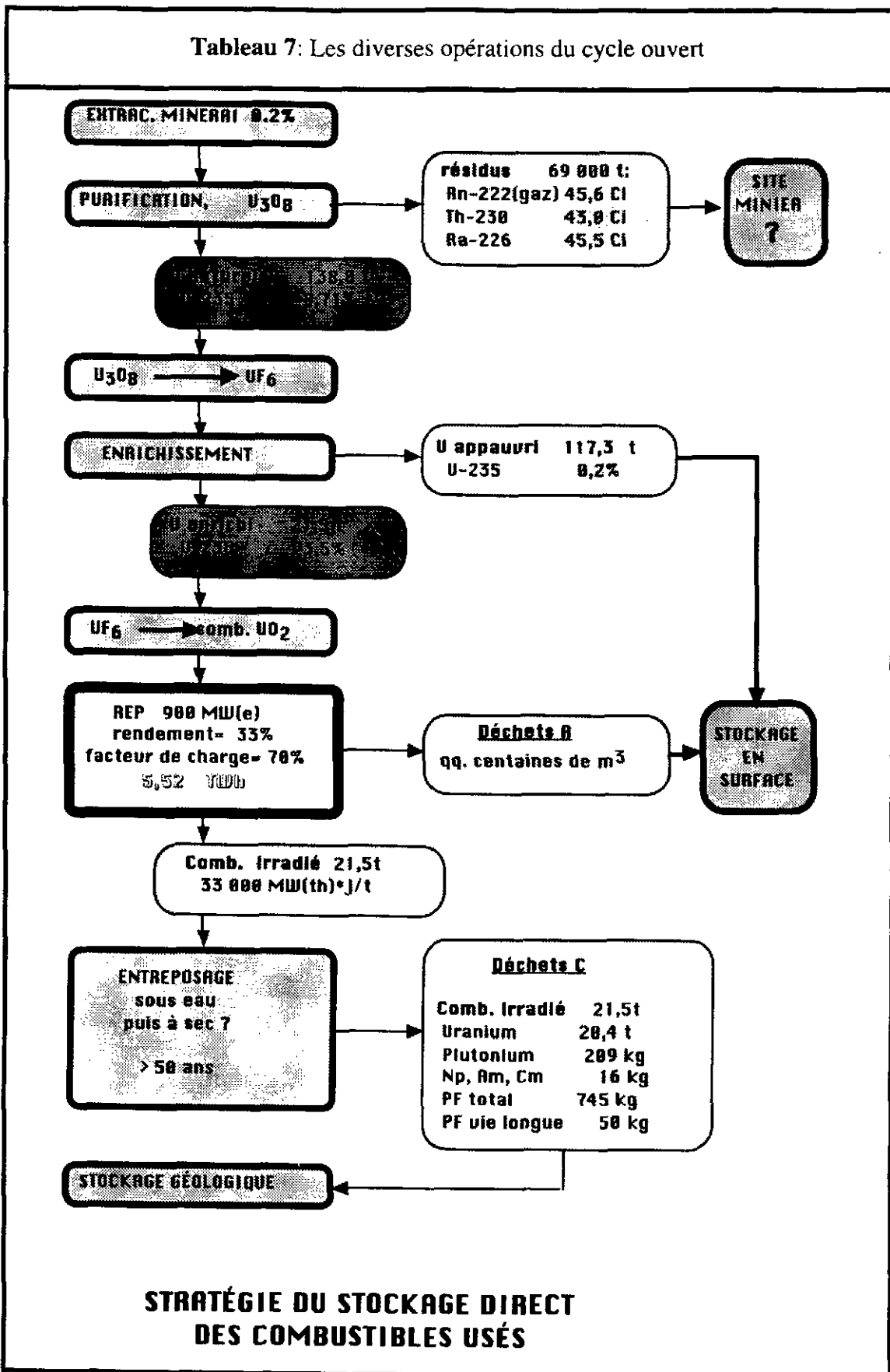
Le deuxième mode de gestion, au contraire, consiste à ne pas retraiter les combustibles usés et à les stocker définitivement en couches géologiques profondes, après une période prolongée (une cinquantaine d'années environ) d'entreposage sous eau, voire ensuite à sec (voir tableau 7). Cette voie est suivie notamment aux Etats-Unis, au Canada et en Suède, et correspond soit à une politique d'attente, soit à un recours limité au nucléaire. Dans ce cas, le plutonium et l'uranium sont considérés comme des déchets et demeurent avec l'ensemble des produits de fission et actinides mineurs dans les combustibles usés. Ceux-ci constituent dans cette stratégie les déchets ultimes.

Du point de vue du risque potentiel le plutonium domine à long terme la radiotoxicité des combustibles usés, après que les produits de fission ^{90}Sr et ^{137}Cs aient décré (voir figure 1). Aussi, la stratégie du retraitement, dans la mesure où le plutonium extrait est effectivement utilisé, conduit-elle à terme à un risque potentiel plus faible que celui du stockage direct. L'importance de cette réduction dépend du mode d'utilisation du plutonium (recyclage dans les réacteurs à eau, incinération ou surrégénération dans les réacteurs à neutrons rapides).

S'agissant du risque résiduel, la comparaison entre les deux stratégies est plus difficile à mener; elle fait intervenir en effet les performances comparées des verres et des combustibles usés, le surconteneurage éventuel, la migration du plutonium et des autres corps à vie longue (notamment certains PF qui peuvent être solubles) dans le stockage etc.... Toutefois l'ensemble des calculs de migration montrent que le risque résiduel, en scénario d'évolution normale, reste dominé par deux PFVL (^{135}Cs , ^{129}I), dont l'impact radiologique éventuel ne se manifesterait en tout état de cause qu'au delà de plusieurs centaines de milliers d'années (voir l'exercice EVEREST de la CE). A cet égard, les deux stratégies devraient donc présenter des risques résiduels équivalents. Il n'en est pas de même cependant pour certains scénarios accidentels, tels que l'intrusion humaine dans un stockage profond dont on aurait perdu la mémoire, dont les conséquences radiologiques peuvent dépendre directement de l'inventaire présent dans le stockage.

Il existe évidemment une stratégie de gestion des combustibles qui s'appuie sur le retraitement d'une partie des combustibles usés, l'autre partie étant entreposée en attente de décisions futures. Cette stratégie mixte résulte de la prise en compte de données industrielles (par exemple les capacités de recyclage du plutonium) et du contexte énergétique (par exemple la disponibilité de l'uranium et de l'enrichissement à des coûts faibles). C'est le cas de la France aujourd'hui, comme on le verra plus loin (§3.4). En nous focalisant sur la situation présente, on décrira le retraitement et le recyclage du plutonium dans les réacteurs à eau.

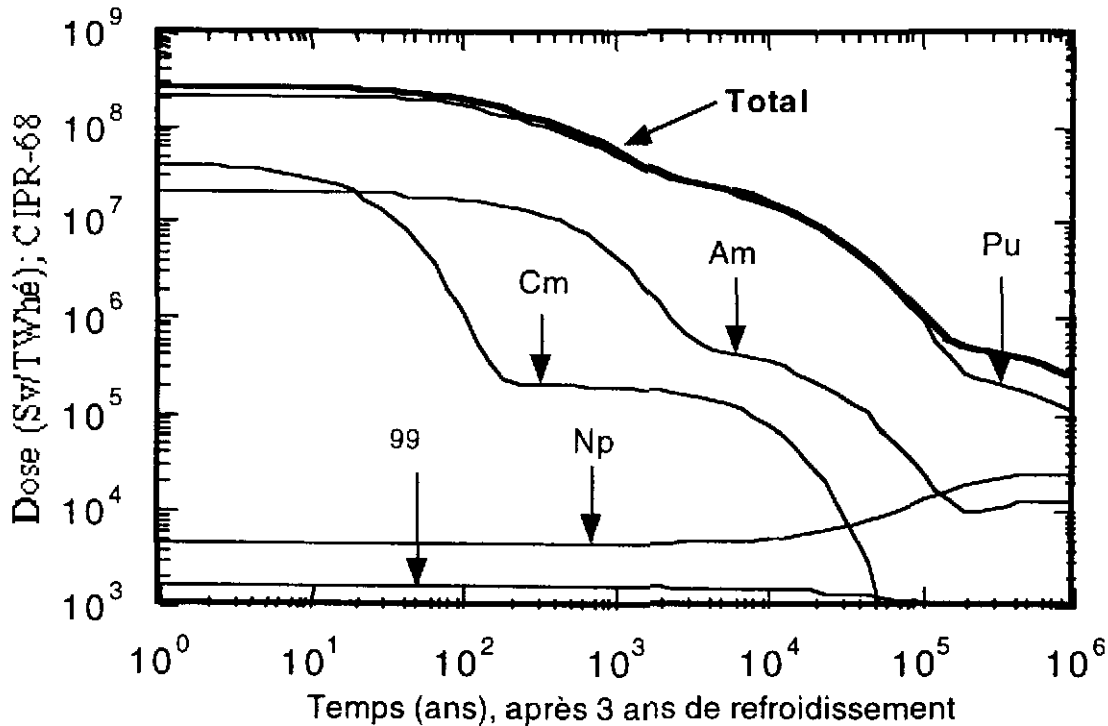
Tableau 7: Les diverses opérations du cycle ouvert



STRATÉGIE DU STOCKAGE DIRECT DES COMBUSTIBLES USÉS

Figure 1 (référence 6)

Combustible irradié à 33000 MWj/t Contribution de l'inventaire initial au risque potentiel (par ingestion)



3.3. Le retraitement des combustibles usés

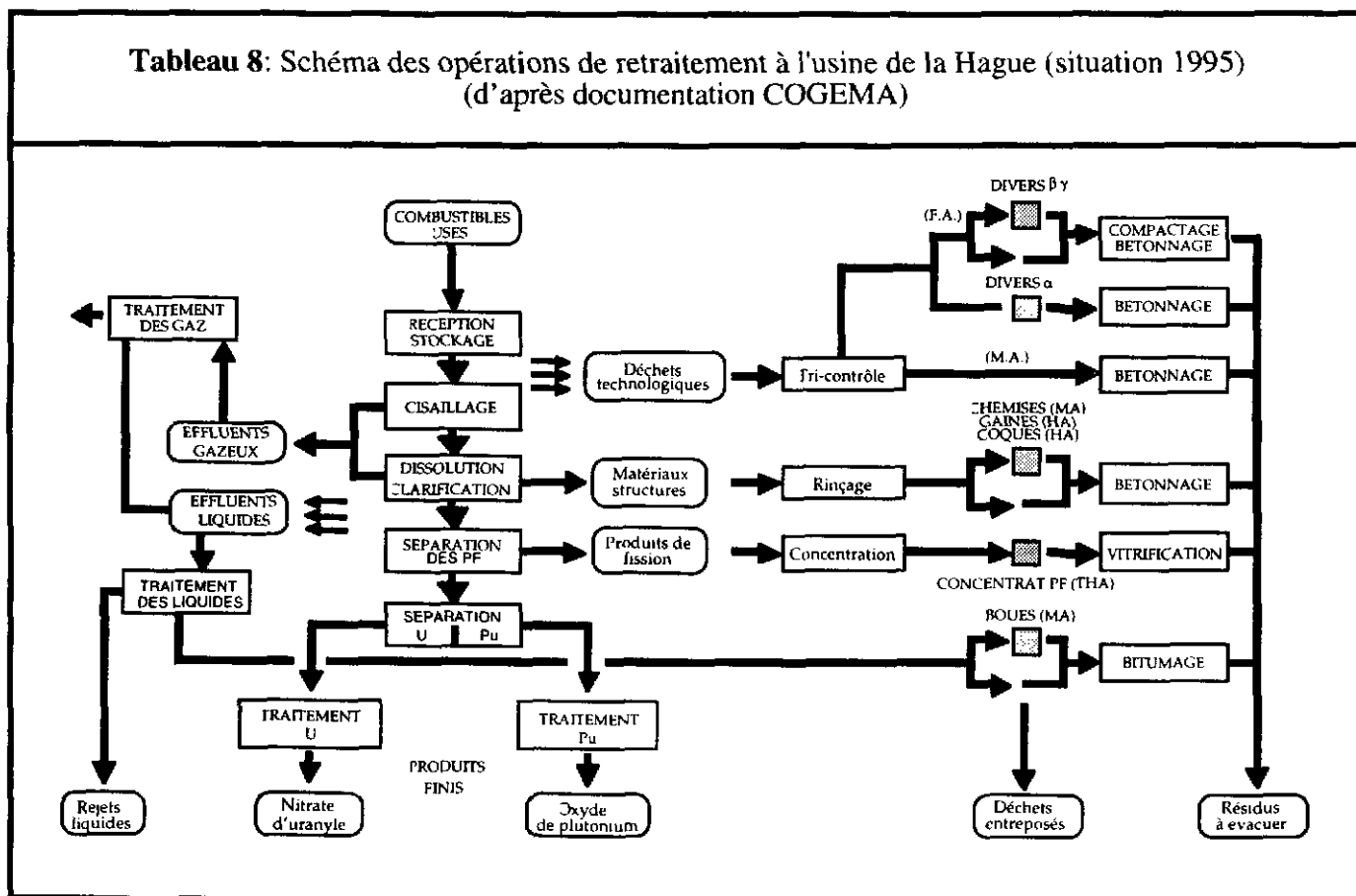
Le retraitement est une série d'opérations mécaniques et chimiques visant à séparer l'uranium et le plutonium des autres produits constituant le combustible usé, c'est à dire les produits de fission et actinides mineurs qui, conditionnés sous forme de verres borosilicates, constituent les déchets de haute activité et à vie longue de la catégorie C, selon la nomenclature adoptée en France. Ceux-ci sont destinés, après une période de refroidissement pouvant aller jusqu'à 50 ans, au stockage géologique profond. Le retraitement génère également d'autres déchets de procédés, suffisamment contaminés en corps à vie longue (déchets de la catégorie B), pour justifier également leur stockage en profondeur.

Toutes les usines de retraitement utilisent aujourd'hui la séparation chimique par voie aqueuse dont nous donnons ci-dessous une brève description. Après démantèlement et cisailage des éléments de combustibles, l'oxyde d'uranium est dissout dans de l'acide nitrique concentré, et les coques (cylindres de gaine de zircaloy) et embouts (structure des assemblages) récupérés à part. Une fois débarrassée de ses fines de dissolution (clarification), la solution aqueuse est envoyée vers les cycles d'extraction, qui sont fondés sur le procédé PUREX. Celui-ci repose sur la propriété du tributyl-phosphate (TBP) de fixer préférentiellement l'uranium et le plutonium qui se trouvent respectivement à la valence 6 et 4 dans la solution aqueuse. On sépare ainsi, au cours du premier cycle d'extraction, les actinides majeurs de l'ensemble des PF et actinides mineurs, qui restent en solution nitrique pour être ensuite concentrés et vitrifiés, sous forme de verres borosilicatés. La séparation de l'uranium et du plutonium s'effectuent ensuite dans un deuxième cycle, après passage en solution nitrique (réextraction), puis réduction de Pu IV en Pu III. Dans ce deuxième cycle, le plutonium reste alors en phase nitrique puis est transformé en oxyde de plutonium, tandis que l'uranium, qui est passé en phase organique, est réextrait, pour être finalement stocké sous forme de nitrate

d'uranyle. Ces opérations ont lieu dans des appareillages de mise à contre courant des solutions aqueuse et organique, tels que les mélangeurs décanteurs, colonnes pulsées ou extracteurs centrifuges. Ce procédé d'extraction nécessite cependant des cycles de purification de l'uranium et du plutonium, dans la mesure où certains produits de fission (Zr, Tc), ainsi que le neptunium, sont partiellement sous une forme ionique extractible (par exemple une faible partie du neptunium, essentiellement à la valence V, est à la valence VI et est extrait avec l'uranium). En revanche l'américium, le curium et les lanthanides, qui sont à la valence III, ne sont pas extractibles par le procédé PUREX.

L'ensemble du procédé PUREX, tel qu'il est appliqué aujourd'hui à l'usine de la Hague, avec le traitement des effluents et la chaîne de production des déchets, est représenté au tableau 8.

Tableau 8: Schéma des opérations de retraitement à l'usine de la Hague (situation 1995)
(d'après documentation COGEMA)



Ce procédé génère des déchets, dont les caractéristiques, rapportées à une tonne d'uranium retraitée, figurent au tableau 9:

- les coques et embouts, qui sont bloqués dans des liants hydrauliques (ciments) destinés au stockage en profondeur, en raison de la présence de corps lourds, émetteurs α à vie longue (essentiellement plutonium) à des concentrations telles qu'elles interdisent le stockage en surface (déchets B);
- les verres borosilicatés contenant la quasi-totalité de la radioactivité et les actinides mineurs, et qui constituent les déchets de haute activité et à vie longue (déchets C), destinés également au stockage en profondeur après une période de refroidissement de l'ordre d'une cinquantaine d'années;
- les déchets dits technologiques dont certains sont également compactés et bétonnés (déchets A et B), et dont d'autres, provenant du traitement des effluents liquides sous forme de boues de précipitation, sont destinés au bitumage. Ce dernier procédé a été récemment remplacé par un procédé d'évaporation avec envoi des concentrats vers la vitrification.

Au niveau des effluents liquides, la quasi totalité du tritium est rejeté à la mer, ainsi que l'iode, qui est libéré au moment de la dissolution. Il en est de même des gaz rares, dont la quasi-totalité est rejetée dans l'air (notamment ⁸⁵Kr).

Tableau 9: Caractéristiques des déchets issus du retraitement des combustibles usés, dans le cas de l'usine de la Hague (UP3-800) ⁷

Contenus des déchets	PF, AM	coques et embouts	déchets technologiques	boues de précipitation
Forme physique:	Verres	Ciments	Bloc béton	Bitume
Catégorie	C	B	⟨-----⟩ A, B	B
Volumes prévus ^{a)} à la conception:	130	600	3800, 1700	630
Volumes actuels ^{b)} (1995)	130	600	?, ≈150	0
Volumes prévus en 2000:	130	≈150	?, ≈150	0
Pertes en U dans tous les déchets:	⟨-----≈0,12%-----⟩			
Pertes en Pu dans tous les déchets:	⟨-----≈0,12%-----⟩			
% activité α	99,5	0,4	⟨----- 0,1 -----⟩	
% activité β, γ ^{b)}	97,6	2,3	⟨----- 0,1 -----⟩	

a) les volumes sont en litre par tonnes d'uranium après conditionnement, mais sans surconteneur;
b) hors tritium

3.4. Le recyclage du plutonium

Initialement, le plutonium séparé dans les usines de retraitement devait servir de combustible d'une nouvelle filière, celle des surgénérateurs. C'est sur cette base que fut décidé dans les années 70 de construire Superphénix et les usines de retraitement à la Hague (UP2-800 puis UP3). En l'absence de programme surgénérateur significatif, capable d'utiliser les quantités importantes de plutonium séparées dans les usines de la Hague, EDF et COGEMA décidèrent en 1985 de recycler partiellement le plutonium dans des réacteurs à eau du parc EDF, dont 28 du palier 900 MWé sont techniquement adaptés à un tel recyclage. Parmi ceux-ci 9 ont l'autorisation et, entre 1987 et 1994, 7 réacteurs ont progressivement été chargés avec des combustibles à base de plutonium (St Laurent B1&B2, Gravelines B3&B4, Dampierre 1&2 et Le Blayais 1).

Tableau 10: Inventaire des matières au chargement et déchargement du réacteur:
Cas d'un combustible MOX-REP 900, à un taux de combustion de 43 500 MWj/t⁶

RADIONUCLEIDES: Période (année)	----Chargement ----		---Déchargement a)---		
	(kg/TWhé)	(kg/an) ^{b)}	(kg/TWhé)	(kg/an) ^{b)}	
Uranium:					
²³⁵ U	7,08 10 ⁸	6,7	11,1	3,5	5,8
²³⁶ U	2,34 10 ⁷			0,7	1,2
²³⁸ U	4,47 10 ⁹	2704	4478	2573	4261
<i>Total Uranium:</i>		2710	<u>4488</u>	2577	<u>4268</u>
Plutonium:					
²³⁸ Pu	87,7	6,8	11,3	7,5	12,4
²³⁹ Pu	24119	126	209	63,5	105,2
²⁴⁰ Pu	6569	59,5	98,5	52,8	87,4
²⁴¹ Pu	14,4	26,9	44,5	24,6	40,7
²⁴² Pu	3,7 10 ⁵	18,7	31,0	21,5	35,6
<i>Total Pu</i>	/	237,9	<u>394,0</u>	169,9	<u>281,4</u>
Actinides mineurs					
²³⁷ Np	2,14 10 ⁶			0,5	0,8
²⁴¹ Am	432,2			8,7	14,4
²⁴³ Am	7380			5,4	9,0
²⁴³ Cm	28,5			0,04	0,1
²⁴⁴ Cm	18,1			2,4	4,0
²⁴⁵ Cm	8500			0,3	0,5
<i>Total actinides mineurs:</i>				17,3	<u>28,7</u>
PFVM^{c)}					
⁹⁰ Sr	28			0,9	1,5
¹³⁷ Cs	30			4,3	7,1
<i>Total PFVM</i>				5,2	<u>8,6</u>
PFVL^{c)}					
⁷⁹ Se	70 000			0,01	0,02
⁹³ Zr	1.5 10 ⁶			1,8	3,0
⁹⁹ Tc	2.1 10 ⁵			2,9	4,8
¹⁰⁷ Pd	6.5 10 ⁶			1,9	3,2
¹²⁶ Sn	10 ⁵			0,1	0,2
¹²⁹ I	1.57 10 ⁷			0,8	1,3
¹³⁵ Cs	2 10 ⁶			2,9	4,8
¹⁵¹ Sm	93			0,01	0,02
<i>Total PFVL</i>				10,4	<u>17,4</u>
Total PF				135	<u>224</u>

a) l'inventaire au déchargement est celui à 4 ans après le déchargement du réacteur

b) on a supposé un facteur de charge de 70 % ; ces valeurs se réfèrent à la partie du coeur qui est chargée en MOX, soit 30%. Le MOX produit donc 1,66 TWhé/an. La partie restante du coeur est constituée de combustibles standards (voir tableau 6) et produit 3,86 TWhé/an.

Le plutonium que l'on recycle dans les REP est introduit sous forme d'un combustible d'oxyde mixte uranium - plutonium, appelé MOX (Mixed Oxide). On utilise généralement dans ce combustible de l'uranium appauvri, en provenance de l'usine d'enrichissement. La concentration en plutonium est ajustée pour obtenir, sans recours à de l'uranium enrichi, la réserve de réactivité initiale qui permettra d'atteindre un taux de combustion donné. Elle l'est également pour compenser l'anractivité due aux isotopes pairs du plutonium, 240 et 242, qui ne sont pas fissiles en neutrons thermiques. Avec un plutonium issu d'un réacteur standard à uranium enrichi, la proportion initiale de plutonium est par exemple de 8,2 %, si l'on veut atteindre un taux de combustion de 45 000 MWj/t, qui est l'objectif d'EDF pour les réacteurs chargés en MOX. Par ailleurs seulement 30% du coeur est actuellement chargé en combustible MOX, pour des raisons de sûreté. Un exemple d'inventaire des matières d'un combustible MOX avant et après irradiation est représenté au tableau 10. On constate qu'en fin d'irradiation la masse de plutonium a diminué de 68 kg/TWhé (ou 23 kg/TWhth). Cette "incinération" du plutonium est importante, représentant près de 50% de la valeur théorique de 46 kg/TWhth mentionnée au § 3.1, et porte pour l'essentiel sur l'isotope fissile ²³⁹Pu. Elle est nettement plus élevée que ce que l'on peut aisément atteindre avec un réacteur à neutrons rapides (voir annexe 1).

Tableau 11: Quelques modes de recyclage du plutonium ⁸

Scénario:	Cycle ouvert		Recyclage hétérogène		Recyclage homogène
	REP N4	REP RMA	REP MOX	RNR CAPRA	REP MOX
Réacteur					
Rapport de modération	2	3	2	/	2
TCT (MWj/t)	55 000	55 000	55 000	140 000	55 000
N° du cycle	1	1	1	Equilibre	Equilibre
Chargement:					
Teneur en plutonium (%)	0	0	10	54	2,0
Teneur en ²³⁵ U (%)	4,5	3,8	0,25	0,19	3,8
Bilan massique (variation à 5 années après déchargement, en kg/TWhé):					
Plutonium	+29	+21	- 66	- 87	+0
Neptunium	+2,1	+1,4	+0,2	+0,3	+1,6
Américium	+1,4	+1,4	+14	+16	+4,5
Total actinides mineurs	+3,8	+2,9	+17	+18	+8,3
Introduction dans un parc de 60 GWé:					
% dans le parc ^{a)}	100	100	13	24	100
Production AM ^{b)} (kg/TWhé)	+3,8	+2,9	+5,6	+6,9	+8,2
Production Pu (kg/TWhé)	+29	+21	+17	+0	+0
Inventaire cycle Pu (tonne) ^{c)}				310	200
a) dans tous les cas, les réacteurs de base du parc sont de type N4_UOX (voir première colonne)					
b) AM: actinides mineurs (neptunium, américium et curium)					
c) en supposant que ce parc produit 400 TWhé par an et un temps de refroidissement avant retraitement de 3 et 5 ans pour les combustibles RNR et REP respectivement					

Le recyclage du plutonium en REP a pour effet de réaliser une économie d'uranium naturel et d'UTS. Elle est de l'ordre de 30% pour l'ensemble, au niveau d'un seul réacteur, chargé à 30% en MOX et n'utilisant que de l'uranium appauvri dans le MOX. Au niveau d'un parc de réacteur, s'autoalimentant en plutonium, cette économie se situe plutôt au voisinage de 15%.

Le recyclage hétérogène, tel qu'il se pratique aujourd'hui, conduit à deux limitations principales:

- la difficulté de recycler plusieurs fois le plutonium qui, suite à l'enrichissement progressif en isotopes pairs, devient de moins en moins fissile en neutrons thermiques, nécessitant un accroissement de sa teneur à chaque nouveau recyclage (limitations liées à la sûreté). A cela s'ajoute des contraintes dans le cycle associé ;

- la production accrue d'actinides mineurs, qui a pour effet de limiter les gains en radiotoxicité qu'indiquerait la figure 1, surtout si on ne se limite qu'à un seul recyclage (dans ce cas il y a augmentation de la radiotoxicité pendant les 100 premières années après déchargement du réacteur).

EDF n'envisage actuellement de recycler un seule fois, dans un nombre limité de réacteurs, le plutonium extrait de combustibles à uranium enrichi retraités. Comme il n'est pas question d'entreposer pendant des années du plutonium qui se dégraderait (décroissance de ^{241}Pu vers ^{241}Am), on limite aujourd'hui les quantités retraitées à la Hague aux seules possibilités de recyclage.

D'autres scénarios de recyclage que celui présenté ici, (recyclage hétérogène sur support d'uranium appauvri) sont envisageables. Ne faisant pas partie des options actuelles, ils ne sont pas discutés de manière détaillée dans ce cours (se reporter à celui de M. Delpech). On a cependant, à titre de comparaison, rassemblé les caractéristiques essentielles des principaux scénarios susceptibles d'atteindre un inventaire d'équilibre (tableau 11 et voir annexe 1)

3.5. Le stockage géologique en profondeur des déchets B et C

Que ce soit la plupart de ceux issus du retraitement ou que ce soit les combustibles irradiés non retraités eux-mêmes, les déchets ultimes présentent des risques pour l'homme et l'environnement qui perdurent durant des milliers de siècles, en raison de la présence d'actinides ainsi que de certains produits de fission à vie longue dans leurs inventaires. Ceci est le cas des déchets C (verres, combustibles irradiés), qui concentrent la quasi-totalité de la radioactivité créée en réacteur et qui dégagent de ce fait de la chaleur, nécessitant un entreposage de refroidissement. C'est également le cas des déchets B, générés dans les opérations de retraitement et de recyclage du plutonium (fabrication de MOX), parce qu'ils contiennent des émetteurs α , à des concentrations très supérieures aux valeurs admises réglementairement pour un stockage en surface (soit 0,01 Ci par tonne en moyenne au centre de stockage en surface de Soulaïnes). Le stockage en couches géologiques profondes de ces déchets dits à vie longue (déchets B) et à haute activité et vie longue (déchets C) constitue aujourd'hui la solution de gestion définitive adoptée par l'ensemble des pays confrontés aux problèmes des déchets nucléaires. Aussi, cette option fait-elle l'objet d'études menées activement depuis de nombreuses années dans des cadres nationaux et internationaux (AIEA, OCDE, CE), souvent en coopération. Le tableau 12 résume le contexte de ces études pays par pays.

La sûreté d'un stockage géologique profond repose en principe sur la combinaison de trois barrières: le colis de déchet doté éventuellement d'un surconteneur, les matériaux de remplissage des structures artificielles dans lesquelles sont déposés ces colis et, enfin, la roche hôte elle-même. Celle-ci, constituée en général de granit, d'argile ou de sel, doit répondre à des critères tels que la faible circulation d'eau, la stabilité géologique, l'absence de ressources associées, etc... Il existe deux concepts extrêmes de sûreté à très long-terme, reposant soit sur le surconteneurage, tel que le cuivre pur (cas de la Suède), soit au contraire sur la barrière naturelle que constitue le milieu géologique lui-même. En réalité chacune de ces barrières contribue à retarder ou empêcher la migration des radionucléides vers la biosphère dans des proportions variant selon le site choisi.

Les études sur le stockage sont d'abord des études de caractère générique (modélisation, études expérimentales de milieux types, mise en oeuvre de méthodes expérimentales ...), puis des études de qualification d'un site particulier, susceptible de présenter des caractéristiques répondant à divers critères de sûreté, mises en évidence par des recherches préalables (bibliographie, données minières ou pétrolières, sondages à partir du sol, etc...). C'est ainsi, que la méthode adoptée en France consiste à sélectionner au

moins deux sites potentiellement favorables (exigence contenue dans la loi déchet du 30 décembre 1991)

Tableau 12: Le contexte des études de concept de stockage souterrain dans divers pays ⁹

PAYS	PRINCIPAUX TYPES DE DECHETS	MILIEUX GEOLOGIQUES ENVISAGES	DATES OBJECTIFS DE MISE EN SERVICE DU STOCKAGE	ACTEUR PRINCIPAL
Allemagne	non exothermiques	couches argileuses de la mine de Konrad	2002	DBE
	exothermiques	dôme de sel de Gorleben	2008 à 2015	DBE
Belgique	déchets B de retraitement	couche d'argile de Boom	2035	ONDRAF
	déchets C de retraitement	couche d'argile de Boom	2050	ONDRAF
Canada	combustibles irradiés	granite (bouclier canadien)	après revue du concept	EACL (R & D)
Espagne	combustibles irradiés	argile, granite, sel	à partir de 2020	ENRESA
Etats-Unis	déchets B d'origine militaire	couche de sel (WIPP, Nouveau Mexique)	1993	US DOE
	déchets C d'origine militaire; combustibles irradiés	tuff Yucca Mountain (Nevada)	2010	US DOE
Finlande	faible et moyenne activité	granite (VLJ, Olkiluoto)	1992	TVO
	combustibles irradiés	granite	2010	TVO
Japon	déchets C de retraitement	crystallin, sédimentaire	2020 à 2030	processus de création en cours
Pays-Bas	déchets B et C	sel		ECN (R & D)
Royaume-Uni	faible et moyenne activité	granite sous couverture de Sellafield	2006-2007	UK NIREX
Suède	faible et moyenne activité	granite (SFR, Forsmark)	1988	SKB
	combustibles irradiés	granite	démonstration à partir de 2008	SKB
Suisse	vie courte	marne (Wellenberg)	env. 2005	CEDRA
	haute et moyenne activité à vie longue (déchets de retraitement et combustibles irradiés)	crystallin, argile, molasse	2020	CEDRA

pour y construire au moins deux laboratoires souterrains de qualification. Les résultats obtenus dans ceux-ci devront, le cas échéant, permettre d'étayer les demandes d'autorisation de construction d'un site de stockage. La démarche est pratiquement la même dans les autres pays qui mènent des études sur le stockage, comme la Suède, la Suisse, la Belgique, le Canada ou les Etats-Unis.

Jusqu'à présent, la sûreté d'un site de stockage a surtout été étudiée par simulation pour divers milieux tels que le granit, l'argile ou le sel. Il s'agit de calculs de migration des radionucléides supposés être relâchés par les colis de déchets selon une loi dépendante du temps. Utilisant certains paramètres physico-chimiques décrivant le milieu géologique (notamment transmissivité hydraulique, pH, et degré d'oxydation de l'eau souterraine, coefficients de rétention de la roche...) et des modèles de transfert dans la biosphère des radionucléides vers l'homme, ces simulations fournissent des valeurs de la dose délivrée à un groupe critique, à diverses époques du futur, dans le cas par exemple d'un scénario d'évolution normale, écartant toute situation accidentelle d'origine naturelle ou anthropique. Ces calculs de risque résiduel indiquent généralement des doses très inférieures aux normes actuelles pour le public, liées à certains produits de fission à vie longue et délivrées à des horizons très éloignés dans le temps. Les figures 2 et 3 montrent un exemple d'un tel calcul de dose qui pourrait être délivrée dans le cas de l'exploitation d'un aquifère profond près d'un stockage de déchets B et C dans l'argile (code OASIS de l'ANDRA).

Figure 2 (ANDRA ¹⁰)

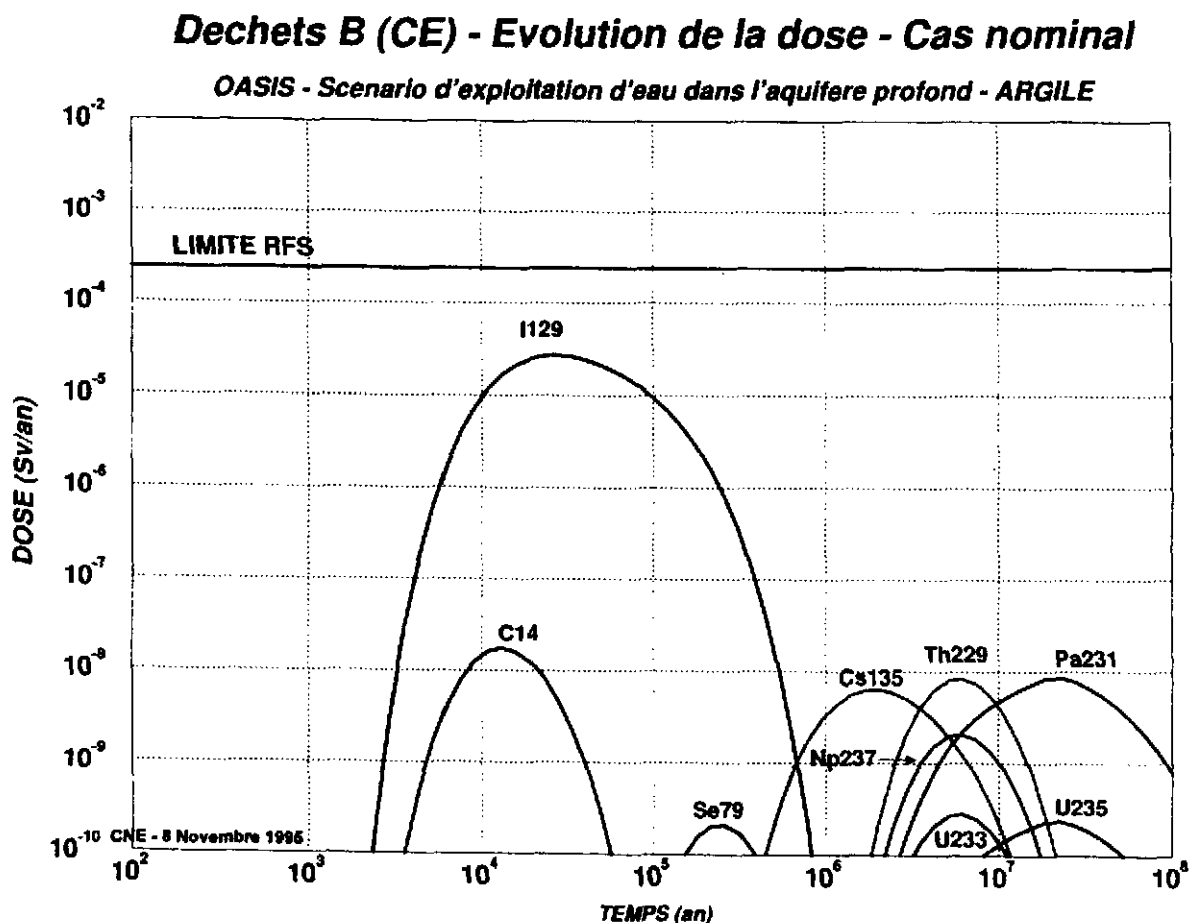
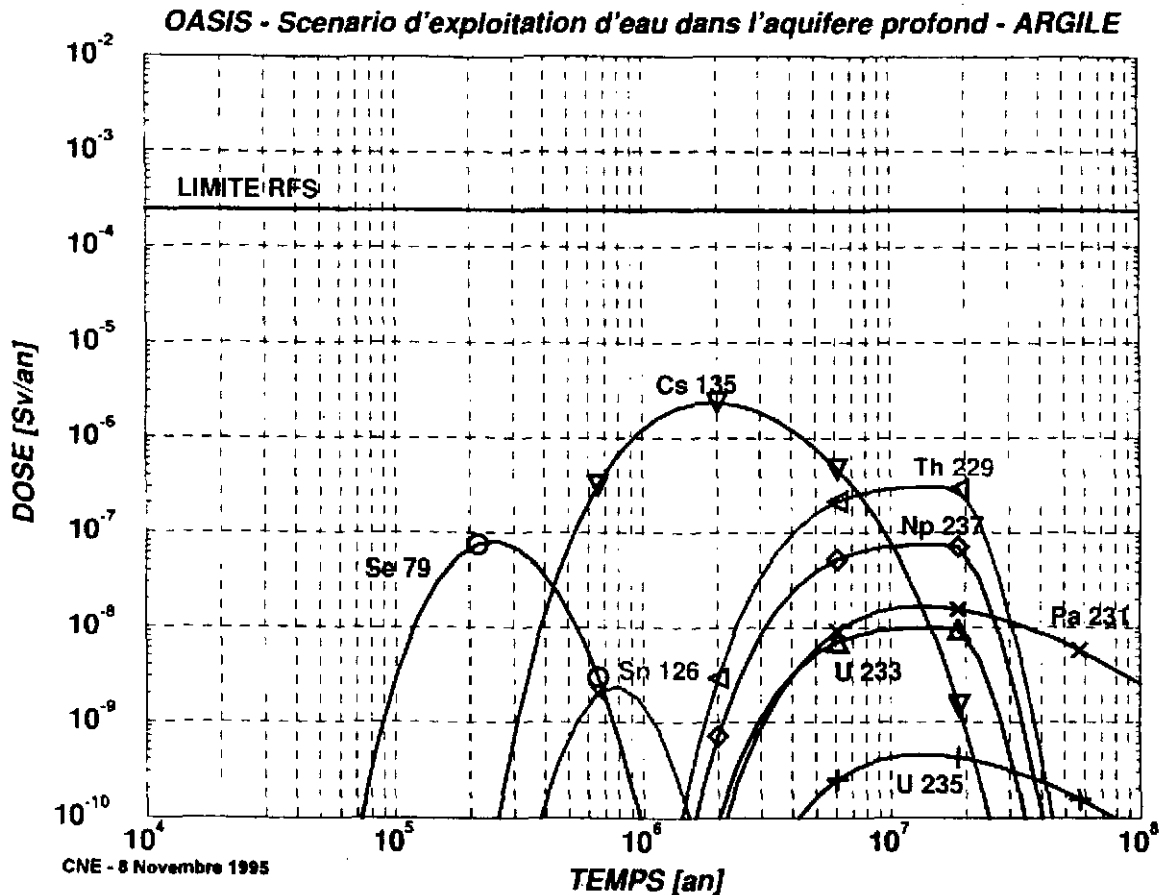


Figure 3 (ANDRA ¹¹)

DECHETS C - EVOLUTION DE LA DOSE - CAS NOMINAL



L'ensemble de ces résultats conforteraient plutôt l'image d'innocuité du stockage géologique, à partir du moment où il serait correctement conçu et réalisé. Malgré cela, il n'existe dans le monde aucun site de stockage opérationnel, et l'on rencontre souvent de fortes réticences dans certains secteurs de l'opinion vis à vis de la création d'un site de stockage en profondeur. C'est le cas notamment de la France, où l'on a adopté une loi spécifique relative à la gestion des déchets de haute activité et à vie longue.

3.6. La loi déchets du 30 décembre 1991

En effet, à la suite des oppositions rencontrées, entre 1987 et 1990, par l'ANDRA à la recherche d'un site pour un laboratoire souterrain de qualification d'un centre de stockage en profondeur de déchets, le Gouvernement décidait en 1990 un moratoire d'une année, durant laquelle l'Office Parlementaire d'Evaluation des Choix Scientifiques et Technologiques se saisissait de ce dossier sensible. Suite à son rapport ¹² le Parlement votait la loi déchets du 30 décembre 1991 prévoyant un statut d'indépendance de l'ANDRA par rapport au C.E.A. et fixant dans son article 4 trois axes de recherche concernant la gestion des déchets de haute activité et à vie longue (séparation/transmutation, le stockage géologique, conditionnement et entreposage des déchets). La nécessité d'élargir le champ des options techniques au-delà du stockage profond est donc reconnue d'une certaine manière par cette loi. L'élargissement des options concernant la gestion des déchets relève en particulier d'un effort de recherche, et découle de diverses constatations:

- la nécessité de disposer de solutions visant à gérer à court et moyen terme les combustibles irradiés, compte tenu du contexte actuel concernant l'utilisation du plutonium, voire la place future du nucléaire dans la production d'électricité;

- la nécessité de disposer, par ailleurs, d'une stratégie de gestion des déchets et du plutonium à plus long-terme qui soit diversifiée, telle que la séparation poussée et la transmutation des déchets à vie longue dans divers types de réacteurs (REP, réacteurs à neutrons rapides, systèmes assistés par accélérateur).

Cette loi a impulsé dans les organismes nationaux de recherche un effort nouveau, qui s'est traduit dans la mise en oeuvre au C.E.A. et au CNRS de programmes spécifiques relatifs aux trois axes définis par cette loi. Ces programmes sont évalués depuis 1994 par une Commission Nationale d'Evaluation, instituée par cette loi, et qui a déjà remis au Gouvernement deux rapports (juin 1995 et 1996).

4. DONNEES CONCERNANT LA PRODUCTION DE DECHETS

Nous avons rassemblé dans ce chapitre des données concernant les déchets existants, les quantités auxquelles on peut s'attendre et l'évolution des moyens industriels

4.1. Le cas de la France

Les quantités de matières nucléaires (uranium naturel, enrichi, appauvri, combustibles irradiés) et de déchets en amont du réacteur qu'a utilisés ou produits le programme électronucléaire pourrait en principe se déduire de la quantité totale d'énergie fournie par les centrales nucléaires et des données fournies au tableau 1. En fait il est difficile de procéder ainsi, les paramètres pris pour ce tableau variant nécessairement au cours du temps en fonction par exemple des minerais d'uranium utilisés ou des caractéristiques de l'usine d'enrichissement et des réacteurs (notamment l'introduction du MOX). S'agissant de l'aval du cycle, le spectre et les masses de plutonium et de déchets dépend des quantités de combustibles retraités et des caractéristiques comme le taux de combustion et les paramètres du réacteur. Elles dépendent, in fine, de décisions de nature politique quant à l'ampleur futur du programme électronucléaire, du retraitement et du recyclage.

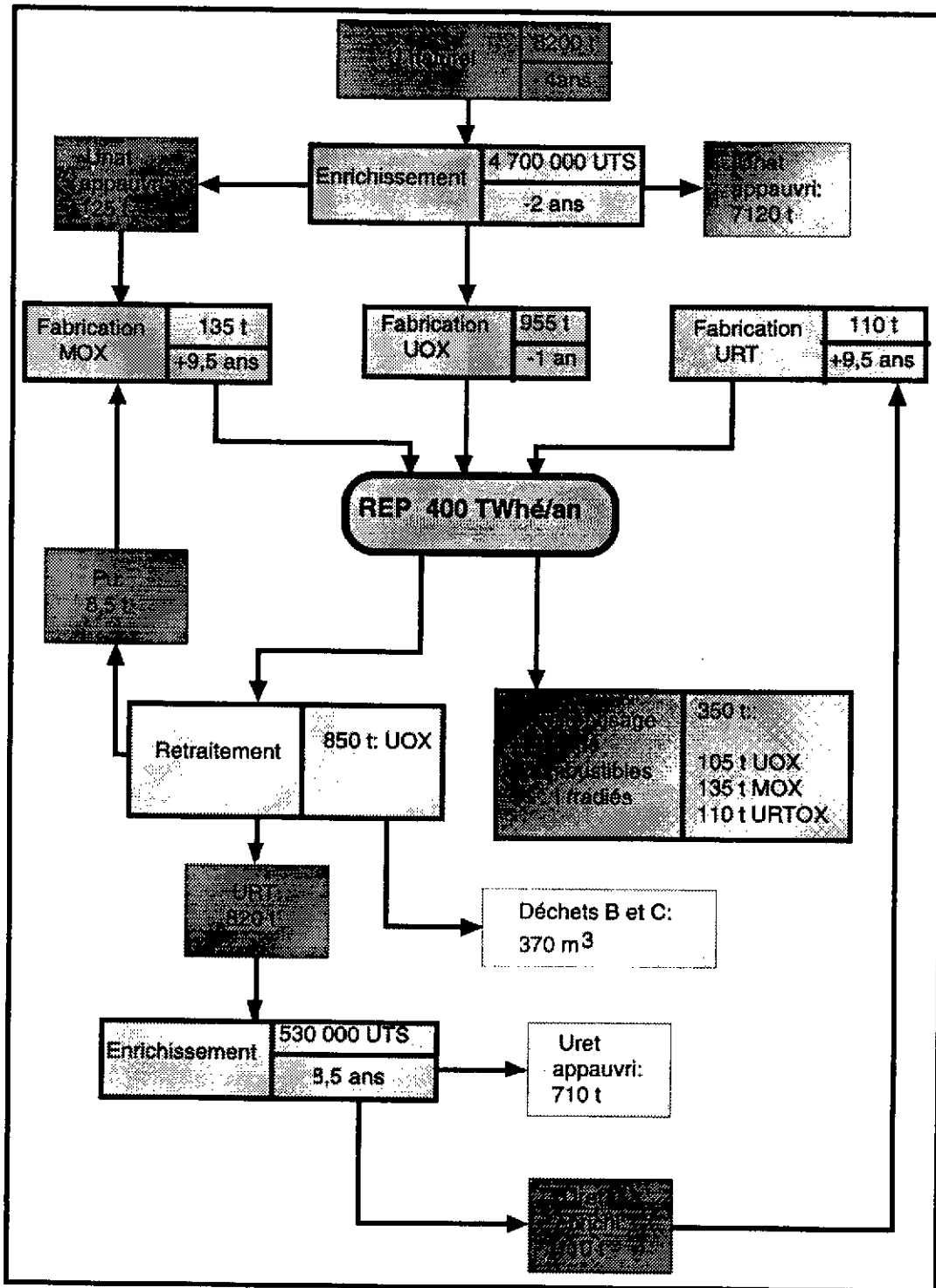
Nous nous sommes appuyés sur des données fournies par les organismes concernés (EDF, COGEMA et ANDRA) à la Commission Nationale d'Evaluation, et qui figurent dans son deuxième rapport, rendu public en juillet 1996. Ces données, concernant les flux annuels de matières nucléaires liées au fonctionnement du parc EDF produisant annuellement 400 TWhé, sont rassemblées dans le tableau 13 ci-dessous. Cette situation concerne une situation après 2000, qui serait caractérisée:

- par le monorecyclage du plutonium dans 135 tonnes de combustibles MOX fabriqués dans l'usine MELOX à partir de 8,5 tonnes de plutonium issus du retraitement de 850 tonnes de combustibles standard à uranium enrichi;

- par un monorecyclage très modeste de 110 tonnes d'uranium de retraitement, nécessitant un enrichissement supplémentaire pour compenser la présence de ^{236}U (capteur de neutrons) dans l'uranium de retraitement; cet enrichissement génère à son tour de l'uranium appauvri, qui constitue un nouveau type de déchet.

Dans ce scénario, qui diminue les besoins en uranium naturel et en UTS, 850 tonnes sont retraitées annuellement, les 350 tonnes restant (dont 135 tonnes de MOX) étant entreposés sous eau en attente de décision (retraitement différé ou stockage direct). On observera enfin la durée des diverses étapes du cycle du combustible. Les données de ce tableau risquent évidemment d'être modifiées, si l'on décidait d'étendre le recyclage aux 28 réacteurs des deux paliers de 900 MWé. Cette possibilité a été ouverte par la récente demande du ministre de l'industrie, F. Borotra, à E.D.F., de démarrer les procédures administratives de demande d'autorisation visant l'extension du recyclage.

Tableau 13: Flux annuels dans le cycle du combustible nucléaire associé au parc EDF (situation après 2000) ¹³



On a supposé qu'après 2000, les performances annoncées par COGEMA concernant les volumes des déchets B et C sont atteintes (voir tableau 9).

Tableau 14: Ordre de grandeur des volumes et quantités de déchets attendus en 2010 et 2020 (référence ¹⁴)

	Producteurs	Volume des déchets B	Déchets C
Situation en 2010	COGEMA ^{a)}	42 000 m ³	verres: 2700 m ³
	EDF ^{b)}	12 000 m ³	UOX ^{c)} : 3440 tonnes MOX: 1900 tonnes
	C.E.A.	15 000 m ³	10 à 60 tonnes
Situation en 2020	COGEMA ^{a)}	45 700 m ³	verres: 3900 m ³
	EDF ^{b)}	16 000 m ³	UOX ^{c)} : 5590 tonnes MOX: 3250 tonnes
	C.E.A.	19 800 à 26 400 m ³	10 à 60 tonnes

a) avec compactage des coques (voir tableau 5)

b) les déchets B de EDF sont les grappes de commande des réacteurs

c) UOX: comprend les combustibles à uranium enrichi et à uranium de retraitement dont le devenir est en attente; à cela s'ajoute environ 9500 tonnes de combustibles non retraités jusqu'en 1995 (voir tableau 16), mais qui devront en principe être retraités.

Tableau 15: Quantités d'éléments contenus dans les verres ou les combustibles usés

	Verres ¹⁾ et déchets B		Combustibles Usés		
	2010	2020	2010		
			UOX	MOX	TOTAL
U	6,3	9,1			
Pu	0,1	0,14	30	101,5	131,5
Np	8,4	12	2	0,3	2,3
Am	7,6	10,8	2,3	9,7	12
Cm	0,524	0,734	0,2	1,6	1,8
Actinides mineurs	17	24	4,5	11,6	16,1
Produits de fission ²⁾	557	797	environ 200 ²⁾		

1) avec les rendements élevés actuels de séparation (voir tableau 9)

2) dont, par exemple 6,34 t de ¹³⁵Cs dans les verres, 0,735 t de ¹²⁹I et 1,6 t de ¹³⁵Cs dans les UOX et 0,485 t, ¹²⁹I et 1,725 ¹³⁵Cs dans les MOX.

Compte tenu des dernières informations dont a disposé la Commission Nationale d'Evaluation pour son rapport de juillet 1996, concernant aussi bien la mise en route vers l'an 2000 du compactage des coques (voir tableau 9) à la Hague que l'évolution des taux de combustion et des teneurs en ^{235}U et en plutonium des combustibles des réacteurs, on peut fournir un ordre de grandeur des volumes de déchets B et C attendues en 2010 et 2020 (voir tableau 14).

4.2. La situation à l'étranger

A part la zone du sud-est asiatique et le Japon, on constate aujourd'hui une stagnation dans les programmes d'équipement électronucléaire, ou du moins une pause, comme c'est le cas en France. La part du nucléaire est de l'ordre de 18% dans la production mondiale d'électricité, et cette part, qui est de 24 % pour les pays industrialisés de l'OCDE tendra, selon les prévisions de l'AEN de l'OCDE, à diminuer d'ici 2010. Le tableau 16 rassemble, par importance relative décroissante, des données concernant la production d'électricité nucléaire et la gestion des combustibles irradiés des principaux pays de la zone OCDE qui ont engagé un programme électronucléaire. Les proportions significatives de l'ordre de 20-30% observées pour des pays très industrialisés comme l'Allemagne ou les Etats-Unis sont les résultats d'efforts importants qui furent menés dans les années 60-70. Quant à la France, elle est aujourd'hui à saturation, avec une certaine surcapacité et n'a pas de projet de construction nouvelle avant au moins 2010 (source ministère de l'industrie, DGEMP).

Dans un tel contexte; il y a peu de pression sur le marché de l'uranium et de l'enrichissement pour lesquels les besoins prévus d'ici 2010 restent inférieurs à l'offre (déstockage de l'uranium des producteurs d'électricité américains, uranium très enrichi de Russie, sous emploi des usines d'enrichissement).

Il n'en est pas de même de l'aval du cycle, que ce soit pour les capacités d'entreposage des combustibles irradiés (au regard de leur production continue), de retraitement et d'emploi du plutonium séparé ou pour la construction de site de stockage de déchets ultimes.

C'est ainsi que les capacités d'entreposage varient d'un pays à l'autre, le cas des Etats-Unis étant un des plus préoccupant en ce qui concerne l'entreposage des combustibles irradiés dans les piscines des réacteurs. Au plan mondial, les capacités mondiales d'entreposage, qui sont à l'heure actuelle un peu moins du double de la production cumulée de combustibles irradiés, deviendraient insuffisantes à partir de 2010 (source AEN/OCDE).

La politique vis à vis du devenir de leurs combustibles irradiés est variable d'un pays à l'autre. Trois pays ont, pour des raisons diverses, opté pour le stockage direct:

- les Etats-Unis, pour des raisons liées à la non-prolifération, et, depuis 1982, à l'absence d'intérêt de la part des industriels;
- la Suède qui a adopté par référendum un programme limité dans le temps, jusqu'en 2010, et qui préfère donc aller "au plus simple" (entreposage sous eau, puis stockage direct);
- le Canada dont les réacteurs CANDU ont des performances telles qu'ils brûlent "in situ" le plutonium formé, rendant sa séparation par retraitement sans intérêt.

D'autres (France, Royaume-Uni, Japon et Russie) au contraire ont développé une industrie du retraitement pour des raisons à la fois commerciales (contrats étrangers de la COGEMA et de BNFL au Royaume-Uni) et nationales liées à une politique d'utilisation du plutonium pour des besoins civils, et, jusqu'à une certaine époque, militaires. Citons le cas particulier du Royaume-Uni, dont la plupart des réacteurs de la filière graphite-gaz utilisent un combustible métal qui est retraité à part dans l'ancienne usine de Sellafields.

Enfin, la plupart des autres pays ont des politiques mixtes (ce pourrait devenir le cas en France même) ou des politiques d'attente. Parmi les premiers, on trouve les pays, hors Japon, qui ont signé dans le passé des contrats de retraitement avec COGEMA et BNFL. La politique de retraiter en totalité ou non les combustibles est partout réexaminée, compte tenu de la situation énergétique et de l'intérêt pour chacun de ces pays de recycler le plutonium. Aujourd'hui, environ 8000 tonnes de combustibles irradiés sont déchargées annuellement au plan mondial avec une production cumulée d'environ 90 000 tonnes non retraitées et entreposées pour l'essentiel en piscine (source AEN de l'OCDE). Si l'on met à part la cas

particulier des combustibles métal (cas du Royaume-Uni) dont l'essentiel a été retraité, guère plus de 10 000 tonnes ont été retraité à ce jour, essentiellement dans les usines de la Hague, qui représentent près de 80% du marché mondial du retraitement. Ces données montrent la situation dominante de la COGEMA sur le marché du retraitement. Les autres pays, qui n'ont jamais fait retraiter leurs combustibles, se limitent quant à eux à entreposer leurs combustibles usés dans les piscines près de réacteurs.

Tableau 16: Données concernant la fin du cycle dans des pays de l'OCDE

PAYS	Part de nucléaire [%] a)	Puissance installée [GWé] a)	Politique de gestion des CI	CI déchargés [tonnes] b)	CI déchargés [tonnes] c)	CI retraités [tonnes] d)
France	76,4	58,5	R_D, (E)	1150	11770	2518
Belgique	55,8	5,5	R, E	120	1400	403
Suède	51,1	10,0	ST_DIR	250	≈ 3240	
Suisse	36,8	3,0	R, E	85	≈ 1300	285
Espagne	35,0	7,1	E	168	1775	
Finlande	29,5	2,3	E	70	≈ 975	
Allemagne	29,3	22,7	R, E	470	6315	2706
Japon	27,2	38,9	R, R_D	981	≈ 8600	1082
Royaume-Uni	25,8	11,7	R_D, E?	826		
Etats-Unis	22,0	98,8	ST_DIR	2200	≈ 28600	
Canada	19,1	15,8	ST_DIR	1479		
Pays-Bas	4,9	0,5	R, E	15	150	162

a) situation au 1er janvier 1995 (source AIEA)

b) en 1992, source: Agence de l'Energie Nucléaire de l'OCDE

c) CI oxydes, cumulés jusqu'en 1995 (source CE); les donnée en "italique" ont été estimées à partir de la production cumulée d'électricité d'origine nucléaire (source C.E.A., 1992) et en prenant une moyenne de 4,2 tonnes de CI par TWhé (cas de l'Allemagne).

d) à la Hague, CI oxydes cumulés jusqu'au 1er mars 1995 (source COGEMA)

R_D: retraitement dans le pays même; R: retraitement effectué à l'étranger;

E: entreposage d'attente de décision; ST_DIR: stockage direct de combustibles usés.

En revanche, le stockage géologique profond représente partout la solution de référence que ce soit pour des combustibles irradiés ou des déchets issus du retraitement (verres, déchets B). Il n'existe au plan mondial à ce jour que des laboratoires méthodologiques ou de qualification au stade pilote. Citons parmi les pays les plus actifs dans ce domaine la Suède (laboratoire de Stripa dans le granit), la Belgique (laboratoire de Mol dans le granite), la Suisse (laboratoire de Grimsel dans le granit) ou le Canada (laboratoire URL dans le granit). En France, le processus initié par la loi de 1991 a abouti aujourd'hui à la sélection de trois sites (le granit dans la Vienne, l'argile dans l'est et le Gard) pour la construction d'un laboratoire souterrain. Enfin le DOE a choisi un site de stockage dans Yucca-Mountain (tuff) qui n'a pas à ce jour reçu d'autorisation de construction. D'une manière générale, il ne semble pas possible de démarrer effectivement le stockage géologique profond de déchets avant au moins 2020, dans quelque pays que ce soit. Cette situation traduit bien les difficultés, à la fois technique, scientifique et politique, que l'on rencontre partout pour procéder au stockage définitif de déchets nucléaires.

REFERENCES:

- ¹ Commission d'Evaluation de la situation du Centre de Stockage de la Manche ("rapport Turpin"), 16 juillet 1996.
- ² Ch. Madic, cours de DEA Radioéléments, Radionucléides, Radiochimie, Universités Paris XI, Grenoble I et Tours, INSTN, 1995-1996.
- ³ Encyclopédie Universalis, tome 16, page 589, 1995.
- ⁴ J. Baumier et al., Economie de l'Energie Nucléaire, CEA-INSTN, 1983.
- ⁵ T.H. Pigford, dans Review of Modern Physics, 50, n°1, Partie 2, janvier 1978.
- ⁶ Stéphanie Sala, Thèse de l'Université de Provence, 26 juin 1995.
- ⁷ D'après COGEMA, situation en 1995.
- ⁸ Données fournies par le C.E.A. lors de son audition par la Commission Nationale d'Evaluation, instituée par la loi déchet du 30 décembre 1991 (Paris, le 8 février 1996).
- ⁹ Données fournies par le C.E.A. lors de son audition par la Commission Nationale d'Evaluation, instituée par la loi déchet du 30 décembre 1991 (Paris, le 8 février 1996).
- ¹⁰ Calculs présentés par l'ANDRA à la Commission Nationale d'Evaluation, instituée par la loi déchet du 30 décembre 1991 (Paris, le 8 février 1996).
- ¹¹ Calculs présentés par l'ANDRA à la Commission Nationale d'Evaluation, instituée par la loi déchet du 30 décembre 1991 (Paris, le 8 février 1996).
- ¹² Ch. Bataille, député, Rapport sur la Gestion des déchets nucléaires à haute activité, Office Parlementaire d'Evaluation des Choix Scientifiques et Technologiques, 1990-1991.
- ¹³ Direction du combustible de EDF, document fourni à la Commission Nationale d'Evaluation, instituée par la loi déchet du 30 décembre 1991 (voir son rapport n°2, 1996).
- ¹⁴ Rapport n°2 de la Commission Nationale d'Evaluation, instituée par la loi déchet du 30 décembre 1991.
- ¹⁵ J.P. Schapira, Transmutation des radionucléides à vie longue: principes, méthodes, réacteurs, accélérateurs. Cours donné au DEA Radioéléments-Radionucléides-Radiochimie, Universités: Paris XI, Grenoble I, Tours, INSTN, 1996-1997.

