ECOLE INTERNATIONALE JOLIOT-CURIE DE PHYSIQUE NUCLEAIRE

Maubuisson, France

25ème session, 18-23 Septembre 2006

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,

le Fonds National de la Recherche Scientifique de Belgique

et le Service de Physique Nucléaire du CEA/DAM

LE CYCLE ÉLECTRONUCLÉAIRE : De la fission aux nouvelles filières

J.-F. BERGER P. BAETEN E. BAUGE B. JURADO A. BOUDARD I. BILLARD F. VARAINE A. BILLEBAUD S. DAVID H. NIFENECKER K. PROTASSOV

Conseil Scientifique

G. BELIER (CEA Bruyères-le-Châtel), B. BLANK (CEN Bordeaux), P. BONCHE (CEA Saclay), B. CHEYNIS (IPN Lyon), J. CUGNON (U Liège), G. DE FRANCE (GANIL Caen), P. DESCOUVEMONT (UL Bruxelles), P. DESSAGNE (LPHC Strasbourg), P. DUPIEUX (LPC Clermont), C. FINCK (SUBATECH Nantes), S. FRANCHOO (IPN Orsay), M. GUIDAL (IPN Orsay), P.-H. HEENEN (UL Bruxelles), D. LACROIX (LPC Caen), V. LAPOUX (CEA Saclay), A. LEFEBVRE (CSNSM Orsay), P. LELEUX (UC Louvain-la-Neuve), D. LHUILLIER (CEA Saclay), E. LIATARD (LPSC Grenoble), J.-F. MATHIOT (LPC Clermont), J.-Y. OLLITRAULT (CEA Saclay), M.-G. PORQUET (CSNSM Orsay), N. REDON (IPN Lyon), G. ROYER (SUBATECH Nantes), G. RUDOLF (LPHC Strasbourg), C. SEMAY (U Mons), B. SILVESTRE-BRAC (LPSC Grenoble), O. SORLIN (GANIL Caen), C. VOLPE (IPN Orsay)

Comité d'Organisation

G. BELIER, J. CUGNON, V. LAPOUX, E. LIATARD, G. RUDOLF, M.-G. PORQUET

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. Predazzi, 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 (en vente aux éditions de Physique, Paris)

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 COLLISONS

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

- 1996 : 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. Fréhaut, Y. Quéré, H. Métivier, J.-P. Schapira, J.-M. Cavedon, M. Delpech, J.-M. Loiseaux, J.-M. Lagniel, S. Leray.
- 1997 : STRUCTURE NUCLEAIRE : un nouvel horizon J.-F. Mathiot, J.-P. Blaizot, A. Poves, P.-H. Heenen, Ph. Chomaz, P. Van Duppen, N. Orr, B. Gall, W.R. Phillips, P. Hello
- 1998 : MATIERE HADRONIQUE : de la structure du nucléon au déconfinement des quarks M. Knecht, P. Guichon, J.-Y. Ollitrault, C. Cavata, H.-J. Pirner, S. Kox, G. Chanfray, C. Kuhn, M. Gonin, O. Sorlin
- 1999 : NOYAU, CHAMP ET CORTEGE Ch. Leclercq-Willain, C. Rouyer, D. Lunney, J. Kiener, F. Le Blanc, J.-F. Chemin, V. Méot, G. Neyens, M.-G. Porquet, Ph. Moretto
- 2000 : ASTROPHYSIQUE NUCLEAIRE : *du microcosme nucléaire au macrocosme astrophysique* M. Arnould, J. Meyer, G. Audi, N. Orr, C. Volpe, O. Sorlin, S. Goriely, P. Descouvemont, B. Cordier, B. Degrange
- 2001 : PHYSIQUE NUCLEAIRE INSTRUMENTALE : "de la mesure à la grandeur physique"
 S. Hustache Ottini, D. Buskulic, J. Bouchez, E. Nappi, H. Savajols, M. Guidal, J. Pouthas,
 G. Duchêne, T. Pussieux, M. Loiselet, P. Salati
- 2002 : LES NOYAUX EXOTIQUES : "un autre regard sur la structure nucléaire" J. Dobaczewski, Y. Blumenfeld, H. Flocard, M.J. Garcia Borge, F. Nowacki, S. Rombouts, C. Theisen, F.-M. Marques, D. Lacroix, P. Dessagne, A. Lopez Martens, H. Gaeggeler
- 2003 : L'INTERACTION FAIBLE : l'histoire continue... J. Martino, J.-M. Frère, O. Naviliat-Cuncic, C. Volpe, J. Marteau, D. Lhuillier, D. Vignuad, R. Legac, J. Bartlett
- 2004 : LES RAYONNEMENTS ET LE VIVANT P. Andrey, L. Lacroix, A. Chétioui, N. Gault, R. Ferrand, M. Ricard, I. Buvat, F. Lethimonier, C. Comtat
- 2005 : LA QCD À L'ŒUVRE : des hadrons au plasma
 P. Aurenche, O. Pene, F. Gulminelli, B. Moussallam, J.-M. Le Goff, R. Granier de Cassagnac, C. Roy, P. Dupieux

Ces cours peuvent être consultés dans les bibliothèques des laboratoires de l'IN2P3, du CEA, du FNRS belge et au CERN. Des cours des dernières années sont encore disponibles, ils peuvent être obtenus sur demande auprès de :

Pascale CHAMBON CEN Bordeaux BP 120 33175 GRADIGNAN Cedex - France 205 57 12 08 49 E-mail : chambon@cenbg.in2p3.fr

TABLE DES MATIERES

AVANT-PROPOS

M.-G. PORQUET

LA FISSION : DE LA PHÉNOMÉNOLOGIE À LA THÉORIE

	JF. BERGER	
1.	Introduction	1
2.	Un peu d'histoire	3
	2.1 La découverte de la fission	3
	2.2 le modèle de la goutte liquide chargée	4
	2.3 La méthode de Strutinski et la barrière de fission à deux bosses	8
3.	50 années de mesures. Systématiques	. 12
	3.1 Caractéristiques générales de la fission	. 12
	3.2 La fission spontanée	. 14
	3.3 La fission induite par neutrons	. 15
	3.4 Les isomères de fission	. 17
	3.5 Les caractéristiques des fragments	. 18
4.	Interprétations des mesures. Modèles	. 29
	4.1 Caractéristiques des barrières de fission	. 32
	4.2 Sections efficaces de fission	. 36
	4.3 Modèles de dynamique et de distribution des fragments	. 41
5.	La fission aujourd'hui	. 44
	5.1 Une conjoncture nouvelle	. 44
	5.2 Mesures et approches théoriques récentes	. 45
	5.3 L'apport de la théorie dans l'évaluation de données	. 55
	Références	. 57
	Bibliographie générale	. 60

PHYSIQUE DES RÉACTEURS P BAETEN

	I. DALILN	
1.	Neutronique	64
	1.1 Energie de liaison des noyaux	64
	1.2 Energie dégagée	65
	1.3 Produits de fission	66
	1.4 Les interactions neutron-matière	66
	1.5 Sections efficaces microscopiques	67
	1.6 Energie des neutrons dans un réacteur	69
	1.7 Réaction en chaîne : bilan neutronique	
2.	Statique des Réacteurs Nucléaires	
	2.1 Théorie de diffusion à un groupe pour un réacteur réfléchi	
	2.2 Dimensions du réacteur	
	2.3 .Théorie de diffusion à 2 groupes pour un réacteur nul	
	2.4 Théorie de diffusion à 2 groupes pour un réacteur réfléchi	
3.	Cinétique des réacteurs nucléaires.	84
	3.1 Principes de base de la cinétique	
	3.2 Equations de la cinétique.	88
	3.3 Comportement cinétique sans neutrons retardés et sans source	89
	3.4 Comportement cinétique avec neutrons retardés et sans source	

4.	Contrôle du réacteur	
	4.1 Principe du contrôle d'un réacteur nucléaire	
	4.2 Le démarrage du réacteur	
	4.3 Réglage de la puissance	
	4.4 L'arrêt du réacteur	102
5.	Dynamique des Réacteurs Nucléaires	103
	5.1 Introduction	103
	5.2 Effet réactif de température	104
	5.3 Effet réactif de vide	107
	5.4 Effet réactif de burn-up	107
	5.5 Effet réactif lié aux produits de fissions significativement absorbants	108
6.	Types de réacteurs nucléaires	
	6.1 Principes et types actuels de réacteurs nucléaires de puissance	
	6.2 Futur proche du nucléaire : génération III	120
	6.3 Le parc nucléaire à partir de 2025	122
	· ·	

MODÉLISATION ET ÉVALUATION DES DONNÉES

	E. BAUGE	
1.	Evaluations ? Pourquoi, Pour qui ?	128
	a. Fichier évalué : contenu	128
	b. Utilisation des données évaluées	128
	c. Pourquoi des évaluations ?	129
	d. Les bibliothèques internationales	131
2.	Comment ?	131
	a. Reprise d'évaluations existantes	131
	b. Renormalisation d'évaluations existantes	132
	c.Interpolations de données expérimentales	132
	d. Modélisation	133
3. N	Iéthode "tout modèle" pour le continu	135
	a. Enchaînement des modèles	135
	b. Modèle optique et réactions directes	136
	c. Modèle de pré-équilibre	141
	d. Modèle statistique de Hauser-Feshbach	143
	e. Densité de niveaux	145
	f. Fission	148
	g. TALYS	152
	h. Multiplicités moyennes de neutrons	153
	i. Incertitudes, matrices de variance-covariance	154
	j. Formatage, validation	155
4.	Quelques exemples réels	155
	a. Rôle des états couplés	155
	b. Influence des coefficients de transmission sur le modèle statistique	156
	c. Section efficace $(n, 2n)$ du ²³⁹ Pu	157
	d. Rôle des densités de niveaux	158
	e. Problèmes des sections efficaces expérimentales ²³⁸ Pu(n, f)	158
	f. Validations intégrales	159
_	g. Retours d'expérience intégrale	160
5.	Perspectives d'avenir pour l'évaluation	161
	a. Nouvelles/meilleures données expérimentales	161
	b. Potentiels optiques microscopiques	162
	c. Pré-équilibre microscopique	162
	d. Densités de niveau microscopiques	162
	e. Fonctions de force γ microscopiques	163
	f. Fission microscopique	164
	g. Conclusions	165
	Références	165

MESURES DE SECTIONS EFFICACES D'INTÉRÊT POUR L'INCINÉRATION DES ACTINIDES MINEURS B. JURADO

B. J	UKAD	L
------	------	---

1.	Motivation	168
2.	Mesures de sections efficaces neutroniques d'actinides mineurs	168
3.	Perspectives	179
4.	Conclusion	181
	Bibliographie	182

DONNÉES ET MODÉLISATION DE LA SPALLATION POUR LES RÉACTEURS HYBRIDES

	A. BOUDARD	
A.	Données expérimentales	
1.	Informations sur la spallation d'intérêt pour un réacteur hybride	
	1.1 Schéma d'un réacteur hybride	
	1.2 Energies des particules incidentes	
2.	Caractéristiques de la spallation	
	2.1 Définition de la spallation	
	2.2 Description	
	2.3 Spectres typiques et ordres de grandeur	
3.	Quelques techniques de mesure	189
4.	Mesures récentes en dessous de 200 MeV	191
5.	Mesures récentes au dessus de 200 MeV	195
В.	Modélisation de la spallation	203
1.	Pré-équilibre	204
2.	Cascades intra-nucléaires	205
3.	La désexcitation (évaporation)	207
4.	La désexcitation (fission)	208
5.	La désexcitation aux extrêmes	210
6.	Résumé des codes de désexcitation	210
C.	Quelle précision attendre des codes	211
D.	Conclusions	
	Remerciements	220
	Références	220

DÉCHETS NUCLÉAIRES : ÉTATS DES LIEUX

I. BILLARD

I.	Introduction	
II.	Le retraitement des combustibles	225
	II.1 Aspects politiques français, européens et mondiaux	225
	II.2 Aspects économiques du retraitement	226
	II.3 Procédé PUREX : résultat et performances	
	II.4 Mais au fait, pourquoi retraite-t-on ?	229
	II.5 Retraitement poussé	
III.	Y a t-il des déchets dans le nucléaire ?	
	III.1 Les déchets ? Quels déchets ?	
	III.2 Quels tonnages ?	
	III.3 Quels rejets ?	
	III.4 Traitement des effluents et des déchets solides	
IV.	Le stockage "définitif" des déchets	
	IV.1 Les sites de stockage : quoi, où et quand ?	
	IV.2 Le stockage : principes de base	
	IV.3 Autres possibilités de stockage	
	IV.4 Un site de stockage est-il fiable et sécurisé ?	
	IV.5 Bioprocessus et stockage nucléaire	
	IV.6 Et si on ne retraitait pas ?	
	<u>^</u>	

PROCESSUS ET FAISABILITÉ DE LA TRANSMUTATION DES DÉCHETS Á VIE LONGUE

	F. VARAINE	
1.	Les bases physiques de la transmutation	. 254
	1.1 L'utilisation de photons : un rendement trop faible	. 254
	1.2 Une solution : protons et spallation	. 254
	1.3 Le meilleur choix : les neutrons	. 254
2.	Caractéristiques neutroniques des actinides	. 256
3.	Efficacité globale de transmutation en réacteurs	. 260
4.	La physique du cœur	. 265
	4.1 Limitations sur le chargement d'actinides mineurs en RNR	. 265
	4.2 Limitations sur le chargement d'actinides mineurs en REP	. 269
5.	Incidence du mode de recyclage des actinides	. 273
6.	Conséquences sur les grandeurs physiques du cycle du combustible	. 273
7.	Les produits de fission à vie longue	. 274
8.	Simulation : démarche et motivation	. 277
9.	Les méthodes de calcul	. 278
	9.1 Caractéristiques de la méthode Monte Carlo	. 278
	9.2 Méthodes déterministes	. 280
	9.3 Les codes de calcul déterministes	. 281
10.	les données nucléaires pour la transmutation	. 282
	10.1 La problématique	. 282
	10.2 Les types de données nécessaires	. 283
	10.3 Synthèse des données mesurées	. 284
	10.4 La modélisation	. 286
	10.5 Les évaluations	. 286
	10.6 Expérience PROFIL	. 287
11.	Faisabilité technique de la transmutation	. 289
	11.1 Modes de transmutation	. 289
	11.2 Incidence de la gestion du plutonium	. 290
	11.3 Transmutation des actinides mineurs en réacteurs à eau sous pression	. 291
	11.4 Transmutation des actinides mineurs en réacteurs à neutrons rapides	. 293
	11.5 Les scénarios étudiés et les conclusions associées	. 296
12.	Remerciements	. 299

RÉACTEURS HYBRIDES : AVANCÉES RÉCENTES POUR UN DÉMONSTRATEUR A BILLEBAUD

	A. DILLEDAUD	
	Introduction	
1.	Principe et intérêt des réacteurs hybrides ou "ADS"	
	1.1 Milieu multiplicateur sous-critique	
	1.2 Principe d'un système hybride	
	1.3 Importance des neutrons source	
	1.4 Gains neutronique et énergétique	
	1.5 Intérêts d'un réacteur hybride: bilan neutronique	
2.	Le pilotage et le contrôle des ADS	
	2.1 Relation courant/puissance	
	2.2 Pilotage et sûreté d'un système sous-critique	
	2.3 Mesure et contrôle de la réactivité	
3.	Vers un démonstrateur	
	3.1 Système des avancées récentes	
	3.2 Projets européens de démonstration pour un ADS industriel	
	3.3 Le projet MYRRHA	
4.	Conclusion	
	Remerciements	
	Références	

SYSTÈMES DU FUTUR ET STRATÉGIES

	S. DAVID	
1.	Contexte énergétique et nucléaire	337
	1.1 Le contexte actuel	337
	1.2 La production d'électricité	339
	1.3 La consommation d'énergie dans le futur	340
	1.4 Les contraintes de l'effet de serre	341
	1.5 Le casse-tête énergétique	341
2.	La situation en France	343
	2.1 Retraitement ou cycle ouvert ?	343
	2.2 Le combustible MOX	345
	2.3 Déchets et matière	345
3.	Le potentiel de production des filières actuelles	346
	3.1 L'uranium enrichi	346
	3.2 La masse de combustible nécessaire	347
	3.3 Le retraitement	348
	3.4 Optimisations possibles	349
	3.5 Réserves d'uranium et potentiel de production	350
4.	Nucléaire durable : la régénération	351
	4.1 Principe de base	351
	4.2 les neutrons disponibles	352
	4.3 L'inventaire de matière fissile	354
	4.4 le temps de doublement	357
5.	Les réacteurs rapides	359
	5.1 Les différents concepts	359
	5.2 Le déploiement des RNR	360
6.	La voie plus innovante du cycle thorium	362
	6.1 Généralités sur le thorium	362
	6.2 Le concept MSBR	364
	6.3 Le concept TMSR	366
	6.4 Le déploiement des RSF au thorium	368
7.	Epilogue : quelles stratégies pour le futur ?	371

AUTRES MÉTHODES DE PRODUCTION D'ÉLECTRICITÉ

H. NIFENECKER

1.	Conventions	379
	1.1 Un exemple	380
	1.2 Energie finale	381
	1.3 Energie primaire	381
2.	Consommations et ressources	383
	2.1 Consommations	383
	2.2 Ressources et réserves	385
	2.3 Les prévisions des scénarios	386
3.	Electricité et émissions de CO2	387
	3.1 Les énergies non émettrices de gaz carbonique	388
4.	Les combustibles fossiles	389
	4.1 Réactions élémentaires	389
	4.2 Les techniques de production d'électricité avec les combustibles fossiles	390
	4.3 La capture du gaz carbonique	392
5.	Les énergies renouvelables continues	395
	5.1 La biomasse	395
	5.2 L'hydroélectricité	400
	5.3 La géothermie	403
6.	Les énergies renouvelables intermittentes	404
	6.1 L'énergie éolienne	404
	6.2 Le solaire	413
7.	Comparaison des coûts	423
8.	Conclusions	424

PHYSIQUE FONDAMENTALE AVEC DES NEUTRONS ULTRA-FROIDS

	K. PROTASSOV	
1.	Neutrons ultra froids (UCN)	427
	1.1 Introduction historique	428
	1.2 Propriétés des UCN	429
	1.3 Production des UCN	431
2.	UCN comme outil dans les problèmes de la physique fondamentale	435
	2.1 Moment électrique dipolaire du neutron	435
	2.2 La durée de vie du neutron	438
	2.3 Etats quantiques du neutron dans le champ de pesanteur	441
	Conclusions	450
	Remerciements	450
	Références	450
SÉMINA	AIRES JEUNES	
LISTE DES PARTICIPANTS		

AVANT-PROPOS

Je dédie ce volume de cours à la mémoire de notre collègue, Paul Bonche, qui nous a quittés en mai dernier, après plusieurs années de lutte contre la maladie. Sa route a fréquemment croisé la mienne puisque certains de ses domaines d'activité étaient proches des miens, néanmoins je ne veux évoquer ici qu'un seul point. Pendant plus de vingt ans, il a été un élément moteur de l'Ecole Joliot-Curie. Membre du conseil scientifique dont il a fait partie dès sa création, il a pris part, année après année, au choix des sujets traités. Participant très fidèle, il a assisté à une quinzaine de sessions, pas seulement celles où il était orateur. Auditeur attentif, il posait de multiples questions aux orateurs, non parce qu'il n'en connaissait pas les réponses, mais pour mettre en valeur un détail de l'exposé, afin de montrer ainsi aux jeunes (et aux moins jeunes !) l'endroit crucial sur lequel il était nécessaire d'insister.