ANNEXE 1: Evolution de la composition d'un combustible sous irradiation (source: cours sur la transmutation donnée au DEA RRR, 1996-1997) ¹⁵

L'évolution du combustible, lors du recyclage du plutonium, peut être décrit d'une manière simplifiée à l'aide des équations de Bateman, en supposant que le flux de neutrons est constant et que les diverses sections efficaces sont moyennées sur le spectre en énergie des neutrons. On peut également considérer que le multirecyclage du plutonium revient à effectuer une irradiation prolongée, couvrant plusieurs cycles réels d'irradiations. On peut dans le cadre de ces hypothèses simplificatrices montrer que la composition du combustible, et notamment la teneur en plutonium, atteint un régime d'équilibre.

Pour illustrer la nature de l'équilibre que l'on peut atteindre durant une telle irradiation prolongée, simulant le multirecyclage, on considérera le cas simplifié de deux corps, le premier N_1 , dont on néglige la fission, alimentant le second par capture, le second N_2 étant détruit par capture et par fission, produisant donc de l'énergie. On suppose que l'on insère dans le réacteur une quantité $N_1(0)$ et $N_2(0)$ au début de l'irradiation. C'est le cas par exemple du cycle ^{238}U - ^{239}Pu , correspondant au recyclage du plutonium dans les REP ou dans les RNR. On montre que la concentration de 2 dans 1, augmente ou diminue vers une concentration limite, ou reste constante, selon la valeur de la concentration initiale.

Le système d'équation de Bateman s'écrit simplement, en prenant comme variable indépendante la fluence $s = \int_0^t \Phi \cdot dt$, changement de variable qui est possible, parce que les corps en question sont stables pendant les durées d'irradiation.

$$\begin{aligned} \frac{dN_1}{ds} &= -c_1 \cdot N_1 \\ \frac{dN_2}{ds} &= c_1 \cdot N_1 - (c_2 + f_2) \cdot N_2 \\ \frac{dF}{ds} &= f_2 \cdot N_2 \end{aligned} \tag{1}$$

Dans cette expression, c_1 et c_2 sont les sections efficaces de capture sur 1 et 2, f_2 la section efficace de fission. Au fur et à mesure que l'irradiation se déroule, les noyaux N_1 disparaissent par capture. On peut étudier le régime relatif, à l'aide d'une équation différentielle simple, qui se déduit aisément du système (1) ci-dessus:

$$\frac{dr(s)}{ds} + \gamma \cdot r(s) = c_1 \tag{2}$$

où $r(s) = \frac{N_2(s)}{N_1(s)}$ et $\gamma = -c_1 + c_2 + f_2$.

La structure de la solution:

$$r(s) = \frac{c_1}{\gamma} + \left(r(0) - \frac{c_1}{\gamma} \right) \cdot e^{-\gamma s} \tag{3}$$

montre que pour $\gamma > 0$ (qui est vérifié dans la réalité), on atteint un équilibre relatif $r(\infty) = \frac{c_1}{\gamma}$, avec la constante de "fluence" γ . Si l'on charge initialement à cette valeur, la composition relative du combustible se maintient durant toute l'irradiation: cette valeur constitue la composition d'équilibre.

Le cas $r(0) > r(\infty)$, correspond à une incinération de 2 dans 1, jusqu'à la valeur d'équilibre, tandis que le cas $r(0) < r(\infty)$, correspond à une surrégénération de 2 dans 1 (mis à profit dans les RNR).

La constante de temps d'établissement de l'équilibre relatif est indépendante de la composition initiale et est égale à:

$$\tau = \frac{1}{\gamma \cdot \Phi} = \frac{1}{(-c_1 + c_2 + f_2) \cdot \Phi} \quad (4)$$

Appliquant (4) au cas d'un REP, on trouve une constante de temps d'atteinte de l'équilibre de 4 ans, en prenant un flux de $5 \cdot 10^{13}$ n/sec/cm². Il faut près de 9 ans pour que l'on atteigne 90% de la valeur d'équilibre $^{239}\text{Pu}/^{238}\text{U} = 0,6\%$ (1% en ce qui concerne le Pu total): c'est l'ordre de grandeur de ce que l'on calcule pour l'autorecyclage dans un REP (voit tableau 11, cas du recyclage homogène). En réalité, la valeur d'équilibre du Pu total dans un REP se situe aux alentours de 2%, et elle est atteinte au 2ème cycle (ceci est dû à la prise en compte des isotopes de masse supérieure, dont l'équilibre met plus de temps à s'établir). Dans la réalité, les temps de mise à l'équilibre sont beaucoup plus long, en raison des arrêts pour déchargement, refroidissement, retraitement et refabrication de combustibles.

On peut également exprimer les quantités de plutonium incinérés en fonction de l'énergie produite. Le rapport $\frac{dN_2}{dF}$ fourni la quantité de noyaux 2 détruits (ou produits) par fission, rapportée au nombre de fissions pendant une augmentation de fluence ds. Ce rapport est un indicateur de performance d'incinération (ou inversement de surrégénération). Nous allons le calculer dans le cas important de l'incinération du plutonium.

Lorsqu'on irradie aux neutrons un mélange U-Pu (par exemple sous forme d'un oxyde mixte), on détruit le Pu par fission, en produisant de l'énergie, mais on en refabrique par capture sur ^{238}U (corps 1). Reprenant les relations de Bateman (1) ci-dessus, le rapport entre la variation de l'inventaire de ^{239}Pu (corps 2) et l'énergie produite est proportionnel à $\frac{dN_2}{dF}$, et s'exprime à partir des équations(1):

$$\frac{dN_2}{dF} = \frac{c_1}{f_2 \cdot r(s)} - \frac{c_2 + f_2}{f_2} \quad (5)$$

En exprimant cette relation, en kg par TWhth fournie, en fonction de la concentration x , , on trouve une consommation C, proportionnelle à $\frac{dN_2}{dF}$:

$$C(\text{kg} / \text{TWh}(\text{th})) = 46 \cdot \frac{x - x_{\min}}{(1 - x_{\min}) \cdot x} \quad (6)$$

où:

$$x_{\min} = \frac{N_2(0)}{N_1(0) + N_2(0)} = \frac{c_1}{c_1 + c_2 + f_2} \quad (7)$$

Dans cette expression, le facteur 46 provient du fait que pour $x=1$ on doit obtenir la consommation maximum de 46 kg/TWhth (ou 110 kg/TWhé pour un RNR), correspondant à la production de 200 MeV par fission. x_{\min} représente la concentration minimum pour qu'il y ait incinération effective. Si on applique ces expressions aux réacteurs thermique et rapide, en prenant les sections efficaces moyennes données dans

la référence 15 (tableau. 6.1), on obtient les résultats reportés au tableau ci dessous. Ces valeurs, ne donnent qu'un ordre de grandeur de la réalité, compte tenu de la simplicité du modèle. On observe cependant que pour incinérer une quantité donnée de Pu, on a besoin de concentrations bien plus élevées en RNR qu'en MOX. C'est effectivement ce que montre le tableau 10, où un MOX consomme 68 kg/TWh(é) avec une concentration initiale de 4,3 % en ^{239}Pu , alors que pour obtenir une telle consommation il faudrait des concentrations de l'ordre de 30-50 % en RNR. L'équation (6.) décrit bien l'allure d'une hyperbole pour des points, obtenus par des codes d'évolution complets.

Tableau 16: Données sur la consommation de plutonium			
Filière:		MOX (5,3% Pu total)	RNR
$\sigma_c(^{238}\text{U})$	en barn	0,83	0,29
$\sigma_c(^{239}\text{Pu})$	en barn	21,06	0,50
$\sigma_f(^{239}\text{Pu})$	en barn	37,7	1,85
x_{\min}	en %	1,4	10,9

REACTEURS NUCLEAIRES :
LE POINT DE VUE DU PHYSICIEN

Jean-Marc CAVEDON
CEA/DCC/DPE/SPEA (91191) GIF-sur-YVETTE Cedex

RESUME

Le vocabulaire de base de la fission nucléaire est défini, et on décrit le principe d'un réacteur à l'aide de la formule des quatre facteurs.

Les différentes combinaisons de combustible, de modérateur et de caloporteur sont présentées, avec les filières associées.

ABSTRACT

A basic approach of nuclear fission leads to the first principles of the nuclear reactor, following the four-factors formula.

The essential parameters of reactor control are given. The different combinations of fuel, moderator and coolant are exposed, as well as the associated reactor families.

1- INTRODUCTION

Un réacteur nucléaire à neutrons thermiques est un milieu comprenant des noyaux lourds (le combustible) susceptibles de fissionner lorsqu'ils capturent des neutrons, des noyaux légers (le modérateur) capables de ralentir des neutrons par chocs successifs, et un fluide (le caloporteur) capable d'extraire la chaleur dégagée lors de l'arrêt des produits de fission, qui a lieu très près de la fission elle-même. L'ensemble baigne dans un « gaz » ou flux de neutrons, produits par une génération de fissions et consommés par la suivante, occupant tout le volume du coeur et couvrant une large gamme de vitesses.

C'est aussi une machine thermique, qui transforme l'énergie cinétique des produits de fission en énergie thermique locale, évacuée par le caloporteur, de nouveau transformée au bout d'une ou deux boucles d'échange thermique en énergie cinétique de rotation d'une turbine, et enfin en énergie électrique dans l'alternateur couplé à l'arbre de turbine.

C'est encore un assemblage de matériaux qui doivent résister tout à la fois à la température, aux dégâts d'irradiation sous flux neutronique, et à la durée. De ce point de vue, aux éléments de base s'ajoutent les matériaux de structure et les absorbants permettant le pilotage ou assurant la sécurité du réacteur, ainsi que tous les capteurs et actionneurs associés.

C'est enfin, après quelques années de fonctionnement une source complexe de noyaux radioactifs d'activités et de durées de vies très variables (actinides et produits de fission). L'inventaire d'un réacteur est de l'ordre de la dizaine de millions de curies (une fraction d'Etabecquerel). Le maintien sous contrôle strict et l'absence de dissémination de cette source se fait par disposition de barrières matérielles successives, chacune englobant la précédente. La première barrière est la gaine métallique enserrant le combustible, la deuxième est la cuve contenant le coeur du réacteur, la troisième et dernière est l'enceinte de confinement en béton, qui protège aussi contre les intrusions de l'extérieur. Toutes ces barrières n'existent pas nécessairement sur toutes les filières de réacteurs.

Nous ne traiterons ici que des aspects neutroniques et de sécurité, en insistant sur le fait que les points de vue de la thermique et des matériaux sont tout aussi essentiels à la construction de réacteurs industriels. Nombre de choix et de contraintes techniques sont dictés par ces aspects à ne pas négliger.

2- LA REACTION DE FISSION ET LES REACTIONS EN CHAÎNE

La comparaison des sections efficaces de fission (σ_f) pour les isotopes 235 et 238 de l'uranium fait apparaître que seul l'isotope 235 fissionne tant que l'énergie du neutron capturé n'atteint pas 1 MeV. Au-delà de ce seuil les deux isotopes se comportent de façon sensiblement équivalente. L'énergie d'appariement entre neutrons est à la source de cette différence de comportement entre ces deux isotopes.

En effet, à chaque fois qu'un isotope ayant un nombre impair de neutrons capture un neutron, la formation d'une nouvelle paire de neutrons dans le noyau composé (Z, N + 1) libère une énergie d'appariement δ , disponible sous forme d'énergie d'excitation du noyau composé, ce qui facilite le franchissement des barrières de fission. C'est le cas de la capture d'un neutron thermique par ^{235}U , qui mène dans 84 % des cas à la fission.

A l'inverse, un noyau ayant déjà un nombre pair de neutrons doit dépenser une énergie supplémentaire δ pour installer un neutron célibataire supplémentaire sur une couche ouverte. La capture d'un neutron par ^{238}U aboutit à la formation d'un noyau composé de ^{239}U qui n'évoluera vers la fission que si le neutron capturé apporte suffisamment d'énergie pour compenser l'écart d'énergie disponible 2δ avec le cas de ^{235}U . Ce seuil d'énergie 2δ pour qu'un neutron induise une fission de ^{238}U est d'environ 1 MeV, comme le prévoit la formule de masse de Bethe-Weizsäcker et l'allure de $\sigma_{nf}(^{238}\text{U})$ en fonction de l'énergie le confirme.

Ce sont donc les noyaux impairs en neutrons qui sont plus facilement fissiles par capture de neutrons thermiques : ^{233}U , ^{235}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu , mais aussi les isotopes impair-impair ^{230}Pa , ^{236}Np , ^{242}Am . Des noyaux de masse plus faible que les actinides ne peuvent pas fissionner après capture d'un neutron ($\frac{Z^2}{A} > 37$), et les actinides de masse très élevées (Cf, Bk, ...) sont instables par fission spontanée (sans ajout de neutron).

Les collisions et captures de neutrons sur les noyaux de combustible et de modérateur sont classées selon le tableau 1 ci-dessous, en fonction de l'utilité de la collision pour les fonctions de libération d'énergie ou de ralentissement de neutrons.

Tableau 1

<p>Collisions capturantes</p>	<p>a) Captures fissiles \longrightarrow (fission U5 ou Pu)</p> <p>b) Captures fertiles \longrightarrow (fertile \rightarrow fissile)</p> <p>c) Captures stériles \longrightarrow</p>	<p>{ — Energie</p> <p>{ — Emission de 2,4 à 2,9 neutrons de 2^{ème} génération</p> <p>{ U8 \rightarrow Pu } Nouveaux noyaux { Th \rightarrow U3 } fissiles</p> <p>{ Simple isotope radioactif.</p> <p>{ Le neutron initiateur est perdu sans profit</p>
<p>Collisions non capturantes</p>	<p>d) Chocs élastiques dans un modérateur</p>	<p>{ — Ralentissement des neutrons à énergie décroissante</p> <p>{ — Diffusion à énergie moyenne constante</p>

Le bilan d'énergie d'une fission d'uranium 235 est dans le tableau 2 ci-dessous :

Tableau 2

• Energie totale libérée	200 MeV (ou 30 pico joules)
• Energie emportée sous forme d'énergie cinétique des fragments de fission	166 MeV
• Energie sous forme de rayonnements divers (γ , β , ...)	29 MeV
• Energie cinétique des neutrons produits :	5 MeV, sous forme de 2,5 neutrons de 2 MeV

Cette dernière fraction de l'énergie émise, quoique faible, est essentielle à l'organisation de réactions de fission en chaîne. Pour un neutron qui est consommé dans une fission, celle-ci libère en moyenne 2,5 neutrons, soit un net excédent positif. Un réacteur nucléaire est un milieu organisé de façon à ce que chaque neutron capturé qui a mené à une fission soit exactement remplacé par un neutron de même énergie qui induira à son tour une fission de 2^{ème} génération, et ainsi de suite. Les pertes de neutrons par captures fertiles ou stériles dans l'ensemble des matériaux ou par fuite hors du réacteur sont calculées pour compenser exactement l'excédent de neutrons fourni par la multiplicité $\nu = 2,5$ de la fission.

On définit plusieurs facteurs de multiplication neutronique ou multiplicités. La multiplicité notée ν est le nombre moyen de neutrons émis par fission. C'est une constante physique propre à chaque isotope. La multiplicité notée η' est le nombre moyen de neutrons émis par capture sur un noyau fissile, que celle-ci soit fissile ou non. On a donc nécessairement $\eta' < \nu$. La multiplicité notée η concerne un combustible comportant plusieurs isotopes, fertiles ou fissiles, et en mesure le nombre moyen de neutrons émis par capture, que celle-ci ait lieu sur un noyau fissile ou fertile, et qu'elle donne lieu ou non à une fission. Contrairement à ν et η' , la multiplicité η peut être modifiée en modifiant la composition isotopique du combustible. C'est le but de l'étape de « l'enrichissement » du combustible en isotopes fissiles.

Le tableau 3 donne les valeurs de ν et η' pour les principaux noyaux fissiles et la figure 1 donne la variation de η en fonction de la composition isotopique de l'uranium.

Tableau 3

Elément fissile	η' Fissions thermiques	η' Fissions rapides
^{233}U	2.26	2.31
^{235}U	2.06	2,18
^{238}U	0	1,07
^{239}Pu	2.04	2,74

Le bilan des neutrons sur une réaction en chaîne bouclée se mesure par le facteur de multiplication k , qui est le rapport du nombre de neutrons utiles (= donnant lieu à fission) de la génération (n+1) au nombre de neutrons mesuré pour la génération (n). Un réacteur en production stable satisfait par définition $k=1$.

3- PRINCIPE DES REACTEURS NUCLEAIRES

L'agencement d'un réacteur est guidé par le choix de l'énergie des neutrons à laquelle on souhaite provoquer les fissions, ou de façon presque équivalente par le choix de la valeur de la section efficace de fission. La valeur maximale de σ_{nf} (quelques centaines de barns), qui décroît globalement avec l'énergie, est atteinte pour des neutrons à température ambiante, dits thermiques ($E_n = \frac{1}{40}$ eV $\equiv T = 300$ K). Ce choix suppose de ralentir les neutrons, émis à 2 MeV après la fission, jusqu'à l'énergie thermique, soit diviser son énergie par 100 millions. C'est le premier rôle du modérateur. L'autre choix typique est d'utiliser les neutrons à l'énergie à laquelle ils sont produits. Pour ces neutrons dits rapides, la section efficace est de l'ordre de quelques barns. L'écart avec la section efficace thermique est compensé d'une part par un flux de neutrons plus élevé dans le réacteur, d'autre part par le fait que les isotopes qui ne sont que fertiles à l'énergie thermique deviennent fissiles à plus haute énergie, assurant une bien meilleure utilisation du combustible dans son ensemble. Il n'y a pas de modérateur dans ce cas. Les réacteurs qui dominent aujourd'hui la production d'énergie sont pour l'essentiel des réacteurs à neutrons thermiques sous-modérés, où l'on accepte de ne pas maximiser σ_f (ce qui correspondrait à la thermalisation complète) pour assurer une stabilité intrinsèque du réacteur, gage de sécurité.

4- LA FORMULE DES QUATRE FACTEURS

La figure 2 illustre le cycle complet que doivent parcourir les neutrons dans un réacteur à uranium et neutrons thermiques pour boucler la réaction en chaîne avec $k=1$. Dans un réacteur supposé sans fuites de neutrons (réacteur infini, de facteur k_{∞}), on peut décomposer ce cycle en quatre étapes distinctes (au prix de quelques approximations acceptables) :

- Un neutron d'énergie E_{th} est capturé dans le combustible et produit en moyenne η neutrons rapides de 2 MeV.
- Ces neutrons rapides, avant de quitter le combustible, induisent dans celui-ci des fissions dites rapides, principalement sur ^{238}U qui est fissile à ces énergies et qui domine la composition du combustible. Il y a aussi quelques fissions rapides sur ^{235}U . Le facteur multiplicatif de neutrons par fission rapide est noté ϵ .
- La phase de ralentissement des neutrons s'effectue dans le modérateur, avec une probabilité que les neutrons échappent aux absorptions résonantes ou « trappes » du combustible (constitué pour l'essentiel de ^{238}U et qui n'est pas spatialement complètement isolé du modérateur). La probabilité « anti-trappe » est notée p .
- Une fois thermalisés, les neutrons diffusent à énergie moyenne constante jusqu'à être capturés dans le combustible. Le facteur d'utilisation thermique f mesure la probabilité que la capture ait bien lieu dans le combustible et non dans le modérateur lors de la diffusion ou dans d'autres matériaux absorbants.
- La boucle est alors bouclée, ce qui s'écrit :

$$k_{\infty} = \eta \epsilon p f$$

C'est la formule des quatre facteurs.

Dans cette description simple, le pilotage du réacteur se fait en variant f par introduction contrôlée d'absorbants soit sous forme liquide (bore dans l'eau du modérateur/caloporteur), soit sous forme de barres d'absorbants solides (cadmium p.ex.). Cette formule suppose un découplage parfait des fonctions de ralentissement et de diffusion des neutrons par le modérateur, ce qui est une simplification, notamment pour les réacteurs sous-modérés où l'on ne cherche pas la thermalisation complète.

Les facteurs η et ϵ sont fixés par le choix de la composition isotopique du combustible. Les facteurs p et f , aux réglages près, sont fixés conjointement par le choix des volumes respectifs de combustible et de modérateur (ou rapport de modération) et par le choix de l'hétérogénéité du mélange combustible/modérateur, mesuré par le rapport du flux moyen de neutrons dans le combustible au flux moyen de neutrons dans le modérateur. Ce rapport de flux, ou facteur de désavantage, est toujours inférieur à 1 car le combustible est plus capturant que le modérateur ; il est d'autant plus faible que l'arrangement du combustible et du modérateur est plus hétérogène. C'est en fait le produit pf qui est optimisé par le choix des volumes et de l'architecture de l'ensemble combustible/modérateur.

Dans cette présentation, le passage du réacteur infini au réacteur réel se fait en introduisant les probabilités de fuite de neutrons rapides (notée f_r) et de fuite de neutrons thermiques (notée f_t), soit en résumé :

$$k_{eff} = \eta \epsilon (1 - f_r) \cdot p \cdot f \cdot (1 - f_t)$$

Un réacteur réel fonctionne à $k_{eff} = 1$; soit $k_{\infty} > 1$.

La figure 3 illustre graphiquement les valeurs typiques des différents facteurs pour un réacteur à neutrons thermiques.

Le réacteur à neutrons rapides, où l'on cherche à éviter la modération, est décrit par les formules :

$$k_{\infty} = \eta f^*, \text{ et } k_{eff} = \eta f^* (1 - f_t)$$

où f^* est le facteur d'utilisation des neutrons rapides. Cette vision d'un réacteur rapide à neutrons monocinétiques est, bien entendu, très simplificatrice.

5- FLUX NEUTRONIQUE ET MODERATEUR

Nous supposons que l'on peut séparer la phase de ralentissement (de 2 MeV à $\frac{1}{40}$ eV), et la phase de diffusion à énergie moyenne constante ($\frac{1}{40}$ eV).

Le ralentissement a lieu par des collisions répétées des neutrons avec les noyaux modérateurs. Il est d'autant plus efficace que le modérateur est plus léger, suivant les règles de la cinématique classique. Dans un modérateur à base de carbone (graphite), il faut en moyenne 115 chocs pour thermaliser un neutron. Il n'en faut plus que 25 si le modérateur est le deutérium contenu dans l'eau lourde (D_2O) et seulement 18 si le modérateur est l'hydrogène de l'eau ordinaire. Le combustible lui-même est un très mauvais modérateur, puisqu'il faudrait 2172 chocs en moyenne pour thermaliser un neutron par de ^{238}U . La longueur « à vol d'oiseau » du trajet en zig-zag parcouru lors du ralentissement est respectivement de 187 mm pour le graphite, 110 mm pour l'eau lourde et 57,5 mm pour l'eau ordinaire.

La longueur du trajet de diffusion résulte d'une compétition entre le coefficient de diffusion dans le modérateur, à énergie constante, et la section efficace d'absorption par le modérateur. Elle est de 520 mm dans le graphite, de 100 mm dans l'eau lourde et de 28 mm dans l'eau ordinaire, le plus compact des modérateurs.

Un modérateur a trois fonctions :

1. Ralentir les neutrons avec un nombre de chocs minimal (compacité).
2. Diffuser les neutrons avec un minimum d'absorptions parasites dans le modérateur (transparence).
3. Minimiser les captures absorbantes par les résonances épithermiques du combustible, ce qui se fait aussi en minimisant le nombre de chocs.

L'eau lourde est le meilleur des modérateurs en compromis transparence-efficacité. L'eau légère est le plus compact des modérateurs, mais aussi le moins bon du point de vue des absorptions parasites. Le graphite occupe une position intermédiaire.

6- STABILITE ET PILOTAGE D'UN REACTEUR

La production stable d'énergie par un réacteur implique que l'on réalise exactement $k_{eff} = 1$. La réactivité r est définie par $r = \frac{k_{eff} - 1}{k_{eff}}$, et la condition de stabilité

devient $r = 0$. Une réaction en chaîne qui bouclerait à $r > 0$ devrait conduire très rapidement à une divergence exponentielle et donc à un accroissement catastrophique en quelques dixièmes de secondes du flux de neutrons. Tant que r reste inférieur à une certaine valeur β qui dépend du combustible, cette divergence prompte n'a pas lieu. Ceci est dû à une particularité de comportement de certains des fragments de fission, qui sont émetteurs de neutrons retardés. En effet, si la très grande majorité des neutrons émis à la suite d'une fission le font à l'instant même de la fission (10^{-14} s) et sont disponibles après migration, quelques millisecondes plus tard pour une nouvelle fission, une faible fraction de ces neutrons ($\beta = 0,65\%$ pour l'uranium 235) est en fait émise plus tard par des fragments de fission. Lorsque le neutron est émis après une première désintégration β du fragment initial, il accuse un retard qui est la période de la désintégration β qui le précède, et qui peut atteindre la dizaine de secondes. L'existence de neutrons retardés, marginale sur le nombre de neutrons, a un effet essentiel sur le temps moyen entre deux générations de fission, qui peut ainsi être étendu à des dizaines de secondes. Ceci laisse le temps d'agir à des systèmes de contre-réaction mécanique (barres de pilotage) qui peuvent modifier r . L'art du pilotage d'un réacteur est de construire un système qui est sous-critique par rapport au bilan des neutrons prompts, et qui n'atteint la criticité $k_{eff} = 1$ qu'avec l'appoint, certes faible, des neutrons retardés. La condition de pilotage du réacteur est alors de conserver $r < \beta$, en évitant la criticité sur les neutrons prompts seuls ($r \geq \beta$ ou criticité prompte), qui déclencherait un arrêt de sécurité. Traditionnellement, la réactivité se mesure en pcm, ou partie pour cent mille. Dans cette notation, le pilotage d'un réacteur doit maintenir :

$$r < \beta = 650 \text{ pcm} = 0,65\%$$

Les causes d'évolution de la réactivité sont nombreuses. Les évolutions lentes sont liées à l'usure du combustible et à sa conversion en d'autres isotopes, ainsi qu'à l'apparition progressive de produits de fission absorbants de neutrons, ou poisons neutroniques, et aussi d'actinides non fissiles (^{240}Pu , ^{242}Pu ,...). Ces évolutions sont importantes sur la durée de vie du combustible mais sont aisément compensées par un déplacement de barres d'absorbant

dédiées (300 pcm/mois pendant 30 mois). Un cas particulier est l'apparition de poisons neutroniques retardés par une cascade β comportant de longues périodes. L'exemple le plus classique est « l'effet xénon », où une excursion positive de réactivité, compensée en quelques secondes par pilotage, donne lieu quelques heures plus tard à une bouffée d'excès de ^{135}Xe , poison neutronique à forte section efficace de capture. Ce « puits de neutrons retardé » est la mémoire de l'excursion initiale, retardée du temps de production du ^{135}Xe via l'isotope ^{135}I , dont la période de désintégration β est de 6,7 heures.

Les variations plus rapides de réactivité ont pour origine les variations de température du réacteur. L'effet le plus rapide et le plus sensible est l'effet Doppler dans le combustible : une augmentation locale de la température dans le combustible, donc une agitation accrue des noyaux de combustible, a pour effet d'élargir par effet Doppler les bandes d'absorption résonnante des neutrons épithermiques, et donc de faire chuter la probabilité anti-trappe p et par conséquent r , donc la puissance dissipée localement.

Cet effet de contre-réaction physique est immédiat puisque local. L'effet Doppler, dont l'ordre de grandeur est $\left(\frac{\Delta k}{k}\right)_{\text{Doppler}} = -1,8 \text{ pcm}/^\circ\text{C}$, est une composante auto-stabilisatrice essentielle à la régulation d'un réacteur.

L'effet de la température du modérateur est plus lent, en raison de l'inertie thermique propre du modérateur. Lorsque le modérateur est liquide (eau lourde ou ordinaire), l'effet essentiel est la dilatation de celui-ci, donc une chute du rapport de modération. Celui-ci agit à la fois sur p , qui décroît, et sur f , qui croît. Le résultat appelé coefficient de vidange dépend du point de fonctionnement choisi par rapport à la valeur du rapport de modération qui maximise le produit pf . Un réacteur sous-modéré est stable vis-à-vis d'un échauffement du modérateur :

$$\left(\frac{\Delta k}{k}\right)_{lm} < 0, \text{ cependant un excès de modération conduirait à une composante instable de } \left(\frac{\Delta k}{k}\right)$$

L'ébullition du modérateur, cas extrême de dilatation, ne fait pas courir de risque d'emballement à un réacteur à eau sous-modéré, puisqu'à l'excès de chaleur qui provoque l'ébullition répond une chute de réactivité. On a d'ailleurs conçu une filière de réacteurs à eau bouillante (REB ou BWR).

Lorsque le modérateur est solide (cas du graphite), ce n'est plus la dilatation mais la variation d'absorption dans le modérateur qui gouverne la réponse. Dans les réacteurs à uranium naturel et graphite, où l'absorption de neutrons est importante et donc où le produit pf est optimisé, l'échauffement du graphite tend à accroître légèrement la réactivité. L'instabilité potentielle est largement diminuée par la forte inertie thermique du graphite, soumis à des puissances spécifiques jusqu'à cent fois plus faibles que celle des modérateurs à eau. Dans un réacteur rapide, donc sans modérateur, l'effet de la température résulte d'une compétition entre l'accroissement de réactivité par augmentation des captures fissiles et la chute de réactivité par augmentation des captures fertiles. La garantie d'un bilan global négatif oblige à une limite en teneur minimale en combustible fertile présent dans le réacteur rapide. Cette teneur est l'ordre de 50 %.

Le tableau 4 récapitule l'ensemble des variations de réactivité qu'il faut contrôler au cours de la vie du combustible dans un réacteur à eau sous pression. Rappelons que l'ajustement doit se faire à quelques centaines de pcm près autour des évolutions lentes de plus forte amplitude. Ce tableau permet de dimensionner l'amplitude de réglage de réactivité par les barres de contrôle (21 000 pcm dans ce cas).

Tableau 4

Paramètres de la réactivité (REP)	Réactivité en pcm
— Coefficient de température du modérateur : (15 pcm/°C pour un $\Delta\theta = 260^\circ$)	4 000
— Coefficient de température du combustible : (effet Doppler)	1 000
— 11 % de vide (ébullition) :	3 000
— Effet xenon et samarium à l'équilibre :	4 000
— Usure du combustible en 30 mois : (disparition ^{235}U - conversion Pu) = 300 pcm/mois pendant 30 mois	9 000
— <i>Variation totale de k_{eff}</i> :	21 000

Le contrôle de réactivité met en oeuvre plusieurs techniques, adaptées à chacune des fonctions à assurer. Il existe des barres de compensation des usures et des empoisonnements du combustible, à mouvement lent et de grande course. Le pilotage est assuré par des barres peu absorbantes, rapides, à positionnement précis en bout de canal. La fonction d'arrêt de sécurité est assurée par des barres très absorbantes, de mouvement très rapide et de mécanique très sûre, assurant un enfoncement complet qui « étouffe » les réactions en chaîne. Dans certaines filières, on injecte un absorbant liquide (bore sous forme d'acide borique) dans le modérateur liquide, ce qui assure une diffusion homogène et rapide. C'est à la fois un mécanisme de contrôle fin de la réactivité (- 10 pcm/ppm de bore) et un mécanisme de sécurité très simple et fiable par déversement massif de bore, sans faire appel à des mouvements mécaniques qui pourraient être bloqués après un tremblement de terre ou le retournement d'un bateau. La dernière pièce de l'arsenal des moyens de contrôle est l'ajout au combustible de poisons neutroniques de très forte section efficace (Gd, Er, ...), dits poisons consommables car ils sont très absorbants en début de cycle, où la réactivité du combustible est forte; ils sont « consommés » plus rapidement que le combustible, pour quasiment disparaître en fin de vie du combustible, lorsque la réserve de réactivité est faible.

7- LES DIFFERENTES FILIERES DE REACTEURS

La combinatoire de toutes les filières imaginables est considérable. On peut en effet choisir à priori indépendamment l'isotope fissile (^{233}U , ^{235}U , ou ^{239}Pu), l'isotope fertile (^{232}Th ou ^{238}U), l'énergie des neutrons (thermiques, rapides, voire même de spallation), le modérateur (H_2O , D_2O , graphite, néant), la géométrie de disposition du combustible et du modérateur (homogène, hétérogène, intermédiaire), le caloporteur (H_2O , D_2O , CO_2 , He, Na liquide, Pb liquide, sels fondus, ...) le nombre de barrières de confinement (1 à 3), soit selon cette liste non exhaustive au moins 4536 variantes. Bien entendu, de nombreuses combinaisons sont impossibles et bien d'autres n'ont pas d'intérêt industriel.

Les choix de base sont d'opter pour le cycle de combustible U/Pu ou pour le cycle Th/U et de fixer l'énergie à laquelle se produit la fission. Le cycle Th/U n'a jamais dépassé le stade expérimental, il implique nécessairement un fonctionnement en surgénération car ^{233}U n'existe pas sur Terre. Le cycle Th/U est le seul pour lequel la surgénération soit possible quelle que soit l'énergie des neutrons, quoique le bilan des neutrons thermiques soit délicat à boucler. Le cycle U/Pu est utilisé surtout avec des neutrons thermiques; une fraction majoritaire de fissions provient de ^{235}U , le reste provenant du ^{239}Pu créé par conversion de ^{238}U . L'utilisation avec des neutrons rapides correspond à la fission majoritaire de ^{239}Pu , la régénération à partir de ^{238}U pouvant être réglée de façon à consommer le Pu ou à le surgénérer. Seules, quelques unités de ce type sont couplées au réseau et fonctionnent en expérimentation ou en démonstration. Cette filière possède l'avantage décisif de ne pas limiter la combustion de l'uranium à un taux de quelques pour-cents, et de permettre en principe la combustion quasi-totale de l'uranium (^{235}U et ^{238}U); ce qui revient à multiplier les réserves d'énergie nucléaire par un facteur 50 à 100.

Dans les réacteurs à production d'énergie, on privilégie le nombre de fissions et la durée du combustible plutôt que le flux de neutrons. Le combustible contient donc des noyaux fertiles. Dans les réacteurs de recherche, où l'on veut créer de forts flux de neutrons et où la puissance dégagée est une gêne, le combustible est très fortement enrichi en ^{235}U fissile, et l'on évite les fertiles.

Le choix du modérateur est en fait couplé avec celui du caloporteur. Les combinaisons où le combustible, le modérateur et le caloporteur sont trois éléments distincts, sont à proscrire, car elles comportent le risque intrinsèque de disparition du caloporteur alors que le combustible et le modérateur restent en présence, donc que de la puissance est dégagée. C'est la configuration des réacteurs RBMK, dont Tchernobyl est le triste exemple : combustible uranium, modéré au graphite et refroidi à l'eau. Le refroidissement du graphite par un gaz ne pose pas de problèmes aussi critiques car on n'y rencontre pas la transition brutale liquide/gaz ou liquide/vide du caloporteur, qui engendre un saut brusque de température.

Le couplage habituel est de prendre l'eau (lourde ou ordinaire) comme modérateur et caloporteur. Lorsque l'on recherche la compacité, l'eau ordinaire est le meilleur choix. L'utilisation de l'eau lourde, moins absorbante, permet l'utilisation de l'uranium naturel comme combustible, en permettant de boucler un bilan neutronique très sensible aux pertes.

L'autre couplage possible est l'association du combustible et du caloporteur, sous forme de sels fondus. Le modérateur est alors solide (graphite). Cette filière n'a jamais dépassé le stade expérimental, malgré des avantages intrinsèques importants : possibilité de régénération continue du combustible (extraction des poisons et rechargement en combustible frais), adaptation à tous types de combustibles (U, Th, Pu) mais avec un handicap majeur lié à sa faible maturité technologique

Bien d'autres contraintes interviennent dans la sélection des filières, notamment d'origine chimique (p.ex. incompatibilité sodium/eau) ou technologique (p.ex. températures maximales admissibles). Les filières réellement exploitées se limitent à quelques-unes, avec une majorité écrasante pour les réacteurs à neutrons thermiques et uranium légèrement enrichi, refroidis et modérés à l'eau ordinaire (REP, REB). Le tableau 5 ci-dessous récapitule les filières ayant atteint au moins le stade du prototype industriel et le tableau 6 donne les noms et les puissances installées dans le monde en 1993.

Tableau 5

Type de réacteur	Elément fissile	Elément fertile	Energie neutrons	Caloporteur	Modérateur
Piscine	U5	—	thermiques	H ₂ O	H ₂ O
Eau légère	U5	U8	thermiques	H ₂ O	H ₂ O
Eau lourde	U5	U8	thermiques	D ₂ O	D ₂ O
Graphite-gaz-U _{nat}	U5	U8	thermiques	CO ₂	graphite
Haute température	{ U5	{ U8 }	thermiques	He	graphite
Surgénérateur	{ U3	{ Th }			
Sel fondu	Pu9	U8	rapides	sodium	néant
	tous	tous	th ou r	sel fondu	graphite

Tableau 6

Dénomination courante	Sigle français	Sigle international	Gwé installés
Pile-piscine	—	—	0
Réacteur à uranium naturel modéré au graphite	UNGG	UNGG	14
Réacteur à eau lourde	REL	HWR	18
Réacteur à eau légère sous pression	REP	PWR	183
Réacteur à eau bouillante	REB	BWR	75
Réacteur à haute température	RHT	HTR	0
Surgénérateurs	RNR	LMFBR	2.4

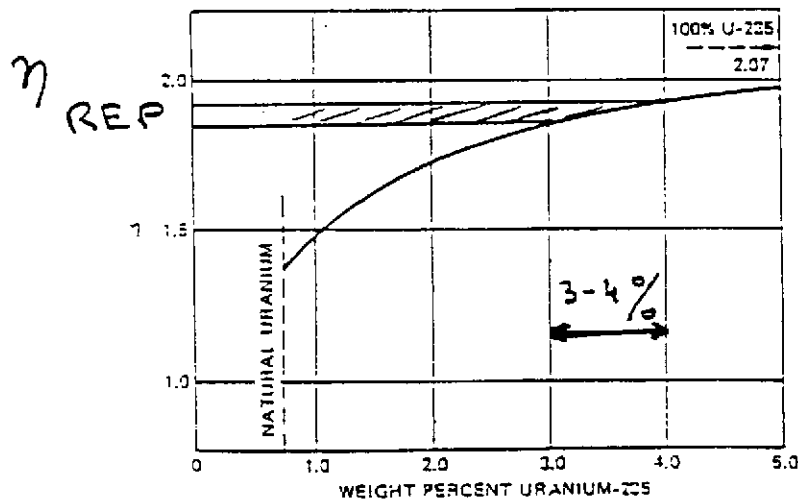
Multiplicité η (combustible)

$$\eta = \frac{\text{Neutrons produits par fission}}{\text{Neutrons absorbés}}$$

$$= \nu \frac{\Sigma_f}{\Sigma_a} \rightarrow \text{pour le combustible (fissile + fertile + stérile)}$$

p. ex: $\eta(U) = \nu^{235} \frac{\Sigma_f^{235}}{\Sigma_a^{235} + \Sigma_a^{238}}$

Values of η as a function of uranium-235 content for 0.0253-eV neutrons.

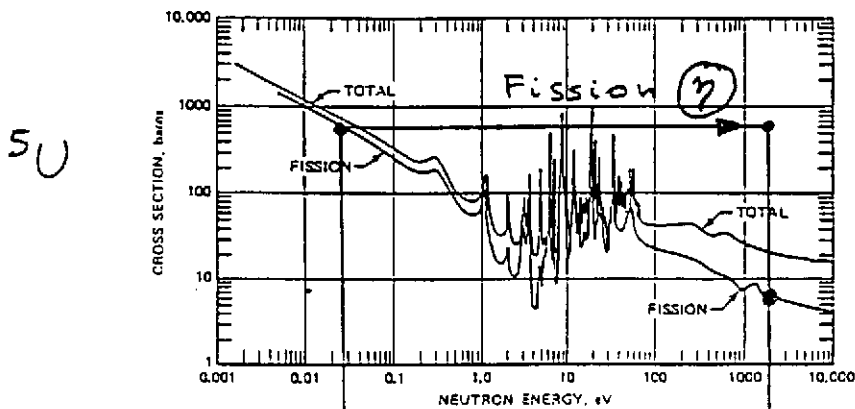


Enrichissement Isotopique $\frac{^{235}\text{U}}{^{235}\text{U} + ^{238}\text{U}}$

Figure 1

EQUILIBRE DU REACTEUR INFINI
(sans fuite)

Fig. 2.18. Total and fission cross sections of uranium-235 as functions of neutron energy.



Diffusion
(P)

$$R_{\infty} = \eta \epsilon P F$$

Fission rapide
(E)

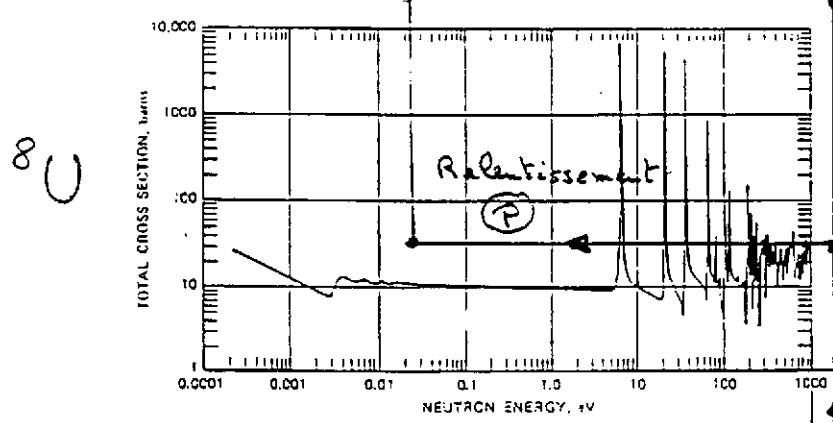
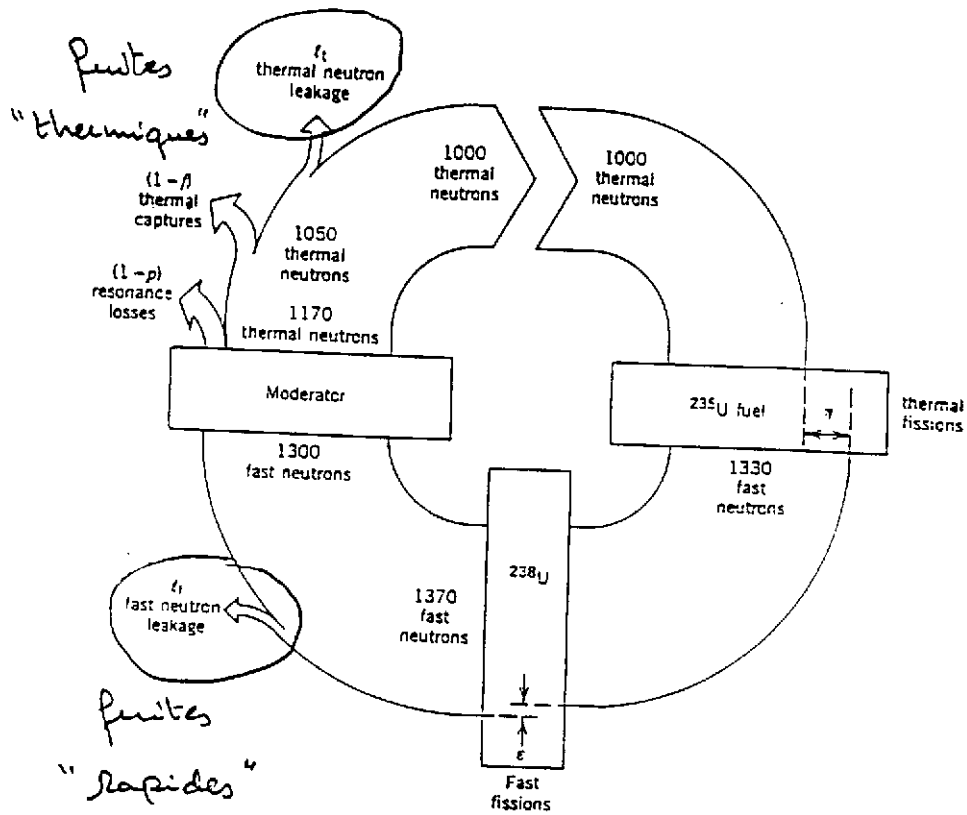


Fig. 2.17. Total cross section of uranium-238 as a function of neutron energy.

$T_p(^{80}U)$

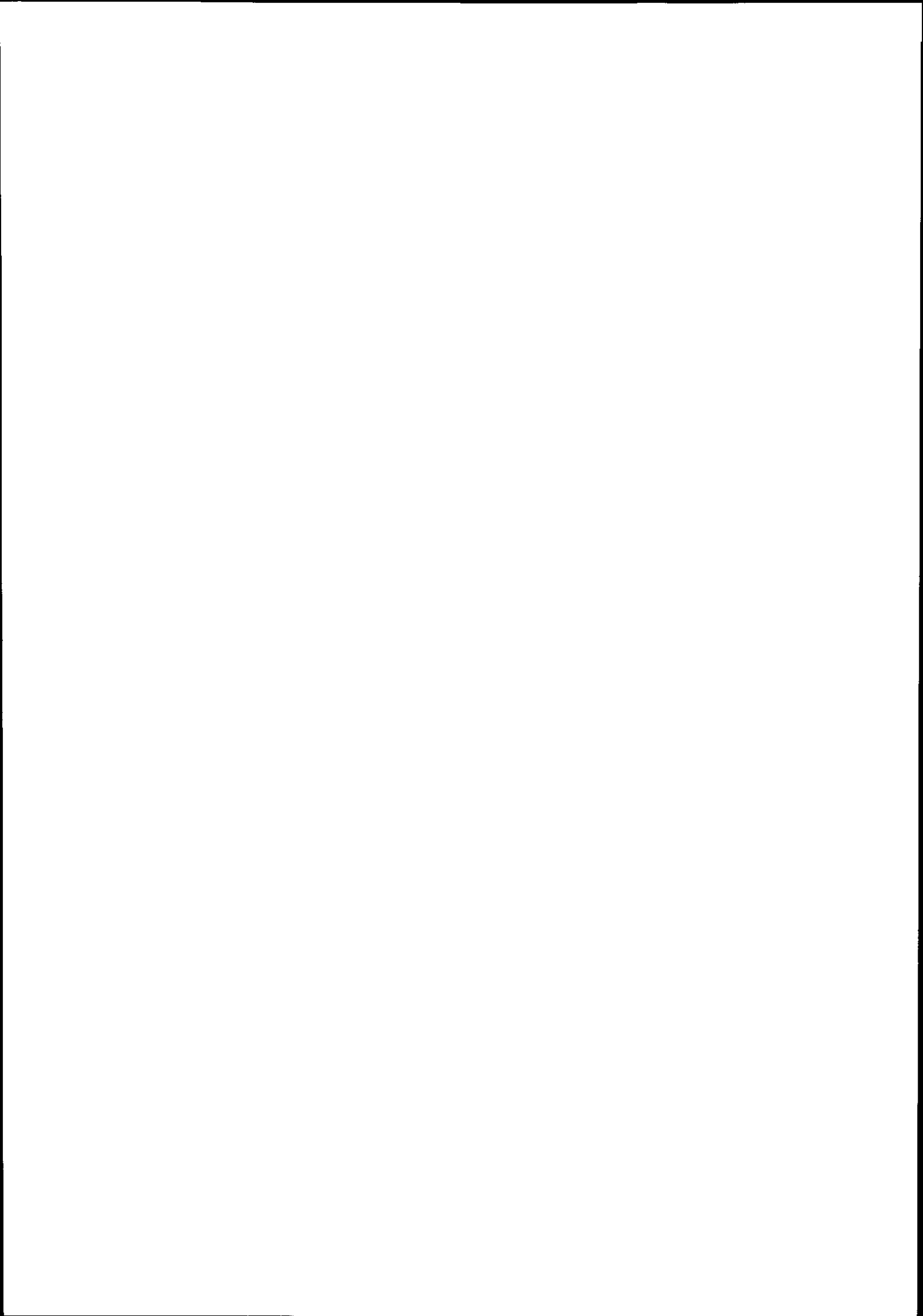
Figure 2

EQUILIBRE DU REACTEUR REEL



$$k_{\text{eff}} = \eta \epsilon (1 - p_f) \cdot P \cdot f \cdot (1 - l_{th})$$

Figure 3.



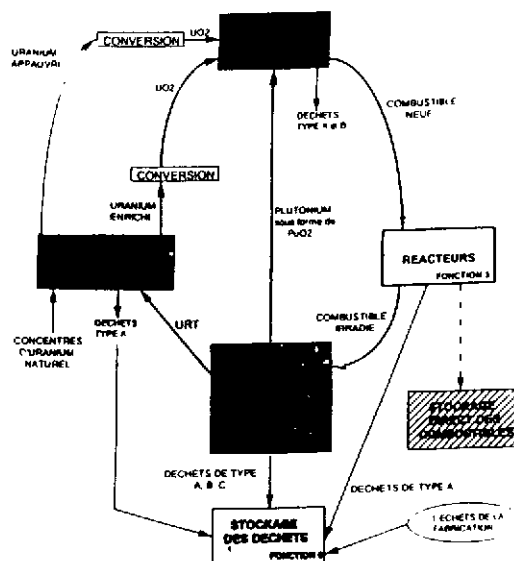
Les solutions étudiées : améliorations et options innovantes

Les améliorations du cycle actuel

Marc DELPECH
DER/SPRC/LEDC
CEA CADARACHE

Introduction

Les améliorations du cycle actuel couvre la vie d'un combustible industriel, de sa fabrication à son retraitement. Le coût du cycle du combustible correspond au tiers du prix de vente de l'électricité. Il couvre l'extraction du minerai, sa transformation, son enrichissement en matière fissile, sa fabrication sous forme de crayon et d'assemblage ainsi que son retraitement. A la fabrication, le combustible standard Uranium est assez peu actif. En réacteur, le combustible se transforme par perte de matière fissile et production d'autres isotopes fissiles ou fertiles. Le cycle présenté ici concerne les opérations de l'extraction à l'enfouissement (voir schéma ci-après) :



Les étapes du cycle sont donc la fabrication, le passage en réacteur, le retraitement et le stockage.

Plusieurs objectifs peuvent être assignés pour l'amélioration du cycle actuel :

- améliorer la gestion de l'aval du cycle (minimiser les déchets au retraitement, leur volume, leur nocivité),
- améliorer l'économie et l'utilisation des ressources de matière naturelle
- améliorer la sûreté en réacteur et hors réacteur.

Les voies d'amélioration sont d'ampleurs plus ou moins limitées (de l'évolution à une révolution) et mettront en avant des solutions plus ou moins avancées. Il reste néanmoins une constante : la nécessité d'un stockage. En effet, les matériaux du retraitement, radioactifs, ne sont pas en totalité sujet à la transmutation et à la transformation en un temps court en éléments peu radioactifs. Il est nécessaire de disposer d'un stockage souterrain.

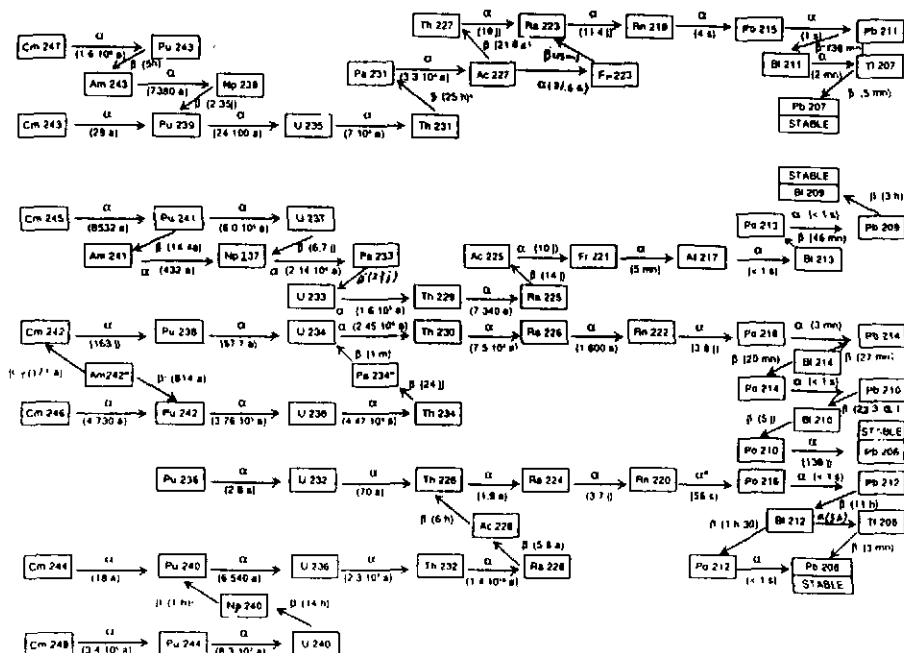
Les améliorations sont conduites par la physique du neutron et des noyaux composant le combustible. Le combustible subit des réactions nucléaires qui auront un impact à chaque étape du cycle. Il est donc utile d'évaluer cet ensemble afin d'améliorer le cycle actuel et de se donner des critères de comparaison dans les étapes du cycle avant de proposer des améliorations ou innovations.

Objectifs de l'amélioration du cycle

La nécessité d'une amélioration du cycle actuel n'est pas si évidente. En effet, l'industrie nucléaire gère ses déchets en Europe Occidentale avec rigueur et produit de moins en moins de déchets par rapport à l'énergie produite.

En fait, les objectifs sont de répondre à des demandes sociales et économiques à long terme, de répondre à des demandes industrielle à court terme. Selon les axes d'amélioration, les objectifs sont différents car répondant à des contraintes particulières :

Pour l'aval du cycle, l'évolution des nucléides sous irradiation et hors irradiation entraîne des conséquences sur les activités dans les usines du cycle. La décroissance hors flux (en dehors du réacteur) est identique quelque soit le réacteur qui a irradié le combustible et produit l'énergie. Cette décroissance comprend 4 chaînes découplées (voir figure ci-après). Par contre, la formation des isotopes est fortement liée au réacteur d'irradiation (type de spectre, densité en neutron) par l'intermédiaire des sections efficaces de capture et de fission. Les spectres de type rapide favorisent, en relatif, la fission des isotopes et les spectres de type thermique, les captures.



L'ensemble formé par la formation sous irradiation et hors irradiation constitue le combustible irradié plus ou moins radioactif et radiotoxique.

Pour l'économie de ressources naturelles, il existe deux étapes :

- une première pour l'utilisation optimale d'un combustible UOX (Oxyde d'Uranium) [A.1],
- une deuxième par l'utilisation de la matière fissile contenue dans du combustible irradié, le Plutonium qui permet des gains de 20% en Réacteur à Eau sous Pression (REP) à 10 ou plus en Réacteur à Neutron Rapide (RNR). Un combustible irradié UOX contient environ 1% en masse de Plutonium [A.2].

Pour la sûreté des réacteurs, il s'agit d'améliorer le comportement du combustible en réacteur par une meilleure utilisation des assemblages [A.3], une augmentation de la souplesse de fonctionnement (suivi de charge) et par une diminution des pénalités de fonctionnement dues à des conservatismes parfois contraignant qui pourraient être ajustés.

En terme de non-prolifération, deux stratégies sont caricaturales vis à vis du Plutonium. L'une consiste à ne rien vouloir faire et donc à laisser le Plutonium parmi les autres déchets et l'autre, par un retraitement et réutilisation du Plutonium, de le dégrader et de le rendre plus difficile à utiliser à des fins pacifiques.

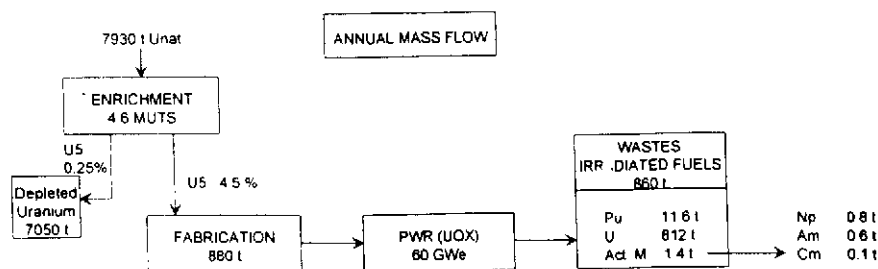
Critères d'évaluation

Les critères d'évaluation permettent de choisir une solution adaptée aux objectifs. Ces critères couvrent la faisabilité dans les postes du cycle, en réacteur, au stockage. Les différents critères sont les flux massiques dans les opérations du cycle, la faisabilité en réacteur, le gain en énergie et en ressource naturelle et les conséquences au stockage. Le schéma suivant pour un cycle dit ouvert (sans retraitement) est un bon exemple de caractérisation des flux massiques dans le cycle.

schéma scénario cycle ouvert

FIGURE 1
PARK OF PWRs (60 GWe) - 400 TWh/year
Burn-up = 55 GWD/t Frequency = 6

1. OPEN CYCLE



Le choix de la normalisation est important. La normalisation des effets à l'énergie produite ou à la masse de combustible permet de comparer une large gamme de solutions. Toutefois, certains objets *insolites* tel que des cibles de transmutation demandent de réadapter ces normalisations.

De plus, le choix des éléments peut se faire sur une partie ou l'ensemble des transuraniens, sur les produits de fission à vie longue ou l'ensemble des produits de fission. Ces éléments présentent des caractéristiques en réacteur, au retraitement et au stockage différentes et imposent des contraintes d'ordre différentes sur l'ensemble du cycle : Puissance résiduelle, Activité, Migration et retour à la biosphère, ...

Le Plutonium est la matière principale dans le retraitement car il présente un potentiel énergétique non négligeable et il est le principal contributeur à la radiotoxicité et l'activité du combustible irradié standard UOX.

Etape de mise en oeuvre

Aujourd'hui, 7 réacteurs sur les 16 autorisés de type CPY 900 (900MWe) ont des chargements partiels en combustible de type MOX. Les limitations de l'utilisation de combustible MOX en REP sont :

- » les limitations en réacteurs
 - 30% ass. MOX, 5.3% en Pu total
- » les limitations dans le cycle (fabrication, retraitement)
 - 12% Pu total, de 50 à 170 Tonnes/an de combustible,
 - 5% en ²³⁸Pu

Le retour d'expérience en REP porte sur environ 500 assemblages MOX irradiés, 10 Tonnes de Pu et 200 T de combustible MOX fabriqué. Le combustible irradié présente un taux de combustion maximal (Energie dégagée) de 44000 MWj/tML (mégawatt Jour par tonne de Métal Lourd). Celui des RNR concerne 800 assemblages dans

PHENIX correspondant à 31 Tonnes de Pu pour un taux de combustion maximal de 140000 MWj/t (mégawatt Jour par tonne d'Oxyde). Pour SUPERPHENIX, ceci concerne 31 Tonnes de combustible (Oxyde) et 625 assemblages. Pour l'utilisation en REP, un critère de EDF (exploitant) est de conserver la même souplesse d'utilisation des assemblage dit UOX et MOX. L'utilisation du Plutonium doit être transparente pour la gestion des centrales. Le retour d'expérience sur ce point est positif.

Etape de mise en oeuvre

Aujourd'hui, en réacteur :

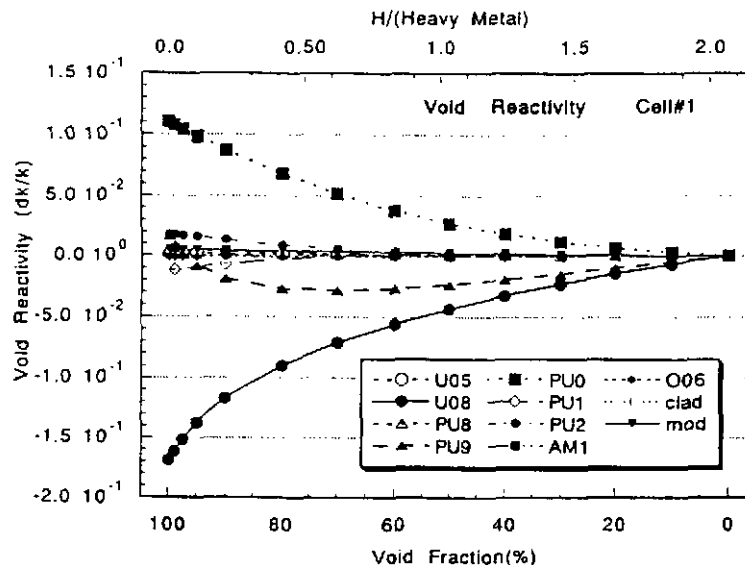
Afin de respecter les critères de sûreté des REP, le **trizonage** de l'assemblage MOX a été nécessaire. Il est dû à un spectre de neutron en énergie [A.4] très différents entre le combustible UOX et MOX. En effet, le chargement partiel à 30% d'assemblage MOX dans un coeur conduit à avoir des interfaces entre les assemblages UOX et MOX [A.5]. Cette écart de spectre conduit à avoir, aux interfaces et dans l'assemblage MOX, un niveau de flux de neutrons d'énergie thermique supérieur à celui qui serait présent sans interface avec un assemblage UOX. En effet, le spectre UOX présente un nombre de neutron plus élevé dans le domaine thermique qui, conjointement à des sections efficaces de capture et de fission des isotopes du Plutonium élevées dans ce même domaine d'énergie, conduisent à des pics de puissance dans l'assemblage MOX. Pour limiter ces pics de puissance, la teneur massique en Plutonium est réduite pour la zone périphérique de l'assemblage.

Une autre différence est la perte de réactivité sous irradiation des deux types de combustibles [A.6]. Ces différences conduisent à zoner l'assemblage et à ajuster la teneur en Plutonium afin de ne pas pénaliser le réacteur.

Les différences physiques des sections efficaces entre les isotopes du Plutonium (combustible MOX) et de l'Uranium (combustible UOX) ont pour conséquences des comportements différents du combustible en fonction des températures et de la densité du modérateur. Un réacteur est stable lorsque les coefficients sont négatifs, soit : une augmentation de température ou une diminution de densité diminue la réactivité (et la puissance). Parmi les transitoires importants pour la faisabilité et qui sont limitatifs lors de l'utilisation du Plutonium, les trois principaux sont l'effet de vidange, le transitoire de refroidissement et l'éjection de grappe.

L'effet de vidange en REP peut être positif par l'utilisation du Plutonium. C'est un phénomène de petit effet avec des contributions de fortes amplitudes des isotopes principaux (voir la figure ci-après). En effet, par exemple, l'effet global de la vidange est parfois du même ordre de grandeur que le seul effet de la gaine.

Effet de vidange



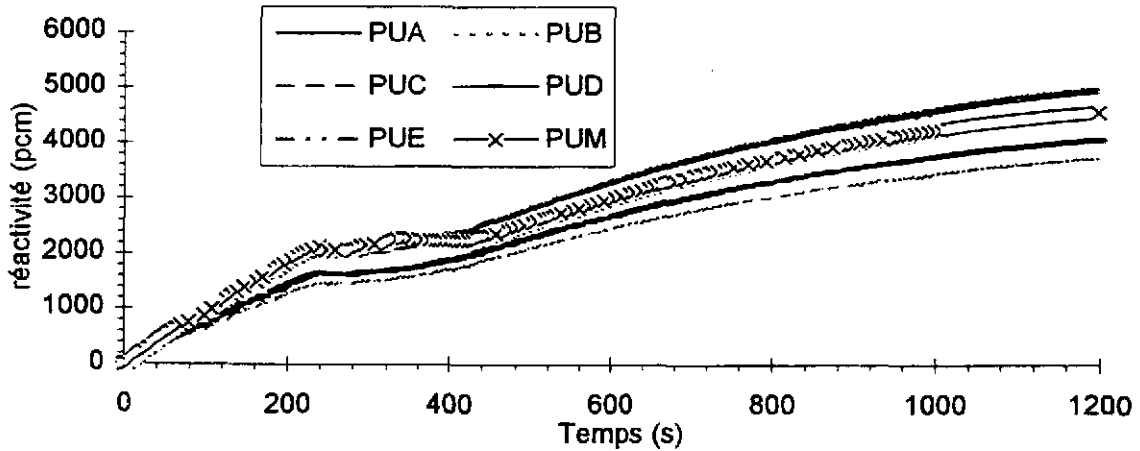
Les transitoires de refroidissement sont pénalisés par l'utilisation du combustible Plutonium. Deux effets :

l'effet de la diminution du contrôle lors du Plutonium (moins d'antiréactivité initiale)

l'effet du coefficient de température du modérateur, plus négatif qui conduit à une cinétique plus rapide.

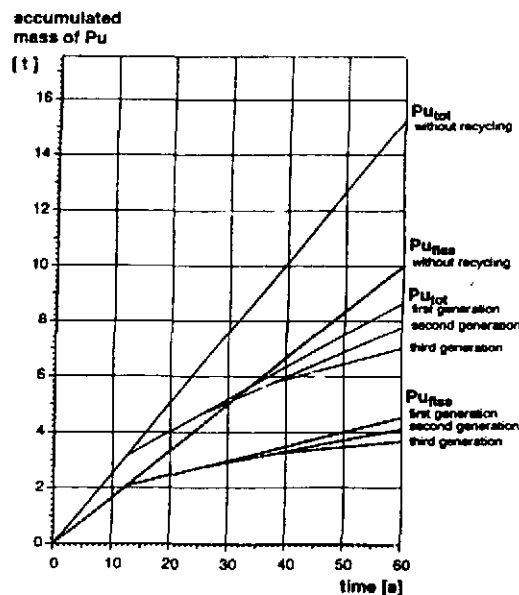
En conséquence, le réacteur peut atteindre un état surcritique lors du transitoire, ce qui n'est pas autorisé (voir figure ci-après).

Transitoire de refroidissement



En RNR, le recyclage du Plutonium n'est pas pénalisant sur la sûreté de fonctionnement. En effet, c'est le combustible de base de ce type de concept. Les concepts RNR brûleurs sont limités par les effets de la teneur en Plutonium sur l'effet Doppler et l'effet de vidange.

Le recyclage du Plutonium à l'équilibre est réalisable à long terme. Les études de scénarios permettent de caractériser cet équilibre et sa faisabilité. Toutefois, le recyclage dans des réacteurs actuel est limité. D'autres concepts de coeur ou de combustible permettent d'assurer la faisabilité en REP ou RNR Une image des gains de masses au stockage avec recyclage est présentée dans la figure ci-après :



Pour les études de scénarios, la cohérence des approches asymptotiques ou de transitoires plus réalistes aboutissent qualitativement aux mêmes états d'équilibre.

Le recyclage du Plutonium a des **conséquences au retraitement**. Celles-ci sont connues car ce retraitement est effectif pour le combustible UOX irradié. La Hague retraite 1600 Tonnes de combustible par an.

Le domaine de **qualification** des outils permet de s'assurer des améliorations à apporter au cycle. Les outils tels que les **réacteurs expérimentaux**, les réacteurs industriels et les **accélérateurs** permettent de définir des domaines de qualification des outils de calcul. Les **exercices internationaux** (benchmark) élargissent cette base et ont souvent pour objectif d'établir des conclusions physiques communes, mieux comprises et argumentées.

Sur cette base, quels axes d'amélioration, innovation pour demain :

En réacteurs :

Dans les REP, l'augmentation du rapport de modération qui a pour effet de thermaliser le spectre (rendre le spectre MOX plus proche de celui de l'UOX), permet d'assurer la faisabilité du recyclage du Plutonium, principalement vis à vis des transitoires de fonctionnement.

Dans les RNR, la recherche de performances accrues répondant aux objectifs est l'axe principal d'amélioration. Ce type de concept présente une grande souplesse d'adaptation.

Par éléments :

Le Plutonium est l'élément principal du retraitement. Toutefois, son utilisation augmente la production d'Américium et Curium. Ce sont donc des éléments à retraiter par la suite du retraitement avec le Neptunium. Les Produits à Fission à Vie Longue sont plus difficiles à incinérer efficacement.

Les conséquences au retraitement de l'incinération des Actinides Mineurs sont très élevés. La réponse à ce problème est la mise en oeuvre d'installations adaptées. La limitation du retraitement de ce type de combustible ouvre la voie du monorecyclage avec des taux de fission élevés.

Les axes d'amélioration, innovation sont donc

- Etude des solutions de recyclage, élément par élément
- Multirecyclage et arrêt
- Voie de recyclage de type homogène ou hétérogène
- Multirecyclage et Monorecyclage
- Compromis entre plusieurs de ces axes

Les solutions

A partir de la physique du neutron et des noyaux pour les différents concepts de réacteurs (REP, REB, RNR, ...), une étude de sensibilité permet de déterminer les paramètres importants par domaine.

Les problèmes sont différents :

- pour les REP - contrôle, coefficient de réactivité
- pour les REB - contrôle, coefficient de réactivité, domaine de fonctionnement
- pour les RNR - effet de vidange, Doppler

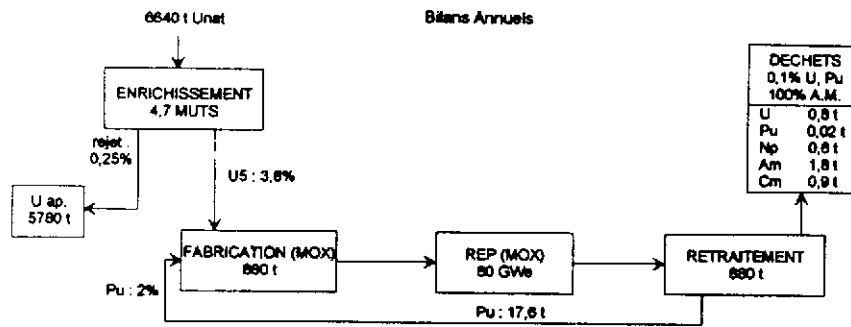
et ceci quelque soit les éléments considérés, Plutonium comme Actinides Mineurs. La dégradation et l'impact négatif sur la faisabilité des Actinides Mineurs est plus sensible que ceux du Plutonium.

Pour les P.F.FV.L., les concepts sont assez peu performants.

Pour chacune des solutions, par concept, par type de recyclage, un remontage permet de quantifier les impacts sur le cycle et le stockage, à l'équilibre puis en transitoire, selon plusieurs scénarios. Des exemples sont données dans les figures ci-après :

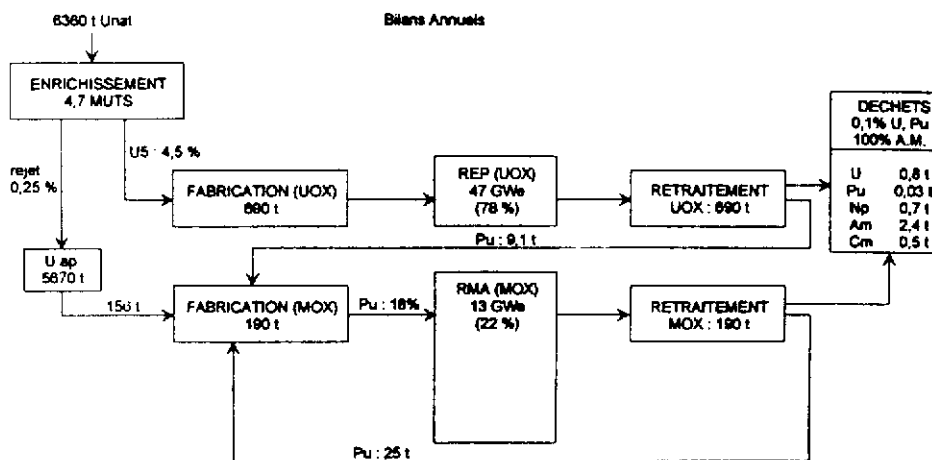
Recyclage en N4, support U enrichi

RECYCLAGE DU Pu DANS TOUT LE PARC REP N4 (rapport de modération : 2, Support : U enrichi)



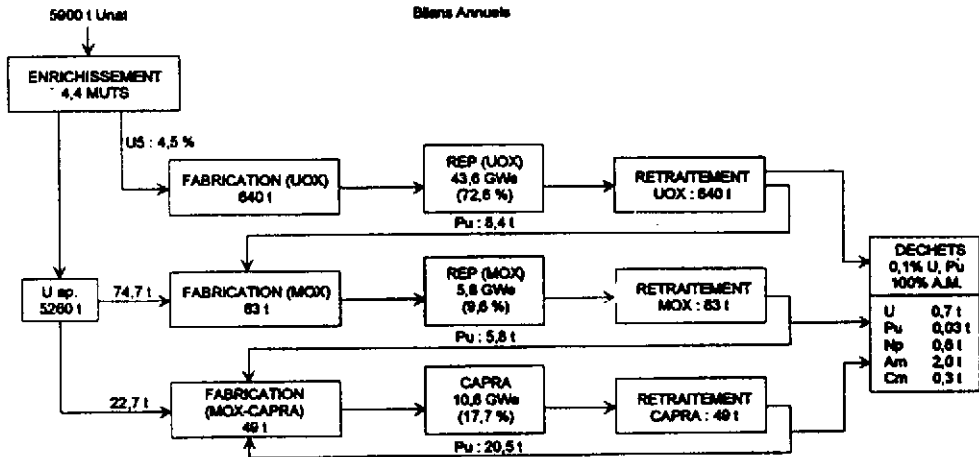
Recyclage en RMA

MULTIRECYCLAGE DU Pu EN RMA (Rapport de modération : 4)



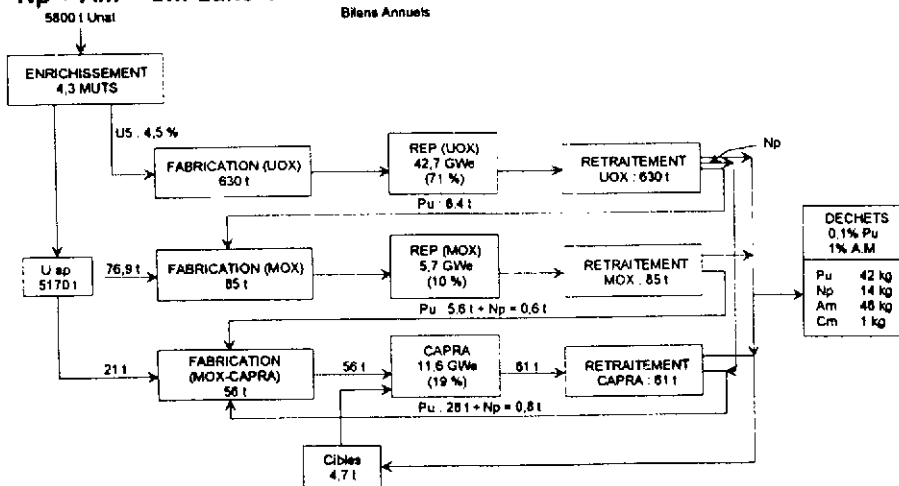
Recyclage en RNR, Pu seul

MULTIRECYCLAGE : Pu 1 fois en REP (MOX) puis n fois en CAPRA



Recyclage en RNR, Pu + A.M.

MULTIRECYCLAGE : Pu 1 fois en REP (MOX) puis n fois en CAPRA, Np + Am + Cm dans CAPRA



Les solutions : trois axes

Les trois axes de recherche en réacteur sont :

d'améliorer la faisabilité en REP par des solutions qui consistent à :

soit diluer le problème dans l'ensemble des réacteurs (minimisation de la masse et des conséquences dans chaque réacteur) - recyclage homogène

soit concentrer dans quelques crayons dédiés (cibles) les éléments à incinérer, sachant que le nombre de ces crayons par réacteur est modulable en fonction des pénalités - recyclage hétérogène

et en parallèle, à définir des options de multirecyclage ou de monorecyclage à haut taux de fission.

d'accroître les performances des RNR

En effet, celui-ci présente des limites supérieures de faisabilité et donc, a une souplesse et une flexibilité intéressante à utiliser pour les problèmes de l'aval du cycle (incinération, transmutation).

d'évaluer le potentiel et la faisabilité des systèmes hybrides sous-critiques. C'est une étape complémentaire dans le cycle dans la mesure où ces systèmes acceptent des combustibles exotiques dédiés à une incinération poussée sous flux.

La recherche sur le combustible est essentielle. Elle porte sur les matrices inertes pouvant supporter des éléments actifs, des taux de fission élevés et sur le comportement du combustible (combustible plus ou moins innovant) sous irradiation dans des conditions normales ou accidentelles.

Les outils expérimentaux

Pour l'ensemble de ces recherches et de ces études, il est nécessaire de disposer d'outils expérimentaux permettant de valider et de confirmer des options. Ces outils sont la base des expériences de physique couvrant les domaines des données nucléaires, le comportement du combustible, la technologie du combustible.

Les moyens au CEA sont

MASURCA et EOLE pour les maquettes critiques (mesure de paramètres intégraux permettant d'évaluer les données de base),

OSIRIS (REP) et SUPERPHENIX et PHENIX (RNR) pour l'irradiation technologique,
et SATURNE, accélérateur permettant de mesurer les phénomènes physiques élémentaires.

Le PAC (Programme d'Acquisition des Connaissances) dans SUPERPHENIX est un outil de validation unique.

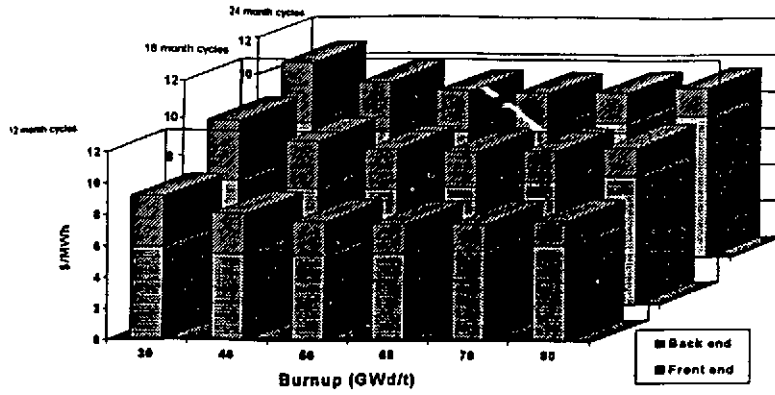
Conclusion

L'amélioration du cycle couvrent des domaines qui vont de la meilleure utilisation du combustible actuel (court terme) à un cycle fermé Plutonium seul ou avec les Actinides Mineurs.

Des solutions acceptables existent pour tous les types de concepts. Le recyclage du Plutonium et des Actinides Mineurs n'augmentent pas la radiotoxicité du stockage et permet de réduire les masses au stockage. Ces facteurs de réduction sont fonction des stratégies adoptées.

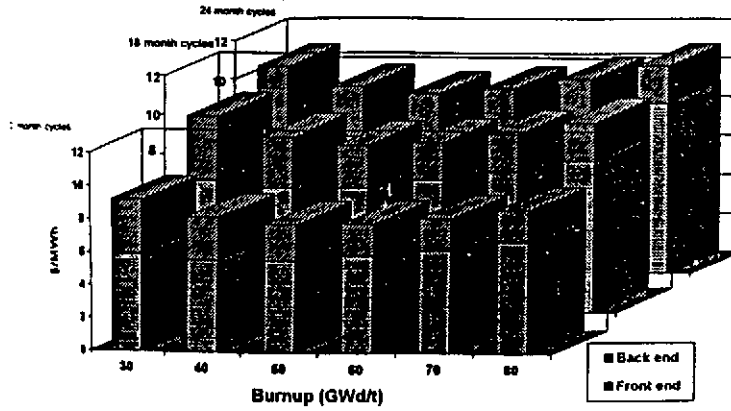
Chaque poste du cycle est important. C'est pourquoi ces études nécessitent des investigations dans plusieurs domaines (cycle, combustible, réacteurs).

1: Fuel Cycle Costs - No Penalties

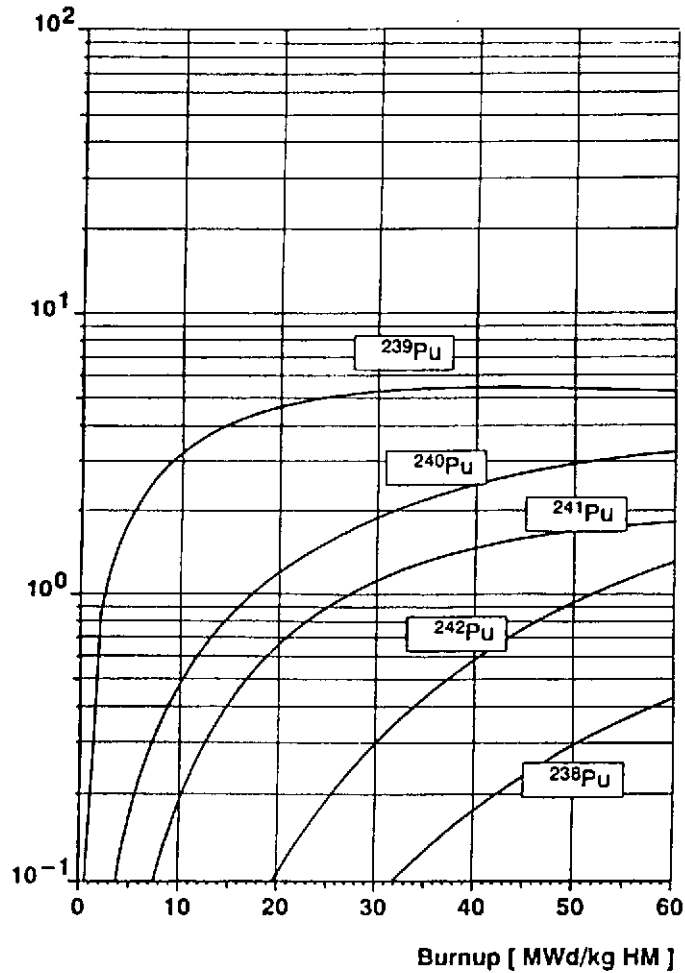


A 1

2: Fuel Cycle Costs - With Penalties



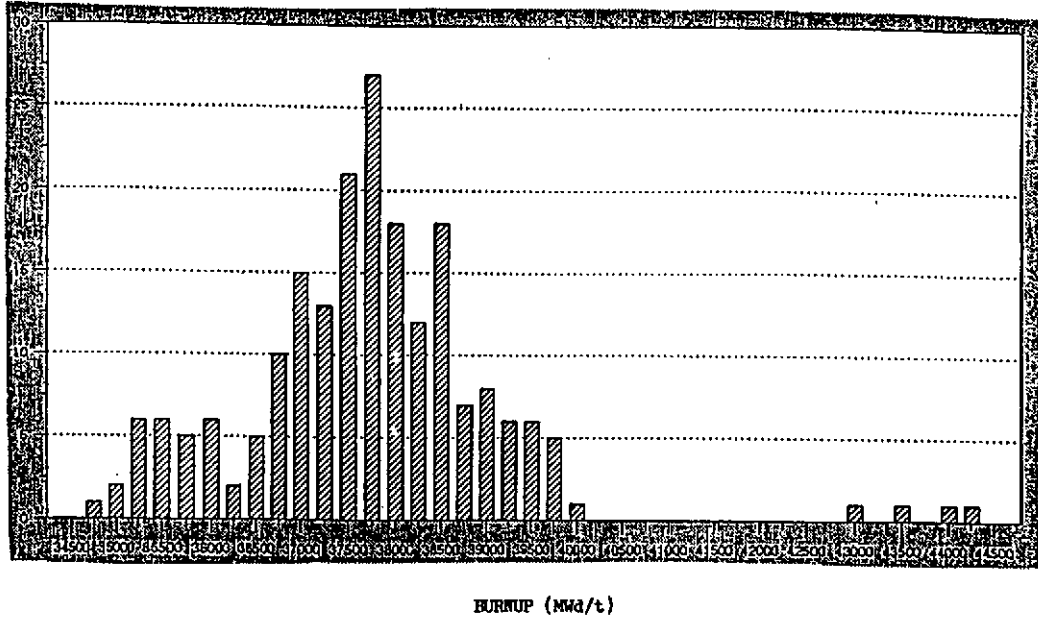
Mass [g/kg HM Initial]



A 2

DISCHARGE BURNUPS
As at 13/02/1995 (204 MOX assemblies)

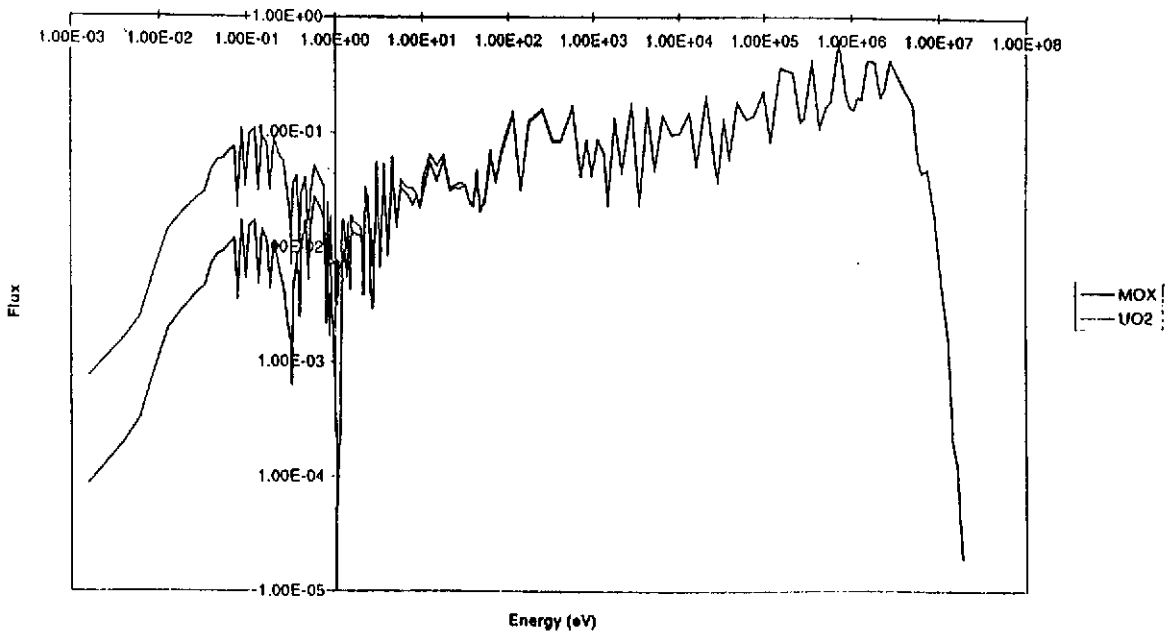
Number of assemblies



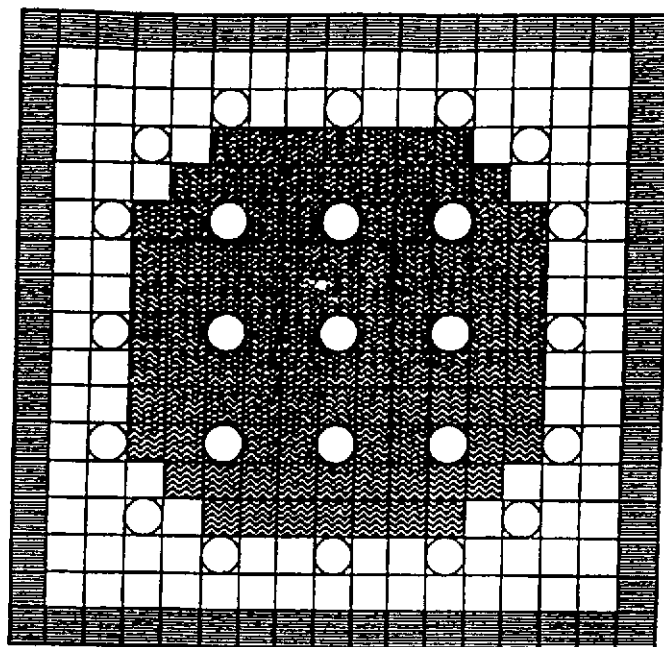
A. 3

MOX and UOX Spectra





Comparison of flux in MOX/UO2 fuel



A 4



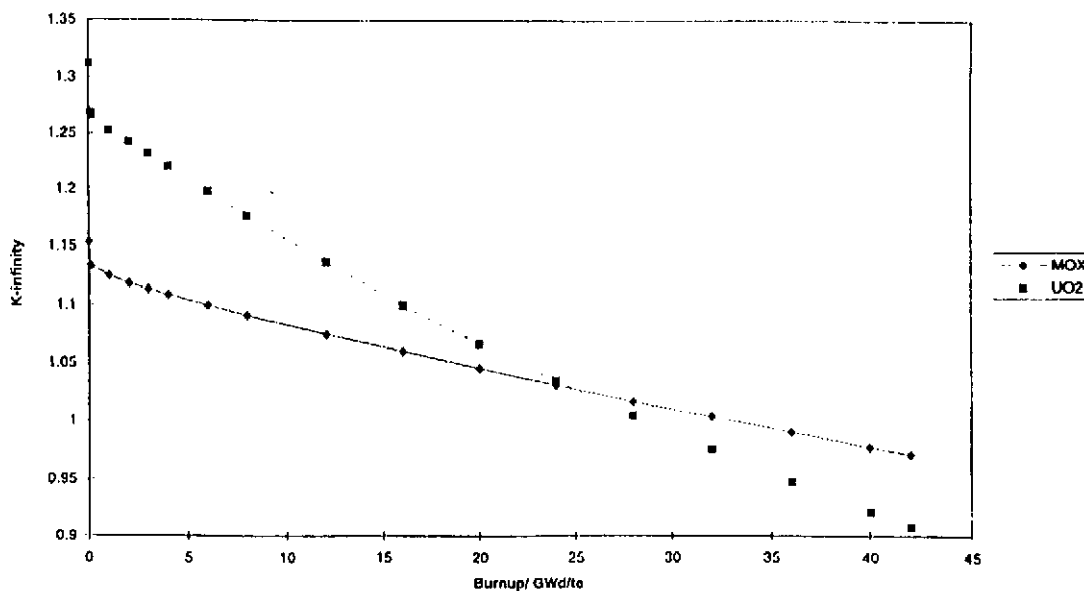
A 5

-  ZONE 1: 64 LOWER CONTENT RODS (3.35% PLUTONIUM)
-  ZONE 2: 100 INTERMEDIATE CONTENT RODS (5.10% PLUTONIUM)
-  ZONE 3: 100 HIGHER CONTENT RODS (6.75% PLUTONIUM)
-  GUIDE THIMBLES AND INSTRUMENTATION TUBE

Reactivity Variation with Burnup

A 6

K-Inf vs. Burnup for UO₂ and MOX



PRINCIPES DE BASE ET CARACTÉRISTIQUES PARTICULIÈRES DES SYSTÈMES SOUS-CRITIQUES ASSISTÉS PAR ACCÉLÉRATEUR.

*J. M. LOISEAUX Institut des Sciences Nucléaires
IN2P3-CNRS et Université Joseph Fourier
53, av. des Martyrs F-38026 Grenoble cedex*

Introduction

L'idée d'utiliser des réacteurs sous-critiques pour produire de l'énergie est une idée très ancienne. Cependant la nécessité de coupler ce type de réacteur à une source de neutrons très intense avait rendu alors ce concept tout à fait impraticable malgré ses avantages incontestables. La maîtrise relativement récente des techniques d'accélération, à haute énergie et à très forte intensité ($I > 10 - 20$ mA; $E > 1$ GeV) permet, par réaction de spallation de produire des sources de neutrons d'intensité suffisante. Cette maîtrise, de même que les besoins en énergie et la nécessité de réduire la production de déchets et les pollutions de toutes sortes ont conduit à un regain d'intérêt pour ce type de réacteur qui a des propriétés très intéressantes en terme de sûreté, de conduite du réacteur, de flexibilité sur les combustibles que l'on peut utiliser.

Ce cours met l'accent sur les caractéristiques particulières de ces systèmes sous-critiques et leur origine physique. Il ne saurait se substituer ni à un cours de neutronique, ni à un cours de physique des réacteurs, cours qui existent par ailleurs. Il n'a l'ambition que d'être une introduction à ces systèmes sous-critiques en vue d'en comprendre les principales caractéristiques et les aspects spécifiques. Ce cours est divisé en 4 parties d'importance inégale :

- la première partie est consacrée aux principaux généraux du fonctionnement des réacteurs sous-critiques.
- la deuxième partie est consacrée à l'origine physique des paramètres du réacteur sous-critique.
- la troisième partie est consacrée à la discussion d'un réacteur hybride de taille industrielle.
- la quatrième partie esquisse les perspectives de recherche dans le domaine des réacteurs hybrides.

OUTILS ET DÉFINITIONS

Nous définissons ci-dessous un certain nombre de quantités utilisées en neutronique.

Unités : cm, cm², cm³, eV, seconde.

$n(\bar{r}, E, t) d^3r dE dt$ nb de neutrons dans le volume d^3r entre E et $E + dE$, en \bar{r} , à l'instant t

$\phi(\bar{r}, E, t) = n(\bar{r}, \bar{E}, t) \cdot |\bar{v}(\bar{r}, \bar{E}, t)|$ est le flux de neutrons à l'énergie E .

$\phi(\bar{r}, E, t) dE dt =$ flux de neutrons entre E et $E + dE$, t et $t + dt$

$\Sigma_i(\bar{r}, E) = \sigma_i(E) n_i(\bar{r}) =$ Section efficace macroscopique (cm⁻¹) pour l'élément i .

$\sigma_i(E)$ Section efficace microscopique à l'énergie E

$n_i(\bar{r})$ nb d'atomes d'espèce i par cm³.

$\phi(\bar{r}, E, t) \Sigma(\bar{r}, \bar{E}) dE dt$ est le nombre d'interactions dues aux neutrons d'énergie située dans l'intervalle $E - E + dE$, entre t et $t + dt$ et dans le volume (d^3r) situé en \bar{r} .

Le nombre d'interactions dans un volume V sur l'intervalle d'énergie $E_1 - E_2$, et entre t_0 et t_1 s'écrit :

$$\int_{E_1}^{E_2} \int_V dE d^3r \cdot \Sigma(\bar{r}, E) \int_{t_0}^{t_1} \phi(\bar{r}, E, t) dt$$

Partie 1 : Principes généraux des réacteurs sous-critiques.

A-1. Le réacteur sous-critique, la multiplication, l'énergie dégagée par neutron source.

Par définition un réacteur sous-critique a un coefficient de criticité $k < 1$, la réaction en chaîne ne s'entretient pas seule. Cette réaction en chaîne est entretenue par l'injection continue dans le réacteur, de neutrons appelés par la suite, neutrons-source.

Définition de k : Soit N_1 le nombre de fissions engendrées par N_{0n} neutrons-source, les neutrons issus de ces N_1 fissions vont engendrer $N_2 = k N_1$ fissions dont les neutrons vont engendrer $N_3 = k N_2 = k^2 N_1$ fissions.

Ce phénomène de multiplication est en régime "amorti" et le nombre de fissions de chaque génération, qui décroît selon une série géométrique, peut être décrit comme suit :

$$\left. \begin{array}{l} 1^{re} \text{ g n ration} \quad N_{1fiss} \\ 2^{me} \text{ g n ration} \quad k \quad N_{1fiss} \\ 3^{me} \text{ g n ration} \quad k^2 \quad N_{1fiss} \\ \quad \quad \quad \quad k^n \quad N_{1fiss} \end{array} \right\} \begin{array}{l} N_{fiss \text{ total}} \\ 0 \rightarrow n \end{array} = N_{1fiss} (1 + k + k^2 + k^n + \dots) \quad (1) \\ = N_{1fiss} \frac{1 - k^n}{1 - k} = N_{1fiss} \frac{1}{1 - k}$$

Dans un réacteur à faible perte, la relation $N_{fiss \text{ total}} = N_1 \frac{1}{1 - k}$ est une bonne approximation.

Cherchons l'expression de $N_{fiss \text{ total}}$ en fonction N_{0n} le nombre de neutrons source introduits dans le réacteur et donc la relation entre N_{0n} et N_{1fiss} .

Observons que la probabilité pour un neutron issu de fission, de donner une fission, s'écrit :

$$P_{nf} = \frac{k}{\nu} \text{ ou } \nu \text{ est le nombre de neutrons moyen émis lors de chaque fission.}$$

Une fission engendre ν neutrons, et ces ν neutrons engendrent k fissions.

L'efficacité (à donner une fission) des neutrons sources n'est en général pas équivalente à celle des neutrons de fission pour des raisons de spectre en énergie et du fait de la localisation des neutrons de la source, souvent introduits au centre du réacteur.

$$\text{On écrira donc : } N_{1fiss} = \left(\frac{k}{\nu}\right)^* N_{0n}$$

Pour un réacteur de grande taille et des neutrons de spallation créés en cible épaisse $\frac{k^*}{\nu}$ est peu différent de la valeur de k/ν pour la fission.

On obtient donc :
$$N_{fiss\ total} = N_{0n} \left(\frac{k}{v}\right)^* \frac{1}{1-k}$$

et
$$\frac{N_{fiss\ total}}{N_{0n}} = \left(\frac{k}{v}\right)^* \frac{1}{1-k}$$

L'énergie thermique dégagée par neutron source s'écrit donc :

$$\frac{W_{th}}{N_{0n}} = \left(\frac{k}{v}\right)^* \frac{1}{1-k} \epsilon_f = 4000 \text{ MeV environ } (k = 0,98 \ v = 2,5) \quad (2)$$

avec $\epsilon_f = 200 \text{ Mev} = 3,2 \cdot 10^{-11} \text{ joule}$

La puissance du réacteur en fonction du nombre de neutrons source par seconde $N_{0n/s}$ s'écrit :

$$P_{th} = N_{0n/s} \left(\frac{k}{v}\right)^* \frac{1}{1-k} \epsilon_f. \quad (3)$$

Remarque : La puissance thermique ne dépend que de k . et de $N_{0n/s}$. Elle ne fait intervenir explicitement ni le flux, ni le volume. Si pour des raisons de sûreté on choisit $k \leq 0,98$, la puissance maximum $P_{th\ max}$ du réacteur est gouvernée exclusivement par $N_{0n/s}$, le nombre de neutrons source produit par seconde.

B-1. La source de neutrons (intensité nécessaire)

Nous allons déterminer l'ordre de grandeur nécessaire de $N_{0n/s}$ pour une unité de production d'énergie.

On peut admettre qu'une unité de 1500 Mégawatts est une taille raisonnable pour la production industrielle d'électricité à $k = 0,98$. On en déduit $N_{0n/s}$, le nombre de neutrons source nécessaires à apporter par secondes'obtient à partir de l'équation (3)

L'application numérique donne avec $k = 0,98$ $P = 1500 \cdot 10^6 \text{ Watt}$, $\epsilon_f = 3,2 \cdot 10^{-11}$ $v = 2,5$:

$$N_{on/s} = 2,4 \cdot 10^{18} \text{ n/s} \quad P_{th} = 1500 \text{ MW}, \quad k = 0,98 \quad v = 2,5$$

La source est extrêmement intense et doit être produite avec un aussi bon rendement que possible.

La production de neutrons par réaction de spallation par des protons de $E_{cin} \geq 1 \text{ GeV}$ est la plus économique. Il a été observé que le nombre de neutrons produits, en cible épaisse et par proton, est proportionnel à l'énergie du proton si $E_p > 1 \text{ GeV}$. Le nombre de neutrons produits par proton-

Gev dépend de la cible. On appellera $\epsilon_{p \rightarrow n, x}$ l'énergie nécessaire à la production d'un neutron dans une cible X.

Pour $E_p \geq 1$ GeV il a été mesuré en cible épaisse $\epsilon_{p \rightarrow n, U} = 25$ MeV et $\epsilon_{p \rightarrow n, Pb} = 33$ MeV. Nous pouvons en déduire l'intensité nécessaire d'un accélérateur de proton de 1 GeV.

$$\text{On écrit que : } N_{n0/s} (Pb) = \frac{N_{\text{protons/s}} E_p}{\epsilon_{p \rightarrow n, Pb}} = \frac{I}{e} \frac{E_p}{\epsilon_{p \rightarrow n, Pb}} \quad (4)$$

On en déduit avec les valeurs numériques données :

$$I = 12 \text{ mA} \quad \text{et} \quad P_{\text{faisceau}} = 12 \text{ Megawatts. } (k = 0,98, \epsilon_{p \rightarrow n} = 33 \text{ MeV})$$

C-I : Contrôle de la puissance réacteur

L'expression de la puissance thermique du réacteur P_{th} s'écrit facilement :

$$P_{th} = I \frac{1}{e} \frac{E_p}{\epsilon_{p \rightarrow n, Pb}} \left(\frac{k}{v} \right)^* \frac{1}{1-k} \epsilon_f$$

A k constant et énergie constante du faisceau de protons, la puissance du réacteur est uniquement contrôlée par l'intensité de l'accélérateur et par la relation linéaire ci-dessus.

A k constant cette puissance est donc extrêmement simple à contrôler d'une part, et une fluctuation de I de 10 à 20% n'a aucune incidence sur la sécurité. C'est une situation complètement différente de celle du pilotage par barres de contrôle dans un réacteur critique, où la puissance du réacteur dépend de façon exponentielle de la quantité $(1 - k)$.

Un autre différence importante à noter ici, est que si la présence de neutrons retardés en quantité appréciable conditionne la faisabilité d'un réacteur critique, les neutrons retardés ne sont nullement nécessaires pour un réacteur hybride.

En régime de croisière nous verrons que k peut évoluer lentement et la puissance à I donné pourra donc varier si k évolue. Notons que la variation de P_{th} est rapide, puisqu'elle est en $1/(1-k)$.

$$\text{Par exemple à } I = \text{cte} \quad P_{th} (k = 0,96) \approx \frac{1}{2} P_{th} (k = 0,98).$$

Lors du démarrage ou de l'arrêt du réacteur, ou lors d'un redémarrage, la valeur de k peut présenter des variations assez importantes avec des constantes de temps de quelques jours à un mois. Des mesures appropriées doivent être prises soit en diminuant temporairement le k du réacteur, soit en réduisant l'intensité de la machine. Nous ne discuterons pas ce point particulier lié à la nature du combustible.

D-1. Aspects économiques liées à l'utilisation de l'accélérateur.

L'expression de P en fonction de I

$$P_{th \text{ réacteur}} = I E_p \frac{1}{e} \varepsilon_{p \rightarrow n} P_b \left(\frac{k}{v}\right)^* \frac{1}{1-k}$$

fait apparaître le produit $I E_p$ qui représente la puissance du faisceau accéléré

$$P_{\text{faisceau}}^{(watt)} = \frac{I (A) E_p (ev)}{e}$$

$$P_{th \text{ react}} = P_{\text{faisceau}} \left(\frac{k}{v}\right)^* \frac{1}{1-k} \frac{\varepsilon_f}{\varepsilon_{p \rightarrow n} P_b} \quad (5)$$

On a donc ici une "amplification d'énergie" avec un facteur $G = \left(\frac{k}{v}\right)^* \frac{1}{1-k} \frac{\varepsilon_f}{\varepsilon_{p \rightarrow n} P_b}$

Avec $k = 0,98$ $\varepsilon_f = 200$ Mev, $\varepsilon_{p \rightarrow n} P_b = 33$ Mev, $v = 2,5$, on trouve :

$$\frac{P_{th \text{ réacteur}}}{P_{\text{faisceau}}} = 129$$

En réalité il est plus juste de calculer le rapport des puissances électriques fournies au réseau par le réacteur et prise au réseau pour l'accélérateur. On obtient alors $G_{net} = G \eta_{carnot} \varepsilon_{acc}$ où η_{carnot} est le rendement de conversion énergie thermique \rightarrow énergie électrique ; ε_{acc} est l'efficacité d'accélération c.a.d. le rapport (P_{faisceau} /puissance électrique consommée par l'accélérateur).

De bons ordres de grandeurs sont $\eta_{carnot} = 0,4$ et $\varepsilon_{acc} = 0,4$

On obtient alors $G_{net} = \eta_{carnot} \varepsilon_{acc} \left(\frac{k}{v}\right)^* \frac{1}{(1-k)} \frac{\varepsilon_f}{\varepsilon_{p \rightarrow n} P_b}$

Avec $k = 0,98$, $v = 2,5$ on trouve $G_{net} = 20,64$

Ainsi environ 5 % de l'énergie produite par le réacteur doit être utilisée (réinjectée) pour alimenter l'accélérateur, ce qui est très peu.. On peut en déduire que si k est élevé l'incidence de l'efficacité d'accélération sur le prix du KWh est faible. Par exemple si $\varepsilon_{acc} = 0,2$ au lieu de 0,4 ou supposant que le coût de fonctionnement reste constant, la livraison d'électricité passe de 95 % à 90 % de la production totale, soit une augmentation du prix de revient de 5 % environ.

E-1: Éléments du cahier des charges de l'ensemble réacteur-accélérateur.

Pour l'accélérateur :

$E_p \geq 1$ GeV pour une bonne efficacité de production de neutrons.

$I \geq 12$ à 30 mA suivant le k utilisé et la puissance du réacteur, I modulable facilement.

$P_{\text{faisceau}} = 12$ à 50 mégawatts suivant le k utilisé pour un réacteur de 1500 MW.

Pour le réacteur :

→ Sûreté $k \leq 0,98$ (Cette valeur pouvant dépendre du combustible et du niveau de flux utilisé)

→ k doit rester aussi constant que possible pour limiter les variations de puissance maximale.

L'évolution du combustible doit donc être prévue de façon très précise pour limiter la variation de k . Cette contrainte est particulièrement sévère, puisqu'on admet en général que le réacteur sous-critique ne peut avoir de réserves de réactivité comme c'est le cas pour les réacteurs PWR notamment.

En effet, un réacteur critique juste après un rechargement a une grande réserve de réactivité, typiquement un PWR, après un rechargement, aurait en l'absence de poison consommable, un $k = 1,2$. Dans un PWR le k est ramené à une valeur proche de 1 par introduction de borax dans l'eau, qui est le fluide modérateur et caloporteur. Au cours du burn-up, le combustible évolue, la concentration en ^{235}U diminue et donc la réactivité tend à diminuer. Celle-ci est maintenue à sa valeur nominale en diminuant la concentration de bore dans l'eau, au fur et à mesure des besoins.

Par contre le réacteur sous-critique chargé en combustible solide ne dispose lui d'aucune réserve de réactivité en début de cycle, et par conséquent, il n'est pas possible d'ajuster le facteur k en fonction du burn-up, à moins d'introduire dans le réacteur un poison contrôlable de l'extérieur ce qui n'a pas été envisagé jusqu'à maintenant. Ce point est discuté dans la deuxième partie.

Le réacteur à sels fondus dont le combustible est recyclé en permanence avec extraction des produits de fissions et contrôle en ligne de la concentration en produit fissile, a de ce point de vue, des avantages certains.

2ème PARTIE

Origine physique des paramètres du réacteur sous-critique.

A-2 Le paramètre k :

Le paramètre de criticité d'un milieu infini homogène, k_{∞} est défini pour un milieu infini homogène, et une source de neutrons répartie de façon uniforme dans l'espace et pour un groupe de neutrons d'énergie E par $k_{\infty}(E) = \frac{\phi(E) \nu(E) \Sigma_f(E)}{\phi(E) \Sigma_a(E)}$, où le numérateur représente le nombre de neutrons créés par $\text{cm}^3\text{-s}$ et le dénominateur le nombre de neutrons absorbés par $\text{cm}^3\text{-s}$.

Σ_f est la section efficace macroscopique de fission du milieu infini

Σ_a est la section efficace macroscopique totale d'absorption du milieu

Ici k est défini comme le facteur de multiplication des neutrons et non plus des fissions. Mais il peut être facilement montré que les deux facteurs de multiplication sont équivalents.

Pour un flux $\phi(E)$ non mono-énergétique,

$$\text{on écrit : } k_{\infty} = \frac{\int \phi(E) dE \nu(E) \Sigma_f(E)}{\int \phi(E) \Sigma_a(E) dE} = \frac{\langle \nu(E) \Sigma_f(E) \rangle_E}{\langle \Sigma_a(E) \rangle}$$

Milieu fini en régime stationnaire :

Pour un milieu fini, il y a lieu de tenir compte du taux de pertes des neutrons à la surface extérieure du réacteur et du fait que le flux et la quantité Σ peuvent dépendre de E, \vec{r}

$$k_{eff} = \sum_i \frac{\iint dE d^3r \phi(E, \vec{r}) \nu_i(E) n_i(\vec{r}) \sigma_f^i(E)}{\iint dE d^3r [\phi(E, \vec{r}) \sigma_{ai}(E) n_i(\vec{r}) + \text{div } \vec{j}]}$$

Le terme de fuite au dénominateur peut s'écrire en fonction de ϕ en utilisant la relation

$$\vec{j} = -D \text{ grad } \phi \text{ et } \text{div } \vec{j} = -D \Delta \phi$$

où D est la longueur de diffusion et vaut ; $\lambda_r / 3$; λ_T est la longueur de transport, c'est à dire le libre parcours moyen de diffusion corrigé de la non-isotropie de la diffusion élastique.

Le terme de fuite devient : $-\int D(E, \vec{r}) \Delta \phi(E, \vec{r}) d^3r dE$

Il est clair que cette définition de k_{eff} conduit à une valeur de $k_{eff} < k_{\infty}$ à causes des fuites et que la valeur de k_{eff} dépend assez fortement de la forme de $\phi(E, \bar{r})$.

Notons que $\phi(E, \bar{r})$ dépend des caractéristiques de la source (position, spectre, extension) et que par conséquent k_{eff} n'est pas formellement indépendant de la source. Cependant la source étant généralement placée au centre du réacteur et ayant un spectre d'énergie bien défini, on peut estimer que k est très peu sensible à une petite variation de la position de la source. Un déplacement de cette source par rapport à sa position centrale aurait d'ailleurs pour effet principal d'augmenter les fuites et diminuerait la multiplication.

B-2 Evolution de paramètre k avec le taux de combustion (burn-up).

Ce taux de combustion (qu'on appellera par son expression anglaise burn-up, s'exprime habituellement en GigaWatts-jour par tonne de combustible. Si par exemple on extrait une puissance de 60 Watts par gramme, un burn-up de 1 Giga-Watt-jour par tonne correspond à 16,66 jour de fonctionnement.

Nous noterons k_{eff} sous la forme :

$$k_{eff} = \frac{\langle \nu(E) \Sigma_f(E, r) \rangle_{\bar{r}, E}}{\langle \Sigma_a(\bar{r}, E) - D \Delta \rangle_{\bar{r}, E}} \quad (2-1)$$

où les crochets et les indices \bar{r} et E indiquent que la moyenne de ces quantités pondérées par $\phi(E, \bar{r})$ a été faite sur le volume du réacteur et sur l'énergie des neutrons.

$$Ex : \langle \nu(E) \Sigma_f(E, \bar{r}) \rangle_{\bar{r}, E} = \frac{\int dE d^3\bar{r} \phi(E, \bar{r}) \nu(E) \Sigma_f(E, r)}{\int dE d^3r \phi(E, \bar{r})}$$

Pour discuter l'évolution de cette quantité en fonction du burn-up, nous allons prendre l'exemple d'un combustible Thorium-Uranium, refroidi au plomb.

$$\text{où } k_{eff} \text{ s'écrit : } \frac{\langle n_{233} \nu_{233}(E) \sigma_{233}^f + n_{232} \nu_{232} \sigma_{232}^f \rangle}{\langle n_{232} \sigma_{232}^a + n_{233} \sigma_{232}^a + n_{PF} \sigma_{PF}^a + n_{pb} \sigma_{pb}^a + n_{stru} \sigma_{stru}^a - D \Delta \rangle}$$

où l'on fait apparaître, dans l'expression de k_{eff} les concentrations n_x et les sections efficaces σ_x , pour ^{232}Th , ^{232}U , les produits de fission (PF), le plomb, les matériaux de structure.

Observons qu'au cours du burn-up une évolution de n_{233} , n_{232} , n_{pf} va se produire et que par conséquent k_{eff} a de multiples raisons de varier. Deux raisons essentielles tendent à faire varier k_{eff} avec le burn-up : la variation de n_{233} et celle de n_{PF} , n_{PF} étant une fonction croissante du burn-up. Pour que n_{233} n'évolue pas ou évolue lentement, on se place dans des conditions telles que la

destruction de ^{233}U par fission soit compensée par la création de ^{233}U par capture de neutrons dans le matériau fertile, c.a.d., la réaction $n + ^{232}\text{Th} \rightarrow ^{233}\text{Th} \rightarrow ^{233}\text{Pa} \rightarrow ^{233}\text{U}$.

Cette compensation, si elle est exacte, peut s'écrire :

$$\langle n_{233} \sigma_{233}^a \rangle = \langle n_{232} \sigma_{232}^a \rangle \text{ et } \left\langle \frac{n_{233}}{n_{232}} \right\rangle = \left\langle \frac{\sigma_{232}^a}{\sigma_{233}^a} \right\rangle = C_{eq}$$

On est alors à la concentration d'équilibre.

Observons qu'être proche de la concentration d'équilibre est absolument nécessaire pour que k ne varie pas trop rapidement avec le burn-up.

Au cours de la combustion n_{PF} augmente, et tend à faire diminuer k , de façon assez sévère. Une solution élégante proposée par C. Rubbia et al., est de faire en sorte qu'en début de cycle, le réacteur fonctionne avec une concentration n_{233}/n_{232} légèrement inférieure à C_{eq} . Dans ces conditions la concentration en ^{233}U augmente et cette variation qui tend à faire augmenter k , compense l'effet de l'accumulation des produits de fission.

Retenons donc que pour garder k constant, et en l'absence de réserve de réactivité, un réacteur sous-critique doit être légèrement surgénérateur.

C-2 Distribution spatiale du flux et de la puissance dans un réacteur de taille finie avec une source ponctuelle de neutrons.

Nous allons nous placer dans un cas simplifié, en supposant que les neutrons n'ont qu'une seule énergie E et nous supposons la source ponctuelle. La configuration d'un réacteur sous-critique de taille industrielle, comme proposé par C. Rubbia et al est schématiquement représentée à la page suivante.