Pour introduire le sujet de cette session, je me tourne vers le livre "Le nucléaire expliqué par des physiciens", ouvrage collectif dont il avait assuré la direction. Dans la postface de ce livre (publié en 2002 chez EDP Sciences) il écrivait : "Peut-on concevoir un nucléaire encore plus sûr, plus sobre et plus propre ? La quatrième partie de ce livre fait le tour des idées actuelles. Le paysage est extrêmement riche et varié. Allant de la simple adaptation d'équipements existants au développement de nouveaux concepts de réacteur, les idées foisonnent : optimisation différente du spectre de neutrons, nouvelles filières de combustible, nouveau milieu de réaction, nouveau principe de fonctionnement faisant appel à des sources de neutrons externes (spallation) couplées à un cœur sous-critique (réacteurs hybrides)..."

Toutes ces nouveautés sont étudiées aujourd'hui dans nos laboratoires de recherche publique, ouvrant la voie au nucléaire de demain. Les orateurs de cette session nous ont fait partager leur savoir et les cours qu'ils ont rédigés constituent, sans nul doute, un document de référence sur les récentes avancées, les travaux actuels et futurs. Au nom du conseil scientifique, je les remercie chaleureusement.

Cette année encore, le soutien de l'IN2P3-CNRS, celui de la DSM du CEA, ainsi que du DAPNIA, celui du service de Physique Nucléaire du CEA-DAM, et également celui du FNRS belge ne nous ont pas fait défaut. Nous remercions leurs divers responsables de contribuer ainsi au succès de l'Ecole Internationale Joliot-Curie.

Nous remercions le directeur de la résidence "Arts & Vie" de Maubuisson et tout le personnel pour les excellentes conditions matérielles dont nous avons bénéficié pendant notre séjour. Nous sommes également très redevables à l'équipe de la Formation Permanente de l'IN2P3 qui s'occupe efficacement de tous les aspects financiers nécessaires à la tenue de l'Ecole.

Nos derniers remerciements (non les moindres) vont à Pascale Chambon (CENBG, Bordeaux), dont le travail de secrétariat effectué au fil des mois contribue à l'excellente marche de l'Ecole.

Marie-Geneviève Porquet

Vous trouverez l'ensemble de ces cours, avec leurs figures en couleur, sur le site Internet de l'Ecole :

http://www.cenbg.in2p3.fr/joliot-curie

LA FISSION : DE LA PHÉNOMÉNOLOGIE A LA THÉORIE

Jean-François BERGER¹

Service de Physique Nucléaire, CEA Bruyères-le-Châtel²

Résumé

Ce cours propose un panorama de la physique du phénomène de fission depuis sa découverte en 1939 jusqu'aux développements les plus récents. Il concerne la fission des noyaux lourds – essentiellement les actinides – à des énergies relativement basses ne dépassant pas quelques MeV au-dessus de la barrière de fission, régime où le processus est utilisé dans ses applications à la production d'énergie. Une systématique des observables et caractéristiques physiques principales du phénomène est présentée, de même que quelques-uns des modèles ayant permis d'interpréter le processus : modèle de la goutte liquide, méthode de la correction de couches de Strutinski, approches statistiques, modèles de fragmentation. La dernière partie est consacrée aux développements théoriques les plus récents dans le domaine et à leur impact possible sur les modèles d'évaluation de données.

Abstract

This lecture proposes an overview of the physics of the fission phenomenon since its discovery in 1939 until the most recent developments. It covers fission in heavy nuclei – mainly actinides – at relatively low energies not exceeding a few MeV above fission barriers, the regime where the process is used in applications to energy production. A systematics of the observables and main characteristics of the phenomenon is presented, together with a few of the models used for its interpretation : the liquid drop model, Strutinski's shell correction method, statistical approaches, fragmentation models. The last chapter is devoted to the most recent theoretical developments in the field and to their possible impact on data evaluation models.

1 Introduction

La fission est l'un des phénomènes de la physique nucléaire qui a été le plus étudié. L'une des raisons en est évidemment l'application que le phénomène a reçue, d'abord dans le domaine militaire, puis dans la production d'énergie électrique à grande échelle. Il faut dire que la possibilité d'induire de façon contrôlée un nombre pratiquement illimité de fissions par réaction en chaîne dans un milieu fissile représente une opportunité unique permettant d'extraire de la matière une énergie considérable : 1 kg de matière fissile est capable de fournir une énergie d'environ 24 GWh, soit l'équivalent de la combustion de 2000 tonnes de pétrole.

Une autre raison est l'intérêt du phénomène du point de vue de la physique. La fission d'un noyau est un processus particulièrement complexe qui fait intervenir pratiquement tous les aspects de la structure et de la dynamique nucléaire : excitations du noyau composé, grandes

 $^{^1}$ jean-francois.berger@cea.fr

²CEA/DIF/DPTA/SPN, BP 12, 91680 Bruyères-le-Châtel, France.

déformations, modes collectifs et intrinsèques ayant des temps caractéristiques d'évolution différents, superfluidité, processus non adiabatiques D'autre part, si les noyaux fissiles sont essentiellement des noyaux lourds, les fragments de fission se répartissent sur une grande partie de la carte des noyaux. Ils comprennent notamment de nombreux noyaux exotiques riches en neutrons³. La fission constitue donc un banc d'essai extrêmement précieux permettant de tester les approches et modèles de structure et de réactions et, en dernier ressort, d'approfondir notre connaissance de l'interaction forte au sein du milieu nucléaire.

Ce cours d'introduction se propose de donner un aperçu de la physique du phénomène de fission, de nos connaissances actuelles dans le domaine et des méthodes utilisées pour le décrire. La présentation sera nécessairement partielle dans la mesure où le nombre des travaux sur le sujet est considérable et le volume de la littérature proprement gigantesque. En particulier, nous ne parlerons que de la fission des actinides, c'est-à-dire des noyaux lourds situés entre l'Actinium (Z=89) et le Nobelium (Z=102) comprenant notamment l'Uranium (Z=92), le Plutonium (Z=94) et le Thorium (Z=90) utilisés ou envisagés comme combustibles dans les centrales nucléaires. La fission des noyaux plus légers ainsi que celle des noyaux transactinides et super-lourds constituent des sujets à part qui dépassent le cadre de cet exposé. De même, nous ne décrirons que les caractéristiques les plus importantes du phénomène de fission, laissant de côté des phénomènes rares comme la fission ternaire. Le lecteur désireux d'en savoir plus pourra consulter les ouvrages de référence donnés à la fin dans la Bibliographie générale.

Le plan comporte quatre grandes parties. La première (Section 2) résume les travaux allant de la découverte de la fission en 1939 à l'interprétation du phénomène en terme de barrière de fission à deux bosses vers la fin des années 1960. C'est au cours de cette période particulièrement productive que les caractéristiques physiques essentielles de la fission ont été mesurées et qu'une interprétation cohérente a commencé à voir le jour. Ces caractéristiques physiques : chronologie du phénomène, sections efficaces, distributions des fragments de fission et spectres des neutrons notamment, sont présentées dans la seconde partie (Section 3). La troisième partie (Section 4) donne quelques exemples des modèles traditionnellement employés pour reproduire les sections efficaces de fission et interpréter les distributions expérimentales des fragments. Ces modèles sont encore couramment utilisés dans l'évaluation des données nucléaires. Finalement, nous décrivons brièvement dans la quatrième partie (Section 5) quelques-uns des travaux les plus récents réalisés ces dernières années.

L'étude de la fission connaît actuellement un regain d'activité dû notamment au besoin en données nouvelles des applications contemporaines civiles et militaires du nucléaire. Comme nous le verrons vers la fin de ce cours, les progrès réalisés dans les instruments expérimentaux permettent d'accéder aux propriétés de fission de nouveaux noyaux, en particulier dans le domaine des exotiques. En parallèle, avec la puissance des moyens de calcul numérique actuels, des simulations du processus de fission avec, comme seuls paramètres phénoménologiques ceux contenus dans l'interaction nucléon-nucléon, commencent à être envisageables. Ces avancées participent à l'effort scientifique destiné a mieux comprendre la dynamique des nucléons au sein des noyaux. Leur objectif est également d'étendre et de perfectionner les prédictions des modèles employés actuellement afin d'aider à enrichir et à améliorer la qualité des bases de données nécessaires aux applications.

 $^{^{3}}$ Ainsi, c'est la fission de l'Uranium qui sera la source principale des faisceaux de noyaux exotiques riches en neutrons produits auprès de l'installation SPIRAL 2 du GANIL.

2 Un peu d'histoire

2.1 La découverte de la fission

Peu après la mise en évidence du neutron par Chadwick en 1932, Fermi et ses collaborateurs utilisaient déjà des faisceaux de cette nouvelle particule pour irradier divers noyaux et analyser la radioactivité induite. C'est ainsi que fut découverte vers 1934 la radioactivité β^- , qui valut à Fermi le Prix Nobel en 1938. Ce type de radioactivité produisait des noyaux ayant une charge de plus que le noyau initial. Il semblait donc logique de l'utiliser pour tenter de synthétiser les éléments au delà de l'Uranium, le dernier élément connu à l'époque. Il suffisait de bombarder de l'Uranium avec des neutrons.

Ces expériences, menées à partir de 1934 d'abord par Fermi à Rome, puis dans d'autres laboratoires, donnèrent un résultat complètement inattendu : contrairement à ce qui était prévu, un grand nombre d'espèces radioactives étaient produites. Celles-ci étaient identifiées par analyse chimique. Certaines d'entre elles furent d'abord attribuées à des éléments transuraniens. Cependant, d'autres possédaient les mêmes propriétés chimiques que le Baryum ou le Lanthane, ce qui laissait penser que des noyaux de Radium ou d'Actinium (dans les mêmes colonnes du tableau périodique) étaient produits. Or l'apparition de ces noyaux impliquait des réactions du type $U(n, 2\alpha)$ que l'on savait être hautement improbables. Ces résultats soulevèrent de nombreux débats pendant toute la période 1934-1938 et leur interprétation en terme de synthèse d'éléments transuraniens commença à être sérieusement mise en doute [1].

Afin de clarifier cette situation, Hahn et Strassmann répétèrent ces expériences à Berlin dans le courant de l'année 1938 en utilisant des techniques spéciales permettent de distinguer entre les propriétés chimiques du Radium et celles du Baryum. A leur grande surprise, ils identifièrent sans ambiguïté l'élément Baryum. Ce résultat remarquable apparut dans la revue *Naturwissenschaften* en janvier 1939 [2]. Peu après, les mêmes auteurs montrèrent que "l'activité" attribuée à l'Actinium provenait bel et bien du Lanthane [3].

La même année, Lise Meitner, en exil en Suède, et son neveu Otto Frisch donnent une première interprétation du phénomène [4] sur la base du modèle de la goutte liquide chargée proposé par George Gamow en 1928. Ils supposent qu'un noyau d'Uranium peut être mis en vibration par la capture d'un neutron puis se diviser en deux noyaux fils. Ils donnent le nom de "fission" à ce processus. Ils réalisent rapidement que, selon cette interprétation, les fragments doivent acquérir après séparation une énergie cinétique de l'ordre de 200 MeV. Dans les mois qui suivent, Frisch confirme cette prédiction dans une expérience où les fragments de fission sont arrêtés dans une chambre d'ionisation [5]. La réalité de la fission était ainsi démontrée de façon directe.

Finalement, apparaît en septembre 1939, le célèbre article de Bohr et Wheeler "The mechanism of Nuclear Fission" [6] qui deviendra la base de toutes les études théoriques ultérieures. La plupart des notions utilisées aujourd'hui telles que les concepts de barrière de fission et de largeur de fission sont introduites dans cet article. Les auteurs y développent aussi en détail le processus de capture neutronique, de même que les mécanismes de fission par neutrons lents, neutrons rapides, deutérons et rayonnement, des sujets qui constitueront les têtes de chapitre des traités futurs sur la fission.

Ces événements de l'année 1939 sont abondamment documentés dans la littérature. D'autres le sont beaucoup moins comme, par exemple, les travaux que Frédéric Joliot mena dès janvier

1939 afin d'apporter une preuve physique de la fission. Il identifia les produits de fission comme étant des noyaux de masse moyenne, d'abord en mesurant leur libre parcours moyen dans l'air [7], puis en observant leurs traces dans une chambre de Wilson [8]. Il réalisa très vite que des neutrons étaient émis [9] et qu'ils pouvaient produire une réaction en chaîne. Avec H. Halban et L. Kowarski, il explora alors les conditions permettant de libérer l'énergie nucléaire. Trois brevets d'invention furent déposés au nom de la *Caisse Nationale de la Recherche Scientifique* en mai 1939. Mais l'invasion de la France interrompit ces recherches. La première "pile atomique" sera réalisée en 1942 à Chicago par E. Fermi.

Mentionnons pour terminer cet historique que le phénomène de fission semble avoir été entrevu dès 1934 par Ida Noddack-Tacke, une physicienne-chimiste allemande. Elle écrit cette année là : "Il est concevable qu'en les irradiant avec des neutrons, les noyaux lourds décroissent en plusieurs gros fragments, que ces fragments se révèlent être des isotopes d'éléments connus et non des voisins de l'élément irradié" [10]. Elle-même et son époux W. Noddack cherchaient les éléments Z=43 et 75 non encore identifiés en appliquant des techniques de diffraction X à des échantillons de minerai contenant de l'Uranium bombardés avec des électrons. En 1925, ils déclarèrent avoir trouvés ces éléments qu'ils nommèrent "Masurium" et "Rhenium" [11]. Pour des raisons diverses, leurs travaux ne jouissaient pas d'une grande crédibilité ⁴. Si cela n'avait pas été le cas, la fission aurait peut-être été découverte quelques années plus tôt.

2.2 Le modèle de la goutte liquide chargée

Ce modèle, proposé par G. Gamow en 1928 alors qu'il séjournait à Copenhague auprès de N. Bohr, suppose que l'on peut traiter le noyau comme un goutte homogène de fluide incompressible chargée uniformément. Sa justification est fondée sur le phénomène de saturation des forces nucléaires qui donne à tous les noyaux pratiquement la même densité et un rayon proportionnel à $A^{1/3}$. La stabilité des noyaux résulte dans ce modèle de l'équilibre entre la tension de surface de la goutte et les forces de répulsion coulombienne. Il a l'avantage d'exprimer de façon simple la variation de l'énergie d'un noyau en fonction de la déformation, et c'est ce modèle que Bohr et Wheeler ont choisi d'utiliser dans leur article sur la fission [6]. Nous en donnons une brève description dans ce qui suit.

La forme de la goutte est définie à partir de la distance $R(\Omega) = |O\dot{M}|$ entre le centre de masse O de la goutte et un point M arbitraire de sa surface dans la direction $\Omega = (\theta, \phi)$.