Théorie à 1 groupe

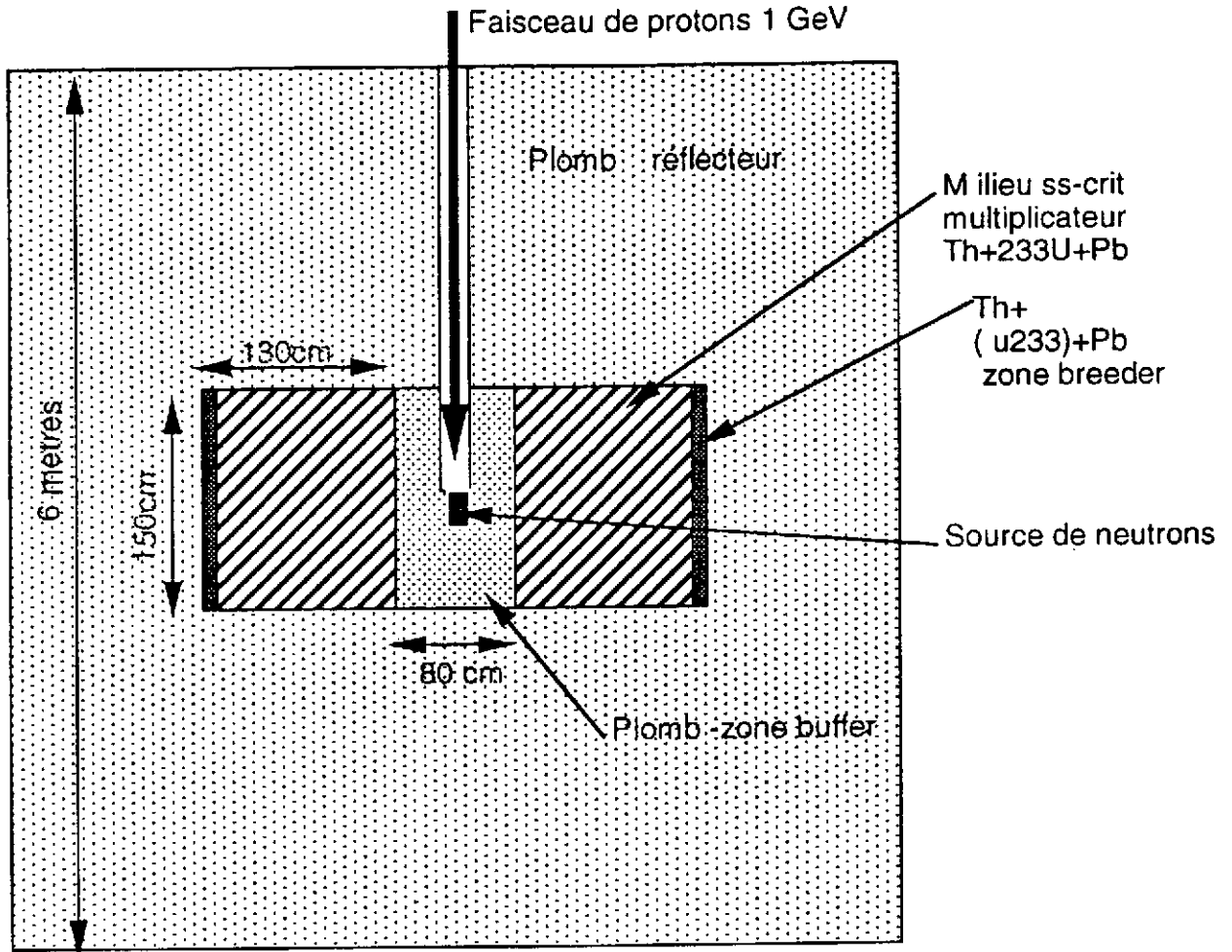
L'équation de la diffusion dans un milieu homogène s'écrit comme un bilan de neutrons pour chaque élément de volume $d\tau$:

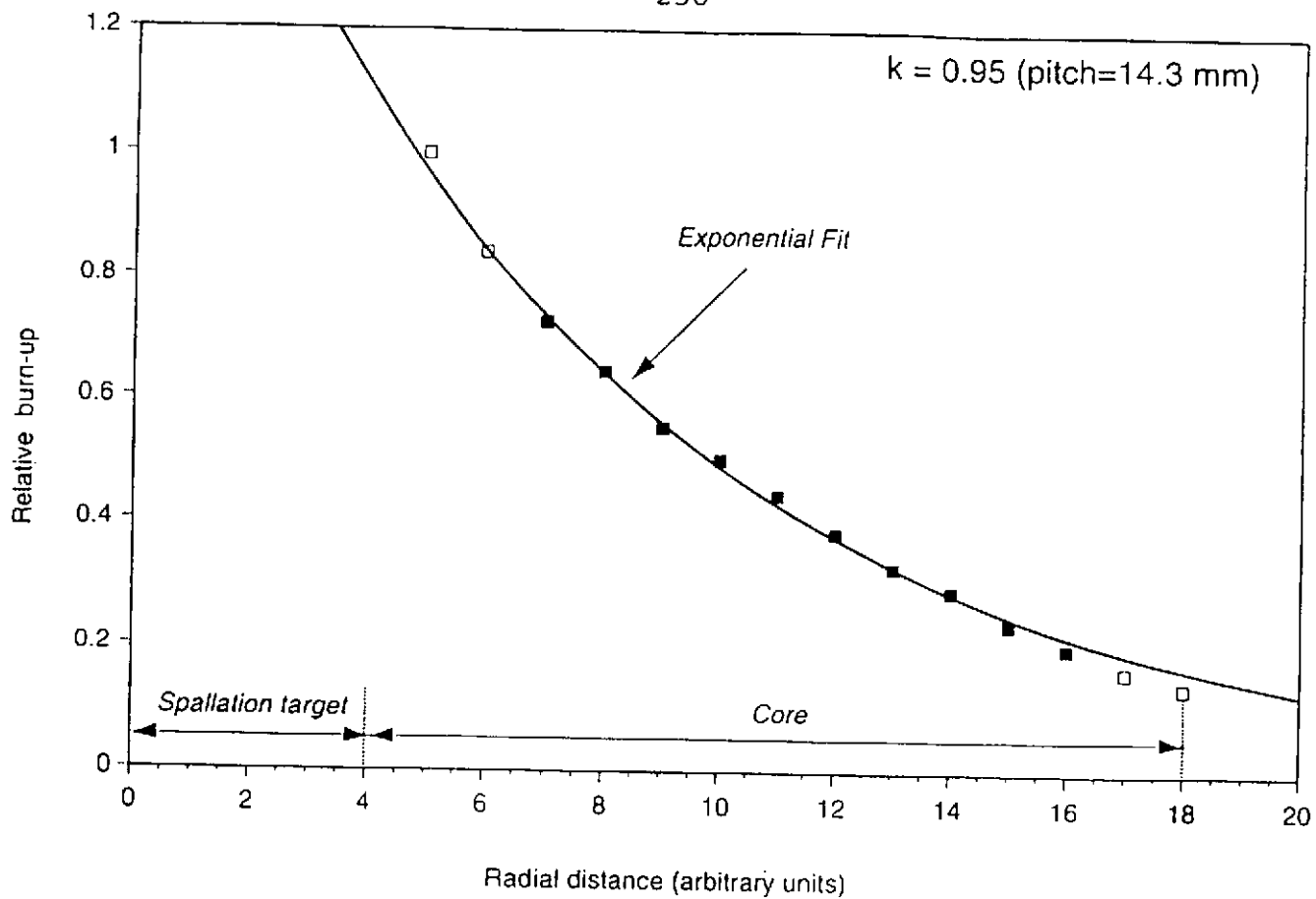
$$d\tau (D \Delta \phi - \Sigma_a \phi + \nu \Sigma_f \phi + c) = 0 \quad (B_{21})$$

où $C.d\tau$ représente le terme source de neutron, $\nu \Sigma_f \phi d\tau$ la production de neutrons, $\Sigma_a \phi d\tau$ l'absorption des neutrons, $-D \Delta \phi d\tau$ la fuite des neutrons pour le volume $d\tau$ par unité de temps

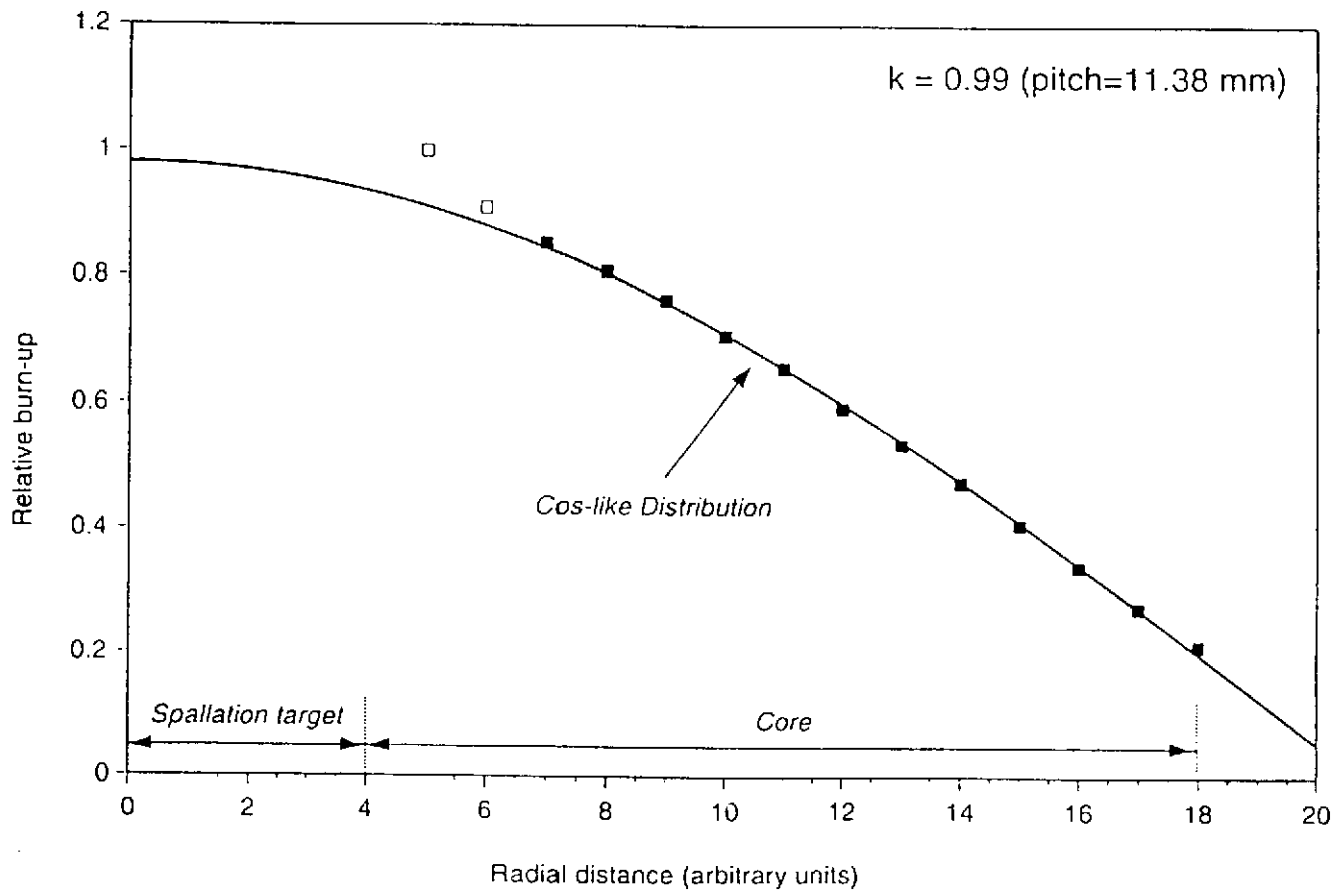
$$\Delta \phi - \frac{(1 - k_{\infty})}{L_c^2} \phi + \frac{C}{D} = 0 \quad (B_{22})$$

Schéma Système sous - critique (C. Rubbia et al)
1500 Megawatts thermiques
 $k = 0,98$ 12 mA --1GeV (12megawatts)
neutrons rapides
Combustible Thorium-Uranium
Caloporteur : Plomb





Distributions spatiales pour deux valeurs de k (0,95 et 0,99)
ou $k_{\text{infini}} < 1$ et $k_{\text{infini}} > 1$



s'obtient en remarquant que $k_{\infty} = \frac{v\Sigma_f}{\Sigma_a}$ et en posant $L_c^2 = \frac{D}{\Sigma_a}$.

où D est la longueur de diffusion.

Trouver ϕ suppose que l'on fixe des conditions aux limites pour ϕ .

Utilisant la procédure des dimensions extrapolées, on imposera par exemple, pour un parallélépipède d'arêtes a, b, c, $\phi = 0$ pour $x = 0$ ou a, $y = 0$ ou b, $z = 0$ ou c.

Nous allons chercher ϕ sous la forme base de fonction orthonormées

$$\phi = \sum_{lmn} \psi_l^{(x)} \psi_m^{(y)} \psi_n^{(z)} = \sum_{lmn} \psi_{lmn}^{(x,y,z)}$$

On écrit $C(\vec{r}) = \sum_{lmn} C_{lmn} \Psi_{lmn}$ avec $C_{lmn} = \int_{lmn} c(\vec{r}) \Psi(\vec{r}) d^3 \vec{r}$

L'équation B_{22} s'écrit simplement pour chaque fonction propre :

$$\nabla^2 \psi_{lmn} + \left[\frac{k_{\infty} - 1}{L_c^2} + \frac{1}{D} C_{lmn} \right] \psi_{lmn} = 0 \quad (B23)$$

Résolvons cette équation dans le cas d'une source ponctuelle placée au centre du réacteur,

on a alors : $C(\vec{r}) = \delta \left(x = \frac{a}{2}, y = \frac{b}{2}, z = \frac{c}{2} \right)$

En dehors du centre (où se trouve la source) l'équation (B23) s'écrit pour x :

$$\frac{\partial^2 \psi_l}{\partial x^2} + \frac{(k_{\infty} - 1)}{L_c^2} \psi_l = 0$$

de même pour $\psi_m(y)$ et $\psi_n(z)$.

Si $\frac{k_{\infty} - 1}{L_c^2} > 0$ les solutions sont de type sinusoïdal.

Dans ce cas on trouvera immédiatement que ψ_{lmn} s'écrit :

$$\psi_{lmn} = \sqrt{\frac{8}{abc}} \sin \pi \frac{lx}{a} \cdot \sin \pi \frac{my}{b} \cdot \sin \pi \frac{nz}{c}$$

Si $\frac{k_{\infty} - 1}{L_c^2} = -\gamma^2 < 0$ alors les solutions sont de type exponentielle c.a.d.

$$\psi(x) = A_1 e^{-\gamma x} + B_1 e^{+\gamma x}$$

$$\psi(y) = A_2 e^{-\gamma y} + B_2 e^{+\gamma y}$$

$$\psi(z) = A_3 e^{-\gamma z} + B_3 e^{+\gamma z}$$

Nous retiendrons que la distribution de ϕ est dite en forme de cosinus lorsque $k_{\infty} < 1$ alors qu'elle est principalement de type exponentielle décroissante quand $k_{\infty} > 1$.

Notons que pour un réacteur critique nous avons toujours $k_{\infty} > 1$ puisque $k_{eff} = 1$ et $k_{\infty} > k_{eff}$.

Pour un réacteur sous-critique, on a $k_{eff} < 1$ et k_{∞} peut être plus grand ou plus petit que 1. Suivant la valeur de $(k_{\infty} - 1)$ (positive ou négative), on aura un changement d'allure de la distribution de flux en fonction de la distance à la source. Ceci est illustré par la figure ci-dessous où un calcul de simulation a été faite pour différentes valeurs de k_{∞} . Cette remarque est intéressante pour un petit réacteur. Pour un petit réacteur sous-critique de $k = 0,98$ par exemple il y a toute chance d'avoir $k_{\infty} > 1$ car les fuites sont importantes, et si $k_{\infty} > 1$, on a une distribution radiale du flux en forme de cosinus. Il ne sera donc pas nécessaire "d'évider" autant le centre du réacteur, comme on doit le faire dans le cas d'un grand réacteur, afin de réduire le rapport des densités de puissance maximale et minimale (voir 3ème partie).

D-2 Réponse en temps d'un réacteur sous-critique.

Pour traiter ce point, nous allons nous mettre dans la situation très simplifiée, d'une source ponctuelle de neutrons monoénergétiques introduits à $t=0$, d'abord dans un milieu infini homogène et transparent, puis dans un milieu multiplicateur.

D-2.1.

Evolution du flux de neutrons en symétrie sphérique en fonction du temps suite à une injection de neutrons en $r = 0$ à $t = 0$ (milieu infini, non absorbant et non multiplicateur).

On suppose qu'il n'y a pas d'absorption et que λ le libre parcours moyen entre deux diffusions est indépendant de l'énergie. (c'est le cas du Plomb par exemple où $\lambda = 3\text{cm}$. sur un large domaine d'énergie).

On montre assez facilement que $P(n, \bar{r})$, la probabilité de trouver le neutron, introduit à $t = 0$, $r = 0$, à la position \bar{r} après n collisions s'écrit :

$$P(n, r) d^3r = \frac{d^3r}{(2n\sigma_n^2)^{3/2}} \exp\left(-\frac{r^2}{2\sigma_n^2}\right).$$

$$\text{où } \sigma^2 = \frac{n \lambda^2}{3}$$

Nous allons faire correspondre au nombre de collisions n , 2 quantités qui sont le temps t écoulé depuis le temps d'introduction et l'énergie E du neutron après qu'il ait effectué n collisions.

On montre facilement que dans une diffusion élastique isotrope on a $\left\langle \frac{\Delta E}{E} \right\rangle = \frac{2 m}{M} = 2 \alpha$

$\langle \Delta E \rangle$ est la perte d'énergie moyenne lors d'un choc, E est l'énergie du neutron de masse m qui diffuse élastiquement sur un noyau de masse M .

On trouve immédiatement la relation $E_n = E_0 e^{-2n\alpha}$ (A).

$$\text{D'où } n = \frac{1}{2\alpha} \text{Log} \frac{E_0}{E} \text{ qui est la relation entre } n, E \text{ et } E_0$$

Donc si l'on connaît E_0 , on connaît E_n à partir de n ou inversement, n nous permet de connaître E_n .

Etablissons maintenant la relation liant n et t_n , le temps écoulé lorsque survient la $n^{\text{ième}}$ collision :

Le temps nécessaire à n collisions s'écrit $t_n = \sum_{j=1}^n \frac{\lambda}{v_j}$; Or v_n peut s'écrire $v_j = v_0 (1 - \alpha)^j$

$$\text{en utilisant } \frac{\Delta V}{V} = \frac{1}{2} \frac{\Delta E}{E} = \alpha$$

$$t_n \text{ s'écrit donc } t_n = \frac{\lambda}{v_0} \left[1 + \frac{1}{1-\alpha} + \frac{1}{(1-\alpha)^2} + \frac{1}{(1-\alpha)^{n-1}} \right]$$

Si n est très grand et λ constant en fonction de E

$$(B) \quad t_n = \frac{\lambda}{v_0} \frac{1 - (1-\alpha)^n}{\alpha(1-\alpha)^{n-1}} \sim \frac{\lambda e^{-n\alpha}}{v_0 \alpha} \text{ si } \alpha \ll 1$$

La relation (B) donne donc t en fonction de n pour E_0 , λ et α donnés.

Rapprochant les deux formules approchées (A) et (B), on trouve évidemment une relation entre E et t

$$\text{qui s'écrit : } t_n = \frac{\lambda}{v_0 \alpha} e^{-\frac{1}{2} \log \frac{E_0}{E_n}} \quad n = \frac{1}{2\alpha} \log \frac{E_0}{E_n}$$

$$t_n = \frac{\lambda}{v_0 \alpha} \sqrt{\frac{E_0}{E_n}} = \frac{\lambda}{\alpha v_0} \cdot \frac{v_0}{v_n} = \sqrt{\frac{K}{E_n}}$$

Ceci conduit à la relation bien connue pour le spectromètre à ralentissement $E = \frac{K}{t^2}$

avec $K \sim 170 \text{ keV}, E(\text{keV}), t$ en μs pour le plomb.

Dans le cadre des approximations faites, on observe que pour les grandes valeurs de n $E = \frac{K}{t^2}$ ne fait plus intervenir l'énergie E_0 de départ. Ceci s'explique par la prédominance des termes correspondants aux dernières collisions.

Et nous obtenons aussi une relation $P_n(E,r)$ qui s'écrit :

$$P_n(E,r) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2} \sigma^3} e^{-\frac{r^2}{2\sigma^2}}$$

avec
$$2\sigma^2 = \lambda^2 \frac{1}{3\alpha} \text{Log} \frac{E_0}{E}$$

où l'on a utilisé la relation n - E c.a.d. $n = \frac{1}{2\alpha} \text{Log} \frac{E_0}{E}$ établie plus haut.

d'autre part E et t sont reliés par $E = \frac{K}{t^2}$ et par conséquent à r donné nous avons par cette même

équation :
$$P_E(t,r) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2} \sigma^3} e^{-\frac{r^2}{2\sigma^2}}$$

avec
$$\sigma^2 = \frac{\lambda^2}{3\alpha} \text{Log} \frac{E_0}{E} = \frac{\lambda^2}{3\alpha} \cdot \text{Log} \frac{E_0 t^2}{K}$$

D-2.2 Réponse temporelle d'un milieu diffusant et multiplicateur infini

Réponse en temps d'un réacteur sous-critique à une impulsion neutronique en $r=0$ et à $t=0$.

On suppose toujours que $\lambda = \text{cte}$ et nous allons faire une théorie à 2 groupes :

A $t = 0$, on introduit en $r = 0$, N_{0n} neutrons d'énergie E_0 . Ces neutrons vont diffuser. Lorsqu'ils vont atteindre l'énergie E_1 , ils induiront chacun $\frac{k}{v}$ fissions de première génération. Appelons N_{1fiss} ces fissions de première génération, leur distribution spatiale s'écrit :

$$N_1(r) = N_{0n} \frac{k}{v} \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} \frac{1}{\sigma_1^3} e^{-\frac{r^2}{2\sigma_1^2}}$$

$$\text{avec } \sigma_1^2 = \frac{\lambda^2}{3\alpha} \text{Log} \frac{E_0}{E_1} \text{ d'après le paragraphe D2-1,}$$

Ces N_1 fissions de première génération, vont émettre $N_1 v$ neutrons d'énergie E_0 , qui après diffusion, vont atteindre l'énergie E_1 (en se dispersant), et induire chacun $\frac{k}{v}$ fissions de deuxième génération.

$$\text{La distribution de ces } N_2 \text{ fissions s'écrit : } N_2(r) = N_{0n} \frac{k^2}{v} \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} \frac{1}{\sigma_2^3} e^{-\frac{r^2}{2\sigma_2^2}}$$

L'écart type de cette distribution est telle que $\sigma_2^2 = 2 \sigma_1^2$

Pour obtenir N_2 , il faut en effet convoluer la distribution des neutrons de première génération avec la gaussienne d'écart type σ_1

$$\text{A la génération } G, \text{ on a } \sigma_G^2 = G \sigma_1^2 \text{ et } N_G(r) = N_{0n} \frac{k^G}{v} \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} \frac{1}{(G\sigma_1^2)^{3/2}} e^{-\frac{r^2}{2G\sigma_1^2}}$$

Remplaçons G par $\frac{t}{t_r}$ où t_r est le temps nécessaire pour passer d'une génération à la suivante.

$$\text{On obtient : } N_G\left(\frac{t}{t_r}, r, E_0/E_1\right) \propto \exp\left[-(1-k)\frac{t}{t_r}\right] \cdot \frac{t_r^{3/2}}{t^{3/2}} \exp\left[-\frac{r^2}{2\sigma_1^2(t/t_r)}\right]$$

où k^G a été remplacé par $k^G = e^{G \text{Log} k} = e^{-(1-k)t/t_r}$

Cette expression donne ainsi, dans le cadre de cette théorie à deux groupes, la dépendance de la densité de fissions et donc du flux de neutrons, en fonction de r et de t , le temps écoulé depuis l'introduction des neutrons source.

La mesure précise de $\phi(t, r)$ permet ainsi d'atteindre expérimentalement la quantité $(1 - k)$, de même que le temps t_r et $\sigma_1^2 = \frac{\lambda^2}{3\alpha} \text{Log} \frac{E_0}{E_1}$.

E-2. Économie comparée des neutrons dans un réacteur critique et un réacteur sous-critique.

Pour illustrer ce point, nous nous plaçons dans le cadre de la théorie précédente où toutes les fissions ont lieu une seule énergie E_1 .

Nous revenons sur l'expression de k dans le cas d'un réacteur au Thorium Uranium. (Th - U3).

En régime stationnaire on peut écrire :

$$k \sim \frac{\eta_{u3} n_{u3} \sigma_{u3}}{n_{u3} \sigma_{u3} + n_{th} \sigma_{th} + \alpha_L n_{u3} \sigma_{u3} + \alpha_{pilot} n_{u3} \sigma_{u3} + \alpha_{AV} n_{u3} \sigma_{u3}}$$

σ_{u3} est la section efficace d'absorption de U_3 (fission + capture $n \gamma$), η_{u3} est le nombre de neutrons émis par capture dans U_3 à l'énergie E_1 .

σ_{th} est la section efficace d'absorption de ^{232}Th (capture $n \gamma$).

α_L est le nombre de neutrons perdus dans les structures ou par suite des fuites, par neutron capturé dans U_3 .

α_{AV} est le nombre de neutrons disponibles (pour la transmutation) par neutron capturé dans U_3 .

α_{pilot} est le nombre de neutrons à absorber dans le dispositif de contrôle du réacteur critique.

$\alpha_{pilot} = 0$ pour un réacteur sous-critique.

A la concentration d'équilibre on a $n_{u3} \sigma_{u3} = n_{Th} \sigma_{Th}$

On obtient donc après division par $n_{u3} \sigma_{u3}$:

$$k \approx \eta_{u3} \frac{1}{1 + 1 + \alpha_L + \alpha_{pilot} + \alpha_{AV}}$$

ou encore

$$\alpha_{AV} \approx \frac{\eta_{u3}}{k} - 2 - \alpha_L - \alpha_{pilot}$$

Pour un réacteur à neutrons rapides il convient en fait de remplacer η par $\eta \epsilon$ et $\eta_{u3} \epsilon$ vaut 2,4.

Pour un réacteur à neutrons lents η_{u3} vaut 2,2 environ.

Dans un réacteur standard admettons que $\alpha_L \sim 0,2$ et qu'une réserve de réactivité de 5 000 PCM est nécessaire pour piloter un réacteur critique... Ceci donne pour α_{pilot} la valeur $\alpha_{pilot} = 0,12$.

On va donc comparer les valeur de α_{av} pour les neutrons disponibles(par capture dans U3) dans le cas d'un réacteur critique où $k = 1$ $\alpha_{pilot} = 0,12$
et de réacteurs sous-critique $k = 0,98$ $\alpha_{pilot} = 0$
 $k = 0,95$ $\alpha_{pilot} = 0$

On obtient donc pour le réacteur à neutrons rapides :

Réacteur critique $\alpha_{av} = \frac{2,4}{1} - 2 - 0,2 - 0,12 = 0,08$ neutron/capture dans U₃

Réacteur sous critique $\alpha_{av} = \frac{2,4}{0,98} - 2 - 0,2 - 0,0 = 0,25$ neutron/capture dans U₃

Pour les réacteurs à neutrons lents et pour $k = 0,98$ on obtient :

Réacteur critique $\alpha_{AV} = -0,12$ neutron/capture dans U₃

Réacteur sous-critique $\alpha_{AV} = 0,05$ neutron/capture dans U₃

Concluons ici que l'économie de neutrons est particulièrement serrée dans tous les cas et que l'avantage significatif pour les réacteurs hybrides vient de l'absence de réserve de réactivité pour le pilotage du réacteur et de la plus faible valeur de k.

Pour un réacteur sous-critique à vocation de transmutation on peut noter qu'une faible valeur de k augmente le nombre de neutrons disponibles.

On observe donc que dans l'économie de neutrons très serrée d'un réacteur régénérateur au Thorium, l'avantage du réacteur sous-critique même à $k = 0,98$ est très significatif. Il permet notamment une utilisation aisée du cycle au Thorium, avec même des neutrons en excès qui peuvent servir à la transmutation de produits de fission à vie longue.

Conclusion de la partie 2

Dans cette deuxième partie, nous avons essayé d'illustrer les propriétés neutroniques particulières des réacteurs sous-critiques en nous plaçant dans des cas particulièrement simplifiés (Source ponctuelle théorie à un ou deux groupes, milieu homogène ...). Les dérivations analytiques ne sont que des approximations plus ou moins proche des situations réelles. Elles n'en constituent pas moins un guide précieux dans la conduite de calculs plus complets et plus exacts à l'aide de code de simulation prenant en compte les données nucléaires, le transport des neutrons, la structure réaliste de réacteurs.

3ème partie

Exemple de conception d'un réacteur sous-critique assisté par accélérateur

Récemment une étude très complète d'un système sous-critique couplé à un accélérateur a été réalisée par le groupe ET du CERN (C Rubbia et al). Cette étude a fait l'objet d'un rapport CERN. "Conceptual design of a fast neutron operated high power energy amplifier" (C. Rubbia et al). CERN/AT95-44 (ET).

Nous allons présenter et commenter ici les principales caractéristiques du réacteur proposé dans cette étude.

A-3. Choix des paramètres

- Choix de k : Le choix de $k = 0,98$ est dicté par un compromis entre la nécessité d'être franchement sous-critique et la nécessité d'avoir un rapport important entre la puissance faisceau et la puissance réacteur (voir paragraphes C1 et D1). Ce rapport est gouverné par la quantité $\frac{k}{1-k}$.

- Choix de la puissance thermique : Le choix de la puissance est un peu arbitraire. Cependant on doit tenir compte qu'une exploitation industrielle d'un réacteur nécessite des unités assez importantes, mais aussi que la puissance faisceau nécessaire est (à k donné) directement proportionnelle à la puissance réacteur. Un choix de 1500 MW thermiques et 600 MW électriques se situe à un facteur 2 en dessous des tranches PWR actuelles. Par ailleurs nous avons vu plus haut que ce choix fixait l'intensité de l'accélérateur à 12 mA à 1 GeV, ce qui semble un objectif raisonnable pour une première étape.

- Choix d'un système à neutrons rapides.

Nous avons vu dans la deuxième partie que la neutronique était plus favorable dans le cas des réacteurs rapides. Il s'avère aussi que l'empoisonnement dû aux produits de fission est inférieur à celui observé dans les réacteurs à neutrons thermiques. "L'effet protactinium" qui correspond à une remontée de la réactivité suite à l'arrêt du réacteur est également plus faible dans le système à neutrons rapides.

B-3. Choix de la configuration, réflecteur, cible, combustible, fluide caloporteur.

→ Le réflecteur

Concevant un réacteur réaliste au Thorium-Uranium dont nous avons vu que l'économie de neutrons était très serrée, il est important de limiter les fuites. Le groupe ET du CERN a ainsi choisi un très

important réflecteur en Plomb ($e = 133$ cm) qui a la double fonction de réduire les fuites de neutrons et d'homogénéiser le flux autant que possible.

→ **Choix de la cible**

La cible doit être constituée par un élément lourd, pour une bonne production de neutrons par réaction de spallation. Elle doit être facile à refroidir puisque plus de 10 MWatts de faisceau y sont déposés. Elle doit être très transparente aux neutrons de toute énergie. Le plomb liquide semble pouvoir répondre à toutes ces contraintes.

→ **Choix de la configuration milieu multiplicateur-cible**

Ce choix est dicté par plusieurs impératifs. L'un est d'obtenir une bonne efficacité dans la production de neutrons et une bonne probabilité, pour les neutrons, d'atteindre la région multiplicatrice ou région combustible. Un autre objectif est de limiter la variation de puissance en fonction du rayon dans la région combustible et d'avoir une densité de puissance maximale raisonnable tout en respectant la puissance totale choisie. En fait la forme choisie est le résultat d'une optimisation complexe sur des paramètres largement inter-dépendants. Le choix d'un assez grand rayon pour la zone buffer, (40 cm), est largement dû au souci de réduire l'écart de densité de puissance entre la zone multiplicatrice proche de la cible et celle située près du réflecteur. Le volume du milieu multiplicateur est conditionné par la densité volumique de puissance que le fluide caloporteur peut extraire.

→ **Choix du fluide caloporteur**

Le plomb a été choisi comme élément cible et comme fluide caloporteur. Ceci apporte un certain nombre de simplifications, mais aussi des contraintes notamment sur les traitements anticorrosion. Du point de vue neutronique, le choix du caloporteur doit privilégier deux qualités, qui sont une section efficace de capture très faible et une masse atomique élevée pour avoir un spectre de neutrons le plus énergétique possible. Ceci est favorable à l'économie de neutrons et à la stabilité de k au cours du burn-up. Le plomb apparaît comme le seul élément qui ait ces qualités et qui soit économiquement viable.

→ **Choix d'un combustible solide à la structure très semblable à celle utilisée dans le PWR.**

La solution du combustible solide est une solution sûre et industriellement utilisée depuis un grand nombre d'années. Des études détaillées semblent montrer qu'un taux de burn-up très élevé peut être obtenu (5 ans entre 2 rechargements).

C-3. Choix de sécurité

→ **Le choix de k à $k = 0,98$ a déjà été commenté**

Des solutions doivent être trouvées pour combattre l'effet protactinium lors de l'arrêt ou du redémarrage du réacteur sachant que la constante de temps de l'effet protactinium est de 27 jours.

→ **Le choix du refroidissement par convection**

Ce choix conduit à une hauteur de 30 m de plomb fondu, 10 000 tonnes de Pb au total, ce qui est assez considérable. Notons que le prix du plomb est de l'ordre de 4F/kilo soit un investissement de seulement 40 MF de plomb. Il a l'avantage de ne pas avoir à résoudre le problème des pompes de circulation du fluide caloporteur. Il a par ailleurs l'avantage d'exclure tout accident de refroidissement primaire ce qui est un facteur de sécurité notable. Mais naturellement d'autres systèmes de circulation forcée peuvent être utilisés.

→ **Coefficient de vide**

Il s'agit de savoir si une absence locale de plomb dans le réacteur, conduit à augmenter ou à diminuer la criticité. Les promoteurs du projet montrent que le coefficient de vide est tel qu'une absence de plomb dans toute ou partie du réacteur diminue la réactivité.

D-3. Choix d'un cycle du combustible

Un chargement a lieu tous les cinq ans environ. *Le combustible est alors recyclé*. On extrait les produits de fission et les produits volatiles, on ajoute un peu de combustible "frais" (correctement dosé en ^{233}U) et on recharge. Au cours du cycle de 5 ans l'augmentation de la concentration de ^{233}U compense presque exactement la baisse de criticité due à l'augmentation linéaire (en fonction du burn-up) de la concentration en produits de fission. De cette manière la variation de k est minimisée, de même que la variation de la puissance du réacteur. La valeur de k reste stable, car il s'établit, pour la plupart des éléments lourds, un régime d'équilibre qui permet de recycler le combustible indéfiniment.

Le problème du démarrage d'une telle filière, alors qu'on ne dispose pas d'Uranium 233, est facilement résolu en réalisant le premier chargement avec le mélange $^{232}\text{Th} - ^{233}\text{Pu}$. L'ajout de ^{233}U à chaque rechargement est réalisé avec l'Uranium 233 produit dans la zone de breeding du réacteur. Cette solution élégante de recyclage du combustible n'est pas sans difficultés. En effet le combustible même après extraction des seuls P.F. est fortement radioactif, à cause notamment d'une certaine teneur en ^{232}U produit par réaction (n-2n) et en actinides. Mais ces difficultés ne semblent pas insurmontables.

Cette option de recyclage a l'important avantage de stabiliser à un niveau très réduit le stock de déchets transuraniens, d'utiliser au mieux le combustible primaire Thorium, et de réduire la quantité de déchets transuraniens aux seules pertes qui surviennent au cours du retraitement, réduisant ainsi de façon "drastique" l'accumulation de déchets à vie très longue (>1000 ans). Reste les produits de fission à vie longue qu'il faudrait pouvoir transmuter efficacement.

Des variantes ou optimisations par rapport au cycle proposé vont naturellement être étudiées, notamment dans le cadre du programme européen sur le cycle Thorium.

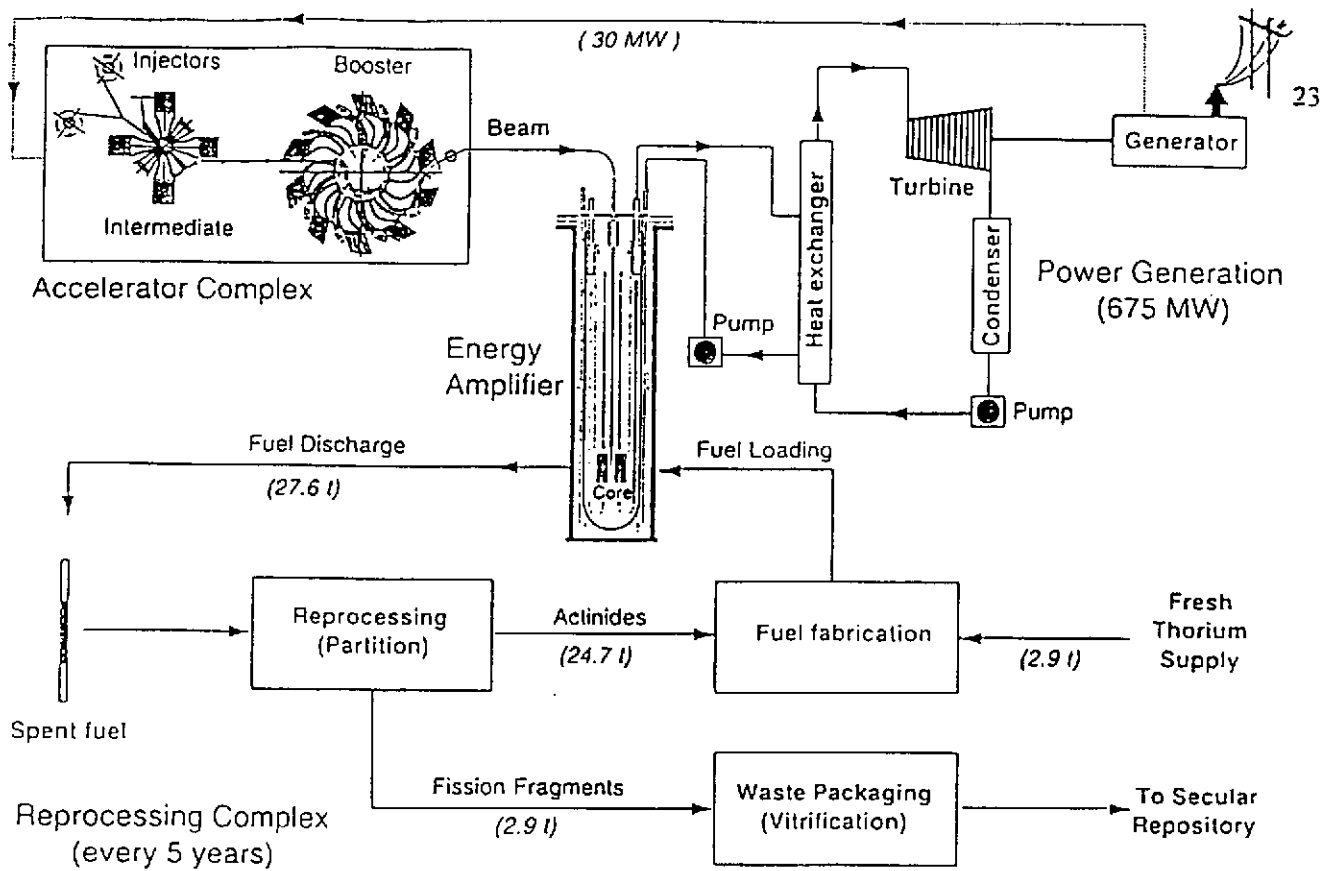


Figure montrant un schéma d'ensemble possible pour une installation industrielle de réacteur piloté par accélérateur.

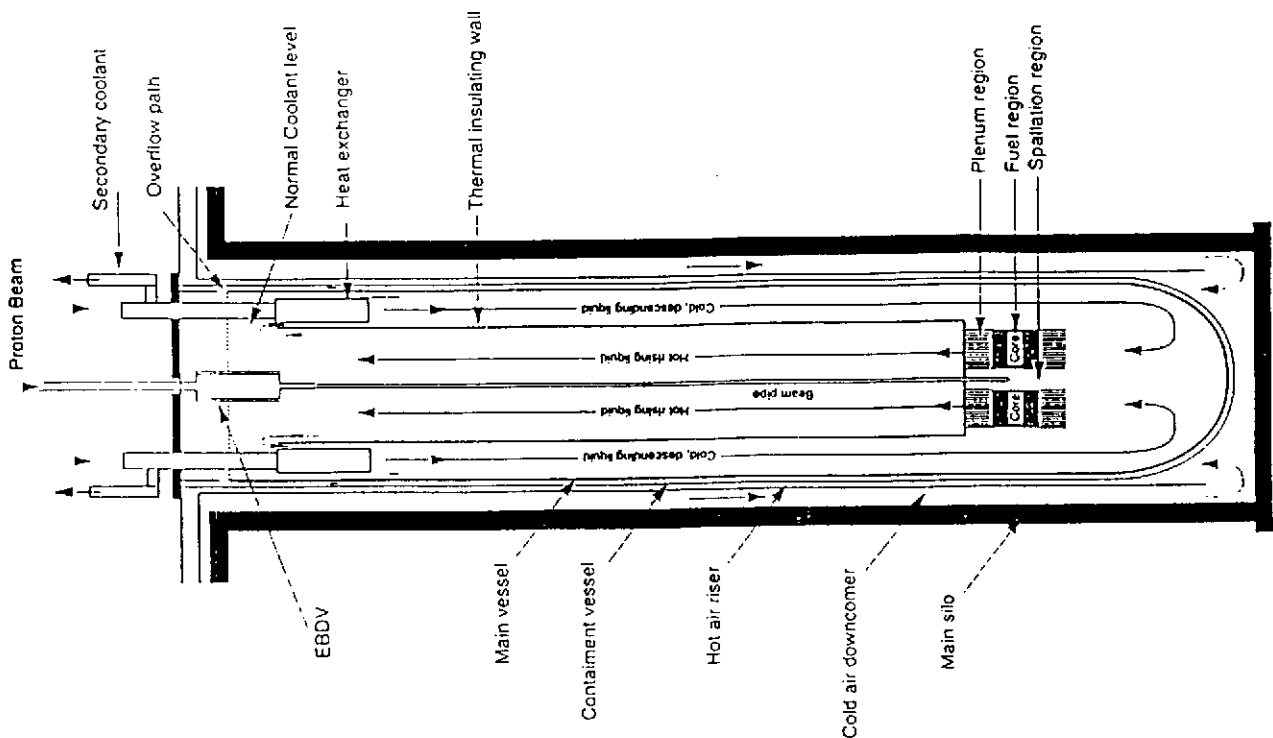
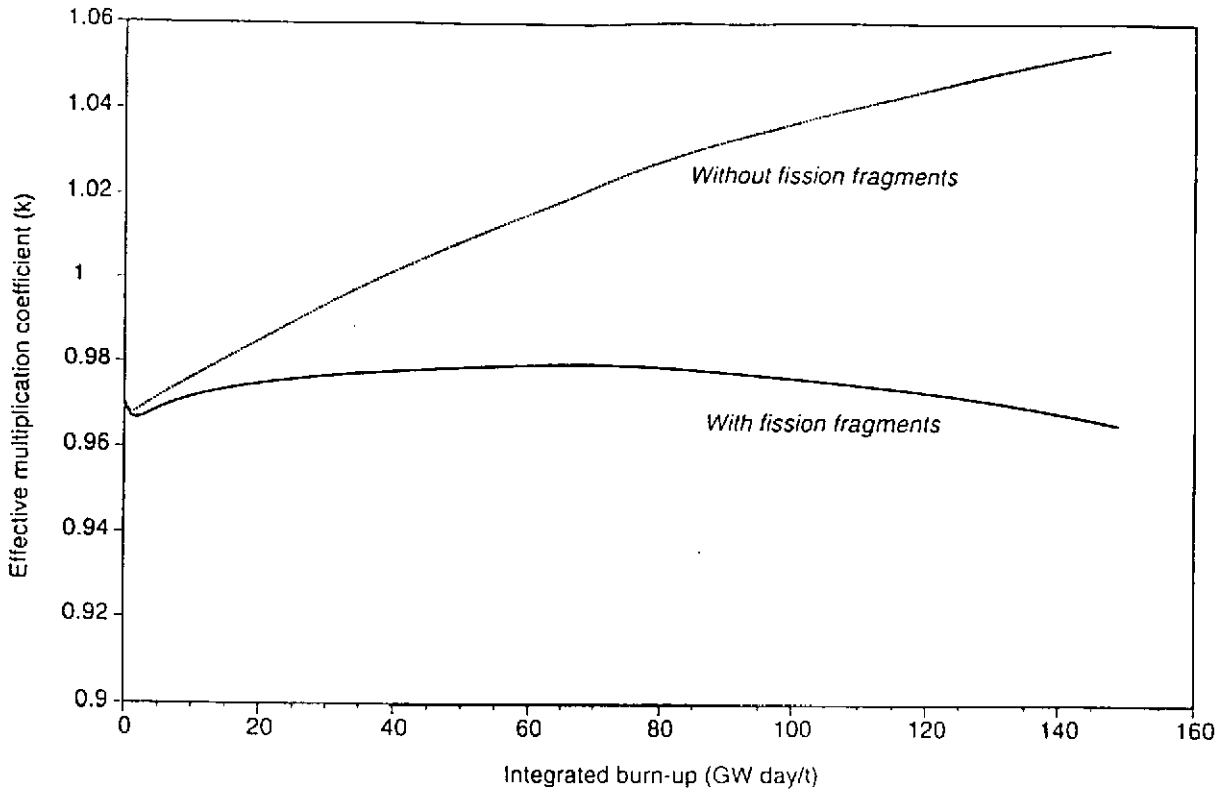
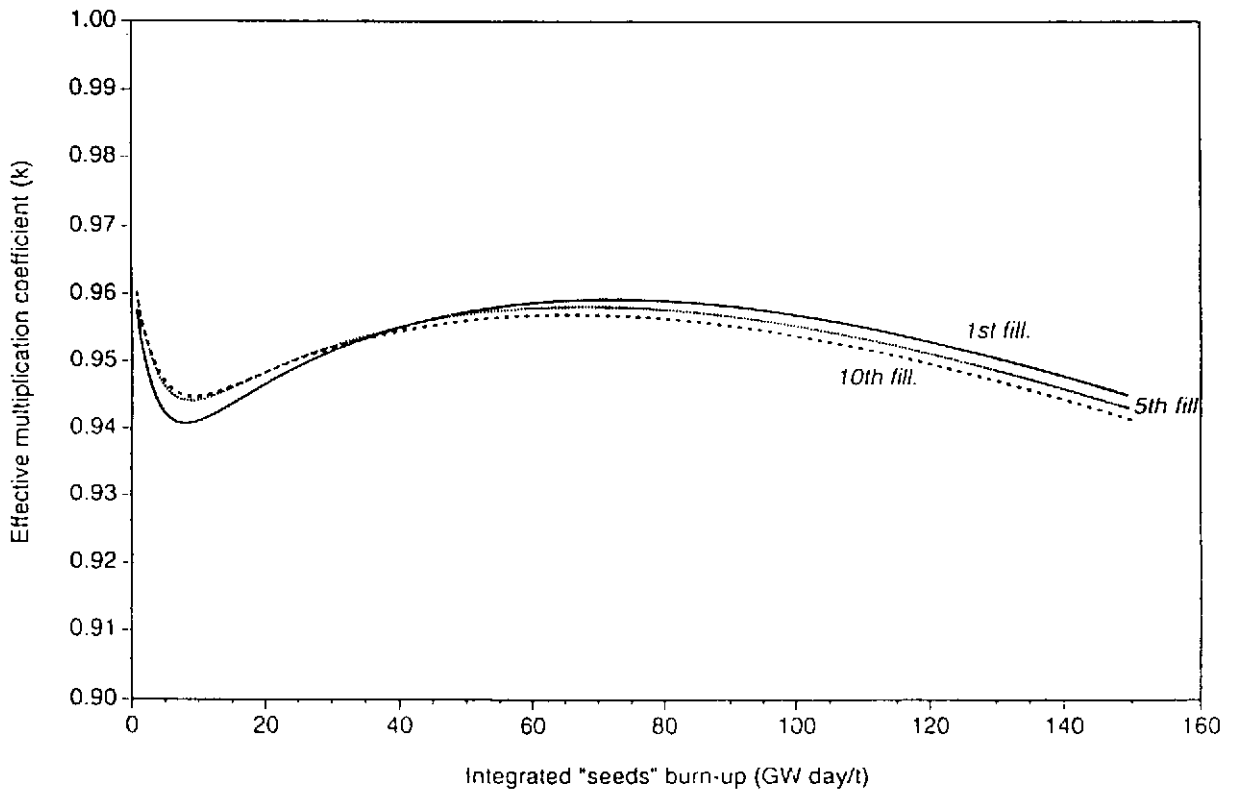


Schéma du réacteur avec son réflecteur et son refroidissement par convection.



Evolution de k avec le burn-up sur une période de 5 ans (1GW day/t équivaut ici à environ 15 jours)



Evolution de k avec le burn-up sur une période de 5 ans (1GW day/t équivaut ici à environ 15 jours), pour le premier cycle, le cinquième cycle et le dixième cycle après 4 ou 9 retraitements.

Fuel Core

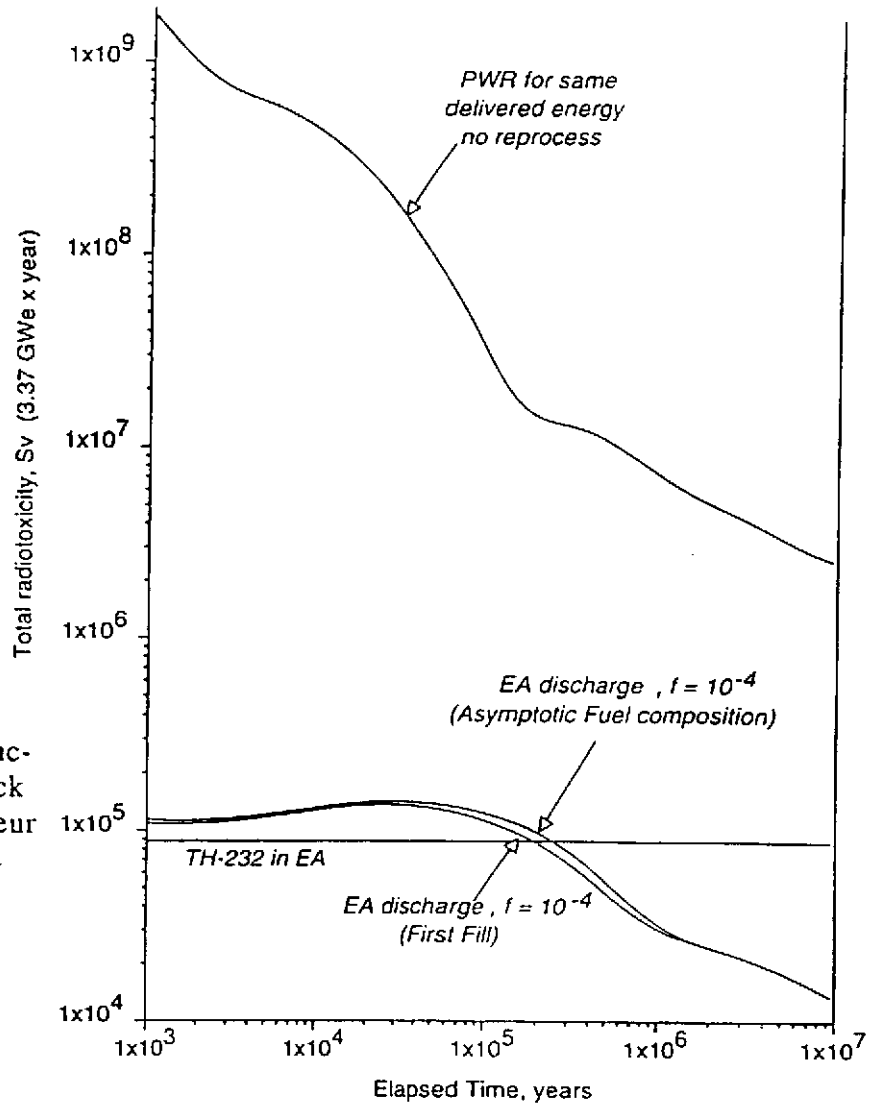
Initial fuel mixture	ThO ₂ + 0.1233UO ₂	
Initial fuel mass	28.41	ton
Cladding material	low act. HT-9	
Specific power	52.8	W/g
Power density	523.	W/cm ³
Average Fuel Temperature	908	°C
Maximum Clad Temperature	707	°C
Dwelling time (eq. @ full power)	5.0	years
Average Burn-up	100.0	GW d/t
Breeder Core		
Initial fuel mixture	ThO ₂	
Initial fuel mass	5.6	ton
Cladding material	low act. HT-9	
U233 stockpile at discharge	242.7	kg
Power density at end cycle	3.0	W/g
Primary cooling system		
Approximate weight of the coolant	10,000	ton
Pumping method	Nat. Convection	
Height convection column	25	m
Convection generated primary pressure	0.637	bar
Heat exchangers	4 x 375	MW
Decay heat removal	RVACS	
Inlet temperature, Core	400	°C
Outlet temperature, Core	600	°C
Coolant Flow in Core	53.6	ton/s
Coolant speed in Core, average	1.5	m/s
Decay Heat Passive Cooling (RVACS)		
Riser channel gap width	18	cm
Downcomer channel gap width	57	cm
Trigger Temperature	500	700 °C
EA Coolant max Temperature rise	110	83.5 °C
Time to max. Temperature rise	17.5	11.2 9.5 hours
Outlet air Temperature (@ max. temp.)	273	302 334.3 °C
Outlet air Speed (@ max. temp.)	13.4	14.2 15.2 m/s
Air flow Rate (@ max. temp.)	52.8	56.1 60 m ³ /s
Extracted Heat (@ max. temp.)	8.57	9.65 10.84 MW

Principales caractéristiques du réacteur Hybride proposé par C.Rubbia et al

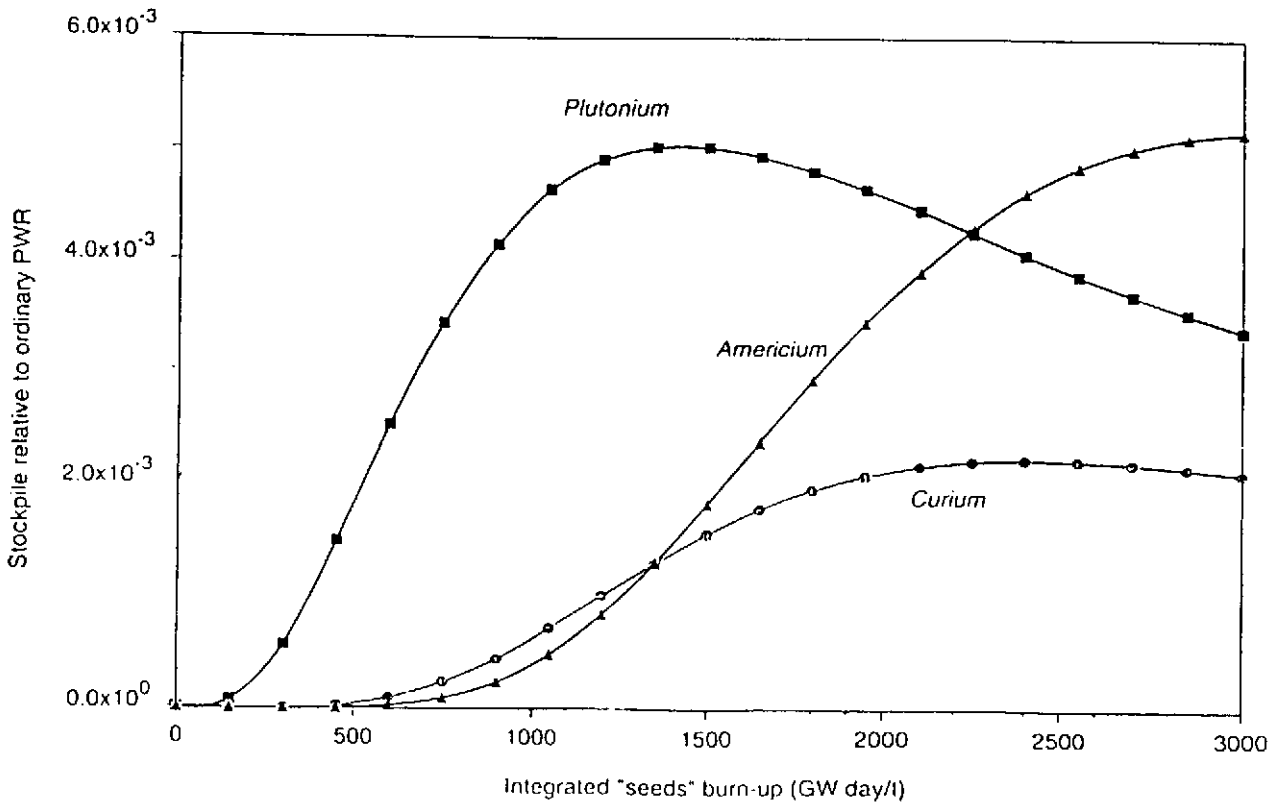
Averaged cross sections (barn) of Actinides relevant to the fast E.A.

Element	Capture	Fission	Elastic	(n->2n)	(n->n')	Total
230Th	0.198672	0.018918	14.060925	0.000598	0.989135	15.268245
232Th	0.386855	0.005966	10.923501	0.000560	0.699221	12.016131
231Pa	3.309176	0.179791	9.133289	0.000398	1.110933	13.733619
233Pa	1.121638	0.038989	8.093003	0.000162	1.754808	11.008615
232U	0.731903	2.096317	9.368297	0.000281	0.433875	12.630690
233U	0.289003	2.783923	8.919141	0.000211	0.280445	12.272738
234U	0.615564	0.248950	10.031339	0.000054	0.718069	11.613976
235U	0.574071	1.972008	8.858968	0.000457	0.640860	12.046378
236U	0.490142	0.068786	11.125422	0.000294	0.855951	12.540620
237U	0.492199	0.610042	9.189025	0.000920	0.491900	10.784104
238U	0.428265	0.025351	11.254804	0.000529	0.832077	12.541045
237Np	1.674921	0.233176	9.157094	0.000115	0.759934	11.825250
239Np	0.089278	0.595202	10.439487	0.000000	0.000000	11.123966
239Np	2.083201	0.353837	9.184162	0.000135	0.865835	12.487206
238Pu	0.756840	1.025175	11.046388	0.000152	0.342888	13.171463
239Pu	0.557041	1.780516	9.156214	0.000237	0.770227	12.264245
240Pu	0.667103	0.288079	10.331735	0.000083	0.573045	11.860045
241Pu	0.425030	2.577470	8.104389	0.000880	0.801986	11.909761
242Pu	0.535288	0.190578	11.024648	0.000229	0.667679	12.418422
243Pu	0.403097	0.810772	9.283313	0.002254	0.623218	11.122661
244Pu	0.236048	0.157011	10.805879	0.000808	0.813081	12.012833
241Am	1.963967	0.190469	9.580900	0.000004	0.565741	12.301095
242Am	0.079728	0.530819	10.233513	0.000462	0.073528	10.844059
243Am	1.582431	0.146245	10.003948	0.000028	0.935282	12.667938
242Cm	0.372092	0.105767	10.362508	0.000007	0.724242	11.564615
243Cm	0.265210	2.655223	10.012800	0.000456	1.005476	13.939172
244Cm	0.909153	0.318102	10.515990	0.000135	0.540912	12.284297
245Cm	0.335178	2.475036	8.750109	0.000831	0.862513	12.423669
246Cm	0.230261	0.181669	10.844025	0.000174	0.780190	12.036336
247Cm	0.348536	1.926754	9.117731	0.001353	0.372127	11.766518
248Cm	0.265514	0.218438	11.295776	0.000234	0.813142	12.593122
249Bk	1.447988	0.113146	10.220059	0.000052	1.186927	12.968192
249Cf	0.667223	2.707975	9.064980	0.000189	0.425589	12.865973
250Cf	0.614795	0.944213	8.927651	0.000406	0.468860	10.955943
251Cf	0.368920	2.488528	8.815815	0.001573	0.417832	12.092679
252Cf	0.320039	0.573875	11.865360	0.000335	0.414425	13.174031
253Cf	0.180410	0.716114	9.940411	0.000000	0.000000	10.836935

Sections efficaces utiles pour ce réacteur à neutrons rapides



Comparaisons de la production de déchets ,et du stock de déchets entre le reacteur hybride utilisant la filière Thorium et les reacteurs actuels PWR utilisant la filière Uranium enrichi



E-3. Conclusion de la 3^{ème} partie

L'étude conceptuelle d'un réacteur hybride de 1500 MW a le grand mérite d'avoir montré que l'ensemble des contraintes liées au concept de réacteur hybride pouvait être surmonté avec des solutions réalistes et des performances tout à fait intéressantes, même si un vigoureux programme de R&D est nécessaire. Ce "conceptual design" est un pas très important dans la compréhension complète des réacteurs sous-critiques et se présente comme une première démonstration de la faisabilité d'un réacteur prototype pour la production d'énergie en utilisant le cycle Thorium-Uranium.

Mais l'intérêt de cette proposition dépasse largement le seul concept de réacteur hybride pris isolément. En effet l'économie de neutrons plus favorable du réacteur hybride, permet une utilisation plus aisée du cycle au Thorium, cycle qui a la propriété de réduire la production de transuraniens. Ainsi le système proposé présente tout à la fois - les avantages liés strictement au système hybride (sécurité, facilité de conduite, souplesse de fonctionnement) - et les avantages liés à l'utilisation du cycle Thorium-Uranium 233. Il se trouve (en plus) que la possibilité de recycler le combustible permet de réduire de façon considérable la quantité de déchets à longue durée vie que l'on devra stocker.

Suivant quelques figures illustrant les principales caractéristiques de ce réacteur, figures qui permettent de se représenter ce que pourrait être un réacteur hybride de taille industrielle avec également ses principales caractéristiques de fonctionnement, notamment l'évolution de k avec le burn-up au cours d'un cycle de 5 années et en fonction du nombre de recyclages.

4ème partie

Recherches, développements actuels, à court terme, -perspectives à moyen terme.

A-4. Les développements actuels concernant la neutronique

Deux grandes options sont actuellement discutées pour l'utilisation des réacteurs hybrides.

La première est la **production d'énergie avec le cycle Thorium - Uranium** qui réduit drastiquement l'accumulation de déchets transuraniens.

- La neutronique des constituants principaux du réacteur qui sont nouveaux (Th ^{233}U , ^{233}Pa , Pb, ^{232}U ,...) doit être validée précisément dans le domaine d'énergie d'opération de ces réacteurs (probablement à neutrons rapides). Ce programme a été entrepris au CERN dans le cadre du programme TARC.

- Pour être complètement satisfaisante, cette filière devrait intégrer les possibilités de transmuter les produits de fission à vie longue, dans le réacteur lui-même ou dans des réacteurs dédiés. La neutronique de ces produits de fission doit bien sûr être validée expérimentalement, et la transmutation doit être optimisée (Programme TARC également).

La 2^{ème} option est celle de **l'utilisation d'un réacteur sous-critique comme incinérateur** ; (pour incinérer les actinides mineurs notamment)

Cette option est actuellement à l'étude dans le cadre du projet INCA au CEA et d'une solution à neutrons rapides (avec le plomb comme modérateur) au CNRS. Dans l'une ou l'autre option une validation ou une détermination des propriétés neutroniques de ces actinides et de leurs dérivés est nécessaire.

Le spectromètre à ralentissement (Bloc de Plomb pur et source de neutrons pulsée) semble être un outil de choix, permettant de mesurer les sections efficaces en fonction de l'énergie des neutrons avec de très faibles quantités de matériaux.

Le programme TARC qui est une collaboration CERN-IN2P3-Madrid-Athènes a largement entamé ce programme d'études, mais celui-ci devrait être poursuivi avec l'utilisation d'une source de neutrons pulsée à haut taux de répétition.

B-4. Test de configurations

Il s'agit de tester précisément une ou des configurations cible de production - assemblage de combustible, - fluide caloporteur - réflecteur. Ce test doit porter sur le couplage de la source au milieu multiplicateur, sur la neutronique en général, la mesure du flux (répartition spatiale et énergétique), la validation des données nucléaires et des codes. Il est certes possible de rechercher les configurations optimales par simulation. Cependant un test expérimental serait extrêmement instructif et convaincant. Le réacteur maquette **Masurca**, réacteur modulaire à "puissance nulle" ($P < 2\text{KW}$) semble une installation tout à fait adaptée pour réaliser de telles études de configurations si on y couple un générateur de neutrons pulsé qui permet d'étudier non seulement la répartition du flux, mais aussi d'atteindre nombre de paramètres neutroniques en étudiant la réponse temporelle du réacteur à des injections brèves de neutrons source. Un programme expérimentale est prévu dès 1997.

C-4. Vers une "facilité européenne"

La conférence de Kalmar (on Accelerator Driven Systems) qui s'est tenu en juin 96 a recommandé le lancement d'un programme européen sur les réacteurs assistés par accélérateur, avec notamment l'idée de réaliser un réacteur sous-critique d'essai de puissance modérée, mais cependant couplé à un accélérateur de forte intensité dans une ou plusieurs configurations. Une telle installation pilote devrait permettre de démontrer une bonne maîtrise de la neutronique (répartition du flux, de la puissance, l'évolution du combustible, etc), d'expérimenter de façon prudente mais en situation réelle la conduite du réacteur, la mesure en ligne de ses principaux paramètres (k , concentration en U_3 , en ^{233}Pa , en produits de fission ...) les problèmes de thermique et tous les problèmes liés au fluide caloporteur. Des discussions et des études actives sur la définition d'un tel réacteur de démonstration ont démarré à l'automne 1996.

Conclusion générale.

Cette introduction aux principes généraux de fonctionnement des réacteurs sous-critiques assistés par accélérateur et à leurs caractéristiques spécifiques doit être prise comme une initiation à un champ de recherches qui s'est ouvert réellement depuis trois ans seulement. Ce domaine de recherches a fortement progressé pendant cette période mais il est loin d'être clos. La production d'énergie nucléaire a, nous semble-t-il, de bons atouts pour pouvoir fournir une part significative de l'énergie demandée au niveau mondial dans les prochaines décennies. Les réacteurs sous-critiques assistés par accélérateur sont une voie à explorer très sérieusement et avec dynamisme, car si le concept est ancien, il est maintenant possible de le concrétiser. Nous avons essayé d'explicitier et d'expliquer les apports potentiels nouveaux de ce concept, en termes de sûreté, de nouvelles possibilités pour la production d'énergie en réduisant la production de déchets, ou pour l'incinération rapide d'une partie du stock actuel de déchets. La demande sociale pour plus d'énergie, de sûreté, et moins de pollution de toutes sortes (atmosphérique, radioactive, chimique etc.) est insistante, légitime, largement partagée. Les solutions réalistes ne sont pas légion et il ne serait pas anormal que cette voie prometteuse soit explorée par une partie de notre communauté de physiciens avec un dynamisme équivalent à celui qui caractérise notre activité de recherches en physique nucléaire ou en physique des particules.

Accélérateurs de haute intensité

J-M. Lagniel

Commissariat à l'Energie Atomique
Direction des Sciences de la Matière
Groupe d'Etudes et de Conception des Accélérateurs

CEA/Saclay, LNS
91191 Gif-sur-Yvette CEDEX, France

Résumé

Après avoir brièvement décrit les applications des accélérateurs à fort courant, les paramètres de deux machines existantes (un cyclotron et un linac) sont comparés et les choix faits pour de nouveaux projets sont présentés. Le problème de la maîtrise des pertes de faisceau qui est un point crucial des accélérateurs pour faisceaux d'ions de forte intensité est ensuite abordé. Pour conclure, il est montré que la meilleure stratégie à mettre en oeuvre en vue de la réalisation de telles machines est de poursuivre le programme de R&D en construisant un Injecteur de Protons Haute Intensité : IPHI.

Abstrat

After a short description of some high-intensity accelerator applications, the parameters of two existing machines (cyclotron and linac) are compared and the choices done for several new projects are presented. The problem of beam loss control which is a major problem for high-power ion accelerators is then analysed. To conclude, it is shown that the best strategy to go further towards the construction of such machines is to progress in the R&D program building the High-Intensity Proton Injector IPHI.

-I- Applications des accélérateurs haute intensité -

Les accélérateurs linéaires (linacs) utilisés comme injecteurs des synchrotrons destinés à la physique nucléaire ou à la physique des particules (CERN, DESY, Fermilab, BNL...) sont des machines qui délivrent de très hautes intensités (~ 200 mA) mais les cycles utiles sont faibles (typiquement 10^{-3} avec une cadence de répétition de 10 Hz). La puissance moyenne du faisceau accéléré est donc modeste.

Nous nous intéresserons ici à des "accélérateurs haute intensité" capables de fournir des faisceaux d'ions (principalement protons et deutons) avec un courant moyen supérieur ou égal à 10 mA, qui fonctionnent avec un cycle utile élevé (de 10% à 100%), à des énergies comprises entre ~ 10 MeV et ~ 1,5 GeV. Ce sont donc, pour la plupart, des accélérateurs capables de produire des faisceaux de très forte puissance qui ont de multiples applications ¹⁻²⁾ :

- Sources de neutrons de spallation

Les machines actuelles fonctionnent à des puissances faisceau comprises entre quelques centaines de kW et environ 1MW (protons). Les linacs sont utilisés en impulsions longues (LAMPF ³⁻⁴⁾ au LANL, Moscow Meson Factory ⁵⁾, ou en impulsions courtes (~ 1 μ s) avec des puissances réduites car il faut accélérer des faisceaux d'H⁺ pour injecter dans des anneaux de compression (ISIS au RAL, LAMPF au LANL). Les cyclotrons sont utilisés pour fournir des faisceaux continus (SIN, TRIUMF) avec une puissance qui dépasse 1 MW pour le SIN ⁶⁾ du Paul Scherrer Institute (voir chapitre II).

Les projets concernent la production de pulses courts (< 1 μ s pour permettre des mesures de temps de vol) avec des puissances faisceau comprises entre 1 et 5 MW. Il s'agit des projets ESS ⁷⁻⁸⁾ (European Spallation Source, 1.334 GeV - 5 MW), AUSTRON (1-5 MW en Autriche), ou NSNS aux USA (National Spallation Neutron Source, 5 puis 10 MW à Oak Ridge).

- Accélérateurs médicaux (projets)

Un linac 100 MeV protons capable de fournir 1 MW faisceau est étudié aux USA pour la production de radio-isotopes.

La thérapie par capture de neutrons dans le bore nécessite des linacs protons 100 mA qui fonctionnent en mode continu à quelques MeV.

- Fusion

Pour la recherche sur les matériaux qui seront utilisés dans la future génération de machines à confinement magnétique (ITER, DEMO), des faisceaux intenses de deutons ($I > 250$ mA en continu) sont nécessaires pour produire des flux élevés de neutrons de 14 MeV (projet américain FMIT, japonais ESNIT ou international IFMIF ⁹⁾).

Pour la fusion inertielle par faisceaux d'ions lourds, il faut comprimer des faisceaux de haute énergie pour atteindre des intensités crêtes de plusieurs kA (études aux USA et à GSI en Allemagne).

- Transmutation des déchets (et du Pu) et production d'énergie

Plusieurs études sont réalisées dans le monde : projet ATW (LANL) aux USA, projet OMEGA ¹⁰⁾ (JAERI) au Japon, projet "Amplificateur d'Énergie" ¹¹⁾ dirigé par C. Rubbia, programmes ISAAC et INCA du CEA, GDR "GEDEON" (CEA + CNRS + EDF) en France.

Tous ces projets prévoient l'utilisation de faisceaux continus de protons de 20 - 200 mA entre 1 et 1,6 GeV. Les puissances faisceaux sont dans la gamme 20 MW - 100 MW.

- Production de tritium

Pour les projets APT ¹²⁾ aux USA, TRISPAL ¹³⁾ en France et pour le projet étudié en Grande Bretagne, il faudra réaliser des linacs pour faisceaux continus de protons entre 600 MeV et 1,6 GeV avec des intensités comprises entre 40 et 150 mA.

-II- Machines en fonctionnement et projets -

-II-1- Le cyclotron du PSI⁶⁾

Les cyclotrons du Paul Scherrer Institute à Villigen en Suisse permettent d'atteindre une énergie finale de 590 MeV. La machine principale comporte 8 secteurs et 4 cavités principales qui fournissent une tension crête de 730 kV pour obtenir une séparation des derniers tours de 7 mm (516 kW / cavité). Le rendement des machines (Puissance faisceau / Puissance consommée totale) est de 18%. Les performances atteintes par le SIN depuis sa construction sont les suivantes :

- 1974, $I = 0,1$ mA (59 kW faisceau),
- 80's, $I = 0,25$ mA (150 kW faisceau),
- 1995, $I = 1,4$ mA (830 kW faisceau).

Des modifications récentes permettent maintenant d'approcher la limite de charge d'espace qui est d'environ 2 mA (puissance faisceau ~ 1,2 MW). Ce sont les pertes de particules qui produisent l'activation de la machine et limitent les performances. La faible focalisation réalisée dans un cyclotron et la difficulté de bien séparer les derniers tours font que ce type de machine est intrinsèquement limité à des puissances faisceau de l'ordre de 5 MW.

-II-2- Le linac du LAMPF³⁻⁴⁾

Le linac du LAMPF (Los Alamos Meson Physics Facility, LANL, USA) mesure 780 m de long pour une énergie finale de 800 MeV. Sa conception était déjà commencée en 1965, l'évolution des performances au cours du temps est donnée ci-dessous :

- 1972, $I_{\text{moyen}} = 1$ μ A,
- 1974, $I_{\text{moyen}} = 13$ μ A,
- 1976, $I_{\text{moyen}} = 100$ μ A avec un cycle utile de 6% à 120 Hz,
- 1979, $I_{\text{moyen}} = 500$ μ A avec un cycle utile de 7.5% à 120 Hz.

A présent, le LAMPF est capable de fonctionner avec un courant crête de 17 mA pour une puissance faisceau de 1,4 MW. En routine, le courant moyen est de 1,3 mA (1,0 MW faisceau); il faut cependant de 4 à 5 semaines de réglages à l'équipe expérimentée du LANL pour arriver à ce résultat.

Comme pour le SIN, c'est la nécessité de limiter les pertes de particules pour pouvoir accéder à la zone machine qui fixe les performances du LAMPF. Cependant, contrairement aux limites de principe des cyclotrons (focalisation faible et séparation des tours pour extraire), les progrès réalisés après la construction de ce linac permettent de penser que cette technologie est loin d'avoir atteint ses limites :

- Le LAMPF n'utilise pas de RFQ car les premiers accélérateurs de ce type ont été construits à partir du début des années 80. Le faisceau est donc mal groupé au départ de l'accélérateur; le courant accéléré avec un RFQ pourrait être doublé sans que les pertes soient augmentées.
- L'écart de 1 à 4 entre les fréquences du DTL (200 MHz) et du CCL (800 MHz) est une autre cause de perte de faisceau (compression des bunchs + désadaptation). Une étude récente propose la construction d'un injecteur à 400 MHz pour améliorer les performances, les calculs montrent qu'il est alors possible de multiplier le courant par 5 (5 MW faisceau avec le même cycle utile).
- Le faisceau du LAMPF est pulsé, 90 % des pertes de particules se produisent pendant les transitoires (temps de réponse des systèmes HF). Un accélérateur qui fonctionne en continu n'a évidemment pas cet inconvénient.

Une extrapolation des paramètres du LAMPF montre donc qu'il est possible d'atteindre des puissances faisceau de l'ordre de 80 MW avec un linac qui fonctionne en continu.

-II-3- Quels choix pour les nouveaux projets ?

Pour choisir le type d'accélérateur le mieux adapté à une application donnée, l'équipe de projet doit prendre en considération plusieurs critères :

- 1- Choix du couple Intensité - Energie

Si l'objectif est de produire un flux de neutrons donné, l'optimum dépend du type d'accélérateur choisi. Par exemple, un ensemble de cyclotrons fournissant 12,5 mA à 1 GeV peut être remplacé par un linac 33,5 mA - 500 MeV.

- 2- Analyse en terme de risques

La comparaison de différents projets doit aussi tenir compte des risques pris par les concepteurs. Par exemple, vouloir accélérer un faisceau de 10 mA à 1 GeV avec cyclotron est un challenge très difficile alors que c'est une performance relativement modeste pour un linac. En se basant sur les limites de charge d'espace des deux types de machine, il est maintenant admis qu'un risque "faible" correspond à 2,5 mA pour un cyclotron et 30 mA pour un linac, que le risque est "raisonnable" pour 5 mA avec un cyclotron et 60 mA avec un linac, que le risque d'échec devient élevé pour 10 mA avec un cyclotron et 120 mA avec un linac.

3- Analyse en terme de coût (+ risque)

Quelques projets utilisant soit des cyclotrons soit des linacs ont été chiffrés. Pour la partie basse énergie de la machine, il semble que le coût d'un injecteur composé de deux cyclotrons pour fournir 12,5 mA de protons à 10 MeV (125 kW) soit compris entre 50 et 100 MFF alors que celui du projet IPHI qui est un prototype de tête de machine (100 mA - 10 MeV, voir chapitre IV) pour un linac de puissance est de 90 MFF pour 1 MW faisceau.

D'autres données montrent que le coût total d'une machine basée sur un seul étage cyclotron final pour 12,5 mA - 1 GeV (risque élevé) est du même ordre de grandeur (~ 1 GFF) que celui d'un linac 33,5 mA - 500 MeV (risque faible). Il faudrait construire deux ensembles de cyclotrons 6 mA - 1 GeV pour revenir à un risque "raisonnable" ou quatre ensembles de cyclotrons 3 mA - 1 GeV pour retrouver un risque équivalent; le coût de ces machines ne serait alors plus compétitif.

Pour conclure cette section, nous pouvons noter que :

- Tous les nouveaux projets sont basés sur l'utilisation d'accélérateurs linéaires (y compris le projet d'amplificateur d'énergie¹¹⁾),
- Les cyclotrons sont compétitifs pour des puissances faisceau inférieures à 5 MW (continu).

-II-4- Le projet APT¹²⁾

Plusieurs programmes basés sur l'utilisation d'un accélérateur de forte puissance sont étudiés au LANL pour la transmutation des déchets nucléaires (ATW), pour la production de tritium (APT) et pour la destruction du plutonium (ABC). Toutes ces applications nécessitent la mise au point de linacs capables d'accélérer des protons avec $50 < I < 200$ mA et $600 < W < 1600$ MeV en continu. Ces machines sont étudiées au LANL depuis 1989 (voir le schéma type donné figure 1).

L'équipe du LANL, après avoir souligné que la faisabilité de ces machines est loin d'être démontrée et que des tests de fiabilité sont indispensables, a entrepris la construction du LEDA (Low-Energy Demonstration Accelerator). Il s'agit de réaliser la partie basse énergie d'un linac capable d'accélérer 100 mA de protons en continu jusqu'à 20 MeV (source 75 keV, RFQ 7 MeV et CCDTL 20 MeV) pour le projet APT. Les études engagées concernent la mise au point d'une source ECR 75 keV, le test de modèles froids (RFQ de 7 m de long et CCDTL) et d'un RFQ chaud fabriqué par brasage, des tests avec faisceau sur la source et le RFQ de Chalk River...

Le budget (investissements + main d'oeuvre) attribué au programme de R&D accélérateur pour le projet APT est de 21,9 M\$ en 1996, 35,7 M\$ en 1997 et 29,4 M\$ en 1998 (~ 450 MFF / 3 ans). Deux options sont étudiées pour la partie haute énergie de la machine ($W > 100$ MeV) : l'option "classique" utilisant des cavités en cuivre du type LAMPF et une option "cavités supraconductrices". C'est cette dernière qui sera probablement retenue pour la version finale de la machine.

-II-5- Projets étudiés par CEA-DSM-GECA / LNS

- Le projet TRISPAL ¹³⁾

Pour ce projet de la Direction des Applications Militaires du CEA, le LNS participe depuis février 1992 à l'étude d'un linac de haute énergie dont les caractéristiques résultent d'une étude technico-économique ayant pour but de minimiser le coût total du projet (acquisition + exploitation). Pour atteindre les objectifs fixés, cette étude a montré que l'accélérateur doit fournir un faisceau de 40 mA de protons à 600 MeV en continu, soit une puissance faisceau de 24 MW.

Le schéma général de l'accélérateur est donné figure 1. Les quatre éléments principaux sont :

- la source
- le linac RFQ (Radio Frequency Quadrupole)
- le DTL (Drift Tube Linac)
- le CCL (Coupled Cavity Linac)

Les travaux réalisés concernent la dynamique des particules et la définition des éléments de l'accélérateur pour l'avant projet qui sera rédigé en 1997.

- Le projet IFMIF ⁹⁾

IFMIF (International Fusion Material Irradiation Facility) est une installation qui doit produire un flux très élevé (2 MW/m^2) de neutrons de 14 MeV destiné au test des matériaux qui seront utilisés dans les futurs réacteurs à fusion ITER et DEMO. Pour atteindre les performances souhaitées, les neutrons doivent être produits par deux faisceaux de 125 mA de deutons continus à 35 MeV qui interagissent avec une cible de lithium liquide. L'installation est prévue pour pouvoir doubler le flux de neutrons en passant de deux à quatre systèmes accélérateurs.

En association avec l'université de Francfort, le GECA participe à l'étude des sources et des accélérateurs du projet IFMIF qui est, comme ITER, organisé autour d'une collaboration Europe-Japon-USA-CEI. L'avant projet doit être rédigé en 1996.

- Le projet ESS ⁷⁻⁸⁾

Les caractéristiques principales du linac de l'ESS sont imposées par la nécessité d'injecter le faisceau dans des anneaux (synchrotrons) pour le comprimer en temps. Cette contrainte impose l'accélération d'un faisceau d'H⁺ pour obtenir un bon rendement d'injection dans les anneaux, de pulser le faisceau pour minimiser les pertes de particules dans les anneaux et tenir compte du temps de compression, et de l'accélérer à haute énergie (1,334 GeV) pour limiter la charge d'espace.

La forte puissance moyenne visée (5 MW) impose l'accélération d'un courant crête supérieur à 100 mA. L'utilisation d'un système de "funneling" qui combine les faisceaux de deux ensembles source-RFQ à basse énergie et le fonctionnement pulsé vont poser des problèmes de perte de particules pendant la phase transitoire d'établissement du courant (voir section II-2). ESS, avec une puissance faisceau moyenne de 5 MW, sera donc certainement aussi difficile (si non plus difficile) à concevoir et à régler qu'une machine délivrant un faisceau de 50 MW en continu.

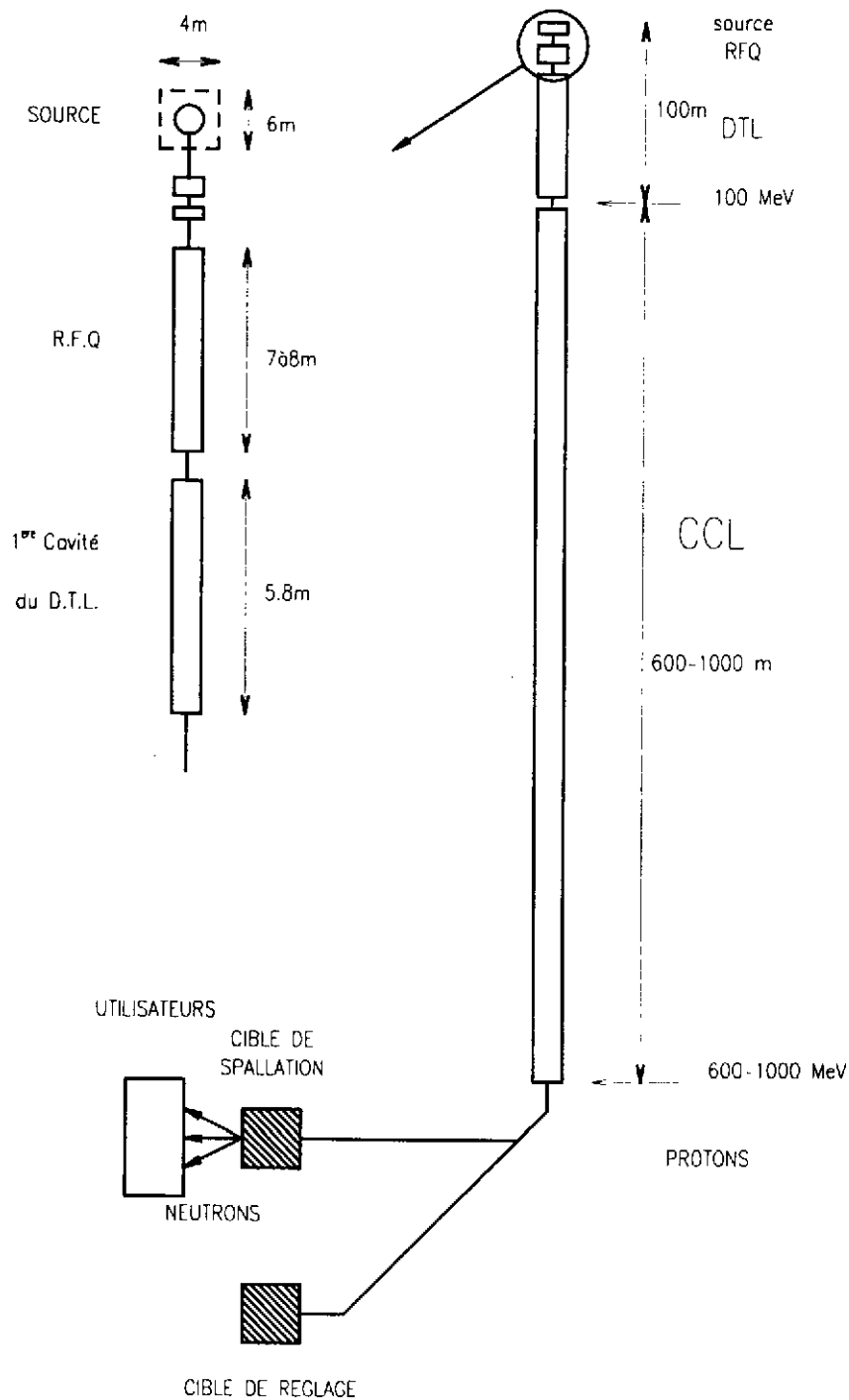


Figure 1 : Schéma type d'un accélérateur de forte puissance pour des faisceaux de haute énergie. (transmutation, production d'énergie, sources de neutrons de spallation ou production de tritium).

Pour le projet TRISPAL, l'énergie finale est de 600 MeV pour une longueur totale de 840 m.

-III- Les principaux problèmes à résoudre -

Les problèmes à étudier en vue de la construction d'un linac destiné à accélérer un faisceau de forte puissance sont nombreux et complexes, les performances visées sont en effet d'un à deux ordres de grandeur supérieures à celles des machines existantes. Les principaux problèmes à résoudre peuvent être classés comme suit :

- Les points critiques :

- **La dynamique du faisceau.** Un accélérateur linéaire de forte puissance ne peut fonctionner que si l'activation de la structure reste tolérable. Pour cela, les pertes de faisceau doivent être extrêmement faibles, le grossissement des émittances et la formation du "halo" doivent donc être compris et maîtrisés. Ce n'est pas le cas à l'heure actuelle.

Seules des études théoriques et expérimentales approfondies conduisant à une meilleure compréhension de la dynamique peuvent nous permettre de définir les caractéristiques d'un accélérateur viable et optimisé en coût. Les expérimentations sont indispensables pour mettre au point des diagnostics adaptés aux fortes puissances faisceau et à la mesure du halo, et pour définir la stratégie des réglages (montée en puissance).

- **La réalisation d'un injecteur** (source, RFQ et premier élément du DTL) capable de délivrer un faisceau de très bonne qualité. La crédibilité de l'étude, le coût global et la viabilité (pertes de faisceau limitées) de la machine sont en effet directement liés aux caractéristiques du faisceau délivré par cet injecteur.

Ces deux points sont développés dans les chapitres suivants.

- Les points importants :

- **Coupleurs et fenêtres HF, asservissements HF-faisceau.** La mise au point des fenêtres HF qui isolent la cavité sous vide du guide, et des coupleurs qui transmettent la puissance HF à la cavité et au faisceau, est un problème très délicat, quelque soit le type de cavité utilisé (cuivre ou supraconducteur). Tout le design de l'accélérateur dépend de la puissance maximale que peuvent transmettre ces deux éléments car ce sont eux qui imposent le schéma de distribution HF. Surestimer leurs possibilités conduirait bien sûr à une machine peu fiable alors qu'une sous estimation augmenterait le prix de la machine et compliquerait énormément les réglages (calages en phase et en amplitude des cavités).

La mise au point des asservissements HF-faisceau est également un sujet important à maîtriser. Les performances demandées sont en effet très pointues : 1% pour les asservissements de niveau et 1° pour les asservissements de phase entre les cavités.

- **Radioprotection, tenue aux rayonnements, sûreté.** Les caractéristiques des rayonnements produits en fonction de l'intensité et de l'énergie du faisceau perdu sont des données fondamentales pour le projet. Elles doivent être estimées pendant la phase de fonctionnement de l'accélérateur et après l'arrêt du faisceau. La radioprotection et le choix de l'emplacement des matériels dépendent de ces données, ce sont donc elles qui déterminent le génie civil de l'installation. La tenue aux rayonnements des structures HF et de tous les éléments à implanter dans la zone machine ou à proximité de celle-ci doit être connue. L'analyse de sûreté de l'installation "accélérateur" et son implication sur les systèmes de sûreté de la cible (donc sur le coût de la cible) est évidemment un point important. Tous ces domaines sont fondamentaux pour la crédibilité technique et l'évaluation du coût du projet. Ils peuvent être étudiés en collaboration avec le SPR et les spécialistes des réacteurs.

- **Calcul des structures HF.** Aux problèmes classiques (minimisation des risques de claquage et de "multipactoring", optimisation des caractéristiques) s'ajoutent ceux relatifs à la forte puissance injectée dans les cavités et un fonctionnement en continu. Les outils à utiliser doivent permettre l'optimisation du système de refroidissement, le calcul de la répartition de la température et des déformations mécaniques engendrées. Cette étude doit bénéficier des travaux réalisés dans le domaine des réacteurs (thermique, mécanique), une collaboration avec Thomson-CSF est en cours pour le projet TRISPAL.

- Les autres points importants :

- génie civil et alignement de la machine,
- quadrupoles, correcteurs et alimentations associées,
- vide,
- distribution électrique et réfrigération,
- mesures magnétiques et mesure des champs HF,
- informatique et électronique, système de commande / contrôle.

Les problèmes à maîtriser avant de pouvoir entreprendre la construction des accélérateurs de forte puissance sont donc nombreux, il faut fournir un effort de R&D conséquent pour rechercher des solutions globales sûres et optimisées en coût. Nous devons aussi souligner que la hiérarchie proposée ci-dessus a pour unique objectif de mettre en relief les points critiques du projet. S'il est évident qu'un effort particulier doit leur être consacré, l'imbrication des différents thèmes est telle qu'une analyse globale s'impose dès la phase d'étude. L'analyse "par spécialités" ne doit donc pas masquer la nécessité de veiller à la cohérence du projet. C'est également un point délicat (et souvent mal compris) inhérent à ce type de machines complexes, modifier un paramètre local a souvent des conséquences importantes sur l'ensemble de l'accélérateur.

-IV- Maîtrise des pertes de faisceau.

-IV-1- Niveau tolérable des pertes.

Un accélérateur de forte puissance ne peut fonctionner que si les pertes de faisceau sont limitées pour que l'activation des structures permette les interventions de maintenance dans la zone machine.

Pour des faisceaux de protons, deux rapports ¹⁴⁻¹⁵⁾ donnent la dépendance en énergie du courant perdu pour que la dose induite par l'activation des structures soit de 2,8 mrad/heure à une distance de 1 m après un temps de fonctionnement long et un arrêt d'une heure. Des courbes présentées dans ces rapports, il ressort que les pertes acceptables sont de l'ordre de :

- | | |
|----------------------|--|
| - 200 nA/m à 10 MeV | ($\Delta I/I < 2 \cdot 10^{-6}$ pour $I = 100$ mA) |
| - 3 nA/m à 50 MeV | ($\Delta I/I < 3 \cdot 10^{-8}$ pour $I = 100$ mA) |
| - 0,8 nA/m à 100 MeV | ($\Delta I/I < 8 \cdot 10^{-9}$ pour $I = 100$ mA) |
| - 0,1 nA/m à 500 MeV | ($\Delta I/I < 1 \cdot 10^{-9}$ pour $I = 100$ mA) |
| - 0,05 nA/m à 1 GeV | ($\Delta I/I < 5 \cdot 10^{-10}$ pour $I = 100$ mA) |

Pour un accélérateur de deutons à une énergie de 30-40 MeV (IFMIF), les pertes acceptables sont de l'ordre de 1 nA/m ($\Delta I/I < 8 \cdot 10^{-9}$ pour $I = 125$ mA). Ces valeurs limites sont valables que les cavités soient en cuivre ou en niobium ¹⁶⁾.

-IV-2- Maîtrise du "halo".

Les pertes relatives de faisceau doivent donc être extrêmement faibles, il est nécessaire de comprendre et de maîtriser le grossissement des émittances et la formation du "halo" : un nuage de particules qui se développe autour du faisceau et qui est observé dans les accélérateurs quand l'intensité du faisceau est élevée. Concernant ce phénomène, G. Lawrence¹⁷⁾ a formulé les principales questions qui doivent être solutionnées. Elles peuvent être reprises et complétées sous la forme suivante :

- 1- Par quel mécanisme les particules initialement dans ou au voisinage du coeur du faisceau gagnent suffisamment d'énergie pour s'éloigner du coeur ?
- 2- Est-ce que le halo a une étendue limitée ?
- 3- A quelle vitesse se forme le halo ?
- 4- Si le halo est supprimé par un collimateur, est-ce qu'il réapparaît ? Avec quelle vitesse ?
- 5- Est-il possible de réduire la taille et/ou de ralentir la formation du halo ?

Ces questions montrent bien que la compréhension des phénomènes pouvant limiter les performances des machines de forte puissance est loin d'être complète. Pour y répondre, les efforts portent sur :

- le développement des études théoriques (analytiques et simulations) pour comprendre et maîtriser les phénomènes qui conduisent à la formation du halo,
- des études expérimentales pour connaître les conditions réelles du faisceau et valider les études théoriques.

-IV-3- Etudes théoriques.

Plusieurs études très récentes (depuis 1993) permettent de mieux comprendre les phénomènes physiques responsables des redistributions de particules dans un faisceau en charge d'espace (cf. J-M. Lagniel¹⁸⁾ et les références citées dans ce rapport). Les résultats obtenus grâce aux simulations numériques et aux études analytiques sont maintenant nombreux, il n'est pas possible d'en donner ici un résumé complet. Nous mentionnerons uniquement le phénomène qui semble le plus important :

ce sont les mouvements cohérents du faisceau induits par le système de focalisation ou par des désadaptations qui excitent des résonances qui peuvent se chevaucher pour créer des zones chaotiques permettant la diffusion des particules qui forment ainsi un halo.

En se fondant sur les connaissances apportées par ces études, la stratégie à adopter pour minimiser les pertes de faisceau commence à se dessiner. Les résultats sont plutôt qualitatifs mais l'approche utilisée est si riche qu'elle doit encore être exploitée pour simuler des faisceaux avec des distributions plus réalistes que celles étudiées jusqu'à présent.

-IV-4- Etude expérimentale, l'expérience FODO.

La validation des codes de calcul et des théories, la mise au point d'une stratégie permettant d'aligner et d'adapter le faisceau, la conception et le test de capteurs, sont des objectifs qu'il est indispensable d'atteindre pour éviter la formation d'un halo pouvant conduire à des pertes de faisceau inacceptables. Nous avons donc entrepris ces études en utilisant un dispositif expérimental existant au Laboratoire National Saturne, c'est "l'expérience FODO" qui est actuellement réalisée par une collaboration CEA-DSM / CEA-DAM / Los Alamos.

L'expérience FODO consiste à caractériser de façon précise le faisceau à l'entrée du canal pour déterminer sa brillance (intensité et émittance), puis à caractériser les grossissements d'émittance et la formation du halo à la traversée du canal de transport de type FODO¹⁹⁻²⁰⁾.

-V- Le projet IPHI : Injecteur de Protons Haute Intensité

Pour accélérer un faisceau intense de protons (jusqu'à 100 mA) à une énergie supérieure à 10 MeV, l'Injecteur de Protons Haute Intensité (IPHI, figure 2) se compose :

- de la **source** de protons et du transport de faisceau à basse énergie (100 keV)
- du **RFQ** (énergie de sortie entre 5 et 6 MeV)
- d'un module **DTL** (énergie finale ~ 11 MeV)

La **ligne diagnostics** est utilisée pour mesurer avec précision toutes les caractéristiques du faisceau en sortie du RFQ dans un premier temps en plaçant des quadrupoles de focalisation à la place du DTL, puis en sortie du DTL dans un deuxième temps.

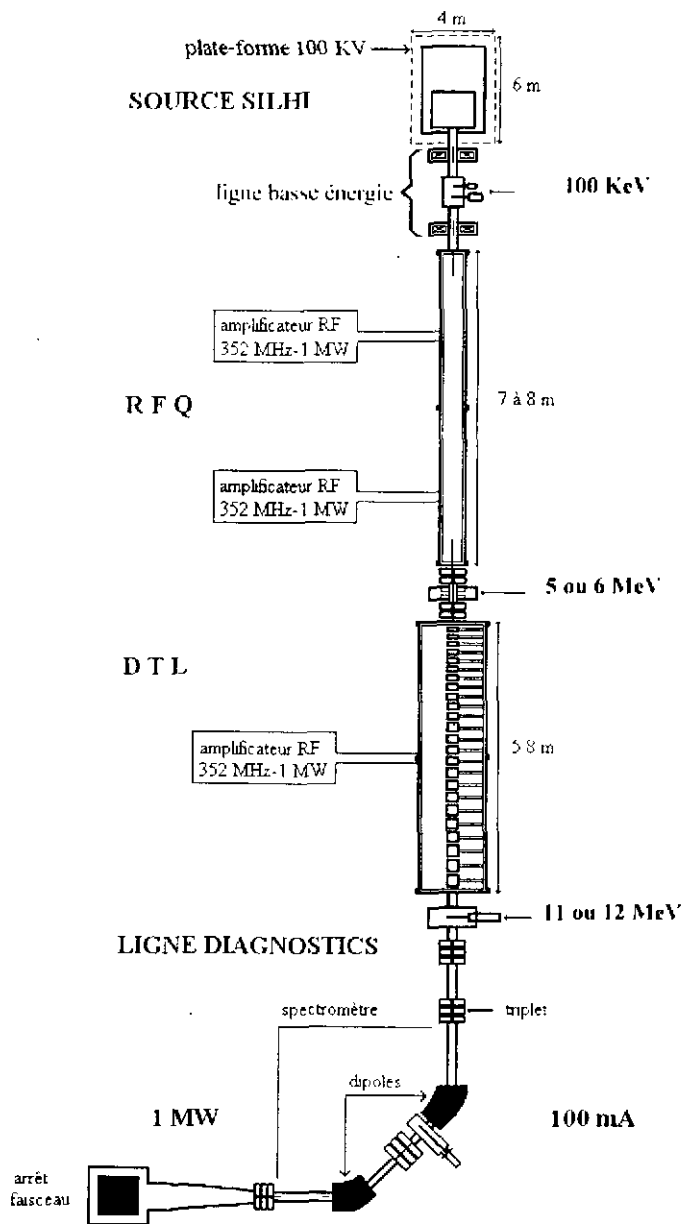


Figure 2 : Vue d'ensemble du prototype IPHI dans sa phase finale.

-V-1- La source et la ligne de transport basse énergie -

Débuté au second semestre 1994, le programme SILHI (Source d'Ions Légers Haute Intensité) a été entrepris pour étudier, réaliser et optimiser une source dimensionnée pour délivrer des faisceaux intenses avec de très bonnes performances. Les objectifs sont les suivants :

- faisceau continu jusqu'à 100 mA à 100 keV (protons puis deutons)
- émittance rms normalisée $< 0.2 \pi$ mm.mrad
- rendement en protons (ou en deutons) $> 90 \%$
- fluctuation du courant $< 2\%$ (pour éviter les instabilités HF et la formation d'un halo)
- fiabilité $> 90\%$

Le fonctionnement continu et la nécessité d'obtenir une très bonne disponibilité nous ont conduits à choisir une source de type ECR (Electron Cyclotron Resonance) qui a une durée de vie importante puisqu'elle n'utilise pas de filament. Dans une source ECR, c'est l'excitation, en présence d'un champ magnétique, de la résonance cyclotronique électronique qui permet l'ionisation avec un très bon rendement.

Le programme SILHI est piloté et financé par DSM-GECA, il est mené en collaborations :

- avec le laboratoire Plasmas et Sources d'Ions (DSM-DRFMC-PSI, CEA-Grenoble) qui est à l'origine des sources ECR (1975) et qui poursuit en outre leur développement pour la production d'ions lourds multichargés
- avec l'IN2P3 (participation du personnel IN2P3 du LNS)

Les études de SILHI font partie de la contribution de la DSM au projet TRISPAL (CEA-DAM) et au programme international IFMIF (International Fusion Material Irradiation Facility) piloté par l'IEA (International Energy Agency). Les résultats obtenus sont également directement utilisables pour les autres projets basés sur l'utilisation d'accélérateurs fort courant.

L'équipement qui permet de mettre au point la source et les diagnostics nécessaires pour analyser avec précision les caractéristiques du faisceau extrait à 100 kV est en construction dans les locaux du LNS à Saclay. Il comprend la source qui est placée sur une plate-forme haute tension et l'ensemble ligne de transport - diagnostics.

La source qui a été lancée en fabrication dès le premier semestre 1995 est décrite figure 3. Elle a été conçue en tenant compte de l'expérience acquise au LNS depuis de nombreuses années, des résultats des premiers tests à Grenoble, et des travaux effectués au Canada (Chalk River National Laboratory) et aux Etats Unis (Los Alamos National Laboratory). Pour accroître la durée de vie de la source, la fenêtre en quartz du guide d'onde HF est placée derrière un coude refroidi, dans une zone de fort champ magnétique. Les expériences réalisées à Grenoble ont montré qu'elle est ainsi protégée des dégradations produites par le plasma et les électrons rétrodiffusés. Une transition HF à 3 "ridges" permet d'augmenter la densité du champ hyperfréquence.

La ligne basse énergie (figure 3) a été conçue pour conduire le faisceau de 10 kW et pour permettre une analyse complète de ses caractéristiques.

La pression dans la ligne est ajustée pour que les électrons libérés par l'ionisation du gaz résiduel compensent la charge d'espace du faisceau. Tous les calculs de dynamique des particules ont donc été faits avec un faisceau neutralisé dès la sortie du système d'extraction, et en tenant compte du champ magnétique réel créé par la lentille magnétique. Cependant, les hypothèses faites pour estimer le degré de neutralisation de la charge d'espace sont telles qu'il sera nécessaire d'effectuer des mesures pour

recaler ces calculs. Le système de mesure du taux de neutralisation qui sera installé sur la ligne basse énergie reste à construire.

Le planning du programme SILHI se déroule comme prévu. La plate-forme haute tension, l'alimentation 100 kV - 200 mA, la source et la première partie de la ligne de transport sont installées. Le système de commande-contrôle et les sécurités nécessaires pour gérer l'ensemble de l'expérience ont été testés et fonctionnent parfaitement bien. La deuxième chambre diagnostics est en cours d'installation.

Les premiers résultats obtenus rapidement sont très encourageants :

- 23 juillet 1996 : Premier plasma
- 7 août 1996 : 46.2 mA à 70 keV (extraction ϕ 10 mm \rightarrow 105 mA/cm²)
- 28 octobre 1996 : 46.4 mA à 95 keV (extraction ϕ 6 mm \rightarrow 164 mA/cm²)
- 15 novembre 1996 : 54.0 mA à 95 keV (extraction ϕ 6 mm \rightarrow 191 mA/cm²)

La source fonctionne donc dès maintenant à sa tension nominale de 95 kV avec un faisceau continu et la **densité de plasma réalisée représente déjà 65% de l'objectif fixé.**

Après avoir optimisé la source et son système d'extraction et mesuré avec précision les caractéristiques du faisceau extrait, la configuration de la ligne de transport sera modifiée pour se placer **dans les conditions d'injection dans le RFQ.** Les mesures qui seront alors entreprises sont fondamentales, car le faisceau à l'entrée du RFQ doit avoir un diamètre inférieur à 5 mm tout en restant très stable. De plus, le champ de fuite du RFQ créant une déneutralisation rapide de la charge d'espace, il faudra se placer aussi près que possible des conditions réelles pour effectuer les mesures, car un calcul précis est très difficilement réalisable dans cette zone qui conditionne pourtant toute la dynamique du faisceau dans le RFQ.

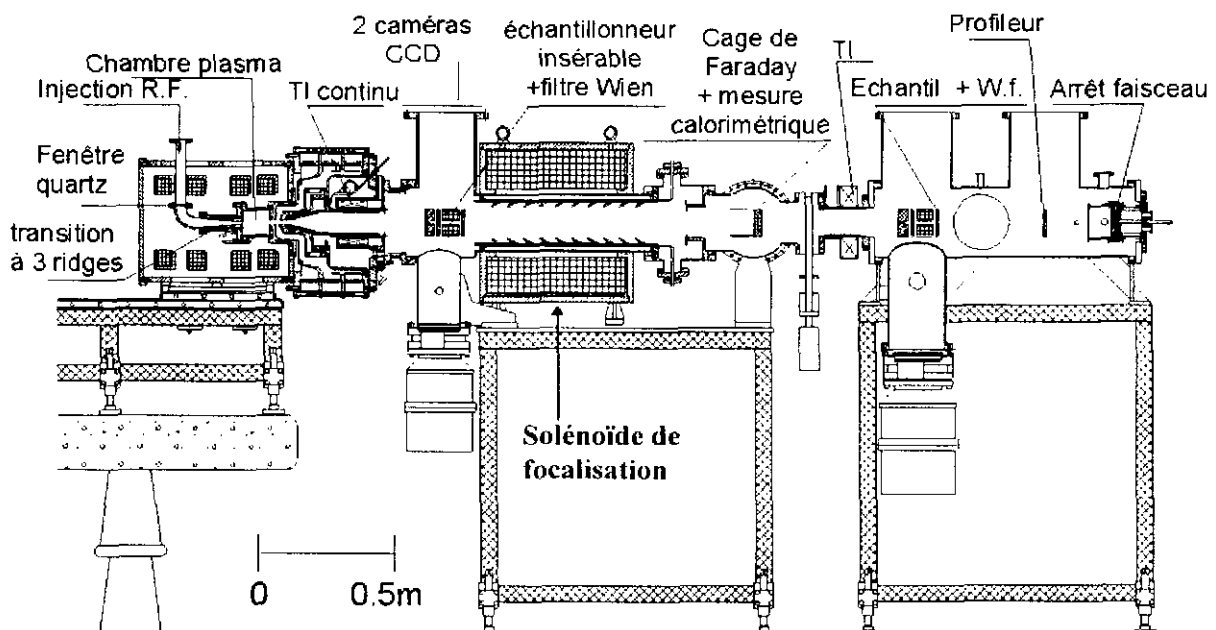


Figure 3 : Schéma de la source SILHI et de la ligne de transport basse énergie.

-V-2- Le RFQ -

L'accélérateur linéaire du type RFQ (Radio-Frequency Quadrupole) proposé comme deuxième étage pour IPHI a trois rôles principaux :

- regrouper le faisceau continu sortant de la source en paquets de particules à la fréquence HF (352 MHz pour le projet IPHI),
- accélérer le faisceau jusqu'à 5 ou 6 MeV avec un rendement élevé,
- fournir un faisceau avec de bonnes qualités optiques pour éviter les pertes à haute énergie.

Dans un linac RFQ, c'est le champ HF qui réalise de façon continue la focalisation du faisceau dans le plan radial et son accélération (plan longitudinal). Ces deux fonctions sont ajustées adiabatiquement en modulant très progressivement la géométrie des quatre électrodes (pôles) qui imposent la configuration quadrupolaire du champ HF vue par les particules (figure 4).

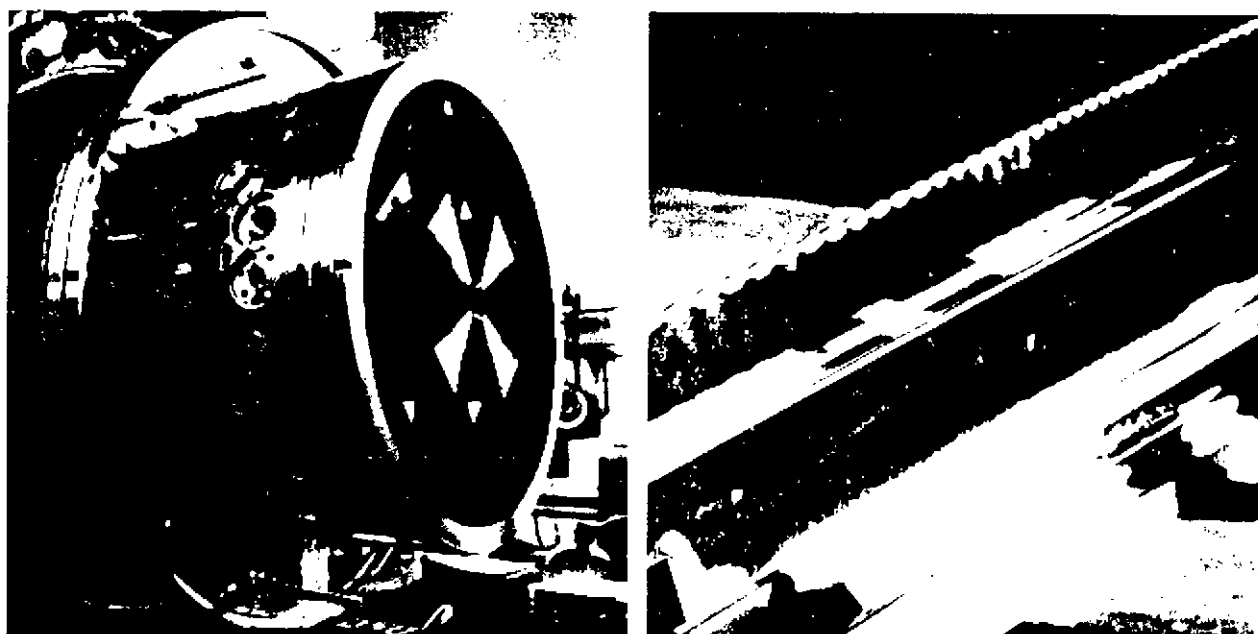


Figure 4 : Vues du RFQ quatre pôles construit par le Laboratoire National Saturne (LNS).
A gauche : vue de la cavité 200 MHz équipée de ses quatre électrodes.
A droite : détail de la modulation d'une électrode.

Le RFQ est le seul type d'accélérateur qui permet cette variation adiabatique des forces de focalisation et d'accélération tout au long de la structure, c'est donc la seule structure capable de former un faisceau de très bonne qualité à basse énergie. C'est un point important qui fait du RFQ le second étage idéal pour un accélérateur forte puissance, car **c'est en grande partie la qualité du faisceau à basse énergie qui va déterminer le taux de perte de particules et le coût global de l'accélérateur.**

De nombreux RFQ sont en exploitation dans le monde, le premier RFQ du LNS (figure 4) a été construit en 1983. Cependant, la conjonction des difficultés pour le projet IPHI (fonctionnement en continu + forte intensité) reste un challenge pour les calculs de dynamique du faisceau et un défi technologique pour la réalisation de la cavité. La machine doit en effet:

- fonctionner en continu \Rightarrow supporter un dépôt de puissance élevé dans la structure,
- accélérer un fort courant de protons \Rightarrow les pertes de particules doivent être limitées,
- avoir une énergie de sortie élevée \Rightarrow structure longue (7 à 8 m), difficile à régler.

Les calculs de dynamique du faisceau se font en plusieurs étapes pour atteindre au mieux trois objectifs principaux qui sont contradictoires :

- minimiser les pertes de particules et surtout éviter les pertes localisées,
- obtenir la meilleure qualité de faisceau possible en sortie du RFQ,
- réduire au maximum la longueur de la structure pour une énergie finale donnée.

Il sera nécessaire de continuer à améliorer les codes de calcul pour obtenir de meilleures précisions sur les distributions de faisceau tout au long de la structure. Ces codes devront ensuite être validés par le prototype IPHI.

Les problèmes technologiques à résoudre pour faire fonctionner un RFQ de 7 à 8 mètres de long à 352 MHz sont complexes et multiples. La puissance dissipée dans la structure étant supérieure à 100 kW/m, le débit d'eau nécessaire dans les 24 canaux de refroidissement de chaque section de 1 m de long (figure 5) doit être de l'ordre de 5000 l/mn. Le contrôle précis de la température ($< \pm 1$ °C) dans chaque canal est impératif pour maintenir l'accord en fréquence de la cavité.

Il est également nécessaire d'assurer la stabilité HF en évitant l'excitation de modes parasites. La structure doit être composée de quatre segments RF couplés entre eux pour améliorer la stabilité et faciliter les réglages de la répartition du champ électromagnétique dans les quatre quadrants. Cette technique nouvelle doit être testée avec faisceau.

Le troisième problème à résoudre concerne la précision et la stabilité dimensionnelle de la structure qui a un faible diamètre (~ 25 cm) pour une longueur de 7 à 8 mètres. Chaque section (figure 5) nécessite en effet trois phases de brasage alors que la tolérance sur le positionnement des pôles doit être de l'ordre de 10 μ m sur toute la longueur du RFQ.

Enfin, deux amplificateurs HF de puissance doivent être couplés pour alimenter la cavité avec 1.8 MW HF (cf. Section V-4). La réussite du programme dépend évidemment de la stabilité et de la fiabilité de ces sources de puissance, mais aussi des performances du système de couplage de la puissance à la cavité (fenêtres et coupleurs HF) et de sa tenue en tension (claquages).

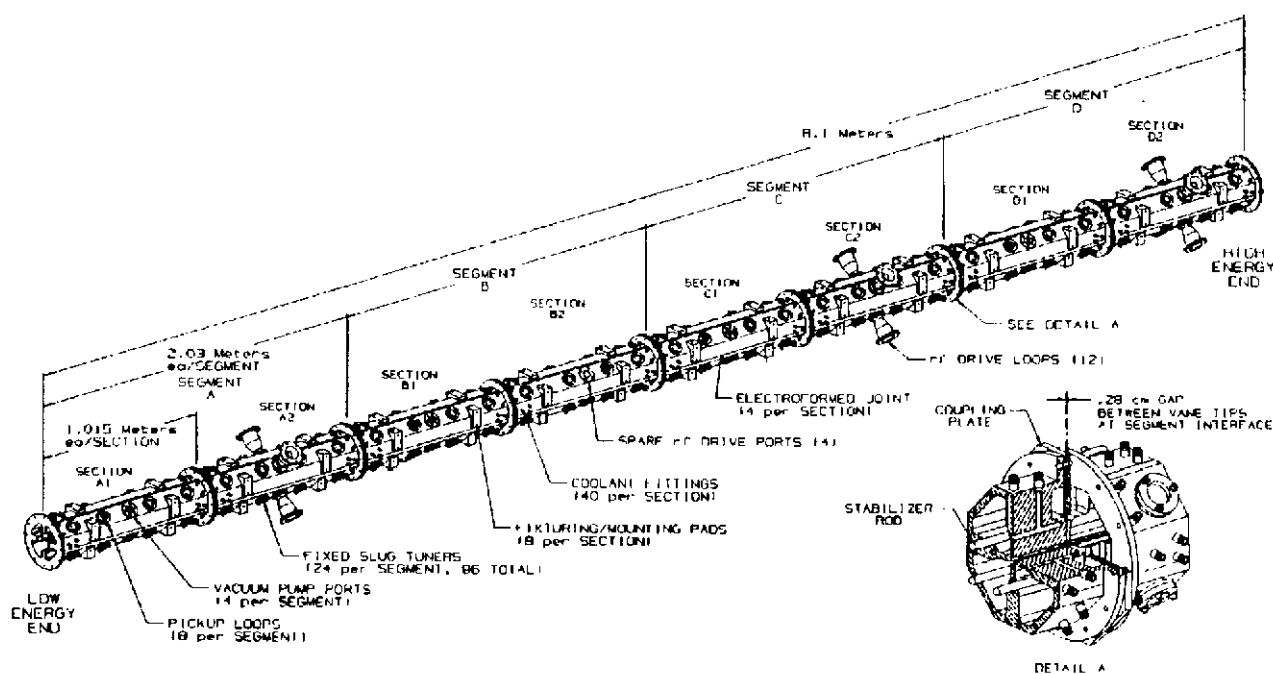


Figure 5 : Vue d'un RFQ de 8 m de long (projet APT du LANL).

-V-3- Le DTL -

L'atout majeur des accélérateurs linéaires par rapport aux cyclotrons, c'est qu'il existe une structure à focalisation forte adaptée à chaque gamme d'énergie. Comme nous l'avons vu précédemment, le RFQ est le second étage idéal après la source, car c'est le seul accélérateur capable de former un faisceau de bonne qualité à basse énergie. Le troisième étage proposé pour IPHI est un DTL ("Drift Tube Linac", linac à tubes de glissement) de type Alvarez, une structure optimale pour accélérer un faisceau de 100 mA dans la gamme d'énergie 1 MeV - 100 MeV. Pour IPHI, un seul module sera construit pour atteindre une énergie supérieure à 10 MeV, les développements technologiques seront intégralement applicables à plus haute énergie.

Comme les RFQ, les DTL sont des accélérateurs utilisés depuis de nombreuses années par un grand nombre de laboratoires dans le monde. Le DTL 20 MeV du LNS (figure 6) a été construit à la fin des années soixante. Bien que ce type de machine ait démontré sa capacité à accélérer de forts courants, le principal problème à résoudre pour démontrer la faisabilité d'une machine de forte puissance est à nouveau l'association fort courant et fonctionnement en continu.

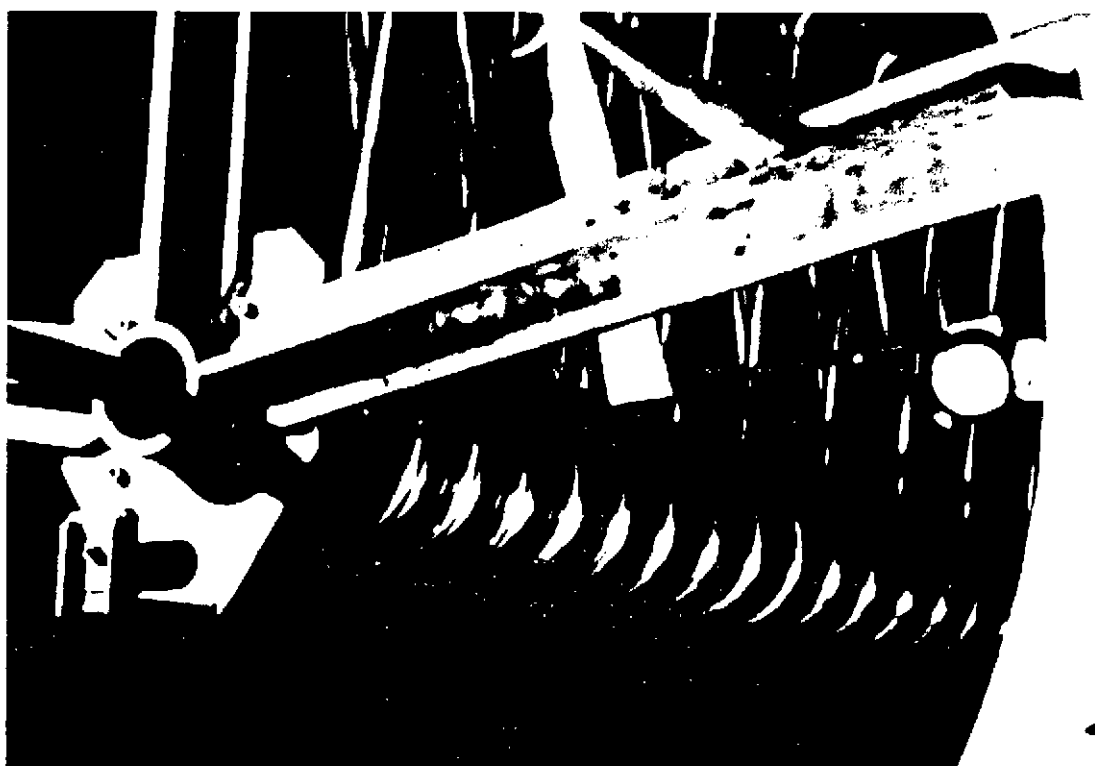


Figure 6 : Vue du DTL 20 MeV du Laboratoire National Saturne pendant la phase d'alignement des tubes de glissement.
(Fonctionnement à 200 MHz, courant crête > 40 mA, cycle utile = 10^{-3})

Dans un linac de type DTL, les fonctions de focalisation et d'accélération sont découplées. Le champ HF qui est localisé entre les tubes de glissement est utilisé uniquement pour accélérer les particules et des quadrupoles magnétiques logés à l'intérieur des tubes de glissement assurent une "focalisation forte" du faisceau. Chaque cellule HF est composée d'un demi tube de glissement, d'un espace accélérateur ("gap") et du demi tube de glissement suivant. Pour que les paquets de particules soient en phase avec l'onde HF au passage dans chaque gap, la longueur des cellules croît avec la vitesse des particules. Pour le projet IPHI (352 MHz), la longueur des cellules qui est de 8,8 cm à 5 MeV passe à

12,3 cm à 10 MeV. Un programme de calcul a été développé au LNS pour optimiser la géométrie des cellules du DTL (minimisation de la puissance dissipée).

Le choix du champ accélérateur moyen (E_0) est principalement guidé par des critères économiques. Un programme d'optimisation du coût du DTL a été écrit, il montre que l'optimum se situe dans la plage $1.5 < E_0 < 2.5$ MV/m. Pour le projet IPHI (et pour TRISPAL) nous avons choisi 1.75 MV/m, une valeur qui conduit à une dissipation de puissance dans les tubes de glissement qui semble acceptable. **Il faudra le vérifier avec IPHI.**

Les problèmes technologiques à résoudre pour faire fonctionner un DTL forte puissance sont semblables à ceux rencontrés pour le RFQ, il faut, en plus, apporter une attention toute particulière à la conception des tubes de glissement. Les développements technologiques doivent porter sur :

- **le contrôle précis de la température** du corps de cavité et des tubes de glissement équipés de leurs quadrupoles tout en évitant les vibrations mécaniques. Il faut évacuer la puissance HF dissipée dans le cuivre (~ 3 kW pour chaque tube de glissement),
- **la stabilité HF** qui doit être assurée par des "post-couplers" réglables mais capables de fonctionner en continu (problèmes de contacts HF et de réfrigération),
- **la précision et la stabilité mécanique** des tubes de glissement et des quadrupoles qui sont logés à l'intérieur de la structure. La tolérance sur le positionnement magnétique des quadrupoles est inférieure au dixième de mm,
- **la réalisation des quadrupoles** qui doivent être logés dans des tubes de glissement de petite dimension (figure 7) mais avoir des gradients élevés (environ 100 T/m),
- **la stabilité et de la fiabilité** des sources HF de puissance et du système de couplage de la puissance à la cavité DTL (fenêtres et coupleurs HF).

Comme pour le RFQ, les **calculs de dynamique des particules** dans le DTL sont effectués en utilisant plusieurs codes. La première étape consiste à utiliser des programmes développés au LNS pour définir les paramètres des cellules et des quadrupoles pour le champ accélérateur moyen et la loi de phase synchrone choisis. La seconde étape consiste à calculer l'évolution d'un nuage de 1000 à 100000 "macro-particules" à travers le DTL pour caractériser au mieux les pertes de particules et la qualité du faisceau en sortie. Nous utilisons alors le code PARMILA (LANL) et le code DYNAC développé par une collaboration P. Lapostolle - CERN - LNS qui est considéré comme le programme le plus performant et le plus précis par la communauté internationale.

Le DTL du projet IPHI (protons, 100 mA) est actuellement étudié pour deux énergies d'injection : 5 et 6 MeV. Dans les deux cas, la cavité qui est alimentée par un seul générateur HF de puissance comporte une cinquantaine de cellules et mesure environ 6 mètres de long pour 50 cm de diamètre. La puissance dissipée dans le cuivre est de l'ordre de 60 kW/m. Pour une énergie d'injection de 5 ou 6 MeV, l'énergie finale atteint respectivement 11 ou 12 MeV. Le choix de l'énergie de transition RFQ-DTL (entre 5 et 6 MeV) résultera des données apportées par l'étude technologique de détail du DTL qui est en cours (6 MeV facilite la réalisation du DTL mais augmente les difficultés pour le RFQ).