En supposant une goutte axiale autour de Oz, $R(\Omega)$ ne dépend pas de l'angle azimutal ϕ et $R(\theta)$ peut être développé sur les polynômes de Legendre :

$$R(\theta) = R_0 \left(1 + \sum_{l=0}^{\infty} a_l P_l(\cos \theta) \right)$$
(2-1)



où $R_0 = r_0 A^{1/3}$ est le rayon de la goutte quand elle est sphérique. Les paramètres a_l caractérisent la géométrie de la goutte : a_0 contrôle son volume, a_1 la position de son centre de masse, a_2 sa déformation quadrupolaire (le rapport entre son élongation le long de l'axe Oz et le long d'un

⁴Seule la découverte du Rhenium leur est attribuée. Celle de l'élément Z=43 reviendra à C. Perrier et E. Segré en 1937. Cet élément est appelé depuis "Technetium". La pertinence des travaux de W. et I. Noddack est encore aujourd'hui discutée dans la littérature [12]. Voir également la "Note historique", page 2 du livre de C. Wagemans (Ref. 8 de la Bibliographie générale).

axe transverse), a_3 sa déformation octupolaire (son asymétrie droite/gauche par rapport à un plan perpendiculaire en O à Oz), a_4 sa déformation hexadécapolaire (non nulle en particulier lorsque la goutte a la forme de deux sous-gouttes reliées par un col), etc

La conservation du volume de la goutte et celle de la position de son centre de masse fournissent deux équations :

$$\begin{cases} V \equiv \frac{4\pi}{3} R_0^3 = \int d\Omega \int_0^{R(\theta)} r^2 dr = \frac{1}{3} \int d\Omega \left(R(\theta) \right)^3 \\ 0 = \int d\Omega \int_0^{R(\theta)} (r \cos \theta) r^2 dr = \frac{1}{4} \int d\Omega \cos \theta \left(R(\theta) \right)^4 \end{cases}$$
(2-2)

qui permettent d'exprimer a_0 et a_1 en fonction des a_l , $l \ge 2$. En limitant le développement des puissances de $R(\theta)$ au second ordre dans les a_l , on trouve :

$$a_0 = -\sum_{l \ge 2} \frac{(a_l)^2}{2l+1}, \qquad a_1 = 0$$
 (2-3)

L'énergie de déformation de la goutte est la somme de la variation de son énergie de surface et de son énergie coulombienne en fonction des paramètres de déformation $a=(a_2, a_3, ...)$. L'énergie de surface est $E_S(a) = \sigma S(a)$ où S(a) est l'aire de la surface de la goutte et σ le coefficient de tension de surface. A déformation nulle :

$$E_S(0) = 4\pi R_0^2 \sigma \tag{2-4}$$

A déformation non nulle, l'aire S(a) peut être calculée selon l'expression :

$$S(a) = \int_{S(a)} dS = \int d\Omega \left(\left(R(\theta) \right)^2 + \left(i \vec{l} R(\theta) \right)^2 \right)^{1/2}$$
(2-5)

avec $i\vec{l}=\vec{r}\times\vec{\nabla}$. En se limitant au second ordre dans les a_l et en tenant compte de (2-3), on obtient après un calcul assez fastidieux :

$$E_S(a) = E_S(0) \left(1 + \frac{1}{2} \sum_{l \ge 2} \frac{(l-1)(l+2)}{2l+1} a_l^2 \right)$$
(2-6)

L'énergie coulombienne de la goutte est :

$$E_C(a) = \frac{1}{2} \int d^3 r_1 \int d^3 r_2 \frac{\rho_c(\vec{r}_1)\rho_c(\vec{r}_2)}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|}$$
(2-7)

où la densité de charge $\rho_c(\vec{r})$ vaut Ze/V si $r < R(\theta)$ et zéro sinon. En développant $1/|\vec{r_1} - \vec{r_2}|$ en multipôles :

$$\frac{1}{|\vec{r_1} - \vec{r_2}|} = \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^{+l} \frac{4\pi}{2l+1} \frac{r_{<}^l}{r_{>}^{l+1}} Y_l^{m*}(\Omega_1) Y_l^m(\Omega_2)$$
(2-8)

avec $r_{<} = \min(r_1, r_2), r_{>} = \max(r_1, r_2)$ et en se limitant comme plus haut à l'ordre deux dans les a_l , on trouve après un calcul tout aussi fastidieux que le précédent :

$$E_C(a) = \frac{3}{5} \frac{(Ze)^2}{R_0} \left(1 - 5 \sum_{l \ge 2} \frac{l-1}{(2l+1)^2} a_l^2 \right)$$
(2-9)

On retrouve à déformation nulle l'énergie coulombienne d'une sphère uniformément chargée de rayon R_0 :

$$E_C(0) = \frac{3}{5} \frac{(Ze)^2}{R_0} \tag{2-10}$$

Finalement l'énergie de déformation de la goutte qui est :

$$E_{def}(a) \equiv E_S(a) + E_C(a) - E_S(0) - E_C(0)$$

peut s'écrire :

$$E_{def}(a) = E_S(0) \sum_{l \ge 2} \left(\frac{(l-1)(l+2)}{2(2l+1)} - 10x \frac{l-1}{(2l+1)^2} \right) a_l^2$$
(2-11)

avec :

$$x = \frac{E_C(0)}{2E_S(0)} \tag{2-12}$$

Ce paramètre x est appelé **paramètre de fissilité**. Il a été introduit pour la première fois par Bohr et Wheeler dans leur article de 1939. Il possède un sens physique clair : plus x est grand et plus l'influence des forces de Coulomb domine sur celles venant de la tension de surface. Ce paramètre mesure donc la propension du noyau à fissionner. Les expressions (2-4) et (2-10) et la relation $R_0 = r_0 A^{1/3}$ montrent que x est proportionnel à Z^2/A . En prenant des valeurs standards pour σ et r_0 , on trouve :

$$x \simeq \frac{Z^2/A}{50} \tag{2-13}$$

Les équations précédentes ont diverses conséquences :

• Si on se limite aux déformations quadrupolaires, celles qui interviennent en premier lieu dans l'évolution du noyau vers la fission, (2-11) s'écrit :

$$E_{def}(a_2) = E_S(0)\frac{2}{5}(1-x)a_2^2$$
(2-14)

L'énergie de déformation est donc négative si x > 1. Autrement dit, la goutte est instable dans son état fondamental si $Z^2/A > 50$. La condition x > 1 ne se rencontre en fait que dans le domaine des super-lourds. Les actinides ont des fissilités qui se situent aux alentours de .72 - .77. Ces derniers sont par conséquent stables autour de leur état fondamental conformément à ce que les observations expérimentales suggèrent.

• En faisant la différence entre l'énergie totale (surface+coulomb) du noyau (A, Z) sphérique et celles de deux noyaux (A/2, Z/2) également sphériques, on obtient l'énergie libérée par la fission symétrique du noyau (A, Z). En utilisant les expressions (2-4) et (2-10), on trouve que cette énergie vaut :

$$E_{def}(\infty) = E_S(0) \left(2^{1/3} - 1 - x(2 - 2^{1/3}) \right) \simeq E_S(0) (0.260 - 0.740x)$$
(2-15)

Cette expression montre que la fission (symétrique) est exothermique $(E_{def}(\infty) < 0)$ lorsque $x > 0.260/0.740 \simeq 0.35$. Compte tenu de (2-13), cette dernière valeur correspond aux noyaux de la vallée de stabilité plus lourds que le ⁹⁰Zr⁵.

 $^{{}^{5}}$ Ce résultat ne veut pas dire que ces noyaux sont fissiles. Il signifie seulement que, si on parvient à les faire fissionner, le bilan en énergie sera positif.

Lorsque les paramètres de déformation a_l ne sont pas petits, les développements au second ordre ci-dessus ne suffisent pas. Les calculs sont alors beaucoup plus compliqués.

Dans leur article de 1939, Bohr et Wheeler mènent le calcul de l'énergie de déformation jusqu'à l'ordre 4 dans les paramètres a_2 et a_4 . Ils minimisent ensuite cette énergie vis-à-vis de a_4 pour chaque valeur de a_2 . Ceci leur permet de trouver sur le paysage $E_{def}(a_2, a_4)$ l'équation $a_4=a_4(a_2)$

du fond de la vallée qui mène à la fragmentation du noyau. La quantité $E_{def}(a_2, a_4(a_2))$ est l'énergie de déformation le long du fond de cette vallée. Bohr et Wheeler montrent alors que, pour les fissilités x < 1, cette énergie de déformation présente un maximum. La situation est illustrée sur la figure ci-contre adaptée de leur article ([6], Fig. 3), où α_2 et α_4 représentent les paramètres a_2 et a_4 . La variable désignée par x sur la figure n'est pas la fissilité mais une abscisse le long du fond de vallée qui mène vers la fission. Le bas de la figure montre la variation de l'énergie de déformation en fonction de x. Le maximum, de hauteur E_F , apparaît comme un col, ou encore un point selle sur le paysage d'énergie $E_{def}(a_2, a_4)$ comme l'indique la figure du haut. Au niveau de ce col, la goutte est sur le point de se fractionner en deux sous-gouttes. L'énergie de déformation le long du chemin de fission se présente donc sous la forme d'une barrière de potentiel, C'est la fameuse **barrière de fission**.



L'existence de cette barrière, démontrée pour la première fois par Bohr et Wheeler, donne une base physique au mécanisme imaginé par L. Meitner et O. Frisch dans le cas de l'Uranium : dans son état fondamental, le noyau est stable vis-à-vis de différents types de déformation ; lorsqu'une énergie supplémentaire lui est apportée par la capture d'un neutron, la barrière peut être surmontée, et la déformation du noyau peut atteindre et dépasser le point où il se divise irrémédiablement en deux fragments.

Il est remarquable de constater que les estimations de hauteurs de barrières auxquelles sont arrivés Bohr et Wheeler sont quantitativement tout à fait réalistes. La figure ci-contre, extraite de la Fig. 4 de leur article, donne les hauteurs qu'ils ont trouvées dans la région des actinides. Les valeurs se situent entre 5 MeV pour l'²³⁸U et 7 MeV pour le ²³²Th. Ces chiffres sont à 10% près ceux qui sont adoptés dans les évaluations les plus récentes.



Dans les années qui ont suivi l'article de Bohr et Wheeler, avec le succès qu'a représenté leur interprétation, le modèle de la goutte liquide a été considérablement généralisé. Leur calcul a été rapidement étendu aux formes de goutte non axiales et asymétriques droite-gauche. Une présentation en est donnée dans l'ouvrage de L. Wilets cité en Ref. 2 de la Bibliographie générale. Par la suite et même très récemment, le modèle a été raffiné de différentes façons

afin de tenir compte notamment de la diffusivité de la surface nucléaire [13] et de sa courbure [14]. Une autre approche très puissante permettant de décrire une goutte nucléaire possédant une surface diffuse et des déformations très générales est le "Yukawa+exponential model" ou "Finite Range Liquid Drop Model" (FRLDM) [15] développé vers la fin des années 1970 à Los Alamos et devenu plus tard le "Finite Range Droplet Model" (FRDM) [16] encore utilisé de nos jours.

On peut s'étonner de ces efforts déployés pour perfectionner un modèle qui, comme on le sait, est loin de reproduire le comportement connu des noyaux. En effet, une goutte de liquide chargée possède un état d'équilibre sphérique alors que la plupart des noyaux sont déformés dans leur état fondamental. De même, lorsqu'elle est amenée à se casser en deux sous l'action d'une force extérieure, une goutte liquide se fractionne en deux gouttes égales. Or, la plupart des actinides se fragmentent préférentiellement en deux noyaux de masses inégales.

En fait, comme on va le voir dans la section suivante, les insuffisances du modèle de la goutte liquide proviennent d'effets liés à la structure en couches du noyau et une technique a été mise au point qui permet de corriger le comportement de l'énergie de déformation donné par la goutte liquide en ajoutant la contribution de ces effets de couches. De ce fait, encore aujourd'hui, beaucoup de calculs de barrières de fission commencent par déterminer l'énergie de déformation du noyau avec le modèle de la goutte liquide, l'influence des effets de couches étant prise en compte dans une seconde étape. L'application de cette procédure exige alors de disposer de modèles de type goutte liquide aussi réalistes que possible.

2.3 La méthode de Strutinski et la barrière de fission à deux bosses

Dans les années 1950-60, il est devenu clair qu'il fallait incorporer les effets de la structure en couches des nucléons dans la description des noyaux en général et de la fission en particulier. L'existence de cette structure en couches provenait de la mise en évidence expérimentale de nombres "magiques" de nucléons qui influencent diverses propriétés nucléaires, notamment leur énergie de liaison : les noyaux qui ont un nombre de protons et/ou de neutrons qui est magique

sont comparativement plus liés que les noyaux voisins. Les travaux de Haxel, Jensen et Suess [17] et ceux de M. G. Mayer [18] avaient démontré que l'existence des nombres magiques pouvait s'expliquer en supposant que les nucléons évoluaient à la façon de particules indépendantes dans un potentiel moyen comportant notamment une forte composante spin-orbite. Quelques années après, en généralisant le potentiel moyen aux noyaux déformées, Nilsson montrait que la structure en couches se modifiait également en fonction de la déformation du noyau [19]. Cette observation expliquait pourquoi beaucoup de noyaux préfèrent adopter une forme non pas sphérique mais déformée. La figure ci-contre est un diagramme de Nilsson montrant les ni-



veaux de neutrons en fonction d'une déformation axiale notée ε . Le nombre magique N=126 à déformation nulle fait que le ${}^{208}_{82}$ Pb₁₂₆ est sphérique dans son état fondamental. De même, le nombre magique N=152 qui apparaît à ε =0.25 procure, à cette déformation, un excès de liaison aux noyaux ayant 152 neutrons, par exemple le ${}^{250}_{98}$ Cf₁₅₂. Cet excès de liaison est suffisant pour que la courbe représentant l'énergie de déformation du noyau en fonction de ε présente un minimum pour ε = 0.25. Cette valeur de déformation représente donc celle de l'état fondamental du noyau.

Plus généralement, il apparaît que l'énergie de déformation d'un noyau est fortement influencée par la structure des spectres à une particule proton et neutron en fonction de la déformation, en présence ou non de nombres magiques. Plus précisément, si on compare l'énergie de déformation d'un noyau donné avec celle calculée avec le modèle de la goutte liquide – donc sans effets de couches –, la première tend à être plus faible lorsque la densité de niveaux à une particule "se raréfie" autour du dernier niveau occupé (le niveau de Fermi). Au contraire, l'énergie de déformation du noyau réel tend à être plus élevée que celle donnée par la goutte liquide lorsque la densité de niveaux à une particule "se densifie" au voisinage du niveau de Fermi. La différence entre les énergies de liaison ou de déformation avec et sans les effets de couches est appelée la **correction de couches**.

En 1967-1968, Strutinski inventa une méthode simple et astucieuse permettant de calculer quantitativement la **correction de couches** à l'énergie de liaison ou à l'énergie de déformation des noyaux [20]. Les hypothèses sur lesquelles elle repose sont les suivantes :

• L'énergie totale E d'un noyau ayant N particules peut être séparée en une composante \overline{E} variant lentement avec le nombre de nucléons et une composante oscillante \widetilde{E} :

$$E = \overline{E} + \widetilde{E} \tag{2-16}$$

- La composante \overline{E} peut être assimilée à l'énergie de la goutte liquide
- La composante \vec{E} représente la correction de couches. Elle peut être évaluée avec le modèle à une particule selon l'expression :

$$\widetilde{E} = E_{1p} - \overline{E_{1p}} \tag{2-17}$$

où $E_{1p} = \sum_{i=1}^{N} \varepsilon_i$ est la somme des énergies à une particule du système réel et $\overline{E_{1p}}$ la somme des énergies à une particule d'un système fictif équivalent où le spectre à une particule ne présentent pas d'effet de couches⁶

En notant $g(\varepsilon)$ la densité de niveau à une particule du système réel :

$$g(\varepsilon) = \sum_{i=1}^{\infty} \delta(\varepsilon - \varepsilon_i)$$
(2-18)

et $\overline{g}(\varepsilon)$ celle du système fictif, la correction de couches s'écrit :

$$\widetilde{E} = \int_{-\infty}^{\mu} \varepsilon \, g(\varepsilon) \, d\varepsilon - \int_{-\infty}^{\overline{\mu}} \varepsilon \, \overline{g}(\varepsilon) \, d\varepsilon \tag{2-19}$$

⁶Pour simplifier, on suppose un seul type de nucléons, par exemple des neutrons. Dans la pratique, la méthode est appliquée séparément aux neutrons et aux protons et les corrections de couches sont ajoutées.

ou μ et $\overline{\mu}$ sont les potentiels chimiques des deux systèmes. Ils sont tels que :

$$\int_{-\infty}^{\mu} g(\varepsilon) \, d\varepsilon = \int_{-\infty}^{\overline{\mu}} \overline{g}(\varepsilon) \, d\varepsilon = N \tag{2-20}$$

La densité de niveaux g est supposée connue. On l'obtient en calculant les énergies propres d'un hamiltonien à un corps construit avec un potentiel nucléaire moyen approprié, par exemple un potentiel de Woods-Saxon ou de Nilsson. Reste à déterminer la densité de niveaux \overline{g} .

Dans sa méthode, Strutinski suppose qu'on peut l'obtenir en "lissant" la densité g. Sur la figure ci-contre, tirée du livre de Ring et Schuck [21], la courbe en trait plein représente schématiquement la densité g telle qu'on l'obtient avec un modèle à une particule standard (le tracé suppose que l'on a remplacé la série de fonctions δ de la définition (2-18) par le nombre de niveaux dans un petit intervalle d'énergie donné). La fonction g augmente en fonction de l'énergie à une particule ε et elle comporte des oscillations qui correspondent aux effets de couches. La quantité $\hbar\omega_0$ mesure l'espacement moyen entre les couches majeures. La ligne pointillée indique le comportement que l'on attend de la densité \overline{g} . Cette courbe représente bien un système où les effets de couches sont



absents et il est visible qu'elle se présente comme la courbe obtenue en lissant la courbe représentative de g. La façon la plus naturelle d'effectuer ce lissage est de convoluer g avec une gaussienne normalisée :

$$\overline{g}(\varepsilon) = \int \frac{e^{-(\varepsilon - \varepsilon')^2 / \gamma^2}}{\gamma \sqrt{\pi}} g(\varepsilon') \, d\varepsilon'$$
(2-21)

la largeur γ de la gaussienne étant de l'ordre de $\hbar\omega_0$. Cette forme ne convient pas cependant, car un lissage de la fonction \overline{g} elle-même avec l'expression ci-dessus ne redonne pas la fonction \overline{g} . Strutinski a montré qu'un lissage répété fournit la même fonction \overline{g} si l'on adopte l'expression plus générale :

$$\overline{g}(\varepsilon) = \int \sum_{n=0}^{M} P_{2n}\left(\frac{\varepsilon - \varepsilon'}{\gamma}\right) \frac{e^{-(\varepsilon - \varepsilon')^2/\gamma^2}}{\gamma\sqrt{\pi}} g(\varepsilon') \, d\varepsilon'$$
(2-22)

où $P_{2n}(x)$ est un polynôme proportionnel au polynôme de Hermite $H_{2n}(x)$.

La technique de lissage et, par conséquent, la correction de couches \overline{E} , dépendent alors de deux paramètres : la largeur γ et le degré maximum 2M du polynôme. Ces deux quantités sont déterminées empiriquement en prenant la plus petite valeur de M pour laquelle la correction de couches $\overline{E}(\gamma, M)$ garde la même valeur sur un grand intervalle de γ , par exemple d'amplitude $\hbar\omega_0$. C'est la "condition de plateau" de la méthode de Strutinski. Elle assure que la correction de couches finale est sensiblement indépendante des paramètres empiriques γ et M.