Les calculs de dynamique avec 100000 "macro-particules" montrent que le faisceau injecté par le RFQ est intégralement accéléré par le DTL. La dimension radiale des paquets est inférieure à \varnothing 6 mm alors que le diamètre intérieur des tubes de glissement est de 11 mm. Cependant, **les pertes de faisceau à 10 MeV doivent être limitées à 200 nA/m pour que l'activation de la structure reste tolérable ($\Delta I/I < 2 \cdot 10^{-6}/m$ pour 100 mA alors que la précision des simulations est de 10^{-4})**. Il est donc nécessaire de continuer à développer les codes pour essayer de prévoir des pertes extrêmement faibles. **Ces codes devront ensuite être validés par le prototype IPHI.**

-V-4- Les systèmes HF du RFQ et du DTL -

Pour les structures RFQ et DTL du projet IPHI, le bilan des puissances HF nécessaires se décompose comme suit :

RFQ :	Puissance cuivre	1200 kW
	Puissance faisceau max.	600 kW
	Puissance totale RFQ	1800 kW
DTL :	Puissance cuivre	400 kW
	Puissance faisceau max.	600 kW
	Puissance totale DTL	1000 kW

Les amplificateurs HF seront construits autour des klystrons TH 2089-D de Thomson Tubes Electroniques (ou leur équivalent) qui peuvent délivrer une puissance nominale de 1,3 MW à 352 MHz. Deux amplificateurs HF travaillant à une puissance effective de 900 kW sont nécessaires pour alimenter le RFQ alors que le DTL sera alimenté par un seul émetteur travaillant jusqu'à 1 MW. Ce choix constitue un premier objectif ambitieux, car la puissance de travail est limitée à 800 kW au CERN et à 700 kW à l'ESRF de façon à obtenir la stabilité HF requise par les accélérateurs. La stabilité demandée au système HF du RFQ et du DTL ($\pm 1\%$ en amplitude et $\pm 1^\circ$ en phase) nous imposant des contraintes similaires à celles de l'ESRF, il faudra donc **démontrer qu'un klystron peut travailler à sa puissance nominale quand il est couplé à un accélérateur.**

C'est un point important, car le coût des systèmes RF (> 10 MFF / MW nominal) représente une part importante du coût global d'un projet (jusqu'à 50% du budget accélérateur pour une machine de forte puissance). Les utiliser à puissance moitié, c'est donc se pénaliser d'au moins 20% sur le coût d'acquisition de l'accélérateur. C'est aussi pénaliser fortement le coût de fonctionnement car le rendement des klystrons chute quand ils sont sous utilisés.

Le deuxième objectif ambitieux pour les systèmes HF consiste à **mettre au point des fenêtres et des coupleurs HF pour une puissance de 250 kW**. Les fenêtres HF qui isolent les cavités accélératrices sous vide des guides d'onde, et les coupleurs qui transmettent la puissance HF à la cavité et au faisceau sont des éléments déterminants pour la **fiabilité** de la machine. Mettre au point avec les industriels un ensemble fenêtre-coupleur fiable à 250 kW, c'est aussi simplifier ses réglages et réduire le coût total d'une machine de haute énergie.

Toute la conception d'un accélérateur forte puissance (basse énergie et haute énergie), son prix et sa fiabilité dépendent donc fortement des résultats apportés par l'étude, la réalisation et les tests de ces systèmes HF sur le prototype IPHI.

-V-5- La ligne diagnostics -

L'analyse fine des caractéristiques du faisceau accéléré par le RFQ (5-6 MeV), puis par le DTL (11-12 MeV), est l'un des objectifs principaux du projet IPHI. En effet, ce sont les mesures précises de répartition du faisceau qui nous permettent de valider les codes de calcul en charge d'espace et de dimensionner la suite de l'accélérateur.

La ligne diagnostics doit accepter une puissance faisceau supérieure à 1 MW, elle sera équipée de systèmes pour mesurer les émittances dans les deux plans transverses ainsi que les caractéristiques des paquets de particules dans le plan longitudinal (énergie, dispersion d'énergie et extension en phase). Grâce à cette ligne qui sera utilisée dans un premier temps pour caractériser le faisceau du RFQ (500 kW faisceau), puis celui du DTL (1 MW faisceau), il sera également possible de mesurer le halo de particules qui entoure le coeur du faisceau et de mettre au point des méthodes pour l'éliminer.

-VI- Conclusion -

Nous avons montré que les applications des accélérateurs haute intensité sont multiples :

- Recherche fondamentale (ESS)
- Recherche appliquée (IFMIF)
- Médical (production de radio-isotopes)
- Domaines stratégiques :
 - Transmutation des déchets
 - Production d'énergie et de tritium (TRISPAL).

Ces applications impliquent cependant la construction de machines beaucoup plus performantes que celles qui sont actuellement en fonctionnement. Pour les accélérateurs pulsés il faudra passer de quelques centaines de kW à 5 MW faisceau pour ESS. Pour les faisceaux continus qui ne dépassent guère 1 MW actuellement, les nouvelles applications demandent 20, 50 voir 100 MW.

Pour franchir cette étape, de nombreux problèmes sont à résoudre :

- Maîtrise de la dynamique du faisceau avec des précisions de 10^{-6} ... 10^{-9} (HALO)
- Conception des structures accélératrices
- Stabilité des systèmes RF

Au Japon, aux USA comme en France, une analyse de ces difficultés a démontré qu'il est nécessaire de construire la partie basse énergie de la machine avant de s'investir dans la réalisation d'un accélérateur complet. Les raisons sont multiples :

- C'est dans la partie basse énergie de la machine que les forces de charge d'espace sont les plus difficiles à maîtriser. Construire un injecteur permet de valider les codes de calcul (dynamique du faisceau et calcul des structures), de mesurer les caractéristiques du faisceau.
- Etre trop optimiste sur ces caractéristiques du faisceau à basse énergie conduirait à accélérer un courant plus faible que le courant nominal (pertes de particules).
- Prendre une marge de sécurité sur la qualité du faisceau à basse énergie conduirait à une augmentation du coût de la partie haute énergie de la machine qui représente 80 % du coût total de l'accélérateur.
- Construire l'injecteur c'est aussi pouvoir mettre au point de la technologie pour tout l'accélérateur :
 - cavités accélératrices,
 - fenêtres HF qui isolent la cavité sous vide du guide,
 - coupleurs HF qui transmettent la puissance HF à la cavité et au faisceau,
 - asservissements faisceau-HF

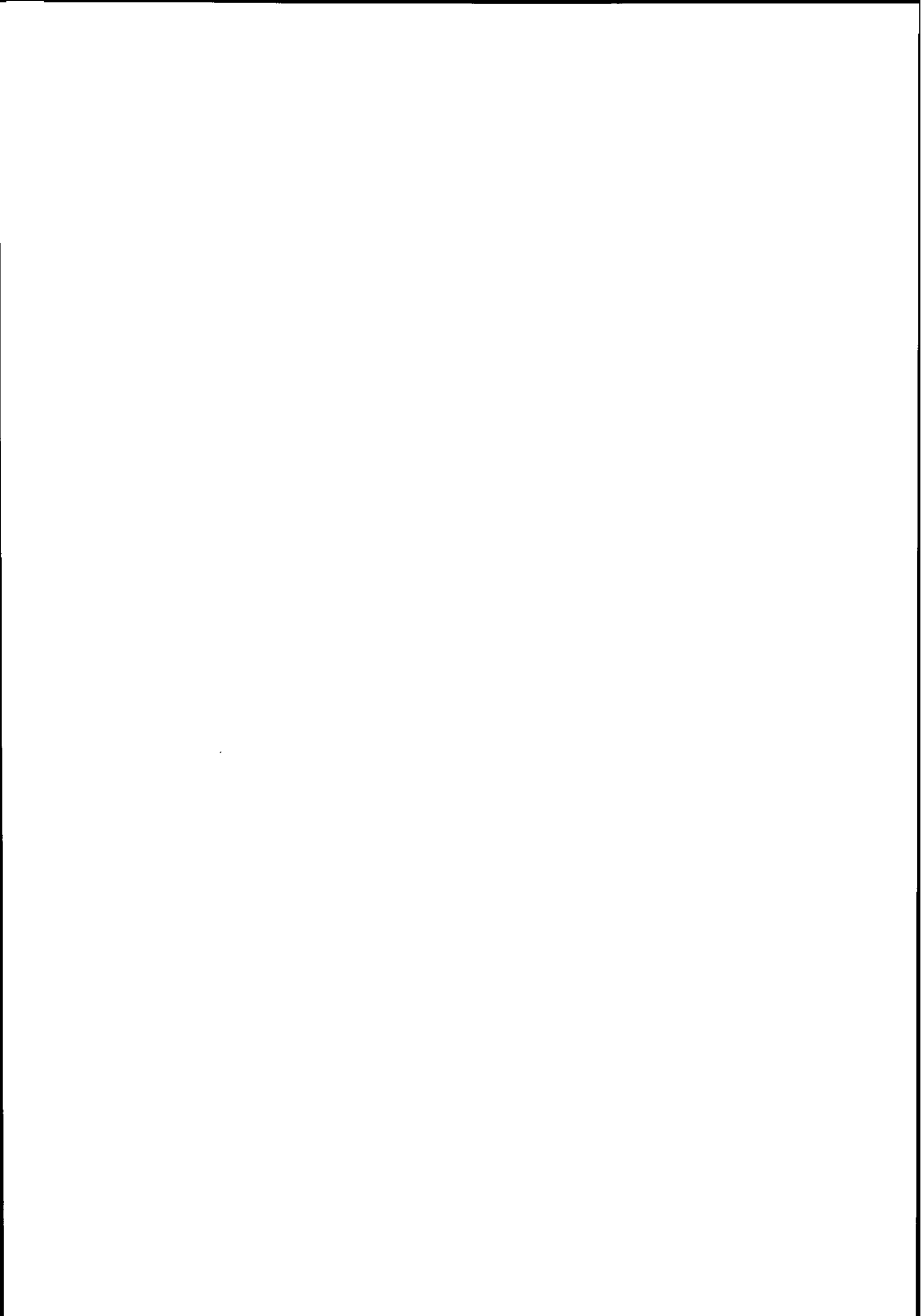
Tout le design de l'accélérateur, son prix et sa fiabilité dépendent donc fortement des performances de l'injecteur.

En France, la construction de l'Injecteur de Protons Haute Intensité IPHI doit être réalisée par une large collaboration qui rassemble le CEA (DSM-DAM-DRN-DTA), l'IN2P3 et des Industriels (Thomson-CSF...). Dans sa phase finale, le prototype IPHI doit accélérer un faisceau de 100 mA de protons à 11 ou 12 MeV, soit une puissance faisceau supérieure à 1 MW. **IPHI délivrera donc un faisceau de basse énergie qui a une puissance équivalente à celle des accélérateurs les plus puissants en fonctionnement à l'heure actuelle.**

IPHI est donc bien un injecteur test pour les machines de la future génération qui, calculé et dimensionné pour fournir un faisceau de 100 mA en continu, permettra de maîtriser la dynamique des faisceaux en charge d'espace et d'obtenir le savoir-faire technologique pour concevoir des installations qui utilisent un accélérateur fort courant (TRISPAL, GEDEON, ESS, IFMIF...).

- Références -

- 1) S.O. Schriber, "Survey of proposed high intensity accelerators and their applications", proc. EPAC94, p. 213.
- 2) M. Promé, "Major projects for the use of high power linacs", proc. conf. LINAC96, p. 9.
- 3) D.C. Hagerman, "The status of LAMPF", proc. conf. LINAC76, p. 12.
- 4) D.C. Hagerman, "LAMPF operations at 500 μ A", proc. conf. LINAC79, p. 78.
- 5) B.P. Murin et al., "High-current ion linear accelerator for medium-energy physics (meson factory)", proc. conf. LINAC72, p. 387.
- 6) U. Schryber et al. "High power operation of the PSI-accelerators", proc. of the 14th International Conference on Cyclotrons and their Applications, Cap Town, SA, 1995.
- 7) H. Lengeler, "Proposals for spallation sources in Europe", proc. PAC94, p. 249.
- 8) I.S.K. Gardner, H. Lengeler, G.H. Rees, "Outline design of the European Spallation Neutron Source", ESS 95-30-M, September 95.
- 9) International Fusion Materials Irradiation Facility, Conceptual Design Activity report, à paraître, décembre 1996.
- 10) M. Mizumoto et al., "High intensity proton accelerator for nuclear waste transmutation", proc. conf. LINAC92, p. 749.
- 11) C. Rubbia and J.A. Rubio, "A tentative programme towards a full scale energy amplifier", CERN/LHC/96-11 (EET), Geneva, 15th July 1996.
- 12) J.D. Schneider, "APT accelerator technology", proc. conf. LINAC96, p. 22.
- 13) A. Joubert, "Le projet TRISPAL ", Journées accélérateurs CEA-IN2P3, Roscoff, 20-22 mars 1995.
- 14) N.I. Golubeva et al., "Problems of the beam loss in intense ion linear accelerators", Proc. conf. LINAC88, p. 669.
- 15) A.P. Fedotov et B.P. Murin, "Towards a radiation-free LINAC of meson or neutron generator type", proc. conf. LINAC76, p. 377.
- 16) J.R. Delayen et al., "Design considerations for high-current superconducting ion linacs", proc. PAC93, p. 1715.
- 17) G.P. Lawrence, "Critical design issues of high intensity proton linacs", proc. EPAC94, p. 236.
- 18) J-M. Lagniel, "Halo and Chaos in space-charge dominated beams", proc. EPAC96, p. 163.
- 19) G. Haouat et al., "Measurement of initial beam conditions for halo formation studies", proc. EPAC96, p. 1206.
- 20) N. Pichoff et al., "Halo formation from beam Coulomb scattering on residual gas", proc. EPAC96, p. 1209.



TRANSMUTATION DES DECHETS: LES PERSPECTIVES

Sylvie LERAY

Laboratoire National Saturne, CE Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette Cedex, France

RESUME

Après une introduction sur l'origine et la nature des déchets nucléaires, ce cours analyse les différentes méthodes envisagées pour transmuter les isotopes à vie longue en isotopes stables ou à vie courte. Il est montré que les méthodes directes (réactions photonucléaires, spallation, fusion catalysée par muons) ne permettent pas un rendement de transmutation suffisant ni un coût acceptable. Seule l'utilisation d'hybrides, fusion-fission ou spallation-fission, est envisageable.

ABSTRACT

After the introduction on the source and nature of nuclear waste, this lecture analyzes the different methods proposed to transmute long-lived isotopes into stable or short-lived isotopes. It is shown that direct methods (photonuclear reactions, spallation, muon catalyzed fusion) do not lead to a sufficient transmutation rate within a reasonable cost. Only the use of hybrid systems, fusion-fission or spallation-fission, can be foreseen.

1 Introduction

1.1 Les déchets nucléaires: quelques rappels

1.1.1 Origine des déchets

Les déchets nucléaires sont constitués essentiellement par le combustible irradié dans les réacteurs, mais aussi par l'uranium et le plutonium d'origine militaire et, pour des quantités beaucoup plus faibles par des déchets provenant de l'industrie et de la médecine.

A titre d'exemple (voir cours de J.P.Schapira), on décharge chaque année de l'ensemble du parc électronucléaire français (environ 55 réacteurs en fonctionnement) quelques 1100 tonnes de combustible irradié contenant:

- 95.5% (en masse) d'uranium
- 1% de plutonium
- 0.1% d'actinides mineurs (AM)
- 3.4% de produits de fission (PF).

Element (quantité)	Isotope	Période (années)	Quantité (tonne/an)
Plutonium (11.4 tonne/an)	^{238}Pu	88	0.19
	^{239}Pu	$2.4 \cdot 10^4$	6.53
	^{240}Pu	$6.5 \cdot 10^3$	2.52
Actinides mineurs (1.1 tonne/an)	^{237}Np	$2.1 \cdot 10^6$	0.48
	^{241}Am	430	0.25
	^{243}Am	$7.4 \cdot 10^3$	0.14
	^{245}Cm	$8.5 \cdot 10^3$	0.001
Produits de fission (39 tonne/an)	^{90}Sr	29	0.6
	^{93}Zr	$1.5 \cdot 10^6$	0.9
	^{99}Tc	$2.1 \cdot 10^5$	1.0
	^{107}Pd	$6.5 \cdot 10^6$	0.25
	^{129}I	$1.6 \cdot 10^7$	0.2
	^{135}Cs	$2.3 \cdot 10^6$	0.4
	^{137}Cs	30	1.3

TAB. 1 - *Durée de vie et quantités des principaux isotopes à vie longue dans le combustible irradié déchargé chaque année de l'ensemble du parc électro-nucléaire français (1100 tonnes).*

Certains de ces derniers produits sont des corps à vie très longue et présentent donc potentiellement des risques à long terme. La TAB.1 donne la composition du combustible irradié et les quantités des principaux isotopes à vie longue (sont généralement considérés à vie longue les éléments dont la période est supérieure à 30 ans). Les déchets d'origine militaires s'accumulent depuis quelques années du fait de la politique de désarmement et on estime à peu près à 200 tonnes (moitié USA, moitié ex-URSS) le stock de plutonium militaire à comparer avec le plutonium d'origine civile dont l'inventaire est de l'ordre de 1000 tonnes actuellement[1].

1.1.2 Gestion de l'aval du cycle électronucléaire: les différentes options

Tous les pays disposant de réacteurs nucléaires n'ont pas fait le même choix quant à la gestion du combustible irradié:

- Le stockage direct est l'option retenue par la majorité des pays dont les USA, la Suède, l'Allemagne... C'est la solution la plus simple mais elle conduit à de grands volumes de stockage du fait de la forte chaleur résiduelle dégagée. Elle minimise les risques de prolifération liés au détournement de matière fissile pendant les manipulations et le transport du combustible, mais présente l'inconvénient de mettre aux déchets des quantités importantes de combustible potentiel.

- Le retraitement du combustible afin d'en extraire l'uranium et le plutonium pour utilisation

ultérieure (notamment dans le combustible MOX) est la solution choisie par la France, le Japon et la Grande-Bretagne. Le retraitement est une opération complexe et coûteuse mais il permet de séparer les produits à vie longue non utilisables (AM et PF) qui sont ensuite vitrifiés afin d'être ultérieurement stockés en profondeur dans des couches géologiques stables, les isotopes à vie courte et les déchets de procédé étant conservés en surface.

1.1.3 Les problèmes du stockage

Tous les problèmes posés par le stockage profond, en particulier son acceptation par le public, ne sont pas encore résolus. En effet, si la plupart des études montre que le risque résiduel est très faible à court et moyen terme, il est en revanche impossible d'assurer l'absence de risques à très long terme face par exemple à des modifications géologiques. Dans le cas du stockage direct, il existe de plus un risque d'intrusion du fait des grandes quantités de plutonium et d'uranium présentes dans le combustible et qui pourraient tenter des individus ou des états mal intentionnés. Enfin, le stockage profond pose le problème éthique de léguer nos déchets aux générations futures. Tout ceci explique la difficulté à faire accepter cette solution par le public.

C'est pourquoi, il paraît nécessaire d'étudier des solutions alternatives comme la séparation et la transmutation des isotopes les plus gênants, c'est d'ailleurs ce que préconise la loi française de 1991 (voir cours de J.P.Schapira).

1.2 Transmutation: généralités

1.2.1 But de la transmutation des déchets nucléaires

Le but de la transmutation est la transformation des isotopes à vie longue en isotopes stables ou à vie courte qui pourraient alors être conservés en surface pendant des temps "raisonnables". Par temps raisonnables, on entend généralement des temps de l'ordre de quelques centaines d'années pendant lesquels on pense pouvoir assurer un contrôle du site de stockage. C'est pourquoi, on considère comme à vie courte les isotopes de période inférieure à 30 ans. Ils seraient stockés pendant une durée de 300 ans, ce qui conduit à une réduction d'un facteur au moins 1000 de leur activité.

1.2.2 Avantages de la séparation-transmutation

Il est clair qu'il ne sera pas possible d'éliminer totalement les déchets à vie longue, ne serait-ce qu'à cause des pertes à la séparation et donc qu'un stockage sera toujours nécessaire. Cependant,

la séparation et la transmutation du maximum d'isotopes permettraient d'en diminuer l'impact et le coût grâce aux avantages suivants:

- Réduction de la chaleur résiduelle ce qui permet de diminuer le volume de l'enceinte de stockage puisque l'espace entre les colis de déchets pourra être réduit. La fig.1 montre la différence de chaleur résiduelle selon que l'on retire ou non l'ensemble des actinides avant le stockage.

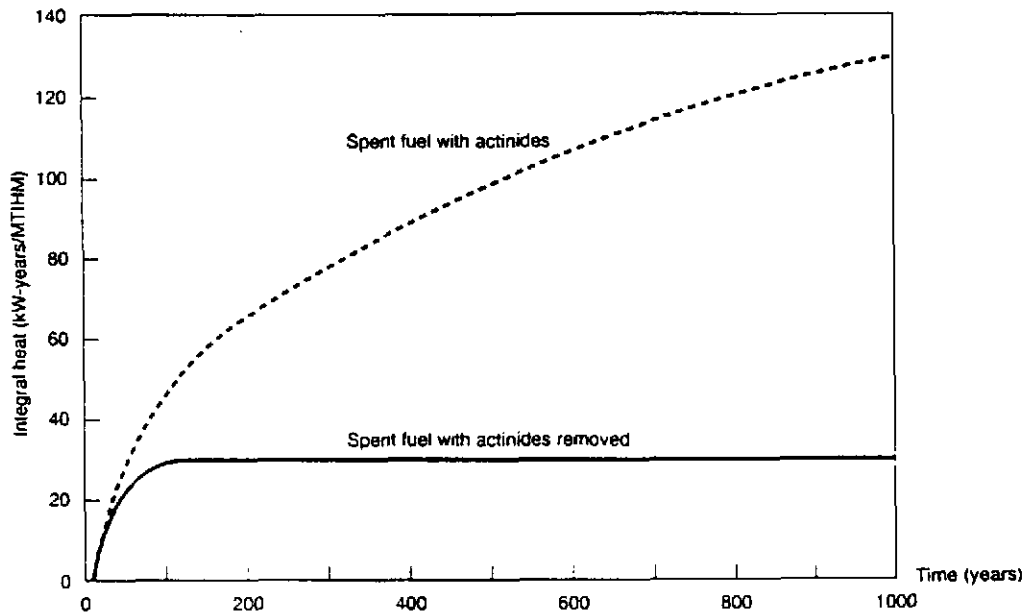


FIG. 1 - Chaleur résiduelle intégrée (exprimée en kW.an par tonne métrique de metal lourd (U) irradié) en fonction du temps dans le cas d'un combustible irradié (en supposant un taux de combustion de 30GWj/t et 10 ans de refroidissement) stocké directement ou duquel on aurait retiré tous les actinides. D'après ref.[2].

- Réduction des volumes à stocker, surtout comparé au stockage direct.

- Réduction de la radiotoxicité à long terme, essentiellement si on élimine les actinides mineurs et à moyen terme, si l'on détruit en plus les produits de fission à vie longue. La fig.2 montre comment on pourrait faire diminuer la radiotoxicité potentielle du combustible irradié en éliminant les différents isotopes à vie longue. On voit qu'en extrayant et transmutant les actinides, on pourrait atteindre le niveau du minerai naturel d'uranium en quelques centaines d'années. L'élimination supplémentaires des PF à vie longue ou moyenne permettrait une réduction encore plus radicale. Il est à noter que ces courbes ne tiennent pas compte des pertes au retraitement (que l'on considère généralement de l'ordre de 0.1% pour le Pu et 1% pour les AM) qui tempèreraient ces conclusions.

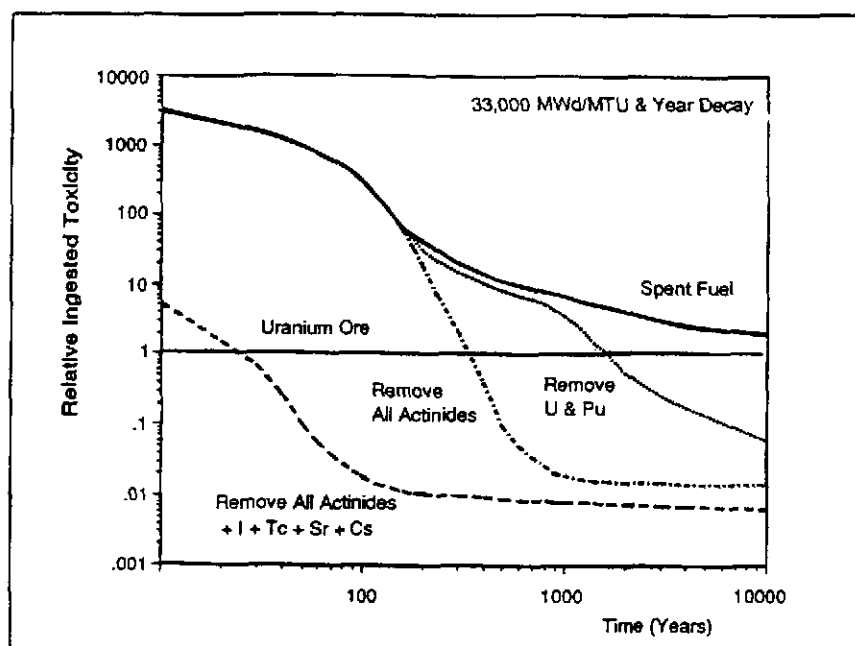


FIG. 2 - Radiotoxicité par ingestion du combustible irradié rapportée à la toxicité du minerai naturel d'uranium, en supposant divers scénarios de retraitement. D'après [3].

1.2.3 Inconvénients de la séparation-transmutation

- Elle nécessite de nombreuses manipulations et transports ce qui augmente le risque d'accidents pour le personnel et le public.
- La transformation d'éléments à vie longue en éléments à vie courte peut conduire à court terme à une augmentation de l'activité.
- On n'éliminera jamais complètement la nécessité d'un stockage souterrain car il y aura toujours des pertes au niveau de la séparation et certains isotopes ne sont pas transmutables à un coût raisonnable.
- C'est une opération complexe au niveau d'abord de la séparation chimique (une séparation isotopique est même parfois nécessaire) puis de la transmutation, et donc coûteuse.

1.2.4 Les différentes réactions nucléaires utilisables pour la transmutation

On peut les classer selon le type de particule incidente mise en jeu:

i) les réactions induites par des neutrons:

- la fission induite par des neutrons thermiques ou rapides dans un réacteur classique ou hybride. Cela ne concerne que les actinides et on parle alors plutôt d'incinération.
- la capture neutronique qui est intéressante surtout pour les produits de fission. La section

efficace de capture diminue quand l'énergie des neutrons incidents augmentent, la transmutation des PF sera donc plus favorable avec des neutrons thermiques. On peut aussi envisager d'utiliser des neutrons épithermiques dans la zone des résonances dans laquelle certains isotopes peuvent avoir des sections efficaces de capture considérables: c'est le cas du programme TARC (voir le cours de J.M.Loiseau).

- la spallation par des neutrons énergétiques produits dans des sources de spallation (voir la suite).

ii) les réactions induites par des photons:

Ce sont les réactions photonucléaires (γ, n) qui, sur des produits de fission généralement riches en neutrons, peuvent conduire à des isotopes plus proches de la vallée de stabilité

iii) les réactions induites par des protons:

- la spallation directe induite par des protons de haute énergie qui conduit à la formation d'un résidu voisin de la cible et à l'émission de plusieurs particules, neutrons, protons et particules composites.

- la spallation indirecte dans laquelle on utilise le flux de particules secondaires (constitué principalement de neutrons) pour la transmutation.

L'objectif de ce cours est d'analyser les différentes voies qui permettrait la transmutation des isotopes à vie longue autres que l'utilisation de réacteurs classiques (ce sujet étant traité par ailleurs) afin de dégager celles qui auraient un potentiel important de transmutation pour un coût acceptable.

1.2.5 Notion de demie-vie effective

Il est souvent commode de caractériser l'efficacité de la transmutation par la notion de demie-vie effective.

Soit un isotope de constante de désintégration, λ_{nat} , que l'on transmute en l'irradiant dans un flux (généralement) de neutrons, ϕ . Si σ est la section efficace du processus faisant disparaître l'isotope, la quantité N d'isotope variera au cours du temps selon l'équation:

$$\frac{dN}{dt} = -\lambda_{nat}N - \sigma\phi N = -\lambda_{eff}N \quad (1)$$

et l'on peut définir la demie-vie effective, $T_{1/2}^{eff}$ par:

$$T_{1/2}^{eff} = \frac{\text{Log } 2}{\lambda_{nat} + \sigma\phi} \quad (2)$$

2 Transmutation par réactions photonucléaires

2.1 Principe

2.1.1 Les réactions photonucléaires

Les réactions (γ, n) ont été envisagées pour la transmutation des produits de fission riches en neutrons et qui ont une faible section efficace de capture neutronique[7, 5]:



Ces réactions conduisent à des corps moins riches en neutrons que l'on peut espérer stables. C'est le cas, par exemple, de ${}^{129}I$:



En fait, la section efficace (γ, n) n'est importante que dans la région des résonances géantes comme on peut le voir sur la fig.3, c'est à dire pour des photons d'énergie de l'ordre de la vingtaine de MeV pour des noyaux de masse 100-130, l'énergie de la résonance géante dipolaire étant donnée par:

$$E_{GDR} \simeq 80 A^{-1/3} \text{ MeV} \quad (5)$$

En fait, si le spectre des photons s'étend à plus haute énergie, on peut avoir aussi des réactions $(\gamma, 2n)$, $(\gamma, 3n)$ mais c'est généralement la voie (γ, n) qui est prépondérante[6].

2.1.2 Production des photons

On ne sait pas produire des faisceaux de photons monoénergétiques intenses. Pour obtenir un faisceau de photons, on utilise des électrons de quelques dizaines de MeV bombardant une cible lourde et qui produisent par ralentissement(bremsstrahlung) un spectre continu de photons s'étendant jusqu'à l'énergie incidente de l'électron.

Typiquement, avec un faisceau d'électrons de 30 MeV, d'intensité de l'ordre de 1 mA, on peut obtenir des flux de photons d'énergie voisine de 20 MeV de 10^{13} par cm^2 et par seconde[4]. Actuellement, on peut considérer que les intensités maximales que l'on pourrait atteindre sont de l'ordre de 1 A.

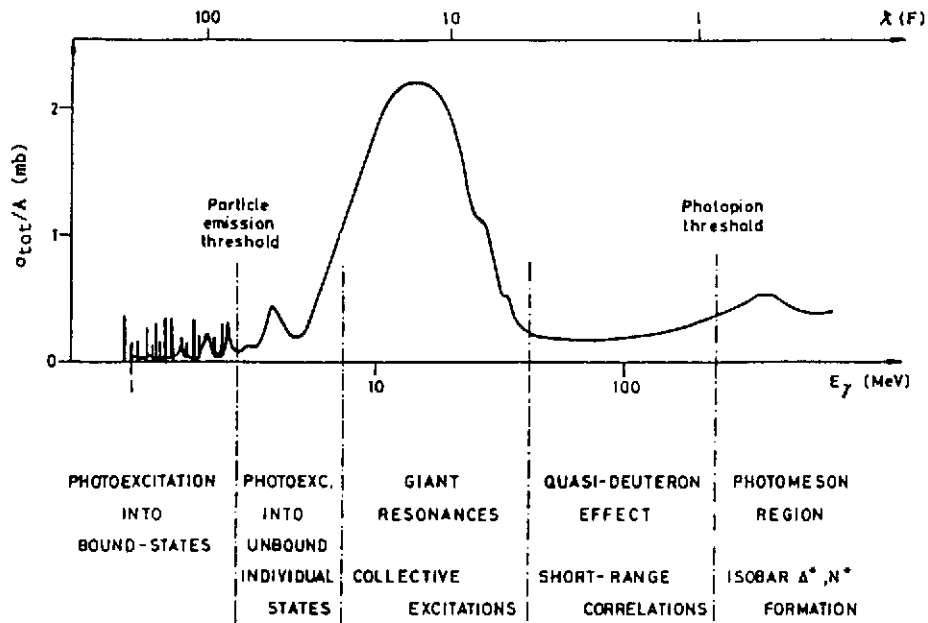


FIG. 3 - Représentation schématique de la section efficace photonucléaire totale par nucléon. D'après [4].

2.2. Potentiel de transmutation

Matsumoto[7] a étudié la possibilité de transmuter par réactions photonucléaires les produits de fission ^{90}Sr et ^{137}Cs qui ont des durées de vie de l'ordre de 30 ans et sont responsables d'une part importante de la radiotoxicité à moyen terme (voir fig.2). Le calcul consiste à résoudre le système d'équations décrivant l'évolution des divers noyaux concernés, sous l'effet d'un flux, Φ , supposé constant, de photons et de leur décroissance naturelle. Les voies $(\gamma, 2n)$, $(\gamma, 3n)$ sont négligées. Les résultats du calcul, pour différentes valeurs de Φ , sont donnés dans la TAB.2, et on voit que l'on ne peut transmuter des quantités appréciables d'isotopes qu'avec des flux de l'ordre de $10^{19} \gamma/\text{cm}^2/\text{s}$, inaccessibles avec les techniques actuelles.

Φ	^{90}Sr	^{137}Cs
$10^{17} \gamma/\text{cm}^2/\text{s}$	0.95	0.92
$10^{18} \gamma/\text{cm}^2/\text{s}$	0.60	0.44
$10^{19} \gamma/\text{cm}^2/\text{s}$	$0.6 \cdot 10^{-2}$	$0.3 \cdot 10^{-3}$

TAB. 2 - Rapport du nombre de noyaux restants sur le nombre de noyaux initiaux après une irradiation de 0.2 an dans un flux de photons Φ donné. D'après ref.[7].

De plus, comme on peut le voir sur la fig.4, avec des flux élevés on génère à partir du ^{137}Cs du

^{135}Cs de durée de vie, $T = 2.3 \cdot 10^6$ en quantités importantes, ce qui revient presque à remplacer un isotope de vie moyenne par un isotope de vie longue! La même chose se produit avec le ^{90}Sr où c'est le ^{81}Kr de durée de vie, $T = 2 \cdot 10^5$ ans qui apparaît.

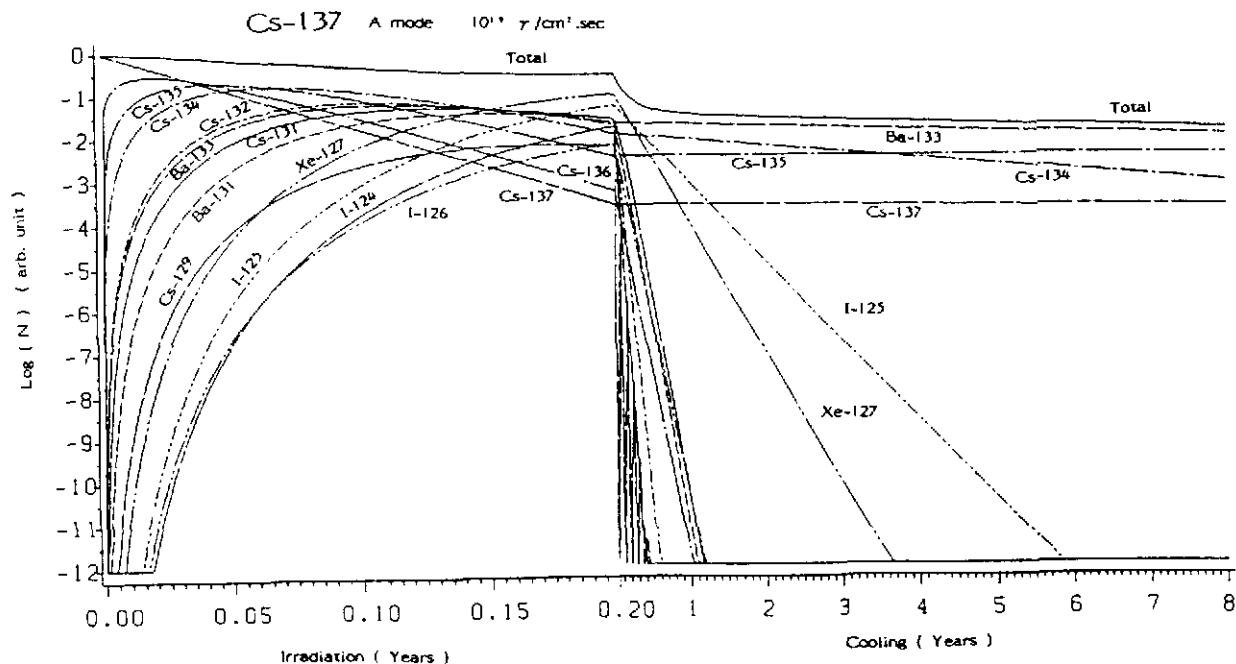


FIG. 4 - Variation en fonction du temps des quantités des principaux isotopes pour une irradiation de ^{137}Cs dans un flux de $10^{19} \gamma/\text{cm}^2/\text{s}$. D'après ref.[7].

2.3 Rendement de transmutation

En fait, lorsque l'on veut faire de la transmutation en irradiant une cible épaisse avec des photons, il faut tenir compte du fait que les photons ont une probabilité, R_γ , bien plus grande de créer une paire ($e^+ e^-$) que de faire une réaction (γ, n). D'après la réf.[8]:

$$R_\gamma = \frac{\sigma_{(\gamma, n)}}{\sigma_{(\gamma, n)} + \sigma_{(e^+ e^-)}} \simeq 0.04 \quad (6)$$

La masse de corps maximum que l'on pourrait détruire en un an est donnée par le nombre de γ obtenu par an, multiplié par la probabilité de faire une réaction (γ, n) et par la masse d'un atome du corps à détruire:

$$M = \frac{I}{e} t N_{\gamma/e} R_\gamma \frac{A}{N_{av}} \quad (7)$$

avec:

- I , l'intensité du faisceau d'électrons, $I = 1A$

- $N_{\gamma/e}$, le nombre de photons de bremsstrahlung de $E \sim 16 MeV$ par électrons, $N_{\gamma/e} = 1$
- A , le nombre de masse du noyau. $A = 100$
- e , la charge de l'électron
- t , le temps = 1 an
- N_{av} , le nombre d'Avogadro

L'application numérique, avec les valeurs très optimistes pour I et $N_{\gamma/e}$ prises, donne $M \simeq 1300g$ alors que la production annuelle des isotopes à transmuter est de l'ordre de plusieurs centaines de kg par an (voir TAB.1).

2.4 Considérations énergétiques

Lorsque l'on veut transmuter un isotope, il faut s'assurer que l'énergie dépensée pour le détruire n'est pas plus grande que celle que l'on a obtenue en le produisant.

Soit un noyau, X_i , produit avec un taux par fission, y_i . L'énergie produite par noyau X_i , E_{prod} est donnée par:

$$E_{prod} = \frac{E_{fiss} \cdot \eta_{th}}{y_i} \quad (8)$$

avec:

- E_{fiss} l'énergie libérée par une fission, $E_{fiss} = 200 MeV$
- η_{th} le rendement de conversion thermique-électrique, $\eta_{th} \simeq 0.33$

L'énergie nécessaire pour transmuter un noyau X_i , E_{trans} est donnée par:

$$E_{trans} = \frac{E_{e^-}}{\eta_{acc}} \cdot \frac{1}{R_{\gamma} N_{\gamma/e}} \quad (9)$$

avec:

- E_{e^-} , l'énergie du faisceau d'électrons
- η_{acc} , le rendement d'accélération, $\eta_{acc} \simeq 0.4$
- R_{γ} et $N_{\gamma/e}$ définis ci-dessus.

Dans le cas du ^{137}Cs , par exemple, $y_i = 0.06$, si on prend $R_{\gamma} = 0.04$, $E_{e^-} = 50 MeV$ et $N_{\gamma/e} = 1$, ce qui est très optimiste, on obtient:

$$E_{prod} = 1100 MeV, \quad E_{trans} = 3125 MeV, \quad \frac{E_{trans}}{E_{prod}} \simeq 2.8 \quad (10)$$

On constate donc qu'il faut, pour transmuter un noyau de ^{137}Cs , dépenser presque trois fois l'énergie obtenue en le produisant.

2.5 Conclusion

Au vu de ce qui précède, on ne peut que conclure que la transmutation par réactions photonucléaires n'est pas envisageable:

- Le rendement de transmutation est très faible sauf si on utilise des flux de photons bien plus élevés que ce que l'on sait faire actuellement.

- Avec des flux intenses, on génère le plus souvent des isotopes à vie longue en quantités importantes, ce qui revient à remplacer les isotopes de vie moyenne par des isotopes de vie longue (en quantités moindres toutefois).

- Le bilan énergétique est particulièrement défavorable.

Malgré cela, au Japon, des études pour la construction d'un accélérateur d'électrons de forte intensité sont en cours dans le cadre du programme OMEGA[23].

3 Transmutation par spallation

3.1 Spallation directe

3.1.1 Principe

Les réactions de spallation sont généralement induites par des protons, de plusieurs centaines de MeV et produisent un résidu lourd proche de la cible, accompagné de nucléons et de particules composites (voir cours de J.Cugnon). Comme le nombre de neutrons émis lors des réactions de spallation est généralement plus grand que le nombre de protons, on peut s'attendre, pour des produits riches en neutrons comme certains produits de fission, à un déplacement vers des noyaux plus proches de la vallée de stabilité. C'est ce qui a motivé diverses propositions[9, 10] d'utiliser la spallation directe pour transmuter certains produits de fission.

De Felice et al.[9] ont étudié théoriquement la transmutation du ^{90}Sr et du ^{137}Cs par un faisceau de protons de 600 MeV. La TAB.3 donne le résultat du calcul qui est fait dans le cas d'une cible mince irradiée pendant une dizaine de jours dans un flux de protons $\Phi = 10^{17} p/cm^2/s$. On voit que l'on peut dans ce cas détruire environ 10% des noyaux et diminuer l'activité à long terme. Cependant, on produit des isotopes à vie plus longue comme le ^{135}Cs , et on en produirait encore plus en augmentant les durées d'irradiation.

	^{90}Sr	^{137}Cs
Temps d'irradiation	14 j	10 j
$\frac{\text{Activité après irradiation}}{\text{Activité initiale}}$	20	30
$\frac{\text{Activité après 2000 j}}{\text{Activité initiale}}$	0.18	$3 \cdot 10^{-5}$
Pourcentage détruit	11.5%	11%

TAB. 3 - Résultat du calcul de ref.[9] d'une irradiation dans un flux de protons $\Phi = 10^{17} \text{ p/cm}^2/\text{s}$ d'une cible mince.

3.1.2 Rendement de transmutation

Le calcul précédent est fait en cible mince. Or dans la pratique, on utiliserait une cible épaisse et il faut tenir compte du ralentissement dû à l'interaction du proton avec les électrons de la cible qui va limiter le rendement de transmutation.

Soit $Y_p(E_p)$ le rendement de transmutation, i.e le nombre de transmutation par proton incident et par seconde. Celui-ci est donné par:

$$Y_p(E_p) = \int_0^{E_p} N_c \sigma_p(E) L(E) dE = \int_0^{E_p} \sigma_p(E) N_c \left(-\frac{dE}{dx}\right)^{-1} dE \quad (11)$$

si $\sigma_p(E_p)$ est la section efficace de capture d'un proton, N_c la densité de noyaux dans la cible, $L(E)$ le parcours moyen d'un proton d'énergie comprise entre $E + dE$ et E ,

$$L(E) = \left(-\frac{dE}{dx}\right)^{-1} \quad (12)$$

où $\frac{dE}{dx}$ est le pouvoir d'arrêt électronique donné par la formule de Bethe.

La fig.5 montre comment varie les deux composantes de l'éq.(11), la section efficace de capture d'un proton qui augmente à partir de la barrière coulombienne avec l'énergie et le pouvoir de ralentissement qui diminue, dans le cas du ^{137}Cs . On notera le facteur 1000 sur l'échelle de gauche. On voit donc que le rendement Y_p ne sera important qu'à haute énergie. On peut voir en outre sur la fig.6, Y_p pour différentes cibles.

Comme au paragraphe 2.3, il est possible de calculer la masse que l'on peut transmuter par an avec un faisceau de protons de 100 mA dans le cas du Cs, par exemple.

L'éq.(7) devient ici:

$$M = \frac{I}{e} t Y_p \frac{A}{N_{av}} \quad (13)$$

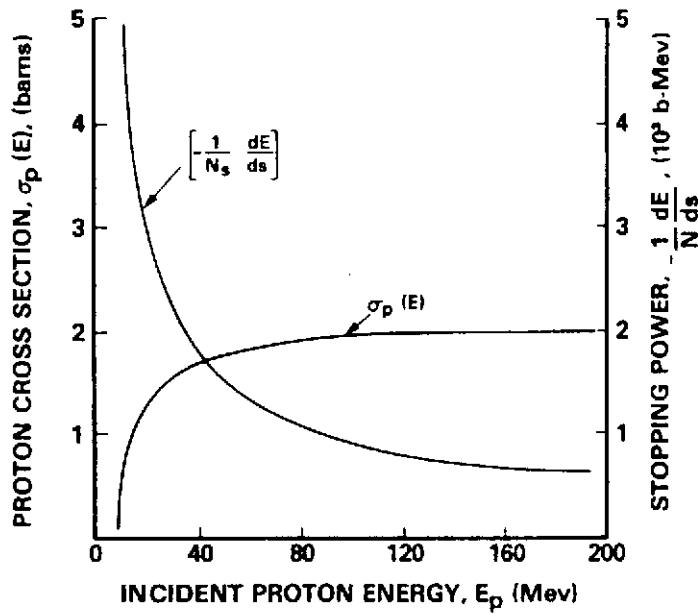


FIG. 5 - Variation de la section efficace de capture d'un proton et du pouvoir de ralentissement avec l'énergie dans le cas du ^{137}Cs . D'après [10].

avec:

- I , l'intensité du faisceau d'électrons, $I = 100\text{mA}$
- A , le nombre de masse du noyau. $A = 137$
- e , la charge de l'électron
- t , le temps = 1 an
- \mathcal{N}_{av} , le nombre d'Avogadro

L'application numérique donne, en prenant $Y_p = 1$, $M \simeq 4.5\text{kg/an}$ alors que la production annuelle en France est de l'ordre de 1300kg (voir Tab.1).

3.1.3 Bilan énergétique

Le bilan énergétique peut être calculé de la même façon qu'au paragraphe 2.4. L'énergie produite par noyau E_{prod} , est donnée par l'éq.(8), et l'énergie nécessaire pour transmuter un noyau donné E_{trans} , est ici:

$$E_{trans} = \frac{E_{e^-}}{\eta_{acc}} \cdot \frac{1}{Y_p} \tag{14}$$

avec:

- E_p , l'énergie du faisceau de protons
- η_{acc} , le rendement d'accélération, $\eta_{acc} \simeq 0.4$

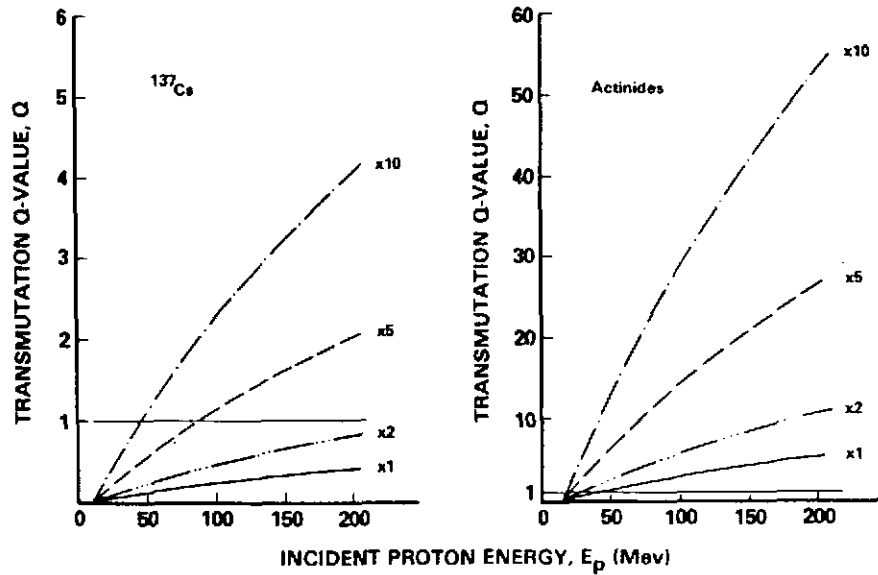


FIG. 6 - Variation du rendement de transmutation et du rapport Q avec l'énergie dans le cas du ^{137}Cs (droite) et du rendement de transmutation pour différents noyaux (gauche). D'après [10]

Dans le cas du ^{137}Cs , si on suppose $Y_p = 1$, $E_p = 600\text{MeV}$, on obtient:

$$E_{\text{prod}} = 1100\text{ MeV}, \quad E_{\text{trans}} = 1500\text{ MeV}, \quad \frac{E_{\text{trans}}}{E_{\text{prod}}} \simeq 1.4 \quad (15)$$

On constate donc qu'il faut, pour transmuter un noyau de ^{137}Cs , dépenser une énergie plus grande que celle obtenue en le produisant (mais inférieure à celle nécessaire pour la transmutation par réactions photonucléaires). La fig.6 montre l'évolution du rapport $Q = \frac{E_{\text{prod}}}{E_{\text{trans}}}$ en fonction de l'énergie.

3.2 Spallation indirecte

3.2.1 Principe

Les réactions de spallation génèrent un grand nombre de particules secondaires de haute énergie pouvant à leur tour induire de nouvelles réactions de spallation, ce qui revient dans l'approche précédente à avoir $Y_p \gg 1$.

On sait (voir cours de J.Fréhaut) que le nombre de neutrons sortant de la cible de spallation augmentent avec l'énergie du faisceau de protons et avec la masse atomique de la cible. On choisit alors une énergie de l'ordre du GeV, car à plus haute énergie, une partie de celle-ci est perdue sous forme de création de pions, et une cible constituée par un élément lourd. La transmutation se fait avec les neutrons secondaires (les particules chargées étant arrêtées dans la cible) après

ralentissement éventuel pour les amener dans la zone où les sections efficaces de capture sont les plus importantes. Ceci conduit à un nombre de neutrons par protons incident qui peut être de l'ordre de 20 à 50 selon l'énergie et revient à multiplier par un facteur semblable le rendement de transmutation du paragraphe 3.1.2.

3.2.2 Considérations énergétiques

Le bilan énergétique est lui aussi beaucoup plus favorable que dans le cas de la spallation directe, un raisonnement identique au précédent montre que pour transmuter l'ensemble des PF à vie longue (soit 28% des PF) il faudrait dépenser environ $\frac{1}{3}$ de l'énergie produite par fission, ce qui vraisemblablement encore trop coûteux.

3.3 Conclusion

La spallation directe n'est pas envisageable pour la transmutation des isotopes à vie longue car le rendement de transmutation est insuffisant et l'énergie nécessaire est supérieure à l'énergie générée lors de la production de ces noyaux.

La spallation indirecte est plus favorable tant du point de vue rendement que du point de vue énergétique. Mais son coût énergétique est encore prohibitif. On verra par la suite qu'il est beaucoup plus judicieux d'utiliser la spallation dans un hybride spallation-fission qui peut au moins être autosuffisant en énergie. Néanmoins il peut être imaginable dans un tel hybride d'utiliser dans une certaine partie du système la spallation directe ou indirecte pour transmuter certains isotopes.

4 Transmutation à l'aide de la fusion catalysée par muons

4.1 Principe

L'idée est de produire, par des réactions de fusion, un faisceau intense de neutrons de 14 MeV qui pourraient assurer la transmutation des déchets par des réactions $(n, 2n)$. Comme pour la spallation indirecte, on peut envisager aussi de multiplier et de ralentir ces neutrons avant leur utilisation. L'avantage de la fusion catalysée par muons, par rapport à la fusion par confinement magnétique ou inertielle, est sa relative simplicité technologique, en particulier, elle ne nécessite pas des températures aussi élevées.

Les muons peuvent être obtenus grâce à un accélérateur de protons ou deutons de plusieurs GeV. L'interaction de particules de haute énergie sur une cible, généralement légère pour éviter l'absorption, produit des pions qui décroissent en vol en muons. Ceux-ci sont ensuite focalisés pour faire un faisceau intense de muons.

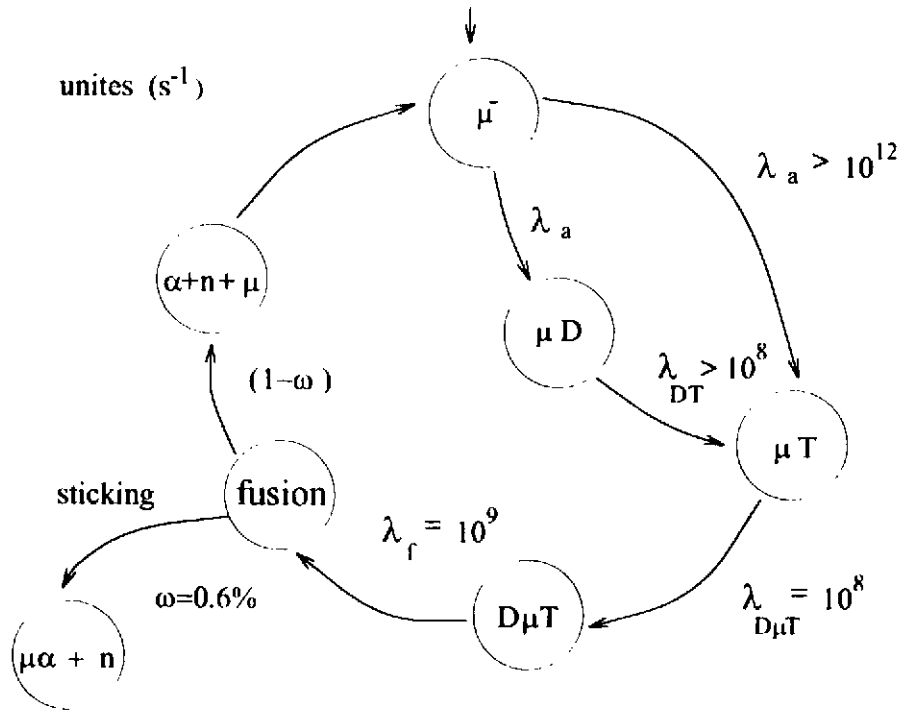


FIG. 7 - Cycle du muon. D'après [12].

Le principe de base de la fusion catalysée par muons vient de la possibilité de former des états liés, de durée de vie de l'ordre de 10^{-6} s, (molécules mésiques) à partir de deux noyaux (par exemple deutérium et tritium) et d'un muon (μ^-): un muon envoyé dans un mélange deutérium-tritium, est d'abord capturé par un atome. Cet atome peut soit transférer son muon sur un autre atome de charge plus élevée, soit former une molécule mésique. Dans cette molécule les noyaux sont séparés par une distance de l'ordre de 2 fois le rayon de Bohr muonique (soit ~ 500 fm au lieu de 10^5 fm ordinairement) et ont, de ce fait, une grande probabilité de faire une réaction de fusion par effet tunnel:



libérant le muon qui est disponible pour catalyser une nouvelle réaction de fusion. En pratique, le muon peut rester "collé" sur l'alpha (sticking) et donc être perdu. Le cycle du muon est illustré sur la fig.7.

Le nombre de neutron produit par muon, χ_c , est donné (d'après [13]) par:

$$\chi_c \sim \left(\frac{\lambda_0}{\lambda_c} + \omega \right)^{-1} \quad (17)$$

où:

- ω est la probabilité de sticking et autres pertes, $\omega \sim 0.5$ à 0.6% ,
- λ_0 le taux de décroissance du muon, $\lambda_0 = 0.45 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$,
- λ_c le taux de recyclage du muon, $\lambda_c \geq 10^8 \text{ s}^{-1}$.

On voit que χ_c est limité par ω à une valeur maximale inférieure à 200. Dans la pratique, la valeur maximale atteinte pour le moment est χ_c de l'ordre de 100 à 150.

4.2 Exemple d'application

T.Kase et al.[11] de PNC au Japon a étudié schématiquement la possibilité de transmuter le ^{137}Cs grâce au dispositif représenté sur la fig.8.

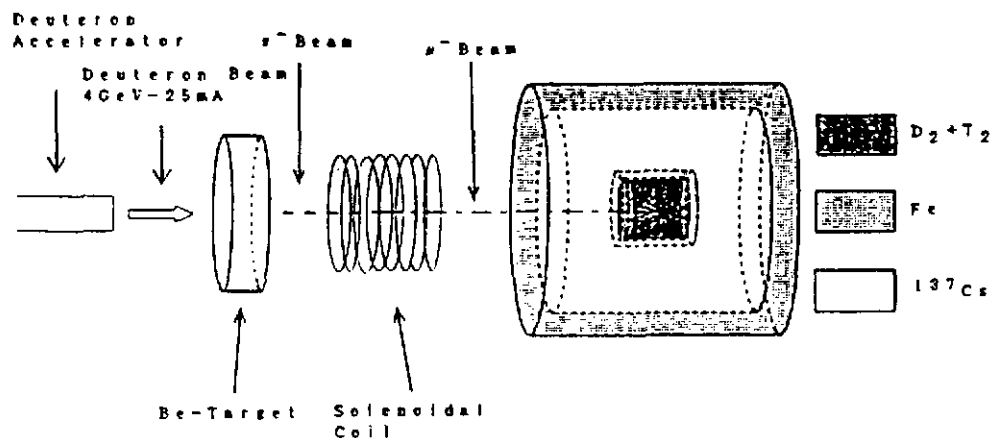


FIG. 8 - Schéma du système de transmutation à l'aide de la fusion catalysée par muons de Kase et al. [11].

Un faisceau de deutons de 4 GeV, 25 mA frappant une cible de Béryllium produit des pions se transformant en muons. Les muons sont ensuite envoyés dans un mélange $D_2 + T_2$ entouré par le césium à transmuter. Il est supposé que l'énergie pour produire un muon est de 4.5 GeV donc que l'on produit $0.9 \mu^-$ par deutons, que $\chi_c = 175$ et que les pertes de muons dans la fenêtre séparant l'accélérateur du mélange $D_2 + T_2$, sont de l'ordre de 20%. Les auteurs étudient alors le rendement

de transmutation par réactions $(n, 2n)$ en fonction du volume de la cible de deutérium-tritium, supposée cylindrique, et trouvent que l'on peut, avec une cible de 43.7l, obtenir un abaissement de la période effective (voir 1.2.5) du ^{137}Cs à 2 ans et que le coût énergétique d'une transmutation est de l'ordre de 200 MeV. En prenant en compte une efficacité d'accélération de 0.5, ce coût passe à 400 MeV ce qui est inférieur à l'énergie générée par le noyau détruit, 1100 MeV (voir 2.4).

Cependant, les hypothèses de cette étude ($0.9\mu^-$ par deuton, $\lambda_c = 175$) sont très optimistes et rien n'est dit sur la génération éventuelle de ^{135}Cs .

4.3 Comparaison avec la spallation

La fusion catalysée par muon utilisant un faisceau de particules de haute énergie, il est naturel de comparer ses performances avec celles de la spallation. En ce qui concerne la spallation directe, Kase et al.[11] affirme que les rendements de transmutation des deux méthodes sont comparables mais que le bilan énergétique est plus favorable à la fusion catalysée par muons. Ceci peut être vérifié en comparant les 400 McV obtenus ci-dessus avec les 2000 MeV obtenus en 3.1.4.

Par contre, si l'on s'intéresse à la production de faisceau intense de neutrons, qui seraient ensuite utilisés pour la transmutation de déchets, la production par spallation est plus performante: C.Petitjean et al.[13] ont comparé les différentes façons de produire des faisceaux de neutrons et montre que c'est la production par spallation qui donne les plus fortes intensités. En fait, on peut considérer[13] qu'un faisceau de deutons de quelques GeV sur une cible légère (Li, Be ou C) pourrait produire au maximum $0.17\pi^-$ par GeV qui à cause des pertes donneraient au mieux $0.13\mu^-$ par GeV. En supposant que l'on produise 100 neutrons par muons, on arrive à 13 neutrons de 14 MeV par GeV. Ceci est à comparer avec les 25 neutrons que l'on peut produire avec un proton d'1 GeV sur une cible de plomb.

D'autre part, F.Marie et al.[14] ont étudié la possibilité d'utiliser la fusion catalysée par muons comme source supplémentaire de neutrons, qui se rajouteraient à ceux produits par spallation dans une cible de plomb. Dans cette étude, réalisée à l'aide du code GEANT, un faisceau de protons frappe une cible de plomb immergée dans un mélange deutérium-tritium et divers paramètres sont variés afin de maximiser le nombre de neutrons par proton et par GeV produit. Il est montré que, dans le cas optimum, la fusion catalysée par muons ne contribue que pour quelques % au nombre de neutrons produits. Ce pourcentage est plus grand à haute énergie incidente (10%) mais on perd alors en nombre total de neutrons produits par proton et par GeV.

4.4 Conclusion

La transmutation par fusion catalysée par muons est vraisemblablement plus favorable, du point de vue énergétique que la spallation directe. Par contre, la production de faisceau intense de neutrons, qui serviraient ensuite à la transmutation de déchets, par fusion catalysée par muons n'est pas compétitive par rapport à la production par spallation: le nombre de neutrons produits est plus faible et la technique beaucoup plus complexe.

5 Transmutation dans des hybrides fusion-fission

5.1 Principe

Un hybride fusion-fission est constitué par un réacteur de fusion (généralement un tokamak) entouré par une couverture fissile ou fertile sous-critique dans laquelle les neutrons de 14 MeV produits par fusion, sont multipliés par fission et réactions $(n, 2n)$. Ce réacteur hybride produit de l'énergie et des neutrons qui peuvent être éventuellement utilisés pour transmuter des déchets nucléaires.

Ce concept est en fait ancien et avait été envisagé dès les années 1955 – 60 pour générer du ^{239}Pu à partir de ^{238}U [15], mais abandonné car trop complexe à l'époque et parce que d'autres techniques permettaient de produire du plutonium.

Récemment, l'intérêt pour ces systèmes est réapparu du fait des progrès de la fusion et de la volonté de trouver des solutions aux problèmes des déchets à vie longue.

5.2 Les réactions mises en jeu

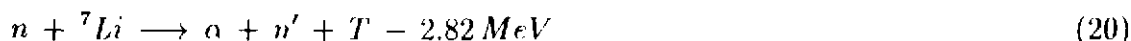
La partie fusion est constituée généralement par un plasma deutérium-tritium, chauffé et confiné magnétiquement dans un tokamak, dans lequel se produit la réaction:



Sur les 17.6 MeV d'énergie libérée, 80% (soit 14 MeV) est emportée par les neutrons. Les 20% restants sont emportés par les alphas et servent à chauffer le plasma par collisions.

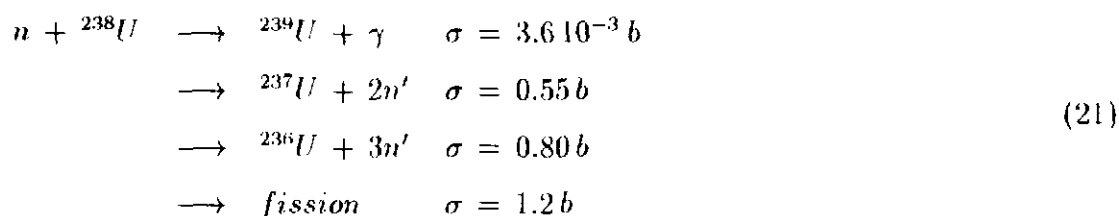
Les ressources en tritium étant limitées, la partie fusion est entourée d'une couverture (dite tritigène) à base de lithium dans laquelle s'effectue la régénération du tritium grâce aux réactions:





le lithium naturel étant composé de 7.5% de ${}^6\text{Li}$ et de 92.5% de ${}^7\text{Li}$.

La partie fission, qui peut être distincte ou non de la couverture tritigène, assure la multiplication des neutrons et la production d'énergie. L'un des intérêts d'un hybride est la possibilité d'utiliser de l'uranium naturel sans enrichissement (ou éventuellement du thorium). Les réactions qui ont lieu dans la partie fission sont les suivantes:



On voit qu'avec des neutrons de 14 MeV, les sections efficaces $(n, 2n)$ et $(n, 3n)$ sont élevées et seront donc responsables d'une multiplication importante.

Un exemple de couverture pour hybride fusion-fission est montré sur la fig.9. Dans ce cas, la couverture tritigène est séparée de la partie fission, constituée par des assemblages de combustible traditionnels.

5.3 Les paramètres importants

Pour un hybride fusion-fission, les paramètres importants déterminant ses performances sont:

i) le facteur de qualité Q :

qui donne le rapport entre la puissance injectée pour chauffer le plasma et la puissance obtenue grâce aux réactions de fusion.

$$Q = \frac{P_{\text{fusion}}}{P_{\text{injectée}}} \quad (24)$$

L'ignition correspond à $Q = \infty$, c'est à dire à $P_{\text{injectée}} = 0$: l'énergie des alphas est suffisante pour maintenir le plasma en régime thermonucléaire. On considère [16] qu'il faut $Q = 25$ à 30 pour qu'un réacteur à fusion pure soit économiquement viable. Pour un hybride fusion-fission, un Q beaucoup plus faible serait suffisant. D'après [18], $Q \geq 2$ à 3 serait déjà très intéressant.

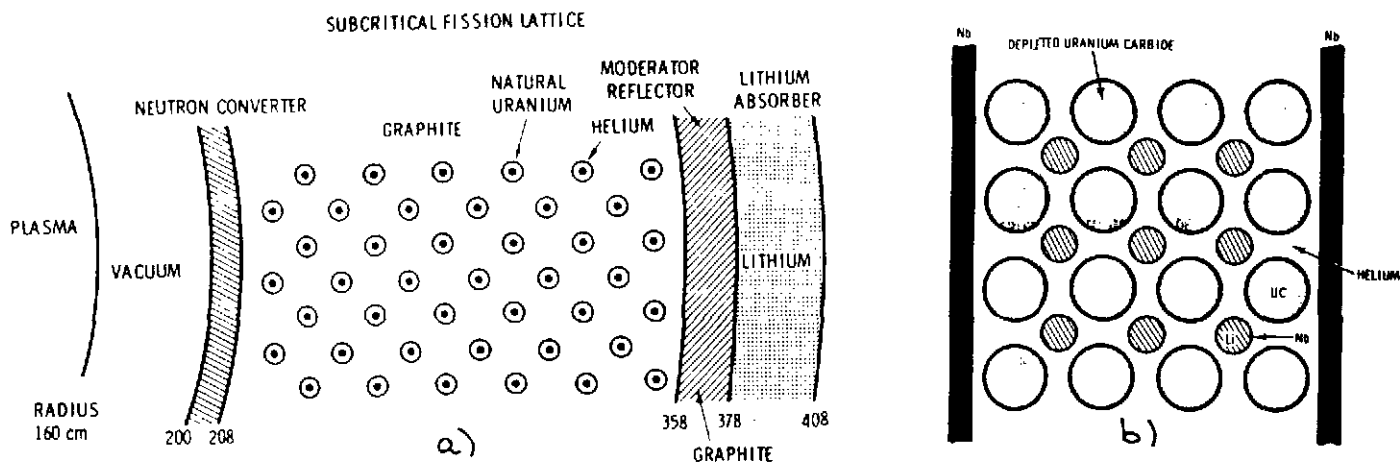


FIG. 9 - a) Schéma de la couverture de l'hybride fusion-fission proposé par Leonard et al.[15]. b) Détail de la partie convertisseur de neutrons.

ii) le facteur de multiplication de l'énergie M :

qui exprime le gain en énergie dû aux réactions dans la couverture sous-critique:

$$M = \frac{E_{cin}(neutrons) + E_{couv}}{E_{cin}(neutrons)} \quad (25)$$

où:

$E_{cin}(neutrons)$ est l'énergie cinétique totale des neutrons de fusion,

E_{couv} est l'énergie libérée par l'ensemble des réactions nucléaires ((n, xn) et fission) dans la couverture sous-critique.

- Dans une couverture tritigène de réacteur à fusion classique, $M \approx 1.2$
- avec de l' ^{238}U , $M \approx 10$
- avec du ^{239}Pu , on peut avoir jusqu'à $M \approx 100$

Un hybride fusion-fission fonctionne donc en fait comme un amplificateur à deux étages dont le gain total en énergie est donné par:

$$F = Q \cdot M \quad (26)$$

iii) le taux de régénération du tritium T :

qui doit être légèrement plus grand que 1.

Relation entre M et k

On peut relier le facteur de multiplication de l'énergie M , et le paramètre k caractérisant la multiplication des neutrons dans un milieu fissile (voir cours de J.M.Loiseau):

si ϵ_{fusion} est l'énergie produite par fusion dont 80% est emportée par les neutrons, et $E_{fission}$ l'énergie provenant de la fission, M peut s'écrire:

$$M = \frac{0.8 \epsilon_{fusion} M_0 + E_{fission}}{0.8 E_{fusion}} \quad (27)$$

avec M_0 le facteur de multiplication de l'énergie dû aux seules réactions (n, xn) induites par les neutrons de fusion.

Soient n_{fusion} et $n_{fission}$ les nombres de neutrons produits par fusion et fission, respectivement:

$$n_{fission} = n_{fusion} (k + k^2 + \dots) = n_{fusion} \left(\frac{k}{1-k} \right) \quad (28)$$

Si ν est le nombre de neutrons par fission, le nombre de fissions N_{Fiss} sera donné par:

$$N_{Fiss} = \frac{n_{fission}}{\nu} = \frac{n_{fusion}}{\nu} \left(\frac{k}{1-k} \right) \quad (29)$$

et l'énergie provenant de la fission, $E_{fission}$, sera:

$$E_{Fiss} = \epsilon_{fission} \frac{n_{fusion}}{\nu} \left(\frac{k}{1-k} \right) \quad (30)$$

où $\epsilon_{fission}$ est l'énergie libérée par une fission.

ce qui donne finalement:

$$M = M_0 + 1.25 \frac{\epsilon_{fission}}{\epsilon_{fusion}} \frac{1}{\nu} \left(\frac{k}{1-k} \right) \quad (31)$$

Avec $M_0 = 1.2$, $\epsilon_{fission} = 200 \text{ MeV}$, $\epsilon_{fusion} = 17.6 \text{ MeV}$ et $\nu = 3$ on obtient:

$$k = 0.45 \text{ pour } M = 5,$$

$$k = 0.65 \text{ pour } M = 10,$$

$$k = 0.95 \text{ pour } M = 100.$$

Un système avec $M = 5$ ou 10 , qui comme on le verra par la suite est ce qui est généralement envisagé, assurerait donc un fonctionnement en régime très sous-critique.

5.4 Les différentes propositions pour la transmutation de déchets

D'après P.H.Rebut[16], un hybride fusion-fission pourrait être utilisé pour brûler des actinides mineurs et du plutonium et serait rentable si le gain total F , défini par l'éq.(21), était supérieur à environ 25, ce qui pourrait être réalisé avec $M = 5$, $Q = 5$. Une telle valeur de Q pourrait être atteinte avec un tokamak de taille inférieure, demandant un courant de plasma plus faible, et donc beaucoup moins cher qu'ITER, le projet international conçu pour atteindre l'ignition. La densité de puissance dans la première paroi entourant le plasma est l'un des problèmes majeurs qui limiterait la disponibilité d'une machine à fusion pure. Dans un hybride fusion-fission, fonctionnant à $Q = 5$, la densité de puissance serait réduite d'un facteur 5 à 10 et permettrait d'accroître la durée de vie de la première paroi. Dans [16], la couverture serait formée de billes d' ^{238}U dans un bain de lithium liquide qui constituerait le fluide caloporteur tout en assurant la régénération du tritium.

Qiu et al.[21] propose la transmutation du ^{90}Sr dans un hybride dont la couverture sous-critique est constituée d'une couche externe contenant du plutonium comme combustible et d'une couche interne contenant le ^{90}Sr à transmuter, le tout entouré par un réflecteur en graphite. Le strontium, sous forme SrO_2 , est mélangé à de l'eau lourde qui assure la modération des neutrons de fusion avant qu'ils n'atteignent la zone contenant le plutonium, celui-ci se trouvant sous forme de particules, refroidies par de l'hélium gazeux. Le système fonctionne à $k_{eff} = 0.95$, avec une puissance thermique de 12 GW (!) et permettrait de brûler 600 kg de ^{90}Sr par an (soit la totalité de la production française par an).

Enfin, citons l'étude paramétrique de Krakowski et al.[20] sur les possibilités d'incinération des actinides mineurs et du plutonium en fonction de Q et M : avec $Q \approx 1$ et $M \geq 10$, il est trouvé que l'on pourrait théoriquement incinérer les actinides provenant de 3 REPs.

5.5 Conclusion

La transmutation dans des hybrides fusion-fission est envisageable:

- le bilan énergétique est évidemment favorable puisque l'hybride se comporte comme un amplificateur d'énergie à deux étages qui produirait donc plus d'énergie qu'il n'en consomme,
- le potentiel de transmutation est grand.

Ces réacteurs hybrides seraient réalisables sans attendre la démonstration de viabilité d'un réacteur à fusion pure, puisque les contraintes comme le courant de plasma, la densité de puissance dans la première paroi y serait beaucoup moins draconiennes.

Par rapport à un hybride spallation-fission (voir chapitre suivant), un hybride fusion-fission permettrait de fonctionner à k_{eff} beaucoup plus faible, ce qui simplifierait la sûreté.

Cependant, même si l'on peut se contenter d'un tokamak plus modeste que celui d'un réacteur de fusion pur, et d'une couverture très sous-critique, ces systèmes allient pratiquement les problèmes technologiques de la fusion, qui ne sont pas encore tous résolus, et ceux de la fission, et la complexité est probablement l'objection majeure à de tels hybrides.

D'autre part, pour le moment, très peu d'études précises ont été consacrées à ces systèmes.

6 Transmutation dans des hybrides spallation-fission

6.1 Principe

Le principe des hybrides spallation-fission est décrit longuement dans le cours de J.M.Loiseau, plus particulièrement dans le cadre de l'Amplificateur d'Energie de C.Rubbia[28, 29] dont il ne sera pas question dans ce cours. Rappelons brièvement qu'un tel hybride est composé d'un accélérateur fournissant des protons de haute énergie (de l'ordre du GeV), d'une cible de spallation et d'un milieu multiplicateur sous-critique, appelé aussi couverture. L'interaction des protons avec la cible de spallation produit un grand nombre de neutrons. Ceux-ci, après avoir été éventuellement modérés, sont multipliés par les réactions de fission dans la couverture sous-critique, entourant la cible, comportant de la matière fissile et qui est caractérisée par son facteur de multiplication, k , inférieur à 1. L'énergie libérée par les réactions de fission sert au moins en partie à alimenter l'accélérateur. L'avantage de ces systèmes, outre le fonctionnement en régime sous-critique qui présente un bénéfice évident pour la sûreté et qui a été discuté dans le cours de J.M.Loiseau, est la présence de neutrons en excès, disponibles pour transmuter des isotopes à vie longue.

Si n_{sp} est le nombre de neutrons provenant des réactions de spallation, le nombre de neutrons total sera:

$$n_{tot} = n_{sp} (1 + k + k^2 + \dots) = n_{sp} \left(\frac{1}{1-k} \right) \quad (32)$$

Si ν est le nombre de neutrons par fission, le nombre de fissions N_{Fiss} sera donné par:

$$N_{Fiss} = \frac{n_{tot} - n_{sp}}{\nu} = \frac{n_{sp}}{\nu} \left(\frac{k}{1-k} \right) \quad (33)$$

La probabilité pour un neutron de produire une réaction de fission étant donnée par le rapport:

$$\frac{\sigma_{fiss}}{\sigma_{fiss} + \sigma_{capt}} = \frac{1}{1 + \alpha} \quad (34)$$

le nombre de neutrons n_D qui ne servent pas à produire une fission, est:

$$n_D = n_{tot} - (N_{Fiss}(1 + \alpha)) = \frac{n_{sp}}{1 - k} \left(1 - \frac{k}{\nu}(1 + \alpha)\right) \quad (35)$$

et le nombre de neutrons par fission disponibles pour des besoins autres que l'entretien de la réaction en chaîne $n_{D/F}$ est donné par:

$$n_{D/F} = \frac{n_D}{N_{Fiss}} = \frac{\nu}{k} - (1 + \alpha) - f \quad (36)$$

si l'on tient compte du facteur f , exprimant les pertes par fuites du système[17].

On voit donc que dans un système sous-critique, le nombre de neutrons disponibles pour des besoins autres que l'entretien de la réaction en chaîne, par exemple pour la transmutation d'actinides ou de produits de fission, est d'autant plus grand que k est plus éloigné de 1. Le prix à payer est que la fraction de l'énergie produite nécessaire à l'alimentation de l'accélérateur est aussi beaucoup plus importante. Au contraire, dans le cas d'un système faiblement sous-critique, k très voisin de 1, le nombre de neutrons provenant de la spallation est faible devant celui des neutrons de fission. Le système est alors très proche d'un réacteur classique. Ces considérations font que dans la plupart des projets proposés k varie entre 0.90 et 0.98.

6.2 Les choix techniques

La composition de la couverture sous-critique, la nature des matériaux fissiles utilisés et la configuration vont déterminer les performances du réacteur et des choix technologiques très différents sont faits selon les projets en fonction des objectifs visés: destruction des AM ou PF, production d'énergie, etc...

6.2.1 Le combustible

Dans un réacteur classique, la nature et la composition isotopique du combustible sont imposées par des contraintes à la fois de neutronique et de sûreté. Par exemple, on ne peut augmenter beaucoup la proportion de plutonium dans le combustible MOX du fait de la plus faible fraction de neutrons retardés dans le ^{239}Pu que dans l' ^{235}U . Ceci, qui est vrai aussi pour les actinides mineurs, conduirait à des difficultés de contrôle de la réactivité. Dans un hybride ces contraintes sont beaucoup moins draconiennes car, du fait du fonctionnement en mode sous-critique, on peut permettre une certaine excursion de réactivité et il n'est plus nécessaire de contrôler la réactivité par les neutrons

retardés. Cela permet donc l'utilisation de combustibles "exotiques" dans ce genre de systèmes qui peuvent différer selon l'objectif fixé: proportions beaucoup plus grandes de Pu (destruction du Pu militaire) ou d'AM que dans des REPs ou RNRs classiques, voire même combustible sans U ni Th ni Pu (projet INCA[31]) lorsque l'on veut optimiser l'incinération des actinides mineurs; utilisation du cycle $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ pour produire de l'énergie en produisant des déchets moins radiotoxiques[28]. Dans d'autres cas, le combustible est obtenu après un retraitement plus ou moins poussé: combustible irradié dont on a seulement extrait l'uranium (projet Bowman[25]), AMs extraits après recyclage en MOX (INCA[31]). Dans les projets à sels fondus, un retraitement en ligne est possible.

6.2.2 Le spectre des neutrons: thermiques ou rapides

C'est le choix du modérateur (ou son absence) qui va déterminer le spectre en énergie des neutrons. Les projets de systèmes thermiques (par exemple [25, 28]) utilisent de l'eau légère ou lourde ou du graphite comme modérateur. Au contraire, dans les projets de systèmes rapides[23, 29], l'eau doit être évitée et on choisit alors du sodium ou du plomb comme fluide caloporteur. Dans le cas de réacteurs à sels fondus, on choisira plutôt des fluorures ou des chlorures selon que l'on veut respectivement un spectre thermique ou rapide.

Lorsque l'on veut transmuter une quantité N d'un noyau donné, dans un flux de neutrons ϕ , grâce à une réaction de section efficace σ , la variation de N avec le temps est donnée par:

$$\frac{dN}{dt} = -N \sigma \phi \quad (37)$$

Les sections efficaces diminuent généralement quand l'énergie augmente, on voit donc que le taux de transmutation, à flux égal, sera toujours plus grand dans un spectre de neutrons thermiques que de neutrons rapides. Cependant, les sections efficaces de capture et de fission dépendent des noyaux et diminuent avec l'énergie des neutrons de façon différente, si bien que le rapport fission sur capture augmente avec l'énergie. Lorsque l'on veut incinérer des actinides mineurs, c'est-à-dire les faire fissionner, il faut minimiser la capture qui correspond à une perte sèche de neutron et donc les spectres rapides sont plus favorables en terme d'économie de neutrons[24]. Cependant, dans le cas de certains isotopes, comme le ^{237}Np , ce problème peut être contourné par le phénomène de double capture avant décroissance dans un haut flux thermique. Comme on le voit sur la fig.10, le ^{237}Np qui est un poison, i.e consomme plus de neutrons qu'il n'en produit, dans un flux thermique classique, peut devenir un combustible dans des flux 10 à 100 fois plus élevés. En résumé, avec un spectre thermique les inventaires mis en jeu sont faibles ce qui permettrait une réduction rapide des stocks

d'actinides accumulés mais la contrepartie est l'apparition et l'accumulation d'isotopes de plus en plus lourds, difficiles à transmuter. Au contraire, dans un flux de neutrons rapides, pratiquement tous les isotopes sont fissionnables, mais la diminution de l'inventaire est très lente.

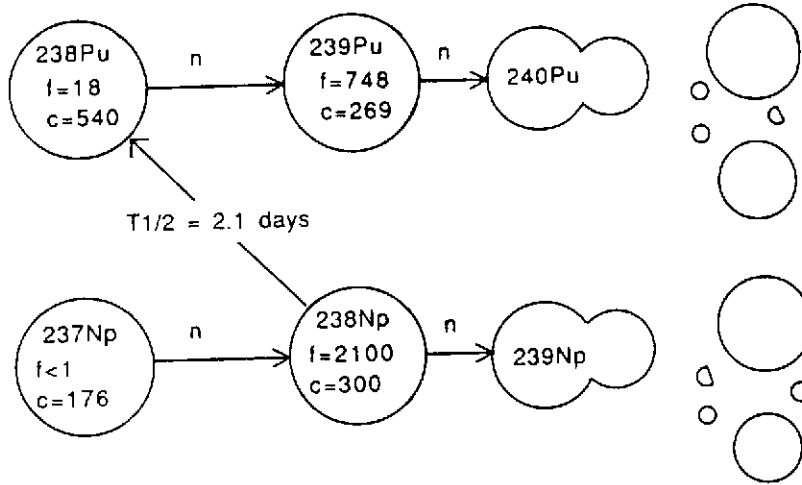


FIG. 10 - Principe de la double capture sur le ^{237}Np .

Pour les produits de fission, la seule voie de transmutation possible est la capture. Les sections efficaces de capture étant très faibles à haute énergie, les spectres thermiques sont mieux adaptés. Certains PF présentent des résonances très fortes dans la zone épithermique. On peut envisager, comme dans le projet TARC (voir cours de J.M.Loiseau) de tirer partie de ce phénomène pour transmuter certains PF. Dans certains projets, des zones, généralement concentriques autour de la cible, de modération différente et donc où le spectre en énergie des neutrons différent sont spécifiquement dédiées à des applications différentes: incinération d'AM, transmutation de PF, surgénération...

6.2.3 La configuration du cœur: sels fondus ou cœur solide

Dans certains projets la configuration du réacteur sous-critique est très semblable aux schémas de réacteurs existants ou en projet (c'est le cas, du projet PHOENIX de Brookhaven[27] ou de l'un des projets de JAERI[23] où le cœur est solide et refroidi au sodium). Ce choix a l'avantage de faire appel à des technologies connues. Au contraire, dans les projets Rubbia[28, 29], par exemple, le fluide caloporteur choisi est du plomb circulant par convection naturelle.

Une autre grande classe de projets utilise des réacteurs à sels fondus (voir cours de J.M.Cavedon): c'est le cas des concepts proposés par Los Alamos[25] ou de l'un des projets de JAERI[23]. Dans ces systèmes, le sel fondu sert à la fois de combustible, de fluide caloporteur et de cible de spallation, dans le cas du projet JAERI. Dans le cas des systèmes à très haut flux (Los Alamos), un combustible

solide n'est pas envisageable car il devrait être changé trop fréquemment. Les sels fondus permettent en outre un retraitement en ligne rendant possible l'extraction continue des PFs, produits au cours de la consommation du combustible et qui risqueraient d'altérer la réactivité, ou celle du ^{233}Pa dans le cas du cycle au thorium. Cela, cependant ne peut se faire qu'au prix d'une chimie très complexe. Le fonctionnement à haute température garantit un meilleur rendement de conversion thermique-electrique. Enfin, la composition du sel peut être adaptée en fonction des besoins de la transmutation. Les inconvénients de ces systèmes sont essentiellement l'absence de développement actuel bien qu'un réacteur à sels fondus ait fonctionné à Oak Ridge dans les années 60.

6.3 Projets américains

Aux Etats-Unis, plusieurs laboratoires ont proposés des projets de systèmes hybrides. Ces projets n'en sont pour le moment qu'à l'étape conceptuelle, mais bénéficient des études pour la production de tritium par accélérateur (projet APT) dans les domaines notamment de l'accélérateur haute intensité, de la cible de spallation et des dommages aux matériaux.

6.3.1 Concept PHOENIX

Citons tout d'abord le concept PHOENIX de Brookhaven [27] qui utilise des assemblages de réacteur rapides classiques refroidis au sodium et dans lesquels on remplace le combustible oxyde habituel par des oxydes d'AM. Le faisceau de protons de 1.6 GeV, 100 mA est envoyé, après division et expansion sur huit cœurs sous-critiques qui servent aussi de cible de spallation. Le schéma du système et les taux de transmutation attendus sont donnés sur la fig.11.

6.3.2 Concepts Los Alamos

Le concept Los Alamos[25, 1], dont il existe plusieurs variantes, est fondé sur l'utilisation de hauts flux de neutrons thermiques dans un réacteur sous-critique à sels fondus. Le sel choisi, à base de fluorures de *Li* et *Be* est identique à celui utilisé dans le réacteur expérimental à sels fondus d'Oak Ridge (MSRE) (cf cours de J.M.Cavedon). Différentes versions de ce concept sont proposées selon l'usage souhaité et varient essentiellement par la nature et la répartition du combustible:

- ABC (Accelerator Based Conversion) pour la destruction du plutonium
- ATW (Accelerator Transmutation of Waste) pour la transmutation des AMs et PFs

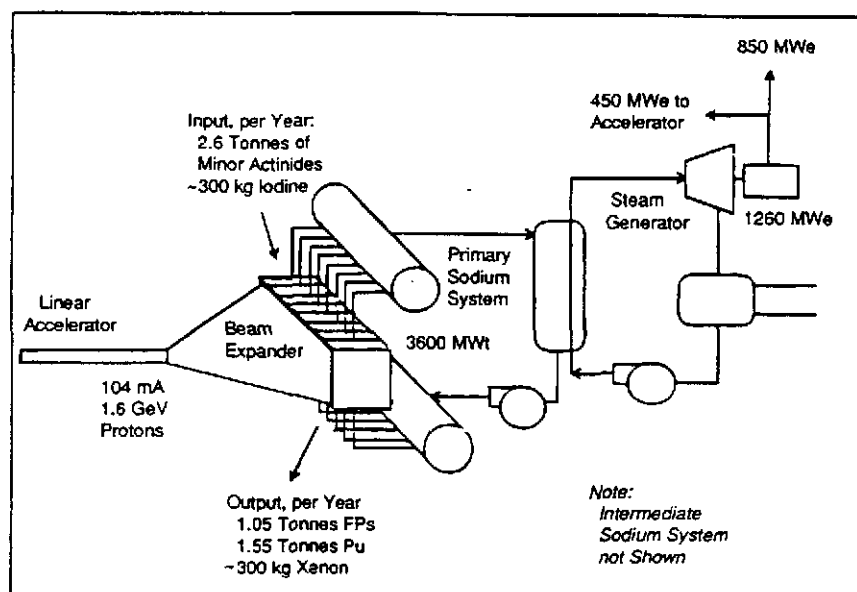


FIG. 11 - projet PHOENIX.

- ADEP (Accelerator Driven Energy Production) pour la production d'énergie à partir du cycle du thorium.

Dans la proposition initiale [25] dont le schéma est montré sur la fig.12, le faisceau de protons de 1.6 GeV frappe directement (i.e. sans fenêtre) une cible de Pb liquide circulant à une vitesse de 1 m/s. Les vapeurs s'échappant de la cible sont reconcondensées en refroidissant le tuyau de faisceau au-dessus de la cible. La couverture sous-critique autour de la cible est divisée en trois zones concentriques: la première contient du D2O et des FPs qui seront transmutés par la composante épithermique du spectre de neutrons (zone des résonances), la deuxième est composée de sel fondu transportant les actinides sous forme de fluorures, enfin la troisième est constituée de D2O plus éventuellement du thorium, dans la version ADEP, afin de produire de $P^{233}U$ qui sera ensuite utilisé dans la zone 2. La valeur élevée du flux ($5 \cdot 10^{15} n/cm^2.s$) permet la transmutation du ^{237}Np grâce au processus de double capture décrit plus haut et les inventaires en AMs sont faibles. Les FPs sont extraits en continu, séparés et pour ceux que l'on veut transmuter, essentiellement ^{90}Sr , ^{99}Tc , ^{129}I , ^{137}Cs , réinjectés dans le système.

Dans une variante plus récente [26], dont les caractéristiques sont données dans la TAB.4, le sel fondu, dans la zone 2, circule à travers des canaux percés dans du graphite qui sert de modérateur, les flux sont plus faibles et dans la zone extérieure le sel fondu contenant le thorium circule à travers

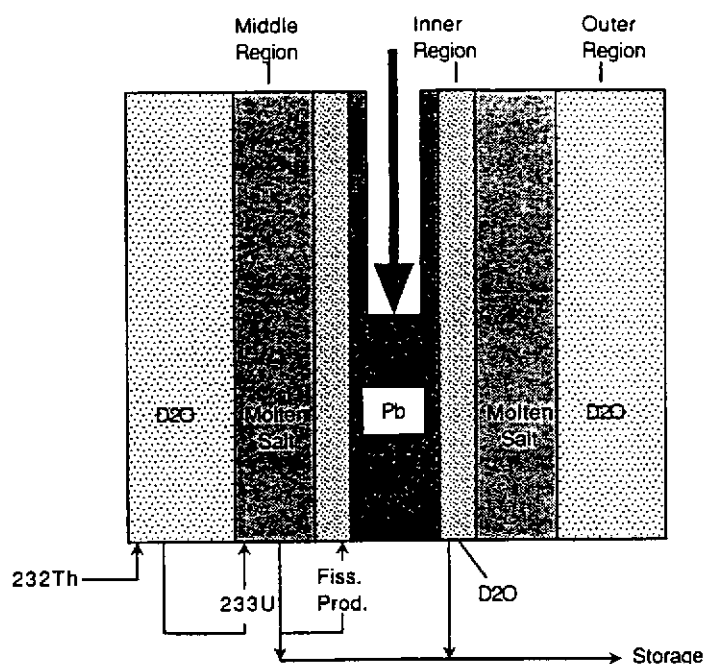


FIG. 12 - projet figL11.

un lit de particules de graphites. Le faisceau est dans ce cas de 800 MeV, 100 mA. Dans la ref.[26], il est proposé d'utiliser ces systèmes (ATW) pour remplacer les réacteurs actuels. En remplaçant, au rythme de 3 par an, les REPs par des ATWs de même puissance et dans lesquels un quart de la puissance serait fournie par l'incinération des actinides provenant des REPs actuels et le reste par le cycle $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$, on pourrait résorber en 30 ans le stock d'actinides généré par les REPs actuels et passer ensuite au cycle $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ pur. Cela pour un surcoût de l'électricité de l'ordre de 15%. Un scénario de sortie du nucléaire est aussi étudié.

6.4 Le Japon: programme OMEGA

Dans le cadre du programme OMEGA (Options Making Extra Gains from Actinides and fission products), JAERI propose deux concepts différents d'hybrides à neutrons rapides dont l'objectif est l'incinération de Pu et AMs. Les caractéristiques des deux systèmes sont présentées sur la TAB.5 et les schémas sur la fig.13. Dans le premier cas, le cœur est constitué de combustible métallique, qui permet d'avoir un spectre de neutrons plus dur qu'un combustible oxyde, refroidi au sodium. La cible est en tungstène. Le deuxième concept utilise des sels fondus à base de chlorures, préférables aux fluorures lorsque l'on veut un spectre rapide. Dans ce cas, le sel sert à la fois de cible de spallation, de combustible et de fluide caloporteur. Ces systèmes seraient capables de transmuter 250 kg/an de transuraniens.

Table I. Parameters of the Non-Aqueous ATW Design

Thermal flux	2 X 10 ¹⁵ n/cm ² -s
Thermal power	3000 MWt
Thermal-to-electric efficiency	40 %
Accelerator beam power	80 MWe
Net electric power generation	1000 MWe
Total actinide fuel inventory	0.64 tonnes
Actinide fuel in chemistry processing	0.32 tonnes
Power fraction derived from Th-U	3/4
Power fraction derived from waste burning	1/4
Transuranic waste inventory	1/4 X 0.96 = 0.24 tonnes
Long-lived fission product burned	5.5 %

TAB. 4 - Caractéristiques d'une des variantes du projet ATW[26].

6.5 Les études en France

En France, pour le moment, les études n'ont pas encore atteint le stade de concepts détaillés. On peut cependant citer les études au CEA-Cadarache[30] d'un hybride à sels fondus et à neutrons rapides, utilisant le cycle thorium (concept BBR). Le sel fondu est à base de $ThCl_3$ et $PbCl_3$ afin d'augmenter le nombre de neutrons produits par spallation (par rapport à $NaCl$ choisi par JAERI). L'objectif est l'incinération de plutonium et la transmutation de technétium, respectivement 5.5 et 6.0t en 50 ans.

D'autre part, au CEA-Saclay, le projet INCA[31] vise à transmuter les AMs produits après un premier de recyclage en MOX dans un système dédié, essentiellement sans uranium, ni plutonium, ni thorium. L'objectif est une diminution de la radiotoxicité des déchets d'un facteur 50 au moins. Les premières études s'orientent vers un concept thermique à haut flux utilisant la technologie CANDU, i.e un combustible refroidi par du D_2O circulant dans des tubes de force et D_2O comme modérateur.

D'autres études sont en cours dans d'autres pays, en particulier en Russie.

6.6 Conclusions

Les hybrides spallation-fission semblent une voie prometteuse pour la transmutation des déchets nucléaires à vie longue. Ils permettraient de brûler des quantités assez importantes d'actinides mineurs, et dans certains cas de produits de fission, tout en produisant de l'énergie. Par rapport

	Solid System	Molten-Salt System
Fuel	Nitride (Alloy)	Chloride Salt $64\text{NaCl}-5\text{PuCl}_3-31\text{MgCl}_2$
Target	Solid Tungsten	Chloride Salt
Primary Coolant	Liquid Sodium	Chloride Salt
Actinide Inventory	3160 kg	5430 kg
Multiplication Factor	0.89	0.92
Proton Beam	1.5 GeV-39 mA	1.5 GeV-25 mA
Thermal Power	820 MW	800 MW
Transmutation Rate	250 kg/y (8.0 %/y)	250 kg/y (4.6 %/y)
Power Density, Max./Avg.	930/400 MW/m ³	1660/310 MW/m ³
Temperature, Core Inlet/Outlet	330/430 °C	650/750 °C
Coolant Maximum Velocity	8 m/s	3.6 m/s

TAB. 5 - Paramètres des deux concepts JAERI.

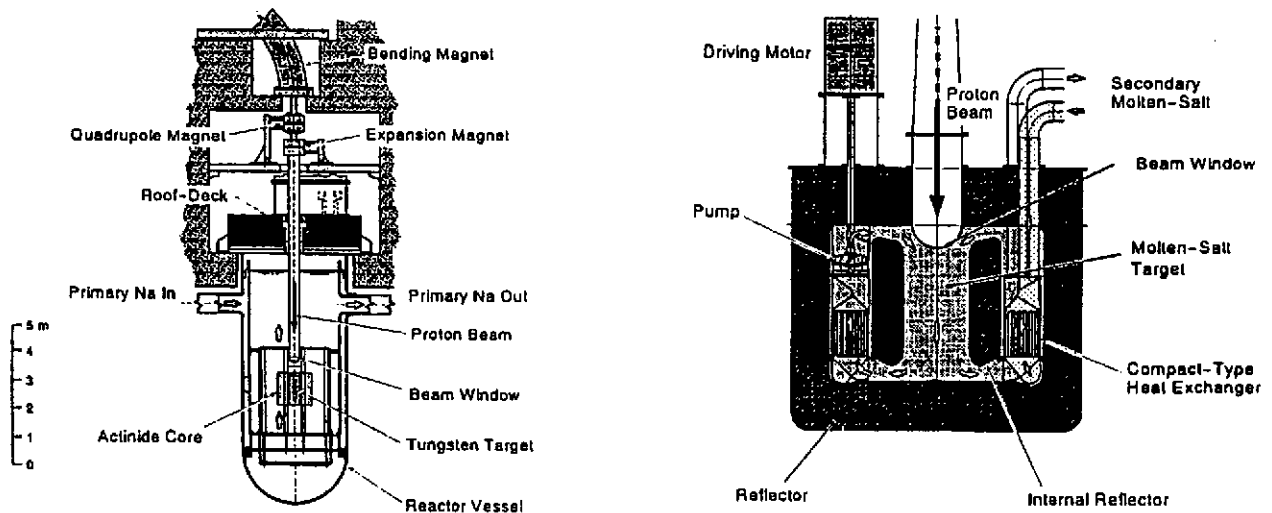


FIG. 13 - projets JAERI. A droite: concept avec cœur solide; A gauche: concept à sels fondus.

aux réacteurs classiques il présentent les avantages suivants:

- un surplus de neutrons disponible pour assurer la transmutation des actinides ou des produits de fission,
- le fonctionnement en mode sous-critique allège les contraintes de sûreté, ce qui permet en outre l'utilisation de combustibles exotiques inenvisageable dans un réacteur classique.
- une plus grande flexibilité (surtout dans le cas des sels fondus) dans la composition du combustible permettant de pallier les effets d'empoisonnement par les PF ou de s'adapter à différents objectifs au cours du fonctionnement.

Les inconvénients sont cependant non négligeables:

- recherche et développements technologiques importants à réaliser,
- la complexité de ces systèmes, même si le fonctionnement en régime sous-critique allège les contraintes de sûreté, est pratiquement celle d'un réacteur plus un accélérateur,
- la fenêtre séparant l'accélérateur du réacteur est un point faible de ces systèmes et plus généralement le problème des dommages aux matériaux induits par les particules de haute énergie qui limitent la durée de vie des composants de ces systèmes.

7 Bilan et perspectives

Dans ce cours ont été examinées les différentes possibilités de transmuter des déchets nucléaires à vie longue autres que les réacteurs classiques. Les méthodes directes envisagées par différents auteurs, réactions photonucléaires, spallation, fusion catalysée par muons, ne permettent pas un rendement de transmutation suffisant et surtout nécessiteraient plus d'énergie que les isotopes détruits n'en ont fournis lors de leur production. La production de faisceaux intenses de neutrons par fusion catalysée par muon ou spallation indirecte, sont plus favorables, mais encore trop coûteuse. Seule l'utilisation de systèmes hybrides dans lesquels les neutrons produits par fusion ou spallation sont multipliés dans un milieu multiplicateur sous-critique paraissent envisageables. Ces systèmes sont au minimum autosuffisant en énergie, et présentent, par rapport aux réacteurs classiques, l'avantage d'un grand excès de neutrons disponibles pour la transmutation et une sûreté intrinsèque plus favorable du fait du fonctionnement en mode sous-critique. Leurs inconvénients majeurs sont cependant leur complexité et les avancées technologiques qu'ils nécessitent. Parmi ces systèmes, les hybrides spallation-fission semblent réalisables dans un futur plus proche que les hybrides fusion-fission. Enfin, il faut garder à l'esprit, que quelles que soient les solutions adoptées pour transmuter

les isotopes à vie longue, il restera toujours des déchets à stocker du fait des pertes au cours de la séparation ou parce que certains isotopes sont trop difficilement transmutables.

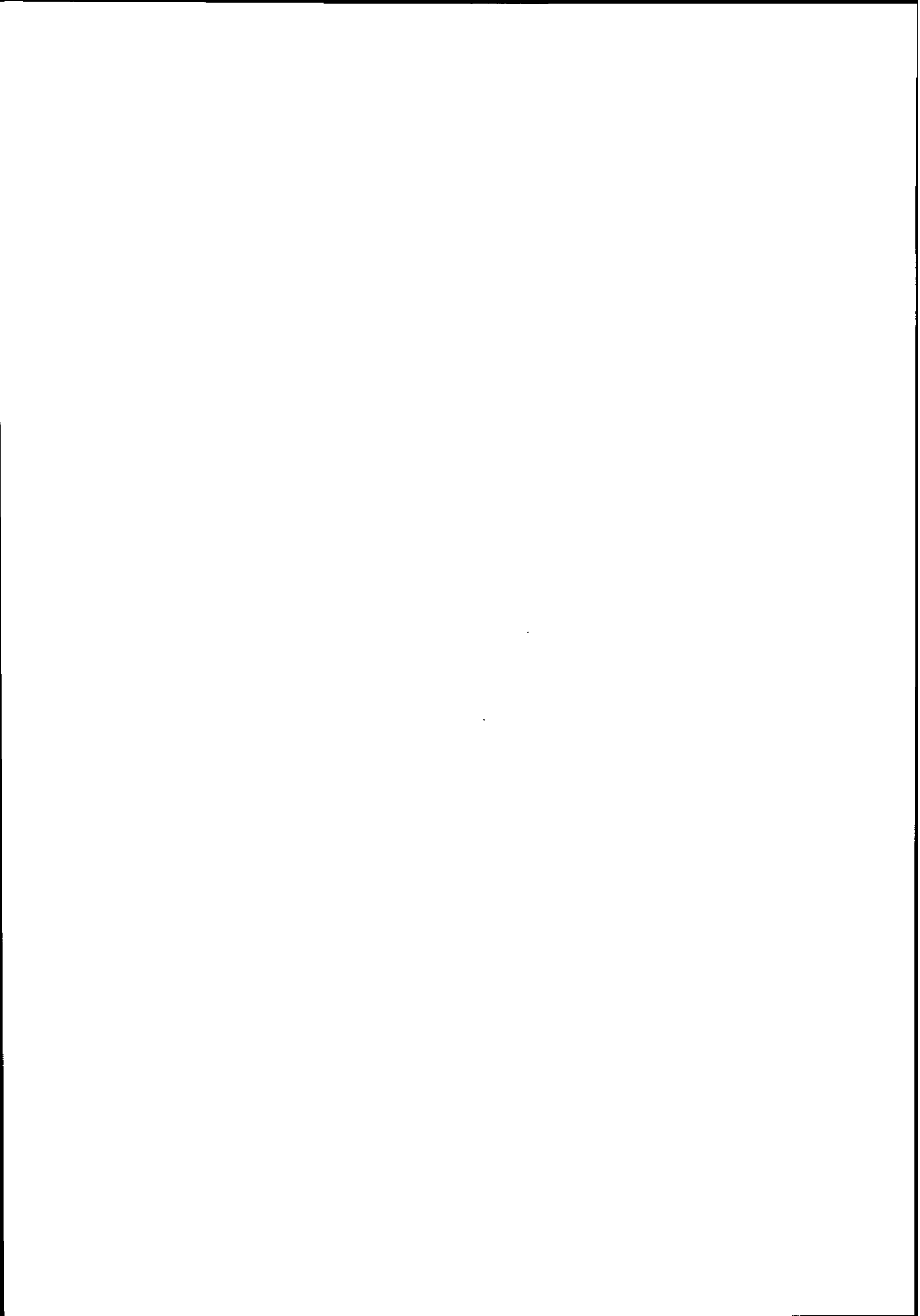
Remerciements:

Je tiens à remercier M.Dubois, A.Leprêtre, F.Marie et J.P.Schapira, qui m'ont aidée dans la préparation de ce cours grâce à leurs compétences et aux documents qu'ils m'ont fournis.

Références

- [1] C.D.Bowman, Int. Conf. on Accelerator-Driven Transmutation Technologies and Applications, Las Vegas, NV, USA, August 1994.
- [2] G.E.Michaels, Int. Conf. on Accelerator-Driven Transmutation Technologies and Applications, Las Vegas, NV, USA, August 1994.
- [3] H.Takahashi and H.Rief, Proceedings of Specialists' Meeting on Accelerator-Based Transmutation, PSI Zurich, March 1992.
- [4] D.J.S.Findlay, Nucl. Instr. and Meth. **B50** (1990) 314.
- [5] H.Takashita et al., Proceedings of Specialists' Meeting on Accelerator-Based Transmutation, PSI Zurich, March 1992.
- [6] R.Bergère et al., Nucl. Phys. **A133** (1969) 417.
- [7] T.Matsumoto, Nucl. Instr. and Meth. **A268** (1988) 234.
- [8] J. Phys. Chem. Ref. Data. **Vol.9**, n°4 (1980).
- [9] De Felice et al., Nucl. Instr. and Meth. **212** (1983) 359.
- [10] Krenciglowa et al., Nucl. Instr. and Meth. **185** (1981) 393.
- [11] T.Kase et al., Muon Cat. Fusion **5/6** (1990/91) 593.
- [12] C.Petitjean, Nucl. Phys. **A543** (1992) 79c.
- [13] C.Petitjean et al., Fus. Technol. **Vol.25** (1994) 437.

- [14] F.Marie et J.Martino, rapport interne DAPNIA/SPhN (1996).
- [15] B.R.Leonard,Jr, Nuclear Techn. **Vol.20** (1973) 161.
- [16] P.H.Rebut, Rapport EEC-XII-109/96 (1996).
- [17] J.P.Schapira, Cours de DEA 3R, 1995-1996.
- [18] I. Slessarev et al., GLOBAL'95, Int. Conf. on Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Cycle Systems, Versailles, France, September 95. p482.
- [19] Y.K.M.Peng and E.T.Cheng, J. Fus. En. **Vol.12(4)** (1993) 381.
- [20] R.A.Krakowski et al., Fus. Technol. **Vol.26** (1994) 1207.
- [21] L.Qiu et al., Report IAEA-CN-56/G-2-4 (1994??).
- [22] M. Salvatores et al., GLOBAL'93, Int. Conf. on Future Nuclear Systems, Seattle, Washington, USA, September 93.
- [23] T.Takizuka, Proceedings of the 8th Journees Saturne, Saclay May 5-6, 1994.
- [24] M. Salvatores et al., Nucl. Sci. Eng. **124** (1996) 280.
- [25] C.D.Bowman et al., Nucl. Instr. and Meth. **A320** (1992) 336.
- [26] C.D.Bowman and F.Venneri, LA-UR-92-3302 (1992).
- [27] G.J. Van Tuyle et al., Nucl. Technol. **101** (1993) 1.
- [28] F. Carminati et al., preprint CERN/AT/93-47/ET (1993).
- [29] C.Rubbia et al., preprint CERN/AT/95-44(ET) (1995).
- [30] I.Slessarev et al., Int. Conf. on Accelerator-Driven Transmutation Technologies and Applications, Las Vegas, NV, USA, August 1994.
- [31] M.Spiro et al., rapport DAPNIA.



LA SEPARATION ISOTOPIQUE

Jean-Marc CAVEDON

CEA/DCC/DPE/SPEA (91191) GIF-sur-YVETTE Cedex

RESUME

Après un bref rappel des enjeux de la séparation isotopique, divers procédés de séparation sont présentés.

Le principe du procédé de séparation isotopique par laser SILVA est donné, ainsi qu'une description des principaux phénomènes physiques en jeu. Les composants majeurs (séparateur et laser) sont décrits. Les principes de base de l'ultracentrifugation et de la séparation par résonance cyclotronique ionique sont donnés. Une discussion sur les potentialités de la séparation isotopique dans tout le cycle du combustible nucléaire termine cet article.

ABSTRACT

The issues at stake in isotope separation are recalled, and a few separation processes are presented. The principle of the laser isotope separation process SILVA is exposed, as well as the main physical phenomena involved. Major components (separator and laser) are described. Basics of ultracentrifugation and ion cyclotron resonance are given. A discussion on the potential use of isotope separation throughout the nuclear fuel cycle ends this paper.

1- INTRODUCTION

La modification de la composition isotopique naturelle d'un élément ne connaît aujourd'hui qu'une seule application industrielle à grande échelle : c'est l'accroissement de la teneur en isotope 235 de l'uranium, que l'on enrichit de sa teneur naturelle de 0,7 % à la teneur convenant à sa combustion en réacteur thermique à eau légère (REP ou REB), soit de l'ordre de 3,5 %. L'enrichissement en ^{235}U est imposé par le choix de l'eau ordinaire comme modérateur et caloporteur, et a pour but de compenser les captures de neutrons par l'hydrogène de l'eau. La description du procédé SILVA (Séparation Isotopique par Laser de la Vapeur Atomique d'uranium), procédé du futur pour l'enrichissement de l'uranium, fera le coeur de ce texte.

Nous aborderons aussi d'autres procédés comme l'ultracentrifugation ou la résonance cyclotronique ionique, et par cette voie nous envisagerons des usages plus larges de la séparation isotopique dans le cycle du combustible nucléaire. En effet, si la séparation isotopique n'est jamais en elle-même une méthode d'élimination ou de transmutation d'isotopes gênants, on peut concevoir de l'utiliser pour trier efficacement, sur des critères de valeur énergétique ou de radiotoxicité, chaque isotope d'importance.

2- L'ENRICHISSEMENT DE L'URANIUM

Un réacteur nucléaire représentatif du parc mondial est le réacteur à eau sous pression (REP) d'une puissance de 1000 MW électriques. Un tel réacteur consomme annuellement 27,2 tonnes d'uranium enrichi à 3,2 %. Ce tonnage est extrait de 150 tonnes d'uranium naturel. La phase d'enrichissement entre pour 31 % dans le coût du combustible chargé en réacteur. Ceci correspond à 7 % du coût total du kilowattheure.

Le marché mondial de l'enrichissement est de 25 milliards de francs par an. Il y a à ce jour surcapacité de production, car la demande en énergie électrique, suite aux chocs pétroliers, n'a pas suivi les hausses rapides inscrites dans les scénarios de développement de l'industrie électronucléaire. Les scénarios actuels prévoient au moins une constance ou une hausse modérée de la demande sur les vingt ans à venir. Durant ce laps de temps interviendra une chute de l'offre liée au vieillissement des usines actuelles de séparation d'isotopes, principalement aux USA. Or, ce ne sont pas seulement les usines de diffusion gazeuse « historiques » qui ont vieilli, mais aussi le procédé de diffusion lui-même, dont la voracité en énergie ne convient plus à nos économies.

Le "créneau" pour l'introduction de procédés nouveaux, moins coûteux et moins polluants, est donc ouvert à moyen terme (2005-2015).

3- DEFINITIONS

Tout procédé de séparation est un procédé à une voie entrante, l'alimentation (ou "feed") d'un débit F et d'une teneur N_F dans le produit d'intérêt, et à deux voies sortantes : la voie enrichie (ou "product") de débit P et de teneur N_P , et la voie appauvrie (ou "waste") de débit W et de teneur N_W , avec $N_W < N_F < N_P$ par définition. La figure 1 schématise les notations communes à tous les procédés de séparation. La disposition des éléments est celle du procédé SILVA. Les définitions et les formules habituelles sont données en annexe.

L'unité de compte de l'enrichissement est l'unité de travail de séparation (UTS), dont le calcul fait intervenir à la fois la teneur en ^{235}U du produit enrichi et celle du produit appauvri. L'importance d'un bon appauvrissement, à enrichissement fixe, croît avec le coût de la matière première.

Des valeurs numériques caractéristiques pour l'enrichissement électronucléaire sont :

$$N_F = 0,7 \%, N_P = 5 \%, N_W = 0,2 \%$$

$$\text{d'où } \alpha = 7,4 \text{ et } \beta = 0,28$$

Le choix de fonctionnement du procédé SILVA est de profiter du fort rendement global atteignable en une étape ($\rho^* \approx 0,72$ par exemple) et de réaliser la teneur N_p voulue par un agencement des composants qui conduit à $\tau_p \approx 0,10$

C'est la sélectivité quantique très élevée qui permet cette approche. Les procédés statistiques ne peuvent atteindre que des valeurs de α très proches de 1 ($\approx 1 + \text{quelques } 10^{-4}$) ce qui conduit nécessairement à un très grand nombre d'étapes successives (1400 étages en cascade dans l'usine de diffusion gazeuse EUODIF par exemple).

Afin de regrouper en une variable unique les trois flux et les trois teneurs d'un procédé de séparation et de pouvoir comparer différentes productions entre elles, on introduit la notion d'unité de travail de séparation (UTS, ou SWU - separation work unit), combinant les teneurs et les flux à travers une fonction de valeur $V(N)$ qui ne dépend que de la teneur :

$$\Delta U = P.V(N_p) + W.V(N_W) - F.V(N_F)$$

La fonction de valeur sans dimension vaut $V(N) = (2N - 1) \ln \frac{N}{1 - N}$, forme qui peut être dérivée par analogie avec l'entropie de mélange dans le cas des procédés à faible α . Les débits étant exprimés par convention en kg/an, l'unité de ΔU est l'UTS/an.

Le réacteur "typique" de 1000 MWe consomme annuellement 117 000 UTS/an, à raison de 4,31 UTS/ kg de U, enrichi à 3,2 % à partir d'uranium naturel.

4- L'ULTRACENTRIFUGATION

Ce procédé, fort ancien, assure aujourd'hui la fabrication d'une modeste fraction des UTS produites dans le monde, à l'exception notable de l'ex-URSS où il constitue le procédé majoritaire. C'est un procédé multi-étages, à faible enrichissement à chaque étage. Les usines russes utilisent la version "rustique" de l'ultracentrifugation, où la faible production d'UTS par

centrifugeuse (quelques UTS par centrifugeuse et par an) est compensée par le grand nombre de centrifugeuses élémentaires. Le consortium européen URENCO (Allemagne, Pays -Bas, Royaume Uni) a développé une voie intermédiaire où la puissance unitaire de séparation est de quelques dizaines d'UTS par an. Les USA ont choisi puis abandonné la voie à haute performance unitaire (quelques centaines d'UTS par an). Les études ont été arrêtées en France depuis une vingtaine d'années.

C'est un procédé statistique en phase gazeuse, où l'on fait tourner à très haute vitesse un bol cylindrique contenant du gaz UF_6 (figure2). Par entraînement visqueux, s'établit une distribution radiale des pressions dans le bol selon une loi exponentielle. Cette loi dépendant de la masse de la molécule de gaz, l'écart de masse entre $^{235}UF_6$ et $^{238}UF_6$ se traduit par un rapport des pressions partielles à la paroi en rotation légèrement différent de 1 ($\alpha = 1,1$ à $1,3$ à la paroi même). Ce gradient isotopique est inexploitable en l'état, car il est statique et maximal soit au centre du bol, où la pression est pour ainsi dire nulle, soit au contact d'une paroi en rotation rapide, où le prélèvement est impossible. On provoque donc le long de la centrifugeuse, d'axe de rotation vertical, un contrecourant vertical destiné à établir un gradient d'enrichissement isotopique le long de cet axe. Ceci permettra d'extraire les produits riche et pauvre aux extrémités opposées du bol. Ce contrecourant peut être créé par chauffage avec gradient thermique de l'enveloppe externe ; il peut aussi être créé par frottement mécanique visqueux du gaz contre une écope de prélèvement non écranée et située en partie basse du bol. Le gradient thermique déclenche des rouleaux de convection le long de la paroi en rotation, qui convertissent le gradient isotopique radial en gradient axial.

La puissance de séparation d'une ultracentrifugeuse est proportionnelle à la hauteur du bol et à la quatrième puissance de la vitesse périphérique. Une fois maîtrisé le principe hydrodynamique, l'obtention de centrifugeuses performantes est surtout un problème mécanique.

Le choix des matériaux pour les pièces tournantes va conditionner la vitesse périphérique acceptable sans rupture, donc ΔU . Le rapport d'aspect (hauteur/rayon) de la centrifugeuse détermine les fréquences propres de vibration du bol en rotation ; le passage des résonances de vibration lors de la mise en régime ou de l'arrêt est un moment critique pour la

résistance mécanique. Si le comportement hydrodynamique est commun à toutes les filières de centrifugeuses, les choix technologiques essentiels résident dans le choix des matériaux en rotation (métaux, alliages, fibres ...) et dans celui des régimes mécaniques de vibration (vitesse constamment sous-critique, ou devant franchir une ou plusieurs résonances). Le choix des dispositions internes des écopés est aussi un point délicat, sans oublier celui du mode de sustentation du bol (paliers mécaniques, fluides ou magnétiques).

L'ultracentrifugation est réputée être proche de son asymptote technologique et avoir épuisé ses possibilités de progrès en performances et en coût. La structure de coûts d'une usine d'ultracentrifugation est dominée par un fort coût d'investissement et un coût de fonctionnement des plus faibles. La fiabilité des centrifugeuses est excellente pour les modèles ayant atteint la maturité technologique.

5- SILVA

5.1 PRINCIPE DE SILVA

Le mécanisme élémentaire est la photoionisation d'un atome d'uranium 235 par trois photons qui fournissent par étapes successives de l'ordre de 2 eV une énergie supérieure aux 6,18 eV nécessaires à l'ionisation de l'uranium. La sélectivité entre les isotopes 235 et 238 est rendue possible par l'existence de décalages isotopiques des raies électroniques optiques, sous l'effet de la variation de volume du noyau, elle-même induite par la modification du nombre de neutrons (figure 3). Les décalages isotopiques des raies optiques étant au plus de l'ordre de quelques 10^{-5} de l'énergie de la raie, soit quelques GHz, l'excitation sélective d'un isotope suppose que l'on éclaire avec des photons ayant une largeur spectrale inférieure à cet écart.

Seuls des lasers combinent une telle pureté spectrale avec un fluence suffisante. La fluence instantanée est essentielle à l'efficacité de la séquence multiphotonique d'ionisation qui doit se dérouler en des temps de l'ordre des durées de vie des niveaux intermédiaires, soit quelques dizaines de nanosecondes.

Les lasers utilisés dans SILVA doivent émettre des impulsions courtes. Ils doivent délivrer au moins trois longueurs d'onde de photons, avec une largeur spectrale suffisamment faible pour exciter l'isotope 235 sans exciter l'isotope 238, mais assez grande pour recouvrir la structure hyperfine de l'isotope 235 (environ quelques centaines de MHz). La stabilité de positionnement en fréquence doit être meilleure d'un ordre de grandeur pour maintenir un bon recouvrement de la structure hyperfine, soit au total une stabilité de l'ordre de 10^{-7} .

L'ionisation sélective de l'uranium suppose en amont et en aval que l'uranium passe par tous les états de la matière : introduit dans le séparateur sous forme de solide métallique, l'uranium pur ou allié est fondu sous l'impact d'un faisceau d'électrons, et élevé à une température suffisante pour que la surface de bain métallique évapore un jet de vapeur collisionnelle, qui se détend et se raréfie jusqu'à former au-dessus du bain, à plusieurs dizaines de centimètres, un jet de vapeur ascendante non collisionnelle, ou jet atomique. C'est dans ces conditions de faible densité (10^{12} à 10^{14} atomes par cm^3) qu'a lieu l'interaction avec les faisceaux laser, en propagation horizontale.

Après irradiation par le flux de photons laser, la fraction ionisée du jet, essentiellement composée d'ions 235, forme un plasma froid et peu dense dont sont extraits les ions, par un champ électrique qui leur imprime une vitesse latérale nettement supérieure à la vitesse d'agitation thermique transverse de la vapeur (figure 4).

Le découpage fonctionnel (figure 5) illustre les différentes étapes de préparation du jet de vapeur atomique et de collectage des produits après séparation. Les rendements associés sont :

- Le rendement atomique ρ_a ou proportion des atomes du jet de vapeur qui sont dans l'état fondamental, point de départ de la séquence de photoionisation. On peut envisager, au prix de la fourniture d'une couleur supplémentaire de photons, de photoioniser aussi les atomes situés sur le premier niveau métastable de l'uranium (620 cm^{-1}), soit en excitant depuis ce niveau jusqu'au premier niveau excité de la séquence de photoionisation, soit en dépeuplant ce niveau métastable vers le fondamental.(figure 3)

- Le rendement d'éclairement ρ_e ou proportion d'atomes soumis à l'interaction laser. Le cadencement des impulsions laser et la hauteur des faisceaux sont réglés pour qu'aucun atome ne puisse traverser totalement la zone d'irradiation sans avoir subi au moins un éclairement.(figure 6)
- Le rendement d'ionisation ${}^5\rho_i$ ou proportion d'atomes 235 effectivement ionisés. C'est l'étape qui assure la sélectivité du procédé.
- Le rendement d'échange de charge ρ_x ou proportion d'ions 235 qui préservent leur état chargé jusqu'au collectage, sans céder leur charge lors des collisions avec les très nombreux atomes du jet ascendant (très majoritairement des atomes 238).
- Le rendement d'extraction collectage ρ_E , ou proportion d'ions 235 collectés sur les plaques latérales.