Ainsi, la méthode de Strutinski combine le modèle de la goutte liquide et le modèle à une particule du noyau. Pour cette raison, on lui donne souvent le nom d'"approche macroscopiquemicroscopique". En 1975, M. Brack et P. Quentin on donné une justification à cette approche empirique à partir de la théorie Hartree-Fock [22]. La méthode de Strutinski est employée couramment pour corriger l'énergie de liaison des noyaux dans leur état fondamental. L'énergie de liaison est d'abord évaluée avec le modèle de la goutte liquide (ou ses généralisations récentes). On y ajoute ensuite la correction de couches. Cette même technique a évidemment été appliquée aussi à la fission. C'est même dans ce but que Strutinski l'a originellement mise au point. Dans ce cas, la correction de couches est calculée pour chacune des configurations nucléaires déformées qui apparaissent le long du chemin de fission. En ajoutant cette correction en chaque point de la barrière de fission calculée avec la goutte liquide, on trouve une nouvelle barrière de fission "corrigée" qui tient compte des effets de couches.

La figure ci-contre représente le résultat obtenu de cette façon par J. R. Nix pour la barrière de fission du ²⁴⁰Pu [23]. Les courbes en pointillé représentent l'énergie de déformation du noyau calculée avec un modèle de type goutte liquide et les courbes en trait plein celles obtenues après avoir appliqué la correction de couches de Strutinski. Dans le haut de la figure, l'énergie est tracée en fonction d'un paramètre de déformation quadrupolaire axiale noté y et le noyau est contraint à être symétrique droite-gauche. On voit que l'énergie de déformation de la goutte liquide se présente sous la forme d'une barrière de fission analogue à celles prédites par Bohr et Wheeler, mais que la correction de couches modifie profondément cette barrière. Le minimum à déformation nulle est déplacé à une déformation $y \simeq 0.06$ et un second minimum apparaît, encadré par deux maxima qui se situent à des énergies plus élevées que celles de la goutte liquide.



La prise en compte de la correction de couches fait donc apparaître **une barrière de fission à deux bosses**. Les deux minima correspondent, l'un à l'état fondamental (déformé) du noyau, l'autre à un état localement stable mais plus déformé et d'énergie plus élevée, donc métastable, **l'isomère de fission**.

Le bas de la figure montre l'énergie de déformation en fonction d'un paramètre α_2 qui mesure l'asymétrie droite-gauche de la forme du noyau à une déformation y correspondant au sommet du second maximum de la barrière de fission à deux bosses. On constate que le minimum de l'énergie de la goutte liquide est obtenu, comme on s'y attend, pour une asymétrie droite-gauche nulle, mais que la correction de couches altère notablement ce résultat : la courbe en trait plein possède deux minima à des asymétries droite-gauche $\alpha_2 = \pm 0.75$. Ces minima correspondent à des formes de noyau miroirs l'une de l'autre. Le gain en énergie par rapport à l'énergie de déformation au point $\alpha_2 = 0$ est d'environ 3.5 MeV. Il est reporté sur la figure du haut sous la forme d'une flèche descendante. On observe que ce gain en énergie produit un abaissement considérable de la seconde barrière de fission : sa hauteur finale est pratiquement égale à celle de la première barrière.

Les calculs de barrière de fission effectués avec la correction de couches de Strutinski dans les années 1970 ont montré que les actinides usuels (U, Pu, Cm, Cf) possédaient tous une barrière de fission à deux bosses. Comme nous le verrons dans la Section 4, la hauteur relative des deux bosses varie selon le noyau, de même que l'énergie d'excitation de l'isomère de fission.

En revanche, tous ces noyaux possèdent une forme asymétrique droite/gauche ("en poire") au sommet de la seconde barrière de fission, comme dans l'exemple du ²⁴⁰Pu mentionné ci-dessus.

Ce résultat a eu un retentissement considérable car d'une part il démontrait l'existence d'un état isomérique dans les actinides, d'autre part il permettait de comprendre pourquoi les actinides fissionnaient de préférence en deux fragments inégaux. L'existence de l'isomère de fission, en particulier, expliquait d'une façon très naturelle la découverte par Polikanov en 1962 d'une fission spontanée ayant un temps de vie de 14 ms, beaucoup plus court que ceux des systématiques habituelles (qui se chiffrent plutôt en années) [24]. Cette fission spontanée inhabituelle était celle de l'isomère de fission de l'²⁴²Am. La probabilité de fission de cet isomère est beaucoup plus élevée que celle de l'état fondamental car il est situé à une énergie d'excitation d'environ 3 MeV au-dessus de l'état fondamental, et la barrière de fission qu'il voit est constituée seulement de la seconde barrière de fission. Le temps de vie de l'isomère de fission de l'²⁴²Am est cependant l'un des plus longs observés dans les actinides. La plupart d'entre eux sont plutôt de l'ordre de quelques μs ou ns.

Une autre observation que l'existence de l'isomère de fission expliquait de façon très élégante était la présence d'une structure intermédiaire dans les sections efficaces de fission à des énergies au-dessous du seuil, c'est-à-dire inférieures à la hauteur des barrières de fission. Nous y reviendrons dans les Sections 3 et 4.

3 50 années de mesures. Systématiques

3.1 Caractéristiques générales de la fission

La fission peut se manifester dans pratiquement tous les noyaux avec une probabilité qui dépend de l'énergie d'excitation déposée et de la hauteur de la barrière de fission.

La figure ci-contre donne une estimation en MeV de la hauteur de la barrière de fission en fonction de A pour les noyaux situés le long de la vallée de stabilité (c'est-à-dire pour l'isotope le plus stable à chaque valeur de A). Elle est tirée d'un calcul de de Myers et Swiatecki de la fin des années 1960 [25]. La courbe la plus épaisse représente les hauteurs de barrières obtenues avec le modèle de la goutte liquide. La courbe en trait fin inclut les effets de couches. On voit que la barrière de fission n'est relativement basse – inférieure à 10 MeV – que dans les noyaux de masse supérieures à 230. Elle tombe pratiquement à zéro au-delà de A=280, sauf au



voisinage de A=300 où apparaît le nombre magique de neutrons N=184. L'effet de couches correspondant procure aux noyaux superlourds ayant un nombre de neutrons aux alentours de cette valeur un regain considérable de stabilité, et leur barrière de fission atteint, voire dépasse, les 10 MeV. Les noyaux de cette région constituent ce que l'on a appelé un "îlot de stabilité". L'existence d'un tel îlot est confirmé par les calculs les plus récents.

Dans la suite, on se limitera à la fission des noyaux de la région des actinides, et on ne considérera que la fission spontanée ou induite par des projectiles de basse énergie, l'énergie d'excitation déposée dans le noyau fissionnant ne dépassant pas 10 ou 15 MeV.

Les caractéristiques principales de la fission peuvent alors être résumées de la façon suivante :

- 1 la fission peut être binaire c'est-à-dire produire deux fragments mais également ternaire. Le troisième noyau est dans 90% des cas une particule α . Il peut également être un triton (dans 7% des cas) ou un noyau plus lourd comme un isotope du Carbone ou du Néon. La probabilité de fission ternaire est d'environ 2-3 10⁻³, donc relativement faible.
- 2 le rapport N/Z des fragments de fission est sensiblement égal à celui du noyau qui fissionne⁷. Comme les fragments sont beaucoup plus légers que le noyau père, ce sont des noyaux nécessairement riches en neutrons. Le nombre de neutrons excédentaires par rapport à l'isotope le plus stable est de l'ordre de 6 dans chaque fragment.
- 3 dans les actinides, la fission est exothermique. Convenons de définir le Q de la réaction comme la différence entre la masse du noyau père et la somme des masses des fragments après leur désexcitation vers des isotopes stables. L'énergie d'excitation du noyau père étant noté E^* , l'énergie totale que fournit la fission du noyau est alors $Q + E^*$. Elle est de l'ordre de 180 à 240 MeV. Cette énergie se répartit après fission essentiellement de la façon suivante :
 - 75% à 85%, soit 140 à 200 MeV, en énergie cinétique des fragments
 - environ 10%, soit 20 à 25 MeV, en neutrons prompts émis par les fragments
 - environ 4%, soit 7 à 10 MeV, en γ prompts émis par les fragments
 - environ 8%, soit 15 à 20 MeV, par des processus "retardés" : décroissance β des fragments suivie de l'émission de neutrons retardés conduisant à des noyaux stables

Comme leur nom l'indique, les neutrons et γ prompts sont émis par les fragments dans un laps de temps très court – moins de quelques ns – après la scission du noyau. Les neutrons retardés représentent moins de 1% des neutrons émis au total. Dans les 15-20 MeV produits par les processus retardés, 1/3 correspond à l'énergie des électrons de la décroissance β et 2/3 à l'énergie des antineutrinos.

La figure 1 donne une représentation schématique de la chronologie d'un événement de fission. On pense que le temps d'évolution moyen entre la formation du noyau composé et la scission du noyau est au moins de $10^{-19}s$. Ce dernier chiffre, qui résulte de mesures par M. Morjean et collaborateurs au GANIL [26, 27], correspond à une fission induite à une énergie d'excitation supérieure à la hauteur de la barrière de fission. Il est évidemment extrêmement grand dans le cas de la fission spontanée. Après scission, les deux fragments se séparent très rapidement sous l'action de la répulsion coulombienne. Dans un délai inférieur à $10^{-17}s$ ils évacuent leur énergie d'excitation, environ 25-30 MeV au total, en émettant 2 à 4 neutrons. Lorsque leur énergie d'excitation devient inférieure à l'énergie de liaison d'un neutron, ils continuent de se désexciter par émission gamma. Ce processus est relativement lent, au moins $10^{-14}s$, car gouverné par l'interaction électromagnétique. A ce stade, les fragments ont une énergie résiduelle faible mais sont encore excédentaires en neutrons. Ils se rapprochent alors de la vallée de stabilité par transitions β suivies parfois de l'émission d'un neutron retardé. Ces neutrons retardés

⁷Nous ne considérons dans ce qui suit que les fragmentations binaires.



FIG. 1 – Représentation schématique de la chronologie du phénomène de fission.

représentent moins de 1% des neutrons émis au total⁸. La décroissance des fragments pendant cette phase est très lente car dépendante de l'interaction faible. Elle peut se poursuivre pendant des minutes, des mois ou des années. Les fragments formés immédiatement après la scission du noyau sont souvent appelés "fragments primaires". Après désexcitation plus ou moins complète, on les dénomme "produits de fission".

3.2 La fission spontanée

La fission spontanée d'un noyau a lieu par effet tunnel sous la barrière de fission. La mesure des temps de vie de fission spontanée donne donc des informations sur la pénétrabilité de la barrière.

La figure 2, tirée du livre de C. Wagemans (p. 40 de la Ref. 8 de la Bibliographie générale), donne en échelle logarithmique le temps de vie en années de la fission spontanée d'un certain nombre de noyaux entre le Thorium et le Bohrium en fonction d'un paramètre de fissilité défini dans le cadre du modèle de la gouttelette de Myers et Swiatecki [28] par :

$$x = \frac{Z^2/A}{(Z^2/A)_{crit}}, \qquad (Z^2/A)_{crit} = 50.883 \left(1 - 1.7826 \left(\frac{A - 2Z}{A}\right)^2\right)$$
(3-1)

On voit que les temps de vie varient entre 10^{18} ans pour les actinides légers et 380 μs pour certains noyaux de Z supérieurs à 100. Cette figure suscite deux remarques :

• le logarithme des temps de vie décroît pratiquement linéairement en fonction de la fissilité.

⁸Ils jouent cependant un rôle très important dans le pilotage des réacteurs. Voir par exemple le cours de Peter Baeten.



FIG. 2 – Demi-vie de la fission spontanée de noyaux entre le Thorium et le Bohrium en fonction d'un paramètre de fissilité défini dans le texte.

• les temps de vie des noyaux impairs sont d'un facteur 100 à 100000 plus grands que ceux des noyaux pair-pairs

Comme nous le verrons dans la Section 4, les modèles nucléaires permettent de donner une interprétation à ces observations.

Notons que les temps de vie associés à la fission spontanée des actinides usuels ($90 \le Z \le 96$) sont très grands. De ce fait, ce n'est pas la fission qui détermine le temps de vie global de l'état fondamental du noyau mais plutôt la décroissance α . Par exemple le temps de vie de la fission spontanée de l'²³⁸U est 10¹⁶ ans. Son temps de vie par rapport à la décroissance α est 4.510⁹ ans. C'est ce dernier qui représente le temps de vie observé du noyau.

3.3 La fission induite par neutrons

Lorsqu'un neutron est capturé par un noyau A dans son état fondamental, il peuple un ensemble de niveaux du noyau composé (A + 1) situés à une énergie d'excitation égale à l'énergie du neutron incident augmentée de l'énergie de séparation S_n d'un neutron dans le noyau (A + 1), ce que l'on peut écrire :

$$n(\varepsilon) + A \rightarrow (A+1)^*, \qquad E^*(A+1) = \varepsilon + S_n(A+1)$$
(3-2)

Les S_n des actinides valent plusieurs MeV. On en déduit que, après capture d'un neutron thermique ($\varepsilon \simeq 1/40 \text{ eV}$), le noyau (A + 1) se trouve pratiquement à une énergie d'excitation égale à $S_n(A+1)$. En général, l'énergie de séparation d'un neutron est plus élevée dans les noyaux pair-pairs que dans les noyaux impairs. Ceci est une conséquence des corrélations d'appariement qui sont plus importantes dans les noyaux pair-pairs que dans les noyaux impairs. Il en résulte qu'un neutron thermique apporte comparativement plus d'énergie d'excitation lorsque le noyau (A + 1) est pair-pair que lorsque (A + 1) est impair. D'autre part, comme le suggère – à juste raison – la figure 2, la barrière de fission des noyaux impairs est nettement plus élevée que celle des noyaux pair-pairs. On en déduit que la fission thermique induite sur des noyaux impairs est très favorisée par rapport à celle induite sur des noyaux pair-pairs.

L'exemple le plus connu concerne le couple 235 U, 238 U. Les S_n respectifs des noyaux qui fissionnent, 236 U et 239 U, sont 6.5 MeV et 4.8 MeV et les hauteurs de barrières de ces noyaux sont respectivement 5.5 MeV et 6.5 MeV. Par conséquent, la fission thermique de l' 235 U s'effectue avec une probabilité unité alors que celle de l' 238 U est pratiquement inexistante. Il faut en fait des neutrons ayant une énergie supérieure à environ 1.7 MeV pour que l' 238 U fissionne. Or la section efficace de capture des neutrons est environ 1000 fois inférieure pour des neutrons de cette énergie que pour des neutrons thermiques. D'où l'intérêt d'utiliser des neutrons thermiques pour induire la fission et donc de choisir l' 235 U comme noyau actif.



FIG. 3 – Sections efficaces de la fission induite par neutrons sur les noyaux 235 U et 238 U.

La figure 3, tirée du livre de K. S. Krane (p. 488 de la Ref. 7 de la Bibliographie générale), montre en échelle logarithmique les sections efficaces de la fission induite par neutrons sur les deux isotopes de l'Uranium. Comme on l'a vu plus haut, la fission induite de l'²³⁸U ne se produit que pour des énergies supérieures au MeV. Est indiquée sur la figure la valeur de la section efficace de l'²³⁵U, 584 b, pour des neutrons thermiques (ε =0.025 eV).

Le comportement linéaire dans la région thermique traduit la dépendance en $1/k^2$ des sections efficaces à basse énergie, où $\hbar^2 k^2/2M$ est l'énergie cinétique du neutron incident. La structure dans le domaine 1-100 eV provient de la capture du neutron sur des résonances séparées du noyau composé. C'est le "domaine des résonances séparées". A des énergies supérieurs à 1 keV,

les résonances deviennent extrêmement proches et se chevauchent. La structure résonnante n'est alors plus visible. C'est le "domaine des résonances non résolues". On observe que la section efficace thermique de l'²³⁵U est 1000 fois supérieure à celle de l'²³⁸U avec des neutrons rapides.

3.4 Les isomères de fission

Comme on l'a dit p. 12, la découverte des isomères de fission a eu un retentissement énorme dans la communauté des physiciens nucléaires, et un très grand nombre de travaux expérimentaux leur ont été consacrés. Plus de 30 isomères de fission ont été identifiés. Leur temps de vie vis-àvis de la fission et leur énergie d'excitation au-dessus de l'état fondamental ont pu être mesurés. Pour un certain nombre d'actinides, il a été également possible de mettre en évidence des états excités de l'isomère, notamment des états de vibration du noyau dans l'état isomérique ainsi que les bandes de rotations construites sur l'isomère de fission et sur certains des états excités de vibration.

La figure ci-contre est un diagramme en N et Z dans la région des actinides. Les cases en couleur indiquent les noyaux où ont été observés des isomères de fission. Le code de couleur indique leur temps de vie approximatif. On remarque que c'est dans la région située entre le Pu et le Bk que des isomères de fission ont été le plus souvent identifiés. Cette identification a toujours été réalisée en observant la fission de l'isomère. Comme on le verra plus loin, la



hauteur relative des deux barrières de fission se modifie en fonction de Z. Au-delà du Bk, la seconde barrière de fission devient la plus basse. Les isomères de fission ont alors un temps de vie très court et sont difficiles à observer. Au contraire, dans le Neptunium et les noyaux plus légers, la seconde barrière est plus haute et plus épaisse, de sorte que la fission de l'isomère est inhibée. Dans cette situation, l'isomère a tendance à décroître plutôt en direction du premier puits de potentiel en franchissant la première barrière. Cette transition peuple un état excité du premier puits qui décroît par émission γ . Ce mode de décroissance, représenté en vert sur la figure 4, constitue la "branche γ " de la décroissance de l'isomère de fission. Ce type de transition est très difficile à mesurer, ce qui explique les cases vides sur la figure ci-dessus dans la région des actinides légers. En fait, il est à peu près certain que ces derniers possèdent tous un isomère de fission mais qu'il n'a pas pu être mis en évidence expérimentalement. Les seuls nuclides où des "branches γ " de décroissance de l'isomère de fission ont été observées jusqu'ici sont les noyaux ²³⁸U, ²³⁶U et ²³⁹Pu.

Comme l'illustre la figure 4, les isomères de fission possèdent, de même que l'état fondamental du noyau, un ensemble d'états excités. Ceci a été confirmé par des mesures de décroissance γ peuplant l'isomère de fission. Ces états excités sont principalement des excitations vibrationnelles sur lesquels sont bâties des bandes de rotation. On appelle ces états "états de classe II", tandis que les excitations de l'état fondamental dans le premier puits sont dénommés "états de classe I". La mise en évidence de spectres de rotation de classe II a permis notamment de déterminer le moment d'inertie du noyau dans l'état isomérique. Les moments d'inertie qui ont été trouvés sont environ deux fois plus grands que ceux des états fondamentaux, ce qui confirme que les



FIG. 4 – Représentation schématique de la barrière de fission d'un actinide, des états du noyau composé et isomériques, et de divers processus de désexcitation et de fission du noyau.

isomères de fission correspondent à des configurations nucléaires très déformées. La déformation β que l'on en déduit est de l'ordre de 0.8, alors celle de l'état fondamental des actinides est environ de 0.3.

La mise en évidence d'états excités de classe II a permis, comme il a été évoqué page 12 d'expliquer de façon très directe et très élégante la présence d'une structure intermédiaire observée dans les sections efficaces de fission à des énergies au-dessous du seuil. Nous y reviendrons dans la Section 4.

3.5 Les caractéristiques des fragments

De très nombreuses expériences ont été consacrées à la mesure des observables associées aux fragments de fission dans les actinides. Les quantités que ces expériences ont permis de déterminer sont essentiellement la distribution en masse des fragments de fission, la distribution de leurs énergies cinétiques et la distribution en nombre et en énergie des neutrons accompagnant la fission.

3.5.1 Distributions en masse

La figure 5 de gauche montre en échelle logarithmique quelques distributions en masse typiques de celles mesurées dans la fission induite par neutrons sur les actinides. Les distributions sont normalisées à un total de 100%.

On voit que les masses de fragments se répartissent en deux pics, un pic de fragments lourds aux alentours de la masse 140 et un pic de fragments légers dans la région de masse 100-120. Cette figure montre que, pour les cinq noyaux envisagés, la distribution du fragment lourd est pratiquement la même, et que c'est le fragment léger qui adapte sa masse à la masse totale du noyau qui fissionne. Ce phénomène est général dans la plupart des actinides comme le montre



FIG. 5 – A gauche, distributions en masse des fragments dans la fission thermique des noyaux 233 U, 235 U et 239 Pu et dans la fission spontanée de 252 Cf et 256 Fm d'après la Réf. [29]. Les hachures indiquent la position des fermetures de couches. A droite, dépendance de la masse moyenne de la distribution des fragments lourds et de celle de la distribution des fragments légers en fonction de la masse du noyau qui fissionne d'après la Réf. [30].

la partie droite de la figure où sont reportées les masse moyennes des fragments de la fission de noyaux entre A=228 et A=256. On observe que les résultats expérimentaux se regroupent approximativement le long de droites et que la répartition des masses des fragments dépend assez peu de l'énergie d'excitation du noyau fissionnant.

La raison de l'asymétrie de la distribution en masse des fragments de fission est liée, comme nous l'avons évoqué dans la section 2.3, aux effets de couches. La partie gauche de la figure 5 montre que la distribution du fragment lourd est fortement influencée par les nombres magiques Z=50 et N=82 qui correspondent au noyau doublement magique riche en neutron ¹³²Sn. Le maximum de la distribution se prolonge vers les valeurs de A plus élevées en raison du nombre magique déformé N=88. Comme le rapport N/Z des fragments est proche de celui du noyau fissionnant ($N/Z \simeq 1.56$), ce nombre magique déformé fournit Z=56 et A=144, c'est-à-dire le ¹⁴⁴Ba. On voit que la distribution du fragment lourd s'étale largement de part et d'autre de ces valeurs de A les plus favorisées, ce qui donne aux distributions en masse des fragments lourds et des fragments légers des largeurs relativement importantes. Ceci provient essentiellement des effets dynamiques qui précèdent la scission du noyau. Nous reviendrons sur cet aspect dans la Section 5.

Soulignons que les distributions en masse de la figure 5 ne sont pas exactement celles mesurées expérimentalement. Les distributions mesurées sont effet des distributions de produits de fission, c'est-à-dire de fragments ayant chacun évaporé quelques neutrons prompts et elles ne sont généralement pas symétriques par rapport à la masse moitié A/2 du noyau. Les distributions expérimentales données dans la littérature – et celles que nous montrons ici – sont pour la plupart corrigées de l'émission des neutrons prompts afin de représenter la distribution des fragments primaires. Elles sont alors symétriques par rapport à A/2.

Le comportement des distributions en masse des fragments de fission qui vient d'être montré, s'il est le plus répandu dans les actinides, n'est pas cependant universel. Comme toujours dans la physique de la fission, certains noyaux font exception à la règle. Dans certains cas, la distribution ne comporte qu'un seul pic centré en A/2. La fragmentation du noyau la plus fréquente est alors celle en deux noyaux de mêmes masses, c'est-à-dire la fragmentation symétrique. Dans d'autres cas, les fragmentations symétriques et asymétriques peuvent coexister. Un exemple particulièrement spectaculaire est celui du ²²⁶Ra. La distribution en masse des fragments de ce

noyau comporte trois maxima. C'est ce que montre la figure ci-contre tirée de la Réf. [31]. Le maximum au centre correspond à la fission symétrique du noyau et les trois maxima ont approximativement la même hauteur. Ainsi, dans le ²²⁶Ra, la fission symétrique est aussi fréquente que la fission asymétrique. On explique ce comportement en notant que les noyaux nettement plus légers que les actinides (Z < 86) fissionnent généralement de façon symétrique. Ceci est une conséquence d'un profond changement dans la barrière de fission lorsque Z diminue en se rapprochant du Plomb (Z=82) : la hauteur de la barrière augmente et elle ne présente qu'un seul maximum au niveau duquel le noyau est symétrique droite/gauche. De ce fait, on peut considérer les noyaux



au voisinage du Radium comme des noyaux de transition ayant un comportement intermédiaire entre celui des actinides qui fissionnent asymétriquement et celui des noyaux plus légers de la région du Plomb qui fissionnent symétriquement.

Signalons également que, dans le cas des actinides habituels, le taux de fission symétrique augmente à mesure que l'énergie déposée dans le noyau fissionnant augmente. C'est ce que montre la partie gauche de la figure 6. On voit que dans la fission induite par neutrons sur l'²³⁵U, la fission symétrique, même si elle reste nettement moins probable que la fission asymétrique, est plus de 100 fois plus importante avec des neutrons de 14 MeV qu'avec des neutrons thermiques. A des énergies de plusieurs dizaines de MeV, la fission symétrique devient dominante⁹.

La partie droite de la figure 6 présente (en échelle linéaire) la variation de la distribution en masse entre la fission spontanée du ²⁴⁰Pu et la fission induite par des neutrons thermiques. On observe une augmentation importante en fission spontanée du rendement des fragmentations pour lesquelles le fragment lourd est au voisinage du noyau doublement magique ¹³²Sn. Comme on le verra plus loin (fig. 8) , la distribution en masse atypique mesurée en fission spontanée dans cet isotope du Plutonium s'accompagne d'une distribution en énergie cinétique également "anormale".

⁹En fait, la fission du noyau devient improbable car, le plus souvent, il commence par réémettre un ou plusieurs neutrons. Les noyaux dont on observe la fission sont alors des isotopes ayant un ou plusieurs neutrons de moins que le noyau composé initial. Les fissions qui suivent l'émission de 1, 2, ... neutrons sont appelées "fission de seconde chance", "fission de troisième chance",



FIG. 6 – A gauche, distributions en masse des fragments de la fission du noyau 236 U induite par des neutrons ayant des énergies comprises entre la valeur thermique (0.025 eV) et 14 MeV sur le noyau 235 U. A droite, comparaisons entre les distributions en masse des fragments du ²⁴⁰Pu mesurées dans la fission spontanée du noyau et dans la fission induite par des neutrons thermiques sur le 239 Pu. Ces diagrammes sont tirés des Réfs. [32] et [33].

Finalement, la figure ci-contre, tirée de la Réf. [34], montre une comparaison entre les distributions en masses du fragment lourd obtenues dans la fission spontanée de quatre isotopes du Plutonium. On voit que, dans la fission des deux isotopes les plus légers, $^{236}\mathrm{Pu}$ et $^{238}\mathrm{Pu},$ la masse la plus probable du fragment lourd se situe aux environs de 142 alors que la fission des deux autres isotopes, ²⁴⁰Pu et ²⁴²Pu, fournit un fragment dans la région de masse 134. Cette figure spectaculaire illustre une caractéristique souvent observée dans de fission : une variation de une ou deux unités du nombre de masse du noyau qui fissionne est capable de provoquer un changement radical dans certaines des observables mesurées. Nous en verrons un autre exemple plus loin avec la fission dite "bimodale".



Les variations dans les distributions en masse telles que celles représentées sur la figure précédente sont très difficiles à reproduire théoriquement car elles dépendent non seulement de la structure précise des fragments et des changements subtils qui interviennent d'un isotope à l'autre, mais aussi de la dynamique de l'évolution entre le noyau composé et la scission. Pour cette raison, ces résultats expérimentaux constituent un test très sévère des modèles théoriques. De fait, les approches théoriques les plus élaborées développées actuellement ne sont pas encore en mesure de reproduire en détail les effets présentés sur les distributions en masse ci-dessus.

3.5.2 Distributions des énergies cinétiques des fragments

L'énergie cinétique des fragments provient essentiellement de la répulsion Coulombienne entre les deux noyaux juste après la scission. Si Z_1 et Z_2 sont les charges des deux fragments, l'énergie cinétique qu'ils acquièrent à grande distance est approximativement :

$$E_K(Z1, Z2) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{d_{sciss}}$$
(3-3)

où d_{sciss} est la distance entre les centres de charge des deux noyaux au moment de la scission.



FIG. 7 – A gauche, distributions de l'énergie cinétique totale des fragments dans la fission induite par neutrons thermiques des noyaux 234 U, 236 U et 240 Pu [35]. A droite, distributions de l'énergie cinétique des fragments lourds (pic le plus bas) et des fragments légers (pic le plus haut) dans la fission induite par neutrons thermiques du noyau 236 U [36].

La figure 7 de gauche, tirée de la Réf. [35], montre les distributions de l'énergie cinétique totale des fragments mesurées dans la fission induite par neutrons thermiques des noyaux ²³⁴U, ²³⁶U et ²⁴⁰Pu. Ces distributions sont typiques de celles observées dans les actinides habituels. Elles ont des formes proches de gaussiennes centrées autour de 170-180 MeV et de largeurs 25-30 MeV. Ces distributions sont des "distributions en énergie cinétique moyenne" car elles intègrent la probabilité $Y(Z_1, Z_2)$ de production de chaque couple de charge au moment de la scission.

La figure 7 de droite représente la distribution de l'énergie cinétique des fragments déduite d'une expérience où l'énergie cinétique mesurée est corrélée avec la masse des fragments [36]. Elle concerne la fission thermique du noyau ²³⁶U. Le pic de droite, centré autour de 102 MeV,

donne la distribution de l'énergie cinétique des fragments légers et celui de gauche, piqué aux alentours de 68 MeV, celle des fragments lourds. En effet, dans une fission binaire, le rapport des énergies cinétiques des fragments est inversement proportionnel au rapport de leurs masses. Ceci provient du fait que, dans le centre de masse du système les deux fragments ont des quantités de mouvement égales en valeurs absolues. On remarque que la distribution en énergie cinétique des fragments légers est plus étroite que celle des fragments lourds (pour cette raison le pic de droite est plus élevé que celui de gauche car les aires des deux distributions doivent être égales). Ces largeurs différentes n'ont pas de signification physique particulière. Elles proviennent seulement de la géométrie de la distribution bidimensionnelle des énergies cinétiques des fragments¹⁰.

Le haut de la figure 8 montre des exemples où la distribution en énergie cinétique moyenne n'est pas gaussienne, contrairement au cas général. Ils concernent la fission spontanée de trois isotopes du Plutonium. Les points accompagnés de barres d'erreur sont issus de mesures. Les lignes continues donnent le résultat d'une décomposition de la distribution expérimentale en deux gaussiennes.



FIG. 8 – En haut, distributions en énergie cinétique moyenne mesurées dans la fission spontanée de trois isotopes du Plutonium. En bas, distributions en masse du fragment lourd correspondantes. Les courbes ajustées sur les point expérimentaux ont été décomposées en deux gaussiennes afin de faire apparaître deux modes de fission. Les figures sont tirées de la Réf.[34].

Le bas de la figure représente les (demi) distributions en masse correspondantes (la partie relative au fragment lourd). Elles sont également décomposées en deux gaussiennes. On observe que le ²³⁸Pu se comporte de façon presque "normale" avec une distribution en énergie cinétique quasi-gaussienne et une distribution en masse dont le pic lourd est sensiblement symétrique. En revanche, dans les ²⁴⁰Pu et ²⁴²Pu, les décompositions en deux gaussiennnes font apparaître une composante nouvelle correspondant à des fragments aux alentours de la masse 132 ayant une énergie cinétique élevée (cf. également la figure 6 p. 21). Cette structure supplémentaire,

¹⁰Pour plus de détail, voir la Figure 33, page 330 du livre de C. Wagemans, Réf. 8 de la Bibliographie générale, et les explications de F. Gönnenwein sur la même page.

qui n'existe pas en fission induite par neutrons, semble due à l'ouverture en fission spontanée d'un mode de fission nouveau.



FIG. 9 – A gauche, distributions en énergie cinétique des fragments dans la fission spontanée de quatre isotopes du Fm [37]. A droite, distribution en masse du ²⁵⁸Fm (ligne épaisse ajustée sur les données expérimentales) et sa décomposition selon le Z des fragments [38]. En particulier, la courbe passant par les croix représente le rendement des isotopes de l'Etain (Z=50).

Un exemple encore plus frappant est la fission dite "bimodale" observée d'abord dans deux isotopes du Fm, puis dans d'autres actinides lourds (Md, No). Comme le montre la partie gauche de la figure 9, la distribution en énergie cinétique des fragments de la fission spontanée du ²⁵⁸Fm, au lieu d'être gaussienne, est fortement asymétrique avec un sommet déplacé de 30 à 40 MeV vers les hautes énergies alors que les ²⁵⁴Fm et ²⁵⁶Fm ont des distributions "normales". L'effet est moins apparent dans le ²⁵⁹Fm car l'expérience a une statistique faible, mais il est visible que la distribution est également déplacée vers la droite. Le ²⁵⁷Fm (non montré sur la figure) se comporte de façon intermédiaire entre les ²⁵⁶Fm et ²⁵⁶Fm. Une analyse de la distribution en énergie cinétique du ²⁵⁸Fm montre qu'elle peut être décomposée en deux gaussiennes, l'une centrée autour de 200 MeV, l'autre autour de 230 MeV.

La partie droite de la figure 9 montre la distribution en masse de ce noyau. On voit que la fission symétrique est largement prépondérante. Une décomposition de cette distribution selon les valeurs de Z des fragments fait apparaître une importante composante – environ 50% de la distribution – constituée d'isotopes de l'Etain (Z=50), et qui est responsable des fragmentations symétriques ou quasi-symétriques. Les autres valeurs de Z prises ensemble se répartissent selon une distribution asymétrique piquée autour de A=123 et A=135. Une analyse plus poussée des résultats expérimentaux a montré que la composante à haute énergie cinétique (~ 230 MeV) correspondait à la fragmentation en deux étains et que la composante à énergie cinétique plus basse (~ 200 MeV) était associée à la composante asymétrique en masse [39]. Ces observations ont suggéré que la fission spontanée du ²⁵⁸Fm était la superposition de deux modes de fission indépendants – d'où le nom de "bimodal" – : l'un où la scission produit deux étains à petite distance l'un de l'autre, donc destinés à acquérir une grande énergie cinétique (cf. (3-3)), l'autre fournissant deux noyaux de masses légèrement différentes à une distance plus grande l'un de l'autre dont l'énergie cinétique finale est par conséquent plus faible. Nous reviendrons sur cette interprétation "bimodale" dans la Section 5.


FIG. 10 – En haut, énergie cinétique individuelle des fragments dans la réaction de fission 241 Pu(n,f) avec des neutrons thermiques (ligne de points noirs notée \overline{E}_{k1}) et énergie cinétique sommée sur les deux fragments (ligne de points rouges notée \overline{E}_K). En bas, distribution en masse des fragments. La figure est tirée de la Réf. [40].

La ligne de points noirs notée \overline{E}_{k1} sur la figure 10 donne l'énergie cinétique individuelle des fragments mesurée dans la réaction de fission ²⁴¹Pu(n,f) induite par des neutrons thermiques. Le bas de la figure indique la distribution en masse correspondante. On retrouve bien les caractéristiques de la figure page 22 : les fragments légers ont une énergie cinétique moyenne aux alentours de 100 MeV et les fragments lourds au voisinage de 70 MeV. On remarque cependant ici que les fragments légers ont pratiquement tous la même énergie cinétique alors que l'énergie cinétique des fragments lourds diminue linéairement avec leur masse à partir de A = 132. La ligne de points rouges notée \overline{E}_K indique l'énergie cinétique sommée sur les deux fragments. Elle n'a été tracée que du côté des fragments lourds. Elle est évidemment symétrique par rapport à A/2=121. Cette courbe comporte un maximum au voisinage de la masse lourde 132 et un minimum prononcé pour les fragmentations symétriques.