Le rendement global ρ^* s'écrit $\rho^* = \rho_{ii}\rho_e {}^5\rho_i\rho_x\rho_E$.

On remarquera que la qualité de l'appauvrissement β se déduit directement des rendements individuels puisque le facteur d'appauvrissement β vaut $\beta=1 -\rho^*$.

5-2 PHYSIQUE ET SILVA

Si l'originalité du procédé réside dans les propriétés quantiques de l'atome d'uranium, il faut faire appel à une grande variété de disciplines de la physique et de la physico-chimie pour maîtriser les différentes phases du procédé. Citons simplement, en suivant le chemin de l'uranium, les sujets qu'il faut aborder :

- Evaporation d'un bain métallique : optique magnétique du canon d'électrons, thermohydraulique d'un bain de métal liquide
- Détente du jet atomique : thermodynamique statistique en vapeur collisionnelle puis en gaz raréfié

- Interaction laser-matière : spectroscopie atomique de l'uranium, interactions multiphotoniques, propagation d'un laser en vapeur épaisse
- Extraction : expansion d'un plasma à frontière libre, échange de charge ion-atome
- Collectage : pulvérisation, interaction uranium, matériaux de support, corrosion, mouillage et progression d'interfaces réactionnelles,
- écoulements : en film ou en goutte, mono ou diphasiques, thermodynamique à haute température.

La fabrication des faisceaux laser pose bien entendu des questions quantiques lorsque l'on veut accroître les rendements photoniques, mais aussi des problèmes de chimie organique dans l'élaboration de molécules de colorant résistantes à la photolyse, ou hydraulique dans les boucles de circulation du solvant des colorants laser.

Cette diversité de sujets physico-chimiques est d'autant plus caractéristique que le procédé SILVA représente un cas assez rare où aucun des éléments essentiels n'était disponible industriellement au début du projet. Ainsi les composants qui vont être décrits ci-après ont tous été développés spécifiquement pour ce projet.

5-3 LES CHAINES LASER

La puissance optique est obtenue par des chaînes de lasers à vapeur de cuivre (LVC), choisies pour leur cadence de répétition élevée (5 kHz) et ayant fait l'objet de développements technologiques permettant de délivrer jusqu'à 500 W de puissance optique par module. Les longueurs d'onde d'émission sont fixes (raie principale verte et raie secondaire jaune-verte) et ne sont pas directement utilisables pour exciter les atomes d'uranium.

La conversion de longueur d'onde et l'ajustement très précis aux énergies de résonance de l'isotope ²³⁵ se font dans les chaînes de lasers à colorants, pompées par les photons issus

des LVC. Les molécules de colorants, en solution alcoolique, ont des bandes de vibration moléculaires très larges et quasi-continues. La sélection de la longueur d'onde autorisée en émission se fait dans un oscillateur comportant une cavité résonnante fermée par un réseau, dont l'orientation précise fixe la longueur d'onde transmise. La puissance à cette fréquence est ensuite amplifiée dans le reste de la chaîne.

Des dispositifs de multiplexage spatial et temporel assurent la superposition des faisceaux (3, voire 4) de couleurs pures et le cadencement du faisceau composé, de fréquence multiple du cadencement de base issu des LVC. La hauteur de la zone éclairée est construite pour atteindre un rendement d'éclairage ρ_e très proche de 1 (figure 6).

Les photons peuvent se propager à travers plusieurs centaines de mètres de vapeur peu dense avant que leur débit de fluence ou leur homogénéité spatiale et temporelle ne soient dégradés. Des dispositifs de transport et de repliement des faisceaux assurent un recouvrement aussi complet et homogène que possible des taches élémentaires d'éclairage de la vapeur. La bonne utilisation de photons très finement accordés et produits avec un rendement énergétique de quelques pourcents est un enjeu économique important puisqu'elle conditionne la taille de l'usine laser.

5-4 LE SEPARATEUR

On donne ce nom au module élémentaire de traitement de l'uranium. La partie basse ou évaporateur, est constituée d'un creuset en cuivre refroidi par circulation d'eau. L'uranium métal injecté régulièrement sous forme de billes dans le creuset est soumis au bombardement d'un canon à électrons de plusieurs centaines de kW. Les électrons sont accélérés à environ 50 keV puis défléchis magnétiquement vers le bain métallique.

Dans la disposition illustrée sur la figure 7, la cathode est linéaire et parallèle à l'axe du creuset cylindrique et de section trapézoïdale. La déflexion magnétique considérable a pour but d'éloigner la zone d'accélération du canon des projections de vapeur métallique. D'autres dispositions utilisent des canons ponctuels, qui privilégient la symétrie axiale de la source émissive de vapeur. La forme de la source émissive est guidée par des considérations

géométriques et thermohydrauliques qui tendent à "sculpter" un jet de vapeur à faible dilution, mais aussi par des contraintes technologiques de faisabilité et de durabilité des canons à forte puissance. Dans tous les cas, le rendement d'évaporation (puissance emportée par le débit de vapeur ramenée à la puissance émise par le canon) reste inférieur à la dizaine de pourcents, sous le double effet du rebond des électrons incidents contre le métal et des mécanismes de transfert thermique dans un métal liquide soumis à des gradients de quelques centaines de K par centimètre. Avec le mauvais rendement des lasers, le mauvais rendement de production de vapeur est ce qui dégrade le coût énergétique "idéal" de 6 eV par atome à quelques centaines de keV par atome.

Ce bilan énergétique est encore largement concurrentiel puisqu'il équivaut à un dixième de l'énergie par atome séparé par diffusion gazeuse, qui est le procédé de séparation actuel.

Le bloc extracteur-collecteur est situé en partie haute du séparateur, où se propagent les faisceaux laser. Un ensemble de plaques collectrices sous tension délimitent des cellules d'irradiation. Les faisceaux décrivent des aller-retour en passant d'une cellule à l'autre après réflexion et remise en forme hors de la vapeur. La taille et le positionnement des plaques collectrices dans le flux d'alimentation F issu du creuset déterminent le taux de dilution, qui reçoit ici une interprétation géométrique simple : c'est le taux d'interception de la vapeur d'alimentation par les collecteurs. L'agitation thermique de la vapeur dans le sens transverse au flux intervient au deuxième ordre (dispersion orthoradiale).

La taille des cellules d'irradiation est limitée par la chute du rendement d'échange de charge ρ_x lorsque le trajet de l'ion s'allonge. La tension de collectage est un compromis entre la tension permettant le collectage de tous les ions et celle où les ions impactants ont assez de vitesse pour pulvériser le produit riche déjà déposé.

L'ensemble des surfaces collectrices, pauvre et riche, est soumis à la corrosion de l'uranium à haute température pendant des centaines d'heures, et doit de plus conserver des propriétés de mouillage aptes à évacuer le produit déposé sous forme de films ou de gouttes,

l'écoulement étant assuré par gravitation. Le décrochage de gouttes de produit qui chuteraient à contre-courant du flux de vapeur est bien entendu proscrit.

6- LA RESONANCE CYCLOTRONIQUE IONIQUE (RCI)

Nous décrivons le principe de cette méthode, non pas dans l'optique de l'enrichissement de l'uranium, pour lequel les débits traités seraient trop faibles, mais en pensant aux séparations isotopiques pour lesquelles la demande serait plus versatile et de plus faible tonnage. Le domaine d'excellence de la résonance cyclotronique ionique (RCI) couvre l'ensemble des éléments métalliques de masse moyenne (40 à 200) pour lesquels la production d'isotopes séparés se mesurerait en dizaines ou en centaines de kilogrammes par an, avec des facteurs de séparation α allant de 2 à 5. Cette méthode est sans concurrence lorsqu'il n'existe pas de composé gazeux qui inclurait l'élément à séparer, et donc pas de centrifugation possible.

La RCI a été développée pour surmonter les limitations du procédé historique de séparation électromagnétique : les calutrons du projet Manhattan. Ce procédé était fort consommateur d'énergie et limité en débit par la répulsion de charge d'espace entre les ions à séparer.

Le procédé par RCI fait appel à la voie plasma, où les ions à séparer sont écrantés par les électrons ; la neutralité globale permet d'atteindre des densités de plasma de l'ordre de 10^{12} atomes par cm^3 .

Le plasma forme une colonne cylindrique de plusieurs mètres de long et de plusieurs dizaines de centimètres de diamètre, confirmé par un champ magnétique statique solénoïdal (figure 8). A titre d'exemple, le projet russe MCIRI prévoit une colonne de quatre mètres de long et de 50 cm de diamètre, dans un champ magnétique de 3 Tesla, homogène à 10^{-3} . La bobine qui crée le champ est supraconductrice, mesure 7 m de long et 0.9 m de diamètre, pour assurer l'homogénéité de champ requise dans le cylindre de plasma.

L'étape de séparation, qui donne son nom au procédé, consiste à exciter les ions que l'on veut séparer en leur imprimant sélectivement une vitesse transverse à leur direction de propagation principale, qui est un mouvement hélicoïdal autour d'une ligne de champ le long du solénoïde. L'oscillation cyclotron d'un ion autour de cette ligne de champ magnétique est amplifiée par l'application d'un champ électrique transverse oscillant. La sélectivité d'un ion de masse donnée est assurée par le réglage de la fréquence d'excitation sur la fréquence cyclotron propre à cet ion. Les ions de masse différente n'étant pas en résonance avec l'excitation imposée par une source radiofréquence, ceux-ci n'acquièrent pas de vitesse transverse significative.

L'étape de collectage consiste à placer en bout de la colonne plasma des lames collectrices parallèles au flux d'ions. Les ions ayant acquis une forte vitesse transverse sont collectés préférentiellement sur ces lames, les ions non résonnants poursuivent leur chemin vers le collecteur "pauvre" qui termine la colonne de plasma. La question du flux de dilution se pose en des termes proches de ceux de SILVA : il s'agit d'interceptions du flux d'alimentation par effet d'ombre ou par agitation transverse résiduelle.

L'étape initiale est la création du plasma. En présence du champ magnétique, on excite des électrons à leur fréquence cyclotronique électronique, qui se situe dans la gamme des hyperfréquences (10 à 30 GHz). Ces électrons viennent frapper le pied de la colonne plasma, qui est une plaque métallique constituant la réserve d'élément à séparer. Cette plaque est pulvérisée sous le bombardement d'électrons et les atomes sont ionisés par collision. Les ions sont alors guidés par les lignes de champ vers la zone de séparation.

7- LA SEPARATION ISOTOPIQUE ET LE CYCLE DU COMBUSTIBLE NUCLEAIRE

Nous aborderons ici quelques idées sur la manière dont les divers procédés de séparation isotopique pourraient aider à modifier l'agencement du cycle de combustible actuel, pour accroître à moindres frais la qualité du service rendu, à savoir d'extraire plus d'énergie

électrique du "minerai isotopique" (plus de TWhe), tout en diminuant le détriment apporté aux hommes et à l'environnement (moins de Sievert).

Sans quitter le réacteur nucléaire, on peut envisager trois usages d'éléments à composition isotopique modifiée. Le premier est l'amélioration de poisons consommables. On donne ce nom à des isotopes de très forte section efficace de capture neutronique, qui sont ajoutés au combustible nucléaire frais pour modérer la réactivité de celui-ci. Lorsque le combustible vieillit et perd de sa réactivité, le poison disparaît progressivement à condition que les captures successives de neutrons le transmutent vers des isotopes à faible capture neutronique. C'est le cas des isotopes 155 et 157 du gadolinium, forts absorbeurs de neutrons, qui se transmutent à terme en des isotopes plus riches en neutrons et de faible section efficace. Le réglage précis des compositions isotopiques initiales permettrait de fabriquer des poisons dont l'efficacité évoluerait selon les besoins en cours de vieillissement, pour disparaître (neutroniquement parlant) en fin de vie du combustible, lorsque la réactivité a bien diminué.

Le deuxième usage concerne les combustibles qui seraient constitués à base de nitrures d'actinides et non plus d'oxydes comme c'est la règle aujourd'hui. Un des obstacles à leur développement, hormis toutes les considérations liées aux matériaux, est la faible transparence neutronique de l'azote 14. L'enrichissement en azote 15 permettrait de modifier la capture neutronique moyenne de l'azote, de la même façon que l'on accroît la multiplicité η du combustible par enrichissement en uranium 235.

Citons pour mémoire l'appauvrissement en isotopes activables des matériaux de structure, certes source de réduction de radiotoxicité des déchets ultimes, mais probablement hors de portée économique compte tenu des masses à traiter.

La question de l'apport de la séparation isotopique à la réduction globale de la radiotoxicité par TWh produit se décline en trois rubriques : recycler, transmuter et réduire le volume des déchets ultimes.

Une limitation majeure à l'exploitation de la valeur énergétique du combustible nucléaire par multirecyclage est la présence dans le combustible recyclé d'isotopes

neutrophages qui ont été créés lors de l'irradiation première. Les isotopes pairs du plutonium ^{240}Pu et ^{242}Pu sont à la fois des puits de capture fertile pour ^{240}Pu et stérile pour ^{242}Pu et des dégradeurs du coefficient global de vidange du combustible, paramètre essentiel de stabilité et de sécurité d'un réacteur. Ceci limite la teneur en Pu d'un combustible recyclé, ainsi que le nombre de recyclages envisageable. Une correction de la composition isotopique du Pu entrant dans le combustible MOX supprimerait les limitations au multirecyclage, en quantité et en nombre.

Extraire le ^{242}Pu du multirecyclage apporte un autre avantage majeur : la rupture de la chaîne de captures neutroniques $^{242}\text{Pu} \rightarrow ^{243}\text{Am} \rightarrow ^{244}\text{Cm}$, génératrice de radioisotopes très actifs et très résistants à la transmutation. L'effet global est analogue à la réduction de radiotoxicité mise en avant par les défenseurs du cycle de combustible Thorium/Uranium, centrée sur des masses d'actinides plus faibles en moyenne que celles du cycle Uranium/Plutonium. La séparation isotopique du ^{242}Pu produit dans une filière U/Pu est un moyen de créer un nouveau cycle artificiel, que l'on pourrait appeler "U/Pu court". Ce troisième type de combustible, dépeuplé en actinides de haute masse (Am, Cm, ...) cumulerait les avantages en radiotoxicité offerts par le cycle Th/U à la commodité d'utilisation du seul isotope fissile naturellement présent sur terre (l'uranium 235), nous affranchissant ainsi des complexités d'amorçage d'un cycle à partir de thorium 232 fertile.

Nous illustrerons la problématique de la transmutation et du stockage par les isotopes du césium. Le ^{135}Cs est un produit de fission à vie longue (3 millions d'années) que l'on souhaiterait donc transmuter. Le ^{137}Cs est un produit de fission à vie courte (30 ans) responsable d'une grande part de la dissipation thermique des déchets pendant les premières décennies, s'il y est incorporé. Le ^{133}Cs est stable, mais un flux de neutrons le transmute en ^{135}Cs par captures successives. Une stratégie optimale de gestion du césium serait donc de séparer l'isotope ^{135}Cs des autres isotopes, notamment de ^{133}Cs et ^{137}Cs . Le lot enrichi en ^{135}Cs pourrait être transmuté en réacteur, tout en limitant la production de ^{137}Cs . Le lot ($^{133}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$) relèverait d'un entreposage de surface pendant les quelques décennies de décroissance de la charge thermique, puis alors seulement d'un stockage profond. Cette approche permettrait à la fois de réduire la toxicité à long terme et le volume du colis de déchets qui est

au premier ordre déterminé par la densité de puissance thermique acceptable pour le conteneur de déchets.

Si de telles stratégies de recyclage et de transmutation devaient se développer, les divers procédés de séparation isotopique décrits ci-dessus pourraient être employés pour augmenter l'efficacité de chacune des étapes de traitement du combustible, par spécialisation des installations, réduction des flux à traiter et de la production d'isotopes indésirables.

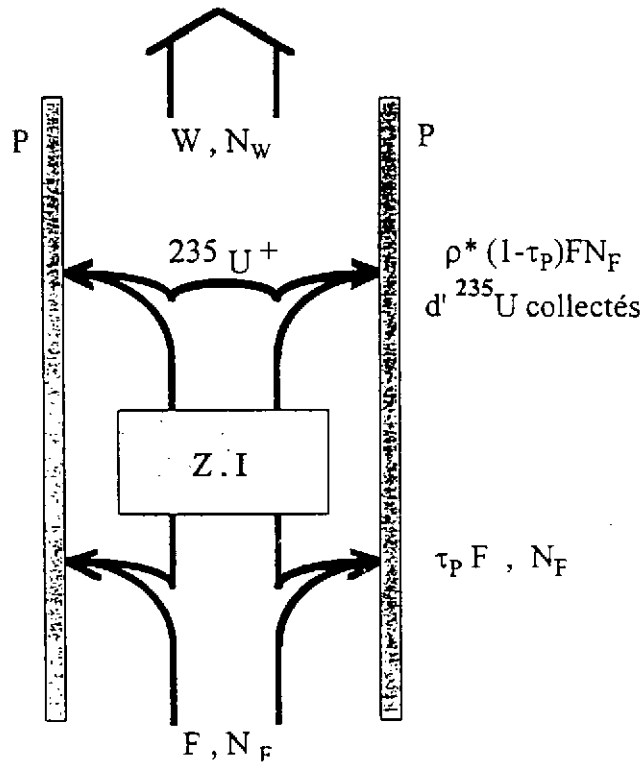


FIGURE 1

SCHEMA DE PRINCIPE D'UNE CENTRIFUGEUSE

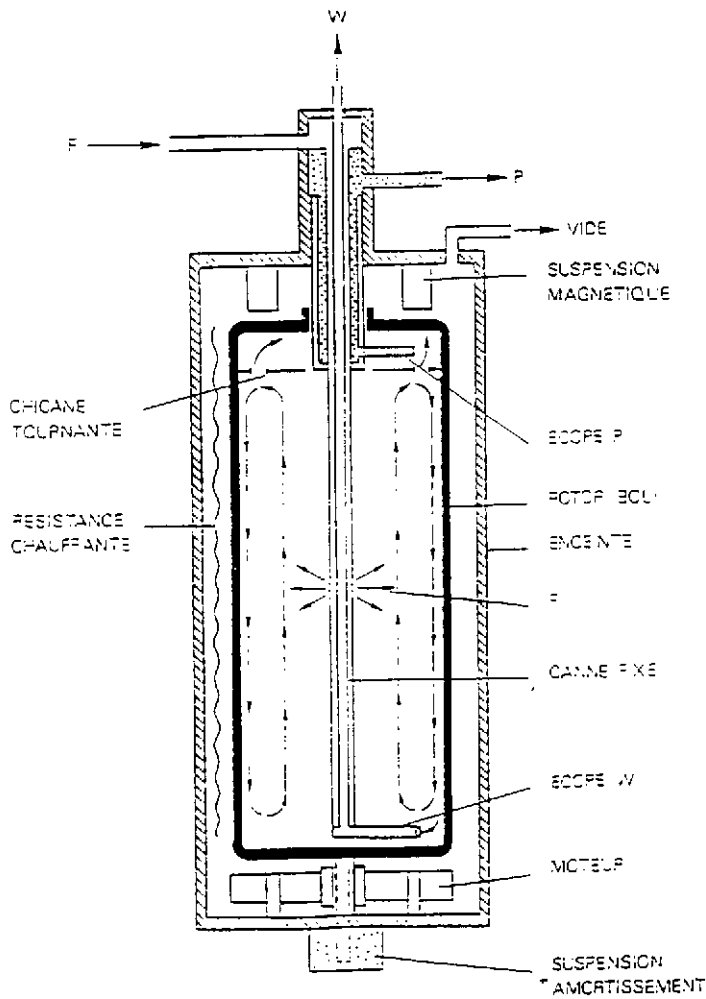


FIGURE 2

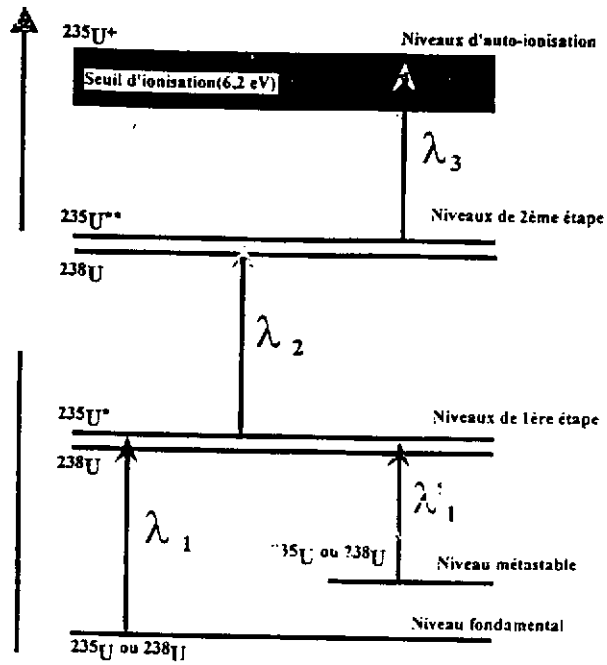


FIGURE 3

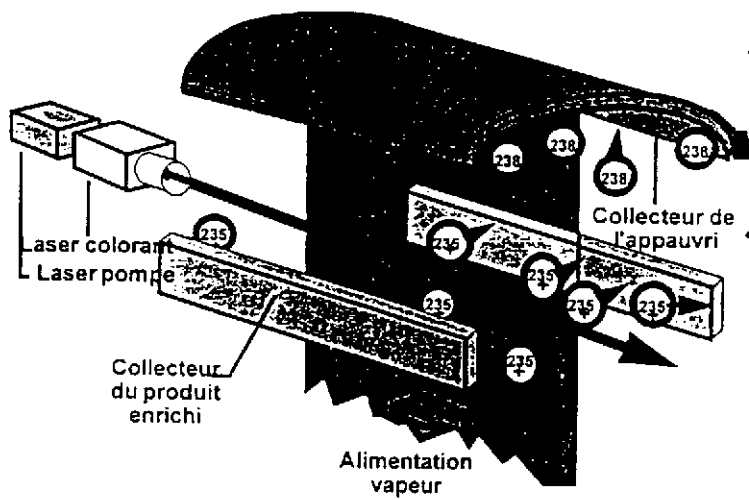


FIGURE 4

DÉCOUPAGE FONCTIONNEL SIMPLIFIÉ

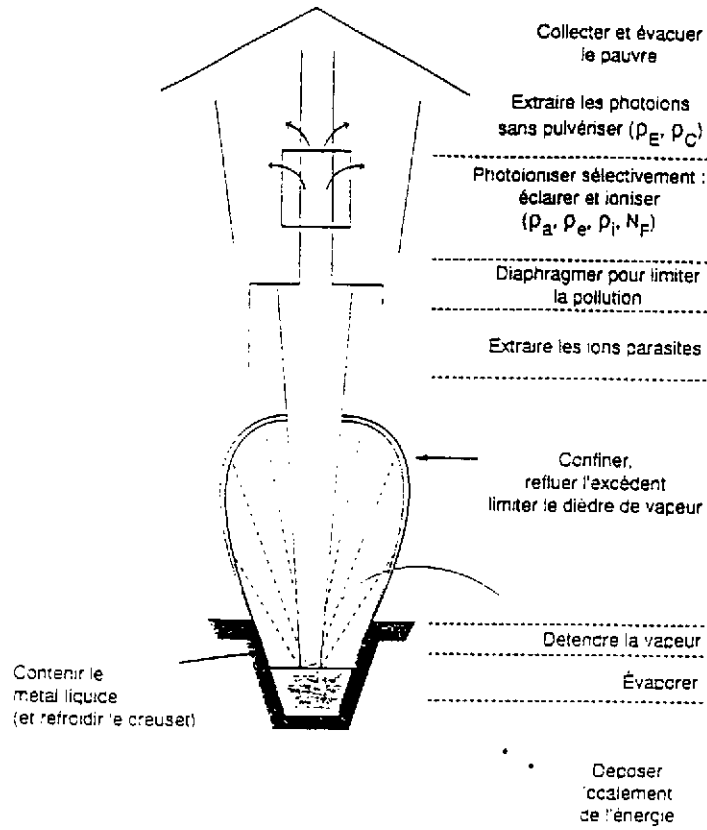
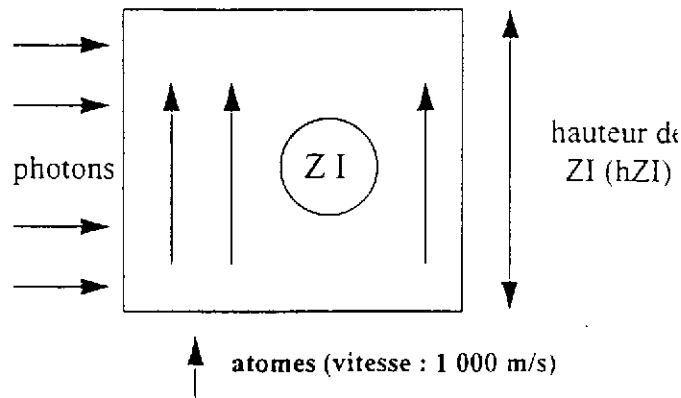


FIGURE 5



Cadence d'éclairage = vitesse des atomes/ h_{ZI}
ex : si $h_{ZI} < 0,1m$, la cadence est > 10 kHz

FIGURE 6

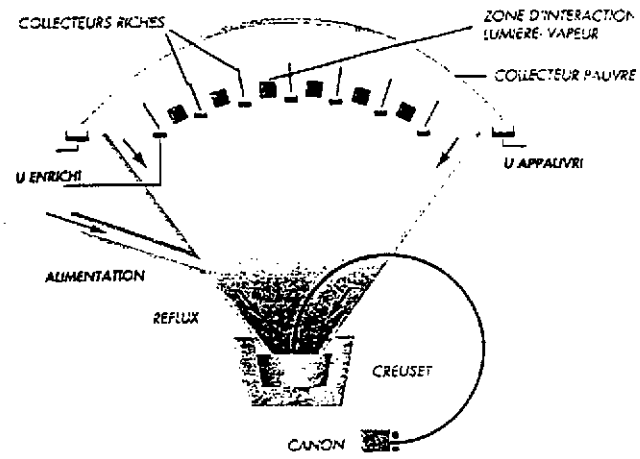


FIGURE 7

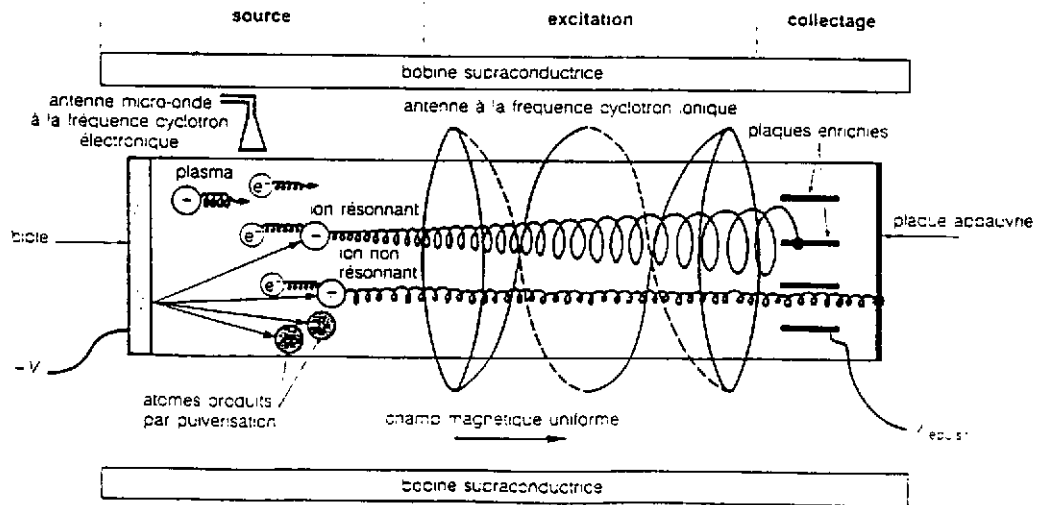


FIGURE 8

ANNEXE

Les définitions usuelles sont :

- teneurs ${}^5N_F, {}^5N_P, {}^5N_W$: proportion d'isotope ${}^{235}\text{U}$ dans les flux d'alimentation F, de produit riche P et de produit pauvre W.
- richesses : ${}^5R_i = \frac{{}^5N_i}{1-{}^5N_i}$
- facteur d'enrichissement $\alpha = \frac{{}^5R_P}{{}^5R_F}$
- facteur d'appauvrissement $\beta = \frac{{}^5R_W}{{}^5R_F}$
- facteur de partage $\vartheta = \frac{P}{F}$

Les relations de conservation de masse s'écrivent :

$$\begin{aligned} F &= P + W && \text{masse totale} \\ F {}^5N_F &= P {}^5N_P + W {}^5N_W && \text{masse d'isotope 235} \end{aligned}$$

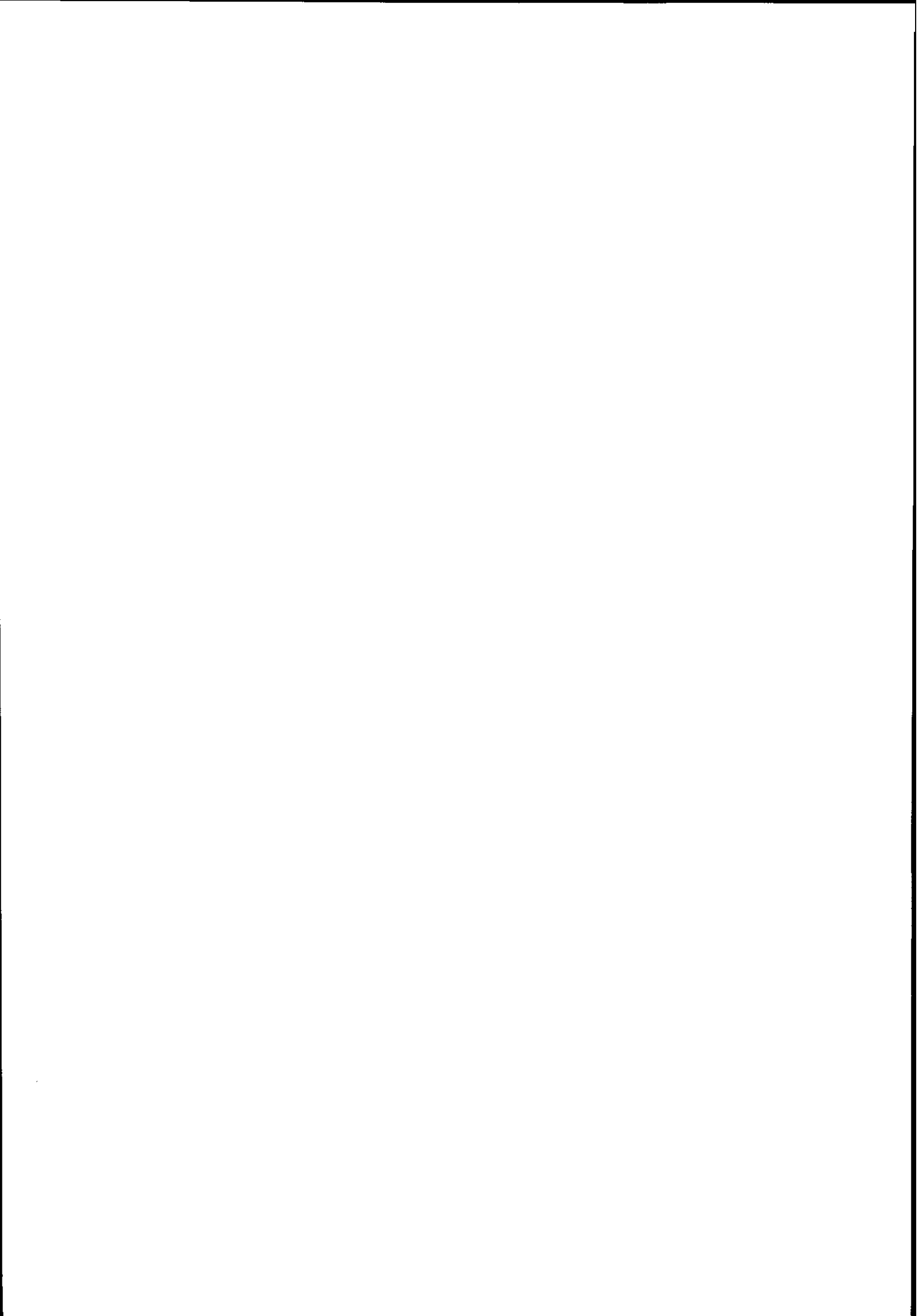
La non-sélectivité du procédé de séparation, quel qu'il soit, peut être représentée comme une dilution qui mélange une fraction du flux d'alimentation F directement avec le flux de produit riche P, en court-circuitant la fonction de séparation. Cette fraction de F qui vient diluer P est appelée taux de dilution (ou de pollution) et est notée τ_D (ou τ_P) Le flux est celui qui sera séparé.

L'efficacité de la séparation a un rendement global noté ρ^* qui s'applique au flux d'isotopes 235. Le flux collecté s'écrit donc :

$$P \cdot N_P = F \cdot N_F (1 - \tau_P) \cdot \rho^*$$

On démontre aisément :

$$\alpha \approx 1 + \rho^* \frac{1 - \tau_P}{\tau_P} \quad \text{et} \quad \beta \approx 1 - \rho^*$$



SEMINAIRES JEUNES

Etude du rayonnement gamma dans la fission spontanée du ^{252}Cf

Christine BADIMON - CEN Bordeaux

Dans cette expérience, nous étudions les gammas détectés par le multidétecteur 4π EUROGAM en coïncidence avec les fragments de fission détectés par des cellules photovoltaïques. Nous regardons les distributions en masse et en énergie cinétique des fragments de fission. Nous pouvons sélectionner les rayonnements électromagnétiques prompts provenant de fragments particuliers. Nous avons vu que pour une zone particlière ($150 < \text{énergie cinétique totale} < 210$ MeV et $126 < \text{masse du noyau lourd} < 138$ u.m.a.), il apparaît deux structures «non-statistiques».

Isomérisme nucléaire dans les fragments de fission produits dans la fission spontanée du ^{252}Cf

Claire GAUTHERIN - DAPNIA/SPhN CEA Saclay

Une expérience a été réalisée auprès du multidétecteur γ EUROGAM II dans laquelle les deux fragments de fission émis par le ^{252}Cf étaient détectés par deux cellules photovoltaïques en coïncidence avec plusieurs rayonnements γ . Une cinquantaine de noyaux isomériques riches en neutrons ont été mis en évidence. Des nouveaux états isomériques ont été observés dans les noyaux $^{152,154,156}\text{Nd}$. Par analogie avec les noyaux de $^{156,158}\text{Sm}$, une forte présomption d'isomérisme K est suspectée. Des calculs théoriques préliminaires Hartree-Fock-Bogoliubov avec l'interaction D1 de Gogny ont été réalisés.

Configuration des bandes superdéformées du ^{193}Pb

Laurent DUCROUX - IPN Lyon

Les six bandes superdéformées du ^{193}Pb ont été étudiées avec le multidétecteur γ EUROGAM phase II en utilisant la réaction $^{168}\text{Er} (^{30}\text{Si}, 5n) ^{193}\text{Pb}$ [1]. Les résultats sont discutés en terme de calculs de champ moyen HFB-LN tournants. A partir des comportements des moments d'inertie $\mathfrak{J}^{(2)}$ en fonction de la fréquence de rotation des désexcitations M1 et E2 des états superdéformés, les bandes ont été interprétées comme trois paires partenaires de signature, basées sur des excitations de quasineutron. De plus, les propriétés magnétiques de la matière superdéformée ont été pour la première fois atteintes pour l'état [624]9/2.

[1] Phys.Rev. C53 (1996) 2701.

Comment mesurer les sections efficaces neutroniques dans le domaine des résonances

Frank GUNSING - SPhN Saclay

Le concept du noyau composé formé par le système noyau + neutron, est brièvement expliqué. L'existence des résonances neutroniques est expliquée dans le cadre du modèle statistique. L'installation de production de neutrons épithermiques de Geel est illustrée avec le principe des mesures des sections efficaces totales et le principe de capture.

Mesures de spectres de neutrons de spallation

François BORNE - SPN - CEA Bruyères-le-Châtel

Nous avons développé une méthode expérimentale basée sur la technique du temps de vol entre des particules incidentes étiquetées et un scintillateur liquide épais NE213. Cette technique nous permet

de mesurer des spectres d'énergie de neutrons entre 3 et 400 MeV au synchrotron Saturne de Saclay. Nous avons effectué des mesures d'efficacité à basse énergie (≤ 14 MeV) grâce à une source de neutrons pulsée produite par le Tandem Van de Graaff de Bruyères-le-Châtel. Les mesures d'efficacité à plus haute énergie (≥ 50 MeV) ont été effectuées à Saturne avec un faisceau de neutrons quasi-monoénergétiques.

Spectres de neutrons de spallation

Eugénie MARTINEZ - SPN - CEA Bruyères-le-Châtel

Deux techniques expérimentales sont utilisées à Saturne pour mesurer les distributions angulaires des neutrons de spallation : une mesure par temps réel à basse énergie ($2 < E < 1,6$ GeV) et une technique de diffusion élastique sur hydrogène à haute énergie ($200 < E < 1,6$ GeV). Les résultats obtenus ont été présentés ainsi que leur comparaison au code HETC et au modèle de cascade intranucléaire de Cugnon.

Production de neutrons en cible épaisse

Stéphanie MENARD - IPN Orsay

La méthode expérimentale du temps de vol est utilisée, dans le cadre d'une série de mesures en cible épaisse à Saturne, pour déterminer les distributions en énergie, en angles...des neutrons. En parallèle avec ce programme expérimental, sont menés à bien des simulations avec le code TIERCE ainsi que la construction d'un modèle simple, permettant de comprendre la physique, inclus dans les codes de simulation.

Production de neutrons par des projectiles légères de 1 à 4 GeV

Ulrich JAHNKE et al. - Hahn-Meitner-Institut Berlin

La formation de neutrons en bombardant des cibles épaisses par des projectiles d'énergie voisine du GeV dans le but d'obtenir des sources neutroniques par accélérateur est habituellement modélisée en utilisant des codes de cascades intra- et inter-nucléaires (HETC). Ces derniers demandent cependant à être vérifiés pour des énergies excédant 0.6-1.0 GeV. Dans ce but, nous avons étudié à LEAR et auprès des faisceaux secondaires du PS du CERN (avec des protons, antiprotons, pions, kaons et deutérons de 2 à 5 GeV/c) les réactions dans les cibles minces (2 mm) et épaisses (jusqu'à 40cm) de Plomb et Uranium appauvri. Nous avons mesuré les sections efficaces de neutrons produits et leurs distributions $d\sigma/dn$ en utilisant la « boule de neutrons » de Berlin, un détecteur 4π , rempli avec 1.5 m^3 de scintillateur liquide. Les mesures ont été faites en fonction de la géométrie (diamètre et épaisseur) de la cible. Pour les cibles épaisses les distributions neutroniques $d\sigma/dn$ sont sensiblement gaussiennes avec la position du maximum se déplaçant vers des valeurs d'autant plus élevées que l'énergie, l'épaisseur et le diamètre de la cible sont grands ; à 4 GeV par exemple, la multiplicité moyenne est environ 55, 59, 61 et 78 neutrons (après correction d'efficacité du détecteur de 85%) pour π^+ , p^+ , d^+ et p^- , respectivement et sur une cible de Plomb de 15 cm de diamètre et 40 cm d'épaisseur.

INCA et les deux solutions stationnaires

Frédéric LELIEVRE - SPP - CEA Saclay

Réponse de détecteurs à perte d'énergie

J. MUÉLLER - IKTH Darmstadt

Production and identification of extremely neutron-rich «isotopes»

Christian ENGELMANN - GSI Darmstadt

In-flight fission of relativistic ^{238}U ions is a new and powerful method to produce extremely neutron-rich isotopes. In the region from Cr to Tc more than 50 isotopes were identified for the first time, including the double-magic nucleus ^{78}Ni .

All these exotic nuclei are now accessible for further investigation c.g. half-live or mass measurements.

Premières observations des caractéristiques de la fission à basse énergie de faisceaux exotiques relativistes

Corinne BÖCKSTIEGEL - IKTH Darmstadt

A GSI, deux expériences ont été réalisées pour observer des caractéristiques de la fission à basse énergie de faisceaux exotiques relativistes. Les faisceaux ont été produits par fragmentation à partir d' ^{238}U à 1 GeV*A. Les ions secondaires sont séparés et identifiés avec le séparateur de fragments (FRS). Ces ions interagissaient avec une cible de plomb ce qui permet d'étudier leur fission induite par collision nucléaire ou par excitation électromagnétique. Les deux processus sont séparés par la condition que la somme des charges des fragments de fission corresponde à la charge totale du noyau fissionnant. Des distributions de charge et d'énergie cinétique totale des fragments de fission ont été déduites pour une grande variété de noyaux radioactifs qui n'ont jamais pu être observés auparavant. Cette étude apporte des nouvelles perspectives sur le rôle des effets de couches dans la fission.

Dissociation Coulombienne du 8B : les γ solaires

Frédéric BOUE - GSI Darmstadt

Propriétés magnétiques des étoiles à neutrons dans des modèles relativistes

Pilar BERNARDOS - DFM - Université Santander

La susceptibilité magnétique de matière fortement asymétrique à des densités comparables à celles des étoiles à neutrons est également étudiée dans l'approche Hartree-Fock $\sigma + \omega + \pi + \rho$ relativiste. La présence de protons, à travers leur interaction avec les neutrons, amène à la formation de matière magnétisée spontanément à travers des densités plus petites que dans la matière à neutrons. Une transition de phase ferromagnétique est prédite à environ quatre fois la densité de saturation de la matière nucléaire.

Etude des réactions de spallation en cinétique inverse (U+p et Pb+P à 1 A.GeV) d'intérêt pour le développement des systèmes hybrides

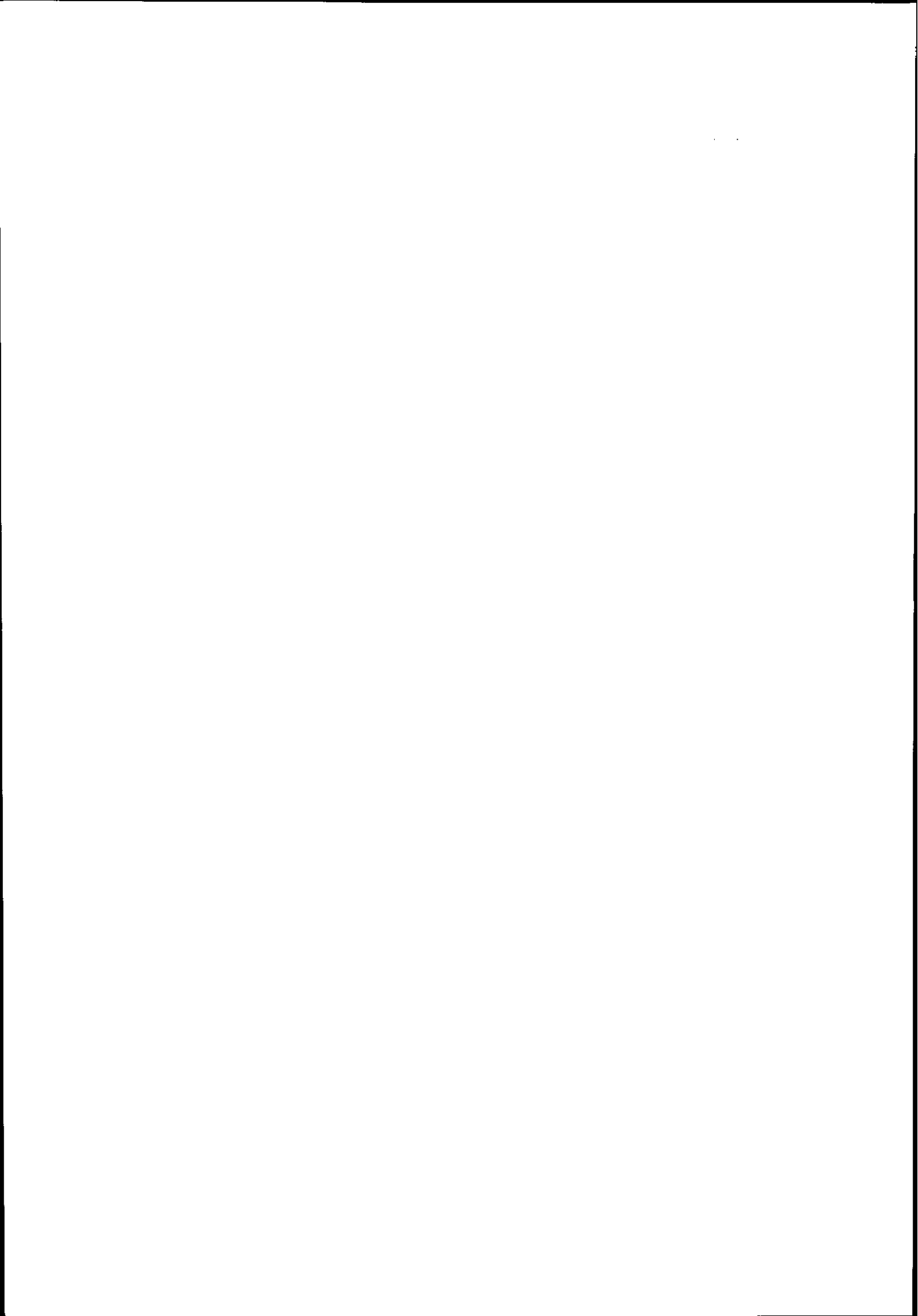
José BENLLIURE - GSI Darmstadt

Transmutation du ^{99}Tc dans l'expérience TARC* (au CERN)

Véronique LACOSTE - CEN Bordeaux

Le ^{99}Tc est un produit de fission à durée de vie longue ($2.1 \cdot 10^5\text{y}$), qui en capturant un neutron forme du ^{100}Tc (15.8s) qui se désexcite par émission β^- vers le ^{100}Ru . Deux γ de radioactivité (590 et 539 KeV). Du $^{100}\text{Ru}^*$ sont mesurés après irradiation du ^{99}Tc (sous forme de TcO_4K). On peut aussi connaître le taux de transmutation qui doit être d'autant plus élevé que l'on aura placé l'échantillon dans une région de neutrons d'énergie 5ev ($v_{\text{cap}}=4000\text{b}$). Cette étude de neutronique (distribution des neutrons en fonction de leur énergie) est effectuée dans un bloc de Pb ($3 \times 3 \times 3.3, 334\text{t}$) fournissant ces neutrons par spallation après injections de protons du PS du CERN et d'énergie cinétique 2.75 GeV.

* Transmutation Adiabatic Resonance Crossing



PARTICIPANTS ECOLE JOLIO-CURIE 1996

ABGRALL Yvon

CEN Bordeaux - BP 120 - F-33175 GRADIGNAN Cedex - *abgrall@frcpn11.in2p3.fr*

ANDRIAMONJE Samuel

CEN Bordeaux - BP 120 - F-33175 GRADIGNAN Cedex - *andria@frcpn11.in2p3.fr / sandriam@mail.cern.ch*

BADIMON Christine

CEN Bordeaux - BP 120 - F-33175 GRADIGNAN Cedex - *badimon@cenbg.in2p3.fr*

BARREAU Gérard

CEN Bordeaux - BP 120 - F-33175 GRADIGNAN Cedex - *barreau@frcpn11.in2p3.fr*

BELLE Eric

ISN Grenoble - 53 Av. des Martyrs - F-38026 GRENOBLE Cedex - *belle@isnhp5.in2p3.fr*

BERNARDOS Pilar

Univ. Cantabria - Fisica Moderna - Avda de los Castros s/n - E-39005 SANTANDER - *bernardp@besaya.unican.es*

BENLLIURE José

GSi Darmstadt - Postfach 11 05 52 - D-64291 DARMSTADT - *benlliure@axp603.gsi.de*

BILLEBAUD Annick

ISN Grenoble - 53 Av. des Martyrs - F-38026 GRENOBLE Cedex - *billebau@frcpn11.in2p3.fr*

BÖCKSTIEGEL Corinne

IKTH Darmstadt - Schloßgartenstr. 9 - D-64293 DARMSTADT - *c.boeckstiegel@gsi.de*

BOILLEY David

GANIL - BP 5027 - F-14021 CAEN Cedex - *boilley@ganac4.in2p3.fr*

BOMPAS Cécile-Aline

CEN Bordeaux - BP 120 - F-33175 GRADIGNAN Cedex - *bompas@cenbg.in2p3.fr*

BONCHE Paul

SPhT - CEA Saclay - F-91191 GIF-SUR-YVETTE - *paul@spht.saclay.cea.fr*

BORNE François

SPN - CEA Bruyères-le-Châtel - BP 12 - F-91680 BRUYERES-LE-CHATEL - *borne@bruyeres.cea.fr*

BOUBY Muriel

CRN/CNPCR - BP 28 - F-67037 STRASBOURG Cedex 2 - *bouby@crnsul.in2p3.fr*

BOUDARD Alain

DAPNIA/SPhN - CEA Saclay - F-91191 GIF-SUR-YVETTE Cedex - *boudard@phnx7.saclay.cea.fr*

BOUE Frédéric

GSi - Postfach 11 05 52 - D-64220 DARMSTADT - *f.boue@gsi.de*

CAVEDON J.-M.

DCC/DPE/SPEA - CEA Saclay - F-91191 GIF-SUR-YVETTE Cedex - *cavedon@vandoise.cea.fr*

CEULENEER René

Université de Mons-Hainaut - 20 Place du Parc - B-7000 MONS - *rene.ceulener@umh.ac.be*

CHOFFEL Cécile

CSNSM Osay - Bâtiment 108 - F-91405 ORSAY Campus - *choffel@csn-hp.in2p3.fr*

CUGNON Joseph

PNT - Institut de Physique - U Liège - Sart Tilman - B 32 - B-4000 LIEGE 1 - *cugnon@gw.unipe.ulg.ac.be*

DAVID Jean-Christophe

DRN/DRE/SRS/LDR - CEA Grenoble - 17 Av. des Martyrs - F-38054 GRENOBLE Cedex 9 - *jc david@frcpn11.in2p3.fr*

DELAROCHE Jean-Paul

SPN - CEA Bruyères-le-Châtel - BP 12 - F-91680 BRUYERES-LE-CHÂTEL Cedex - *girod@bruyeres.cea.fr*

DELPECH Marc

DER/SPRC/LEDC - CEA Cadarache - F-13108 ST PAUL-LEZ-DURANCE Cedex -

DOAN Thu-Phong

CEN Bordeaux - BP 120 - F-33175 GRADIGNAN Cedex -

DUARTE Helder

SPN - CEA Bruyères-le-Châtel - BP 12 - F-91680 BRUYERES-LE-CHÂTEL Cedex - duarte@bruyeres.cea.fr

DUCROUX Laurent

IPN Lyon - 43 Bld du 11 Novembre 1918 - F-69622 VILLEURBANNE Cedex - ducroux@lyosu2.in2p3.fr

DUFOUR Jean-Pierre

CEN Bordeaux - BP 120 - F-33175 GRADIGNAN Cedex - dufourjp@frcpn11.in2p3.fr

EL MASRI Youssef

IPN - UC Louvain -2 chemin du Cyclotron - B-1348 LOUVAIN-LA-NEUVE - elma@fyna.ucl.ac.be

ENGELMANN Christian

GSI Darmstadt - Postfach 11 05 52 - D-64291 DARMSTADT - c.engelman@gsi.de

ETHVIGNOT Thierry

SPN - CEA Bruyères-le-Châtel - BP 12 - F-91680 BRUYERES-LE-CHÂTEL Cedex - ethvigno@bruyeres.cea.fr

EUDES Philippe

SUBATECH - 4 rue Kastler - F-44070 NANTES Cedex - eudes@frcpn11.in2p3.fr

FLOCARD Hubert

IN2P3 - 3 rue Michel-Ange - F-75794 PARIS Cedex 16 - flocard@ipncls.in2p3.fr

FREHAUT Joël

SPN - CEA Bruyères-le-Châtel - BP 12 - F-91680 BRUYERES-LE-CHÂTEL Cedex - frehaut@bruyeres.cea.fr

GAUTHERIN Claire

DAPNIA/SPHn - CEA Saclay - Bât. 703 - F-91191 GIF-SUR-YVETTE Cedex - gautheri@cea.fr

GOSSET Jean

DAPNIA/SPHn - CEA Saclay - Bât. 703 - F-91191 GIF-SUR-YVETTE Cedex - gosset@hep.saclay.cea.fr

GOUTTE Dominique

SPN - CEA Bruyères-le-Châtel - BP 12 - F-91680 BRUYERES-LE-CHÂTEL Cedex - goutte@bruyeres.cea.fr

GUNSING Frank

DAPNIA/SPHn - CEA Saclay - F-91191 GIF-SUR-YVETTE Cedex - gunsing@cea.fr

HADDAD Ferid

SUBATECH - 4 rue A. Kastler - F-44070 NANTES Cedex 03 - haddad@nanhp2.in2p3.fr

HEENEN Paul-Henri

PNTPM - UL Bruxelles - CP 229 - B-1050 BRUXELLES - phheenen@ulb.ac.be

IOULDACHBAEVA Elmira

IPN Tachkent/CEN Bordeaux - BP 120 - F-33175 GRADIGNAN Cedex - iouldach@frcpn11.in2p3.fr

JAHNKE Ulrich

HMI Berlin - Glienicker str. 100 - D-14109 BERLIN - jahnke@hmi.de

LACOSTE Véronique

CEN Bordeaux - BP 120 - F-33175 GRADIGNAN Cedex - lacoste@cenbg.in2p3.fr

LAGNIEL Jean-Michel

LNS - CEA Saclay - F-91191 GIF-SUR-YVETTE Cedex -

LEBRUN Claude

SUBATECH - 4 rue A. Kastler - F-44070 NANTES Cedex 03 - lebrunc@frcpn11.in2p3.fr

LECOLLEY Jean-François

LPC/ISMRA - Bld du Maréchal Juin - F-14050 CAEN Cedex - lecollef@frcpn11.in2p3.fr

LEFORT Thomas

LPC/ISMRA - Bld du Maréchal Juin - F-14050 CAEN Cedex - lefort@frcpn11.in2p3.fr

LELIEVRE Frédéric

DAPNIA/SPP - CEA Saclay - F-91191 GIF-SUR-YVETTE Cedex - fredl@hep.saclay.cea.fr

LEPRETRE Alfred

DAPNIA/SPHn - CEA Saclay - F-91191 GIF-SUR-YVETTE Cedex - lepretre@cea.fr

LERAY Sylvie

LNS - CEA Saclay - F-91191 GIF-SUR-YVETTE Cedex - leray@republique.saclay.cea.fr

LIBERT Jean

CEN Bordeaux - BP 120 - F-33175 GRADIGNAN Cedex - libert@frcpn11.in2p3.fr

LIENARD Etienne

GANIL - BP 5027 - F-14021 CAEN Cedex - lienard@ganac4.in2p3.fr

LOISEAUX Jean-Marie

ISN Grenoble - 53 Avenue des Martyrs - F-38026 GRENOBLE Cedex -

LOPEZ Mercedes

Fisica Aplicada - Facultad de Ciencias - Avda Los Castros s/n - E-39005 SANTANDER - lopezm@besaya.unican.es

LUCAS René

DAPNIA/SPHn - CEA Saclay - F-91191 GIF-SUR-YVETTE Cedex - lucas@phnx7.saclay.cea.fr

MARCOS Saturnino

Fisica Moderna - Facultad de Ciencias - Avda Los Castros s/n - E-39005 SANTANDER - marcoss@besaya.unican.es

MARIE Frédéric

SPN - CEA Bruyères-le-Châtel - BP 12 - F-91680 BRUYERES-LE-CHÂTEL Cedex - fmarie@cea.fr

MARTINEZ Eugénie

SPN - CEA Bruyères-le-Châtel - BP 12 - F-91680 BRUYERES-LE-CHÂTEL Cedex - martinez@bruyeres.cea.fr

MENARD Stéphanie

IPN Orsay - BP 1 - F-91406 ORSAY Cedex - menard@ipno.in2p3.fr

MEPLAN Olivier

ISN Grenoble - 53 Avenue des Martyrs - F-38026 GRENOBLE Cedex - meplan@isnhp4.in2p3.fr

METIVIER Henri

IPSN/Pg - CEA Fontenay-aux-roses - BP 6 - F-92265 FONTENAY-AUX-ROSES Cedex

MILLARD-PINARD Nathalie

IPN Lyon - 43 Bld du 11 Novembre 1918 - F-69622 VILLEURBANNE Cedex - millard@frcpn11.in2p3.fr

MONCOFFRE Nathalie

IPN Lyon - 43 Bld du 11 Novembre 1918 - F-69622 VILLEURBANNE Cedex - moncof@frcpn11.in2p3.fr

MUELLER Jochen

IKTH Darmstadt - Schloßgartenstr. 9 - D-64289 DARMSTADT - j.mueller@gsi.de

MUSTAPHA Brahim

IPN Orsay - BP 1 - F-91406 ORSAY Cedex -

NICOLI Marie-Paule

CRN Strasbourg - BP 28 - F-67037 STRASBOURG Cedex 02 - nicoli@crn.in2p3.fr

NIEMBRO Ramon

Fisica Moderna - Facultad de Ciencias - Avda Los Castros s/n - E-39005 SANTANDER - niembror@besaya.unican.es

ODLAND Odd-Harald

GANIL - BP 5027 - F-14021 CAEN Cedex - odland@ganac4.in2p3.fr

OUCHANI Souad

CSNSM Orsay - Bâtiment 108 - F-91405 ORSAY Campus - ouchani@csn-hp.in2p3.fr

PLUQUET Alain

DAPNIA/SPP - CEA Saclay - F-91191 GIF-SUR-YVETTE Cedex - pluquet@hep.saclay.cea.fr

QUENTIN Philippe

CEN Bordeaux - BP 120 - F-33175 GRADIGNAN Cedex -

QUERE Yves

Ecole Polytechnique - Département de Physique - F-91128 PALAISEAU -

REUSS Paul

INSTN/UERTI - CEA Saclay - F-91191 GIF-SUR-YVETTE Cedex - reuss@instndir.cea.fr

RITTER Guillaume

DER/SPRC/LEDC - CEA Cadarache - Bât. 230 - F-13108 ST PAUL-LEZ-DURANCE - ritt@holbein.cad.cea.fr

SAFA Henri

DAPNIA/SEA - CEA Saclay - F-91191 GIF -SUR-YVETTE Cedex - *safa@hep.saclay.cea.fr*

SAMSOEN David

CEN Bordeaux - BP 120 - F-33175 GRADIGNAN Cedex - *samsoen@cenbg.in2p3.fr*

SCHAPIRA Jean-Paul

IPN Orsay - BP 1 - F-91406 ORSAY Cedex -

SEMAY Claude

Université de Mons-Hainaut - 20 Place du Parc - B-7000 MONS - *claudе.semay@umh.ac.be*

SILVESTRE BRAC Bernard

ISN Grenoble - 53 Avenue des Martyrs - F-38026 GRENOBLE Cedex - *silvestre@isnhp1.in2p3.fr*

SIMON Gérard

SPN - CEA Bruyères-le-Châtel - BP 12 - F-91680 BRUYERES-LE-CHÂTEL - *simon@bruyeres.cea.fr*

SOULE Roland

DER/SPRC/LEPh - CEA Cadarache - Bât. 230 - F-13108 ST PAUL-LEZ-DURANCE - *roland@baobab.cad.cea.fr*

STERN Martine

IPN Lyon - 43 Bld du 11 Novembre 1918 - F-69622 VILLEURBANNE Cedex - *stern@frcpn11.in2p3.fr*

TERRIEN Yves

DAPNIA/SPhN - CEA Saclay - F-91191 GIF-SUR-YVETTE Cedex - *terrien@hep.saclay.cea.fr*

TIZNITI Lahcen

CRN Strasbourg - BP 28 - F-67037 STRASBOURG Cedex - *tizniti@crnvax.in2p3.fr*

VARIGNON Cyril

LPC/ISMRA - Bld du Maréchal Juin - F-14050 CAEN Cedex -

WIELECZKO Jean-Pierre

GANIL - BP 5027 - F-14021 CAEN Cedex - *wieleczko@ganac4.in2p3.fr*