Ce minimum, souvent appelé "dip", est typique de la fission des actinides. Il tend à décroître avec la masse du noyau fissionnant. Il vaut de 15 à 20 MeV dans les isotopes de l'Uranium, du Plutonium et du Thorium, de 5 à 10 MeV dans les isotopes du Curium et du Californium et moins de 5 MeV dans les noyaux plus lourds. Si on se réfère à la formule (3-3), étant donné que le produit Z_1Z_2 est maximum pour $Z_1=Z_2$, la présence de ce "dip" indique clairement que la distance d_{sciss} doit être nettement plus petite pour les fragmentations asymétriques que pour les fragmentations symétriques, en particulier pour celles conduisant à un fragment lourd au voisinage de la masse 132. On en déduit qu'il doit exister des variations importantes dans la configuration des deux fragments naissants au moment de la scission. Pour cette raison, la distribution en énergie cinétique représentée par la courbe rouge constitue un test important des modèles de fission. Comme nous le montrerons dans la Section 5, les approches actuelles de la fission reproduisent bien le "dip" observé dans les distributions en énergie cinétique des fragments.

Ainsi qu'il a dit précédemment, la majeure partie ($\simeq 80\%$) de l'énergie disponible dans la voie de fission est transformée en énergie cinétique des fragments, le reste se retrouvant sous forme d'énergie d'excitation dans les fragments. On peut alors se demander ce qui se passe lorsque l'on augmente l'énergie totale mise dans le mode de fission. Observe-t-on une augmentation proportionnelle de l'énergie cinétique et de l'énergie d'excitation des fragments ou bien l'une de ces deux composantes est-elle favorisée ?

La réponse à cette question est illustrée sur la figure ci-contre extraite de la Réf.[41]. Les points représentent l'énergie cinétique moyenne $\langle E_K \rangle$ des fragments de la fission du ²⁴⁰Pu mesurée pour des énergies d'excitation E_{exc} du noyau fissionnant allant de 0 à 13.5 MeV. La croix à E_{exc} =6.53 MeV indique la fission induite sur le ²³⁹Pu avec des neutrons thermiques. On observe que l'énergie cinétique moyenne des fragments est moins élevée en fission induite par neutrons thermiques qu'en fission spontanée. Lorsque la fission est induite par des neutrons d'énergie plus élevée, l'énergie cinétique moyenne des fragments diminue encore.



On en déduit qu'un accroissement de l'énergie mise dans le mode de fission n'entraîne pas une augmentation de l'énergie cinétique des fragments.

Lorsque l'énergie du système fissionnant est inférieure à $E_{exc} \simeq 9.5$ MeV, l'énergie supplémentaire se retrouve sous forme d'énergie d'excitation des fragments. A des énergies supérieures, le système a une probabilité non négligeable d'émettre un neutron avant de fissionner. C'est la fission de seconde chance mentionnée dans la note page 20. Une partie de l'énergie supplémentaire ($\simeq 8$ MeV) est alors emportée par le neutron émis, le reste s'ajoutant à l'énergie d'excitation des fragments. La remontée de l'énergie cinétique au voisinage de $E_{exc}=4$ MeV dans la figure ci-dessus est un "accident" dû à la présence d'une résonance sous le seuil [42]. La fission au travers de cette résonance modifie localement la distribution en masse des fragments, ce qui induit une augmentation de l'énergie cinétique moyenne à cette énergie¹¹.

Le comportement de l'énergie cinétique moyenne des fragments en fonction de l'énergie d'excitation du noyau fissionnant qui apparaît sur la figure ci-dessus se retrouve dans la plupart des actinides. La dépendance est approximativement linéaire et la pente $d < E_K > /dE_{exc}$ est

¹¹Il faut noter que les variations de l'énergie cinétique des fragments décrites ici concernent l'énergie cinétique moyenne des fragments. Lorsque l'on considère l'énergie cinétique fragmentation par fragmentation, sa variation en fonction de E_{exc} dépend de la fragmentation considérée. En général, la variation est la même que celle de l'énergie cinétique moyenne pour les fragmentations les plus probables, et elle est en sens contraire pour les fragmentations symétriques.

généralement négative. Dans certains cas seulement, elle très faiblement positive.

3.5.3 Distributions des neutrons de fission

Comme on l'a dit précédemment, la majeure partie des neutrons de fission ($\simeq 99\%$) sont les neutrons prompts émis par les fragments. Ces derniers possèdent en tout une énergie d'excitation de 15 à 35 MeV. En comptant que un neutron emporte une énergie d'excitation égale à l'énergie de séparation S_n dans le fragment plus une énergie cinétique d'environ 1 MeV, soit ~8-9 MeV au total, on s'attend à ce que le nombre moyen de neutrons par fission soit compris entre 2 et 4.



FIG. 11 – A gauche, nombre moyen de neutrons prompts émis par fission à énergie nulle dans différents actinides [43]. Les point noirs résultent de mesures en fission spontanée. Les cercles indiquent des mesures en fission induite par neutrons thermiques transformées à énergie nulle en supposant $d\overline{\nu}/dE_{exc}=0.12 \text{ MeV}^{-1}$. A droite, spectre en énergie cinétique dans le laboratoire des neutrons émis dans la fission induite par neutrons thermiques sur le noyau ²³⁵U [44].

La partie gauche de la figure 11 confirme un tel nombre moyen de neutrons. On en déduit une formule empirique approximative permettant de l'estimer connaissant l'énergie d'excitation totale E^* des fragments :

$$\overline{\nu} \simeq E^*/8.5 \tag{3-4}$$

où E^* est en MeV. La croissance continue de $\overline{\nu}$ sur la figure indique que l'énergie d'excitation des fragments augmente en fonction de A. Un autre effet qui entre en ligne de compte dans cette augmentation est l'apparition de fragments de plus en plus riches en neutrons à mesure que le noyau qui fissionne est plus lourd. Le premier effet est de loin le plus important.

La partie droite de la figure 11 montre le spectre en énergie cinétique dans le laboratoire des neutrons émis dans la fission induite par neutrons thermiques de l'²³⁶U. La majeure partie des neutrons ont une énergie cinétique de l'ordre de 1 MeV. On voit que le spectre s'étend jusqu'à plusieurs MeV, de sorte que l'énergie cinétique moyenne des neutrons est de 2 MeV. Comme les neutrons sont émis par des fragments en mouvement dans le laboratoire, une partie de l'énergie cinétique des neutrons – environ 30 % – provient de l'énergie cinétique des fragments. Les

formes analytiques indiquées sur la figure supposent que les neutrons ont un spectre d'émission maxwellien dans le centre de masse de chaque fragment.

La figure ci-contre adaptée de la Réf. [45] donne le nombre de neutrons émis par chaque fragment en fonction de sa masse (petits points noirs) dans la fission induite par neutrons thermique des noyaux ²³⁴U, ²³⁶U et ²⁴⁰Pu. Les distributions en masse correspondantes sont également indiquées. Les gros points rouges indiquent le nombre de neutrons émis dans chaque fragmentation, c'est-à-dire par les deux fragments complémentaires. Ces points ne sont tracés que du côté des fragments lourds puisqu'ils doivent former un ensemble symétrique par rapport à A/2 où A est la masse du noyau fissionnant. Les points rouges forment une courbe "en dent de scie" (en anglais "sawtooth") qui est caractéristique de tous les actinides. Cette courbe présente un maximum pour les fragmentations symétriques et un minimum au voisinage de la masse lourde 132. Cette structure est évidemment à rapprocher du "dip" observé dans la distribution des énergies cinétiques des fragments mentionné page 25 : le minimum observé dans l'énergie ciné-



tique des fragments implique une énergie d'excitation des fragments plus élevée, et donc un plus grand nombre de neutrons émis. Inversement, le minimum au voisinage d'une masse de fragment de 132 dans le nombre de neutrons émis correspond à une faible énergie d'excitation et à une grande énergie cinétique.

La distribution du nombre de neutrons émis par chaque fragmentation autour du nombre moyen $\overline{\nu}$ mesurée dans différents systèmes est représentée sur la figure 12. Cette distribution montre que le nombre de neutrons émis dans un événement de fission donné peut varier entre 0 et 8. Il est remarquable de constater que, l'ensemble des points – qui regroupe les résultats relatifs à 8 noyaux différents – peut être ajusté par une gaussienne unique. Cette observation semble indiquer une émission statistique des neutrons analogue à une évaporation par un ensemble de noyaux dont les énergies d'excitation se répartissent également de manière statistique. En d'autres termes, la distribution des énergies d'excitation des fragments des actinides devrait être proche d'une gaussienne dont la largeur serait sensiblement indépendante du noyau fissionnant. Ce sont des comportements tel que celui montré sur cette figure qui ont conduit à envisager des modèles où les configurations de scissions des noyaux ne sont pas examinées dans leur détail, mais traitées avec les méthodes de la physique statistique. Nous donnons dans la section suivante quelques exemples de modèles de fragmentation de ce type.



FIG. 12 – Distributions du nombre des neutrons de fission autour du nombre moyen $\overline{\nu}$ [46]. Les points indiquent différentes mesures dans divers actinides. La courbe principale représente un ajustement optimal par une gaussienne.

4 Interprétations des mesures. Modèles

Les résultats expérimentaux qui viennent d'être résumés ont naturellement suscités un grand nombre de modèles et d'approches théoriques permettant de les interpréter. Il n'est pas question bien entendu de les décrire ici en détail. Nous nous contenterons simplement de donner les grandes lignes de ceux qui ont eu le plus de succès et qui, pour cette raison, ont été les plus utilisés.

De façon générale, on peut classer les approches de la fission en deux grandes catégories :

- celles qui visent à obtenir de façon aussi précise que possible les probabilités de fission, autrement dit les sections efficaces de fission ainsi que celles des processus en compétition. Ce sont les approches employées dans l'évaluation de données. Elles utilisent essentiellement des modèles phénoménologiques dont les paramètres sont ajustés à partir des données expérimentales.
- celles qui se proposent de décrire de manière aussi fondamentale que possible la physique du phénomène. Jusqu'à une époque récente, les méthodes utilisées étaient destinées à décrire seulement certains aspects particuliers de la fission comme, par exemple, les distributions et observables des fragments. Ces dernières années, avec l'accroissement des moyens de calcul numériques, des approches plus globales commencent à être développées ayant pour objectif de parvenir à une description aussi complète que possible du phénomène.

Cette troisième partie se propose de donner un aperçu des modèles traditionnels qui ont permis de comprendre et d'interpréter une part importante des résultats expérimentaux. Les approches

les plus récentes, celles qui visent à décrire la fission dans son ensemble dans un cadre fondamental seront évoquées dans la Section 5.

Le point de départ de tous les modèles de fission construits pratiquement depuis les origines est la surface d'énergie potentielle (SEP) du noyau fissionnant, c'est-à-dire l'énergie de déformation du noyau en fonction de paramètres caractérisant ses différents types de déformation. Le premier exemple jamais donné d'une telle SEP a été celle calculée en fonction des paramètres a_2 et a_4 avec le modèle de la goutte liquide par Bohr et Wheeler en 1939 (voir page 7). Un autre exemple apparaît sur la figure page 11. Dans ce cas, la SEP du ²⁴⁰Pu obtenue avec la méthode de Strutinski n'est pas représentée dans son intégralité. Seules des lignes particulières ont été tracées, celles donnant l'énergie du noyau, d'une part en fonction de l'élongation du noyau pour une asymétrie droite/gauche nulle, d'autre part en fonction de son asymétrie droite-gauche pour une élongation correspondant au sommet de la seconde barrière de fission.

Un autre exemple en est donné sur la figure 13. La partie gauche représente la SEP du ²³²Th calculée avec la méthode de Hartree-Fock-Bogoliubov et l'interaction effective de Gogny. Les étiquettes Q_2 et Q_3 des axes horizontaux sont les moments quadrupolaire et octupolaire du noyau. Ils mesurent respectivement son élongation et son asymétrie droite-gauche. La coupe de la surface par le plan $Q_3=0$ en avant de la figure représente la barrière de fission symétrique du noyau. On distingue pour des valeurs croissantes de Q_2 le long de cette ligne : le puits de l'état fondamental, la première barrière de fission, le puits de l'isomère de fission, la seconde barrière de fission pour des formes symétriques droite-gauche, suivie d'un vaste troisième puits situé à une énergie d'excitation beaucoup plus élevée que l'isomère de fission.

Il est bien évident qu'il est relativement difficile d'envisager des modèles faisant intervenir des SEP fonctions de plusieurs paramètres de déformation. Pour cette raison, la plupart des approches tentent de ramener le paysage multidimensionnel de la SEP à une représentation à une dimension, c'est-à-dire à une barrière de fission unidimensionnelle. C'est ce qui a été fait par Bohr et Wheeler comme on l'a vu page 7. La technique qu'ils ont utilisée consistait à considérer l'énergie de déformation le long de la ligne d'énergie minimale connectant le fondamental du noyau au point où il se sépare en deux fragments. La variation de l'énergie de déformation le long de cette ligne a fait apparaître pour la première fois la barrière de fission de la goutte liquide. La même technique, appliquée aux SEP calculées avec la méthode de Strutinski ou avec les approches microscopiques de type Hartree-Fock-Bogoliubov permet de mettre en évidence la barrière de fission à deux bosses des actinides.

Un exemple en est donné sur la figure 13. La ligne épaisse en bleu sur la SEP de gauche représente le chemin d'énergie minimale entre le fond du puits de l'état fondamental et la scission. On observe qu'il coïncide avec la barrière de fission symétrique ($Q_3=0$) jusqu'au fond du puits isomérique. Pour des valeurs plus grandes de Q_2 , le chemin suit le fond de la vallée qui s'enfonce en arrière sur la surface. Il passe par un point selle qui représente le sommet de la seconde barrière de fission asymétrique du noyau, se dirige vers le fond d'un troisième puits, et franchit un autre point selle avant de descendre en direction du bord de la surface où le noyau se casse en deux fragments¹². La barrière de fission ainsi obtenue est représentée par la ligne rouge

¹²La barrière du ²³²Th n'est donc pas à deux bosses mais plutôt à trois bosses. Cette structure supplémentaire est assez fréquente dans les actinides légers. Le troisième puits qui apparaît dans ce cas est en fait peu profond comme on le voit dans la partie droite de la figure 13, et il n'est généralement pas capable d'héberger un véritable isomère de forme.



FIG. 13 – A gauche, surface d'énergie potentielle (SEP) du ²³²Th calculée avec la méthode de Hartree-Fock-Bogoliubov et l'interaction nucléon-nucléon effective de Gogny. Les paramètres de déformation Q_2 et Q_3 mesurent respectivement l'élongation du noyau et son asymétrie droite-gauche. La ligne épaisse en bleu donne le chemin d'énergie minimale connectant l'état fondamental du noyau à la scission. A droite, barrières de fission du ²³²Th et du ²³⁰Th. Les lignes épaisses rouges sont les barrières obtenues en prenant le chemin d'énergie minimale. Les lignes plus fines vertes au niveau de la première barrière de fission représentent l'énergie de déformation calculée en autorisant les déformations triaxiales. Les lignes horizontales dans les puits indiquent les énergies de l'état fondamental, de l'isomère de fission et d'états métastables dans les troisièmes puits. Les courbes sont tracées en fonction de la distance d entre deux préfragments définis par rapport au centre de masse du noyau.

dans le haut de la figure 13 de droite. La courbe située en dessous donne le résultat obtenu avec la même technique pour le ²³⁰Th. On voit que ces deux isotopes voisins du Thorium ont des barrières assez nettement différentes.

La méthode consistant à définir la barrière de fission à partir d'un **chemin d'énergie minimale** sur la SEP n'est pas la seule possible. En effet, dans une description semi-classique de l'évolution du noyau sur la SEP, on s'attend à ce qu'il suive une trajectoire **d'action minimale** plutôt que le chemin d'énergie minimale. La détermination de la trajectoire d'action minimale n'est pas aussi simple que celle du chemin d'énergie minimale. L'action qui doit être minimisée est l'action de Jacobi¹³ :

$$S(C) = \int_C 2\sqrt{|E - V(s)|T(s)}ds$$
(4-1)

où s est une abscisse curviligne le long des chemins C sur la SEP $E(a_1, a_2, ...)$ et T(s) l'énergie cinétique le long de C :

$$T(s) = \frac{1}{2} \sum_{ij} B_{ij}(a(s)) \frac{da_i}{ds} \frac{da_j}{ds}$$

$$\tag{4-2}$$

Les quantités B_{ij} représentent le tenseur des inerties du noyau dans l'espace des paramètres de déformation a_k . On voit que la détermination de la trajectoire d'action minimale exige de

¹³En effet, comme on peut le lire par exemple dans le livre de H. Goldstein, *Classical Mechanics*, p. 233, c'est cette forme de l'action qui détermine le chemin d'action minimale indépendamment du temps mis pour le parcourir. Voir également l'article de M. Brack et al., Réf. 3 de la Bibliographie générale.

savoir calculer non seulement la SEP du noyau mais aussi le tenseur des inerties collectives. Pour cette raison, cette seconde méthode est assez rarement appliquée. Les cas où elle est utilisée sont principalement ceux où il existe plusieurs chemins de fission d'énergie minimale en compétition et où, par conséquent, une description plus fine de l'évolution du noyau sur la SEP est nécessaire. Nous en verrons plus loin un exemple avec la fission bimodale.

On se convainc facilement que le chemin d'action minimale coïncide avec celui d'énergie minimale lorsque le tenseur des inerties collectives ne dépend pas des a_k . C'est en fait rarement le cas. L'hypothèse est souvent faite cependant que les variations de l'inertie collective sont suffisamment faibles pour qu'il existe une seule trajectoire d'action minimale et qu'elle coïncide pratiquement avec le chemin d'énergie minimale¹⁴. C'est ce que nous supposerons dans les deux sous-paragraphes suivants où la description de la fission est faite à partir de barrières de fission unidimensionnelles.

4.1 Caractéristiques des barrières de fission

Des SEP à deux ou trois dimensions, voire plus, sont couramment calculées avec les approches macroscopique-microscopiques – celles qui utilisent la méthode de Strutinski –, ou bien avec les approches microscopiques qui appliquent les techniques de type Hartree-Fock-Bogoliubov dont il sera question dans la Section 5. Les barrières de fission obtenues dans les actinides en prenant le chemin d'énergie minimale sur ces SEP ont des caractéristiques comparables dans les deux types d'approches. On peut les résumer de la façon suivante :

- 1 les barrières présentent toujours deux bosses. La seconde barrière est parfois creusée en son centre dans les actinides légers (Ac, Th, Pa), ce qui lui donne une allure de barrière à trois bosses (cf. figure 13 à droite)
- 2 dans son fondamental et dans l'état isomérique le noyau possède la symétrie axiale (sa forme est de révolution autour de l'un de ses axes principaux) et il est symétrique droite-gauche
- 3 au passage de la première barrière de fission le noyau abandonne la symétrie axiale pour adopter une forme triaxiale. Autrement dit, le noyau devient "axialement asymétrique", mais reste symétrique par rapport aux trois plans de coordonnées de son repère intrinsèque. En particulier, il conserve la symétrique droite-gauche. Une systématique de résultats théoriques montrant l'effet de la triaxialité sur les hauteurs de premières barrières dans les actinides calculées avec la méthode macroscopique-microscopique est représentée sur la figure 14 de gauche. Dans ces calculs, la triaxialité abaisse la hauteur de la première barrière des actinides plus lourds que l'Uranium, ce qui la rend du même ordre de grandeur que les données tirées de l'expérience. Un désaccord subsiste cependant pour les isotopes du Thorium. Les approches microscopiques de type Hartree-Fock-Bogoliubov donnent un résultat différent de celui de la figure. Le gain en énergie dû à la triaxialité est généralement plus élevé et il n'est pas nul dans les isotopes du Thorium. On le voit notamment sur la figure 13 de droite, où les calculs triaxiaux avec la force de Gogny permettent de descendre de 1 à 2 MeV la première barrière des ²³⁰Th et ²³²Th.
- 4 au passage de la seconde barrière de fission et au-delà, le noyau retrouve la symétrie axiale mais perd la symétrie droite-gauche. Il adopte une forme en poire de plus en plus marquée

 $^{^{14}}$ Ceci suppose naturellement qu'il existe un chemin d'énergie minimale bien défini et qu'il est unique.



FIG. 14 – A gauche, hauteurs de la première barrière de fission dans la région des actinides calculées avec et sans la symétrie axiale en utilisant la méthode macroscopique-microscopique [47, 48]. Les carrés représentent les hauteurs extraites des sections efficaces expérimentales. A droite, barrières de fission d'isotopes du Pu et du Th obtenues avec (courbes en tirets) et sans (courbes en trait plein) la symétrie droite-gauche par la méthode macroscopique-microscopique de la Réf. [49].

à mesure que son élongation augmente. Le gain en énergie apporté par l'asymétrie droitegauche est de l'ordre de 5 MeV avec la méthode macroscopique-microscopique, comme le montre la figure 14 de droite. Ce gain est plus élevé – jusqu'à 10 MeV – avec les approches microscopiques de type Hartree-Fock-Bogoliubov.

5 – les hauteurs relatives de la première et de la seconde barrière varient avec la masse du

noyau qui fissionne. Dans les actinides légers la première barrière est beaucoup plus basse que la seconde et peut même disparaître. Dans les actinides lourds, c'est la situation inverse : la seconde barrière est beaucoup plus basse que la première. Par exemple, elle est pratiquement inexistante dans les isotopes du Nobelium. Dans les actinides habituels (U, Pu), les deux barrières ont des hauteurs comparables. C'est ce que montre schématiquement la figure ci-contre. La barrière obtenue avec le modèle de la goutte liquide est indiquée par les pointillés rouges. On voit que l'abaissement de la seconde bosse des barrières à deux bosses (en noir) est plus grand dans les actinides les plus lourds et que cet abaissement provient du déplacement vers les faibles déformations du sommet de la barrière de la goutte liquide.



Les barrières de fission déduites des calculs théoriques de SEP ne sont pas assez précises pour être utilisables dans l'évaluation des sections efficaces de fission. En effet, comme on le verra plus loin, la transmission d'une barrière de potentiel est une fonction exponentielle de l'énergie et une variation de quelques centaines de keV de la hauteur de la barrière de fission produit une modification de plusieurs ordres de grandeur de la section efficace de fission. De plus, le calcul de la transmission de la barrière fait intervenir un paramètre d'inertie collective fonction de la déformation du noyau dont le calcul est difficile, ce qui introduit des incertitudes supplémentaires.

Dans cette situation, les évaluations de sections efficaces de fission emploient des barrières de fission schématiques, en général constituées de morceaux de paraboles jointifs tangents. Un exemple en est donné sur la figure 15 de gauche. La barrière qui est représentée est constituée de quatre tronçons de paraboles. Elle dépend de sept paramètres : les hauteurs E_A et E_B des deux barrières par rapport à l'état fondamental, l'énergie d'excitation E_{II} de l'isomère de fission et les "courbures" $\hbar\omega_0$, $\hbar\omega_A$, $\hbar\omega_{II}$, et $\hbar\omega_B$ des quatre paraboles.

Les paramètres sont ajustés à partir des données expérimentales disponibles. Dans certains cas, la paramétrisation à l'aide d'une barrière à deux bosses ne permet pas de reproduire les données connues et il est nécessaire d'envisager des barrières à trois bosses comme celle représentée sur la partie droite de la figure 15. La barrière est alors constituée de six tronçons de paraboles et dépend de neuf paramètres.



FIG. 15 – A gauche, paramétrisation d'une barrière de fission à deux bosses à l'aide de quatre tronçons de paraboles jointifs (d'après [50]). A droite, paramétrisation d'une barrière de fission à trois bosses à l'aide de six tronçons de paraboles (d'après [51]).

L'avantage des barrières paraboliques est que leur transmission s'exprime de façon analytique. Le coefficient de transmission d'une barrière constituée d'une seule parabole inversée de courbure $\hbar\omega$ est :

$$T(E) = \frac{1}{1 + e^{2\pi(E_B - E)/\hbar\omega}}$$
(4-3)

où E_B est l'énergie du point le plus haut de la barrière [52]. Dans le cas d'un barrière à deux bosses construite avec trois paraboles, une expression analytique de la pénétrabilité a également été dérivée [53]. Il est possible de calculer également la pénétrabilité avec l'approximation WKB. On obtient alors [54] :

$$T(E) = \frac{T_A T_B}{4} \left[\left(1 + \frac{T_A T_B}{16} \right)^2 \cos^2 \phi + \left(\frac{T_A + T_B}{4} \right)^2 \sin^2 \phi \right]^{-1}$$
(4-4)

où T_A et T_b sont les pénétrabilités séparées (4-3) des barrières A et B et où ϕ est donné par :

$$\phi(E) = \int_{\beta_1}^{\beta_2} \left[\frac{2B}{\hbar^2} (E - V(\beta)) \right]^{1/2}$$
(4-5)

La quantité B est un paramètre d'inertie supposé constant qui n'intervient pas dans l'expression finale de T(E). Son le rôle est de définir l'échelle du paramètre de déformation β en fonction duquel est tracée la barrière. Les bornes de l'intégrale sont les points tournants du puits intermédiaire entre les deux bosses (l'intégrand s'annule pour ces valeurs de β). Les auteurs de la Réf. [53] ont vérifié que les expressions (4-4)-(4-5) donnent un résultat extrêmement proche de la pénétrabilité exacte, ceci même près du seuil – c'est-à-dire à des énergies au voisinage du sommet de la barrière la plus basse – où l'approximation WKB n'est en principe pas justifiée.

La figure 16 donne un exemple de pénétrabilité de barrière à deux bosses calculée avec les expressions ci-dessus. La caractéristique la plus remarquable de cette pénétrabilité est l'existence de résonances étroites situées sous le seuil de fission – c'est-à-dire à des énergies inférieures au sommet des barrières – dont l'énergie coïncide avec celles des états quasi-liés du puits intermédiaire. Cette situation correspond à une phase $\phi(E)$ égale à $\pi/2$ dans l'équation (4-5).



FIG. 16 – A gauche, barrière à deux bosses constituée de trois tronçons de paraboles jointifs. E_1 et E_3 sont les hauteurs de la première et de la seconde barrière. Les symboles L_i indiquent la position des états quasi-liés dans le puits intermédiaire. A droite, pénétrabilité de la barrière en fonction de l'énergie. Remarquer les résonances étroites qui apparaissent aux énergies des états quasi-liés L_i de la figure de gauche. Les deux figures sont tirées de la Réf. [53].

L'accroissement de la pénétrabilité de la barrière au niveau de ces résonances s'explique par le fait que, aux énergies correspondantes, le système peut "exister" pendant un temps appréciable dans le puits intermédiaire en peuplant les états métastables qui s'y trouvent, puis décroître à travers la seule barrière extérieure.

Comme nous l'avons évoqué pages 12 et 18, une "structure intermédiaire sous le seuil" a été observée dans la section efficace de fission de plusieurs noyaux. La première observation de ce type a eu lieu en fait à Saclay dans la réaction $n+^{237}Np$ [55]. Ainsi que nous allons le voir, ce phénomène a pu être expliqué de façon très directe et très élégante par les résonances associées au second puits de la barrière représentées sur la figure 16.

L'exemple le plus frappant de structure intermédiaire est sans doute celui qui apparaît dans la section efficace de fission du ²⁴⁰Pu. Le haut de la figure cicontre donne la section efficace totale sur ce noyau induite par des neutrons entre 500 eV et 3 keV, c'est-à-dire à des énergies bien inférieures au seuil de fission du ²⁴¹Pu. Les résonances qui apparaissent sont séparées avec un espacement moyen de l'ordre de 15 eV. Cette région est celle des résonances résolues de la figure 3. Ces résonances correspondent aux états du noyau composé sur lesquels le neutron est capturé. Le



bas de la figure présente la seule section efficace de fission du noyau, autrement dit la composante de la section efficace totale qui dépend de la pénétrabilité de la barrière de fission. On retrouve les résonances étroites caractéristiques du noyau composé mais modulées par une seconde structure très marquée constituée elle-même de résonances espacées d'environ 450 eV et ayant une largeur de l'ordre de 100 eV.

La similarité entre cette seconde structure résonnante et celle de la figure 16 suggère fortement qu'elle provient des états de classe II du ²⁴¹Pu. Dans cette interprétation, les résonances caractéristiques du noyau composé sont toujours présentes, mais elles sont en quelque sorte "filtrées" par la structure résonnante imposée par la pénétrabilité à travers les deux barrières de fission et le second puits.

Les sections efficaces expérimentales représentées ci-dessus proviennent respectivement des Réf. [56] et [57]. Une telle "structure intermédiaire" dans les sections efficaces de fission a été vue dans la fission induite par neutrons de plusieurs autres isotopes du Plutonium et dans l'Uranium. Avec les moments d'inertie déduits des états de rotation de classe II, elle constitue l'une des indications expérimentales les plus solides de la présence d'isomères de fission dans les actinides. Mentionnons que la mesure précise des énergies des résonances de structure intermédiaire constitue un moyen de mesurer les énergies des états de classe II, et donc de déterminer la spectroscopie des états du second puits.

4.2 Sections efficaces de fission

Les sections efficaces de fission sont naturellement des quantités qu'il est essentiel de connaître avec précision en vue des applications à la production d'énergie. Du point de vue théorique, il est clair que ces sections efficaces dépendent en premier lieu de la pénétrabilité de la barrière de fission. Ceci est évident pour des énergies en dessous du seuil de fission. En revanche, au dessus du seuil, la pénétrabilité de la barrière est égale à l'unité et il semble que la barrière de fission joue alors un rôle mineur. En fait, comme l'a montré A. Bohr dans les années 1950, cela n'est pas exact. Tout se passe comme si la fission ne s'effectuait pas librement, mais par l'intermédiaire d'états particuliers, les "états de transition de Bohr". Nous présentons d'abord une brève introduction concernant ces états. Puis nous donnons les expressions qui sont à la base du calcul des sections efficaces de fission. Nous renvoyons le lecteur au cours de E. Bauge pour un exposé plus détaillé des modèles et du formalisme qui entrent dans les calculs d'évaluation des données de section efficaces.

4.2.1 Etats de transition de Bohr

Ces états ont été introduits par A. Bohr en 1956 [58] afin d'expliquer l'observation de distributions angulaires de fragments de fission très anisotropes dans la photofission de plusieurs actinides (²³²Th, ²³⁸U). La section efficace différentielle de la réaction peut s'écrire :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(E) = \sum_{JM} \sigma_{abs}(EJM) \sum_{K} \frac{\Gamma_f(EJK)}{\Gamma(EJK)} \frac{2J+1}{4} \left(|D^J_{MK}(\Omega)|^2 + |D^J_{M-K}(\Omega)|^2 \right)$$
(4-6)

où $\sigma_{abs}(EJM)$ est la section efficace d'absorption du photon sur un état du noyau composé d'énergie E ayant le moment angulaire J et la projection du moment angulaire M sur l'axe OZ du laboratoire, $\Gamma_f(EJK)$ est la largeur de fission de la composante de cet état ayant la projection du moment angulaire K sur l'axe Oz du repère intrinsèque du noyau, $\Gamma(EJK)$ est la largeur totale $\Gamma_n(EJK) + \Gamma_\gamma(EJK) + \Gamma_f(EJK)$ de cette composante vis-à-vis des décroissances neutron, γ et fission, et les $D_{MK}^J(\Omega)$ sont les matrices de rotations de Wigner.

Lorsque l'énergie E est au dessus du seuil de fission la densité des états (J, M, K) est très élevée, de l'ordre de 10⁶ états par MeV. La sommation dans (4-6) doit donc a priori comporter un très grand nombre de termes et on s'attend à ce que la section efficace différentielle soit pratiquement isotrope.

En fait, les expériences montrent que la distribution n'est isotrope que lorsque l'énergie E est très nettement au-dessus des barrières. Lorsque E n'est que de quelques MeV au-dessus des barrières, la distribution est au contraire nettement anisotrope. Ceci indique que, dans ce cas, seules quelques valeurs de K contribuent pour chaque valeur de J et M.

Pour expliquer cette sélection des valeurs de K, A. Bohr a fait l'hypothèse que "la distribution en K est déterminée lors d'une étape de la fission où le noyau est froid et où, par conséquent, seules quelques voies sont disponibles". L'image qui émerge de cette hypothèse est celle d'états discrets particuliers situés immédiatement au-dessus du second point selle de la barrière de fission comme l'indique la figure 17. Le positionnement de ces états au niveau de la seconde barrière provient de la nécessité que le nombre quantique K soit conservé entre le moment où la sélection en K a lieu et la scission. Sinon, la sélection ne se manifesterait pas dans les distributions angulaires de fragments. Cette contrainte ne peut être assurée que si la période de rotation du noyau est beaucoup plus grande que le temps d'évolution entre la sélection de K et la scission. Or, la période de rotation du noyau n'est suffisamment grande que pour des déformations élevées. Un autre argument que l'on peut donner est que, étant donné que le noyau n'est pas axial au niveau de la première barrière de fission, ses états ne possèdent pas "un bon K". Ils ne peuvent donc pas servir à sélectionner ce nombre quantique.

On interprète généralement les états de transition de Bohr comme des modes collectifs de vibration-rotation transverses à la direction du mode de scission ou des excitations internes du noyau (excitations à 2, 4, ... quasiparticules) au-dessus du second point selle.

4.2.2 Expression des sections efficaces

D'après la théorie de la diffusion (voir par exemple [59]) la section efficace d'une réaction dont la voie d'entrée et la voie de sortie sont spécifiées par des ensembles de nombres quantiques



FIG. 17 – Représentation schématique de la barrière de fission d'un actinide et des trois principaux modes de fission. La fission au dessus du seuil s'effectue par l'intermédiaire des états de transition de Bohr représentés sur la figure au-dessus de la seconde barrière appelée ici "B".

$$c = (a, l, s) \text{ et } c' = (a', l', s') \text{ est }:$$

$$\sigma_{aa'}(E, J) = \frac{\pi}{k_a^2} g_{Ja} \sum_{ss'll'} |\delta_{c,c'} - S_{cc'}|^2$$
(4-7)

avec $g_{Ja} = \frac{2J+1}{(2j_p+1)(2j_t+1)}$. Les symboles l et s indiquent le moment orbital et le spin dans chaque voie c tandis que a spécifie la nature des deux noyaux (ou particules) en présence dans chaque voie, leur impulsion relative $\hbar k_a$, leur moment angulaire total j_a , etc Les lettres E et J représentent l'énergie totale et le moment angulaire total qui sont conservés dans la collision, et $S_{cc'}$ est l'élément de la matrice S entre les voies c et c'. Le facteur de spin g_{Ja} contient les moments angulaires j_p et j_t du projectile et de la cible respectivement. Dans la région des résonances, l'élément de matrice $S_{cc'}$ peut s'exprimer sous la forme :

$$S_{cc'} = e^{i(\delta_c + \delta_{c'})} \left[\delta_{c,c'} - i \sum_r \frac{\gamma_r^c \gamma_r^{c'}}{E - E_r - i\Gamma_r/2} \right]$$
(4-8)

où δ_c est un déphasage. La sommation porte sur les résonances r d'énergies E_r et de largeur Γ_r qui se manifestent dans la réaction, et les γ_r^c sont les amplitudes partielles des résonances dans chaque voie c. Lorsque $a \neq a'$, les équations (4-7) et (4-8) donnent :

$$\sigma_{aa'}(E,J) = \frac{\pi}{k_a^2} g_{Ja} \sum_{ss'll'} \left| \sum_r \frac{\gamma_r^c \gamma_r^{c'}}{E - E_r - i\Gamma_r/2} \right|^2$$
(4-9)

Dans la région des résonances séparées, on définit la largeur totale de chaque résonance comme la somme des carrés des amplitudes partielles, ou encore comme la somme des largeurs partielles $\Gamma_r^c = |\gamma_r^c|^2$:

$$\Gamma_r = \sum_c |\gamma_r^c|^2 = \sum_c \Gamma_r^c \tag{4-10}$$

L'expression (4-9) donne alors la section efficace à l'approximation dite "de Breit-Wigner à plusieurs niveaux".

Lorsque les résonances sont très séparées, les termes d'interférence entre différentes résonances sont approximativement nuls et l'expression (4-9) se simplifie. On obtient :

$$\sigma_{aa'}(E,J) = \frac{\pi}{k_a^2} g_{Ja} \sum_r \frac{\Gamma_r^a \Gamma_r^{a'}}{(E-E_r)^2 + \Gamma_r^2/4}$$
(4-11)

avec:

$$\Gamma_r^a = \sum_{sl} \Gamma_r^c, \qquad \qquad \Gamma_r = \sum_a \Gamma_r^a \qquad (4-12)$$

Cette expression est la section efficace à l'approximation "de Breit et Wigner à un seul niveau". Elle s'applique notamment à la fission induite par des neutrons d'énergie comprise entre 5 et 100 eV où les résonances du noyau composé ont une largeur de l'ordre de 0.1 eV et sont espacées de 10-15 eV. A des énergies supérieures à 100 eV et jusqu'à environ 1 keV, les résonances sont proches les unes des autres pour que cette formule soit applicable, et il faut garder la formule à plusieurs niveaux (4-9).

Au delà de 1 keV, les expériences ne peuvent résoudre les résonances individuelles. La section efficace qui est mesurée est alors une moyenne sur un intervalle d'énergie ΔE représentant la résolution expérimentale et qui comprend plusieurs résonances. Cette section efficace moyenne peut s'écrire :

$$\overline{\sigma_{aa'}}(E,J) = \frac{\pi}{k_a^2} g_{Ja} \frac{2\pi}{\langle D_J \rangle} \sum_{lsl's'} \left\langle \frac{\Gamma_r^c \Gamma_r^{c'}}{\sum_c \Gamma_r^c} \right\rangle$$
(4-13)

où $\langle D_J \rangle$ est l'espacement moyen des résonances et les "brakets" indiquent des moyennes sur l'intervalle d'énergie ΔE . Dans ce cas, on définit des "coefficients de transmission" :

$$T_c^J = 2\pi \frac{\langle \Gamma_r^c \rangle}{\langle D_J \rangle} \tag{4-14}$$

ainsi que :

$$\sigma_c^{CN}(E,J) = \frac{\pi}{k_a^2} g_{Ja} T_c^J \tag{4-15}$$

qui est la section efficace de formation du noyau composé à partir de la voie c. L'éq. (4-13) fournit alors :

$$\overline{\sigma_{aa'}}(E,J) = \sum_{lsl's'} \sigma_c^{CN}(E,J) \frac{T_{c'}^J}{\sum_c T_c^J} \Phi_{cc'}^J$$
(4-16)

avec :

$$\Phi_{cc'}^{J} = \left\langle \frac{\Gamma_r^c \Gamma_r^{c'}}{\sum_c \Gamma_r^c} \right\rangle \left/ \frac{\left\langle \Gamma_r^c \right\rangle \left\langle \Gamma_r^{c'} \right\rangle}{\left\langle \sum_c \Gamma_r^c \right\rangle} \right. \tag{4-17}$$

La quantité $\Phi_{cc'}^J$ est appelée "facteur de correction pour les fluctuations" ("fluctuation correction factor"). Elle dépend de la distribution statistique des résonances. et elle est évaluée au moyen de modèles dont le plus connu a été mis au point par Moldauer [60]. L'expression (4-16) et la

définition (4-14) des coefficients de transmission constituent la base de la théorie statistique des réactions développée par Hauser et Feshbach [61].

Les différentes expressions ci-dessus des sections efficaces s'appliquent aux voies neutron, γ ou de fission $(a = n, \gamma, f)$. Aux énergies correspondant à la région des résonances résolues, il faut connaître les paramètres E_r et γ_r^c des résonances. Ces quantités peuvent être obtenues avec la théorie de la matrice R [62]. A des énergies plus élevées, l'approche statistique représentée par la formule (4-16) peut être appliquée et il faut connaître les coefficients de transmission T_c^J . Sans entrer dans les détails¹⁵, mentionnons que les T_n^J sont calculés par un modèle optique et les T_γ^J par un modèle d'absorption de radiation tandis que les T_f^J sont donnés par la transmission de la barrière de fission. Dans ce dernier cas, la sommation sur les spins s et moments orbitaux l est remplacée par une sommation sur les voies de Bohr.

La figure suivante donne le résultat d'une évaluation de la section efficace $n+^{239}$ Pu entre 100 keV et 20 MeV réalisée à Bruyères-le-Châtel par P. Romain avec l'approche esquissée ci-dessus [51]. Les sections efficaces relatives aux voies de sortie ouvertes : diffusion élastique, inélastique (n, n'), (n, 2n) et fission ont été calculées et leur somme donne la section efficace totale. Les points et lignes verticales bleus représentent des mesures expérimentales avec leurs barres d'er-

reur. Comme on le voit, l'accord entre les sections efficaces évaluées et les données disponibles est tout à fait remarquable dans toute la zone d'énergie envisagée.

Il faut noter que dans une telle évaluation, les sections efficaces calculées ne sont pas indépendantes les unes des autres et font intervenir plusieurs noyaux. On le voit sur la figure 18 où sont représentées les diverses voies qui contribuent à la section efficace de fission induite par neutrons sur un noyau ^{A}Z . A des énergies du neutron incident suffisantes, le noyau composé ^{A+1}Z formé peut émettre un neutron, ouvrant la possibilité de la fission du noyau ^{A}Z . C'est la fission de seconde chance. De la même façon à des énergies relativement élevées, le noyau ^{A}Z peut émettre à son tour un neutron et conduire à la fission du noyau ^{A-1}Z . C'est la fission de troisième chance. Et



ainsi de suite. Dans ces cas, les barrières de fission de plusieurs isotopes interviennent simultanément, de même que les sections efficaces $\sigma_{nn'}$, σ_{n2n} , $\sigma_{n2n\gamma}$, ... qui gouvernent les probabilités d'émission de neutrons avec ou sans émission de γ intermédiaires.

L'effet des fissions de chances multiples se manifeste par une remontée de la section efficace de fission lorsque les voies de fission correspondantes s'ouvrent. Ainsi, sur la figure ci-dessus de la réaction $n + {}^{239}$ Pu, on observe une remontée de la section efficace de fission à une énergie de neutrons de $\simeq 5$ MeV correspondant à la fission de seconde chance, puis une autre remontée

 $^{^{15}\}mathrm{Cf.}$ le cours de E. Bauge.



FIG. 18 – Représentation des diverses voies qui contribuent à la section efficace de fission induite par neutrons sur un noyau ${}^{A}Z$ [51]. A des énergies de neutrons de plusieurs MeV l'émission de 1, 2, ... neutrons peut précéder la fission et conduire aux fissions de deuxième chance, troisième chance, etc La section efficace de fission totale fait alors intervenir les barrières de fission de plusieurs noyaux et les sections efficaces inélastiques $\sigma_{nn'}$, σ_{n2n} , $\sigma_{n2n\gamma}$.

aux alentours de 12 MeV due à la fission de troisième chance.

A des énergies de plusieurs dizaines voire centaines de MeV¹⁶, les noyaux peuvent émettre des particules chargées (protons, α , tritons, ...) et il faut tenir compte également des sections efficaces d'émission de ces particules ainsi que de tous les processus combinant les émissions des diverses particules et de γ avec la fission des noyaux fils qui apparaissent afin de déterminer la section efficace de fission totale.

4.3 Modèles de dynamique et de distribution des fragments

Comme nous l'avons évoqué dans le paragraphe relatif aux barrières de fission, la description théorique de la fission à partir des SEP multidimensionnelles et d'autres ingrédients comme les inerties collectives et la dissipation est particulièrement difficile. Une telle approche est pourtant la seule capable d'aboutir à une compréhension fondamentale du phénomène, en par-

 $^{^{16}\}mathrm{Les}$ évaluations modernes envisagent couramment des énergies allant jusqu'à 200 MeV

ticulier des aspects dynamiques du processus et des diverses distributions de fragments, qui soit indépendante d'hypothèses phénoménologiques et donc à même de faire des prédictions dans les régions inconnues. Des efforts sont actuellement réalisés dans cette direction. Nous les évoquerons dans la Section 5. Les approches contemporaines sont cependant encore loin de donner une description complète du processus de fission en raison de la complexité du phénomène.

Afin de délimiter les difficultés, la très grande majorité des approches théoriques de la fission commencent par distinguer deux types de degrés de liberté dans le noyau : les degrés de liberté collectifs et les degrés de liberté internes¹⁷. Cette distinction entre les deux types de degrés de liberté n'est pas restrictive car, de toute façon, tous les degrés de liberté du noyau sont pris en considération. En revanche, elle s'avère très utile pour les raisons suivantes :

- 1 les degrés de liberté collectifs qui jouent un rôle important dans la fission sont en nombre relativement restreint. Ce sont essentiellement : l'élongation du noyau, son asymétrie droite-gauche, son asymétrie axiale et le mode de "striction" ou "necking-in" qui intervient au moment de la scission.
- ${\bf 2}$ elle autorise une approche de la fission en deux étapes :
 - a/ déterminer les quantités statiques qui gouvernent l'évolution collective dans la voie de fission telles que la SEP du noyau, les inerties collectives, le tenseur de viscosité ou leurs équivalents dans le cas d'une approche entièrement microscopique
 - **b**/ traiter la dynamique quantique du noyau dans l'espace des degrés de liberté collectifs en tenant compte de l'excitation des degrés de liberté internes provenant du couplage entre les deux types de degrés de liberté
- 3 à basse énergie, le couplage entre degrés de liberté collectifs et degrés de liberté interne est faible et on peut envisager de le traiter en perturbation, voire de l'ignorer.

Le programme que représente une approche de la fission du type 2 ou même 3 est cependant très ambitieux et il a toujours été appliqué jusqu'ici avec des approximations dont les principales sont :

- l'approximation semi-classique ou classique
- les approximations de nature statistique
- l'approximation adiabatique

L'emploi de ces approximations a donné lieu à la construction de divers modèles dont les principaux sont les suivants :

A/ Les modèles (semi-)classiques. On en distingue deux grandes classes :

• ceux utilisant des équations de transport du type Fokker-Planck où la dynamique du noyau est décrite à l'aide d'une fonction de distribution dans l'espace des phase des degrés de liberté collectifs. L'évolution temporelle de cette distribution est gouvernée par l'énergie de déformation du noyau, le tenseur des inerties collectives, un tenseur de friction et un tenseur de diffusion. Ces deux dernières quantités proviennent d'un traitement stochastique des degrés de liberté internes qui suppose des échelles de

¹⁷Une exception est l'approche de la fission fondée sur la théorie TDHF (Time-Dependent Hartree-Fock) de la Réf. [63] où tous les degrés de liberté du noyau sont traités sur un même plan. Cette approche souffre cependant de difficultés dues au fait que la fonction d'onde du noyau est supposée être un simple déterminant de Slater. Il semble que ce formalisme soit adapté à la fission à des énergies très nettement au-dessus des barrières.

temps très différentes pour les degrés de liberté collectifs et internes et un couplage faible entre les deux. Ces approches ont été développées notamment par Hofmann et Siemens [64], par Grangé et Weidenmüller [65], par Nix, Sierk et Hofmann [66] et par Adeev et Gonchar [67].

- les approches dites "déterministes" où l'évolution du noyau est décrite par un ensemble de trajectoires classiques dans l'espace des variables collectives. L'influence des degrés de liberté internes est modélisée par un coefficient de viscosité comme dans les approches développées par Hasse [68] et par Davies, Sierk et Nix [69] ou par une force aléatoire sous la forme d'un terme de Langevin ajouté aux équations de la dynamique classique. Cette dernière façon de traiter les degrés de liberté internes a été proposée récemment par Pomorski, Bartel, Dietrich et Richert [70].
- B/ Les approches statistiques. Au cours des années plusieurs ont vu le jour. Leur but a été essentiellement d'expliquer l'allure des distributions en masse et en énergie cinétique des fragments, en particulier les largeurs de ces distributions. Les plus connus d'entre elles sont notamment :
 - le modèle de Fong [71]. Son hypothèse de base est que l'énergie potentielle est intégralement transformée en énergie d'excitation au cours de la descente du second point selle à la scission et que tous les degrés de liberté du noyau – collectifs et intrinsèques – sont en équilibre statistique au moment de la scission.
 - le modèle de cassure aléatoire du col de Brosa [72]. Il s'agit d'un modèle complètement phénoménologique où le noyau est supposé développer immédiatement avant la scission un long col qui se casse en une position aléatoire sous l'action de la tension de surface.
 - les modèles de point de scission. Ces modèles reprennent l'hypothèse du modèle de Fong mais supposent que les degrés de liberté collectifs du noyau et les degrés de liberté internes sont chacun de leur côté en équilibre statistique au point de scission avec des températures différentes T_{coll} et T_{int} . Une première version de ce type de modèle a été développée par Dickmann et Dietrich [73]. Une généralisation a ensuite été proposée par Wilkins, Steinberg et Chasmann [74] qui a obtenu un certain succès en raison de résultats assez souvent en bon accord avec les données expérimentales. Cette approche dépend cependant de paramètres phénoménologiques qu'il est difficile de connaître avec précision comme les températures T_{coll} et T_{int} et la distance entre les surfaces des fragments naissants au moment de la scission. Une version nouvelle de ce modèle utilisant des ingrédients microscopiques a été proposée très récemment comme nous le verrons dans la Section 5.
- C/ Les modèles quantiques adiabatiques. Dans ces approches, l'état du noyau est décrit sur la base de la mécanique quantique, c'est-à-dire à l'aide d'une fonction d'onde. Afin de simplifier le problème, une forme de fonction d'onde est choisie qui revient à supposer que la structure interne du noyau est en équilibre – ou complètement "relaxée" – à chaque étape du mouvement collectif. C'est l'hypothèse adiabatique. Elle est valable dans les situations où les degrés de liberté internes ont des temps caractéristiques d'évolution beaucoup plus courts que ceux des degrés de liberté collectifs, c'est-à-dire essentiellement à des énergies de fission relativement basses. Cette hypothèse permet de simplifier considérablement l'approche en deux étapes mentionnée page 42 puisque, dans la seconde

étape – le traitement de la dynamique collective –, il est alors possible d'ignorer le couplage aux excitations internes du noyau. Citons deux types d'approches appartenant à cette classe de modèles :

- la théorie de la fragmentation ("fragmentation theory") [75] dont le but est de déterminer les distributions en masse des fragments de fission. Cette approche construit les états quantiques $\Psi_k(\xi)$ fonctions du paramètre d'asymétrie de masse ξ construits sur la SEP du noyau au voisinage de la scission. En principe, la distribution en masse doit être proportionnelle au carré $|\Psi_0(\xi)|^2$ de la fonction d'onde d'énergie la plus basse Ψ_0 . En fait, afin de retrouver les largeurs expérimentales des distributions en masse, il est nécessaire de supposer que plusieurs états Ψ_k sont peuplés. Or, l'introduction de probabilités d'occupation pour les Ψ_k ne peut être réalisée dans le cadre du modèle que d'une façon empirique, par exemple en postulant une loi de Boltzman paramétrée par une température T ou un couplage phénoménologique à d'autres degrés de liberté collectifs. La nécessité de recourir à de tels ingrédients phénoménologique constitue l'une des limites à cette approche.
- l'approche complètement microscopique fondée sur la méthode de la coordonnée génératrice dépendant du temps. Jusqu'ici cette approche a été appliquée à deux types de problèmes : l'étude du mécanisme de la scission dans le ²⁴⁰Pu [76, 77] et la description de la dynamique depuis le noyau composé jusqu'à la scission dans le noyau ²³⁸U [78]. La méthode utilisée ne nécessite aucun paramètre phénoménologique hormis ceux contenus dans l'interaction nucléon-nucléon effective. Elle constitue probablement la base des techniques qui seront développées dans le futur. Nous le présenterons plus en détail dans la Section 5.

5 La fission aujourd'hui

5.1 Une conjoncture nouvelle

Après une éclipse pendant les années 1980, on assiste depuis dix à quinze ans à une renaissance des études sur la fission. Ce regain d'activité est dû tout d'abord aux progrès dans les instruments expérimentaux qui permettent d'accéder aux propriétés de fission de noyaux nouveaux, notamment des noyaux fissiles "exotiques", et de mesurer les sections efficaces et les observables de fragments avec une efficacité accrue. Du côté de la théorie, l'augmentation de la puissance des moyens de calcul numériques a également suscité des études nouvelles, d'une part dans le domaine de la théorie des réactions, d'autre part dans celui des approches microscopiques quantiques de la dynamique du phénomène. La tendance actuelle est d'utiliser des approches microscopiques du noyau, c'est-à-dire des méthodes de solution du problème à N corps quantique utilisant comme seule donnée l'interaction entre les nucléons.

Par exemple, on sait maintenant construire des potentiels optiques nucléon-noyau microscopiques. Leurs seuls ingrédients sont des données de structure issues des théories microscopiques et l'interaction entre le nucléon incident et chacun des nucléons de la cible. On commence également à décrire le phénomène de fission depuis la formation du noyau composé jusqu'à la scission dans un formalisme quantique dépendant du temps entièrement microscopique.

Naturellement ces études ont été fortement encouragées par les programmes civils et militaires nationaux et européens à propos desquels est apparue la nécessité de disposer de données nucléaires plus précises et couvrant un ensemble plus vaste de noyaux. Actuellement, les données sont encore évaluées avec les modèles phénoménologiques esquissés dans le chapitre précédent car les approches microscopiques de la fission ne permettent pas de les obtenir avec une précision suffisante. Les théories de la fission en cours de développement peuvent malgré tout fournir des informations utiles à l'évaluation. Nous reviendrons sur ce point à la fin du chapitre.

5.2 Mesures et approches théoriques récentes

La figure 19 présente à gauche les distributions en charge des fragments de fission mesurées en 2000 dans 70 noyaux de Z compris entre 85 et 92 [80]. Les distributions en énergie cinétique déduites de la même expérience dans 37 de ces noyaux sont représentées à droite. Les noyaux



FIG. 19 – A gauche, distributions en charge des fragments de fission des noyaux entre ²²¹Ac et ²³⁴U (en haut) et entre ²⁰⁵At et ²²¹Th (en bas). La ligne pointillée indique la transition entre la fission symétrique et la fission asymétrique selon les calculs de Möller [79]. A droite, distributions en énergie cinétique correspondantes. Les deux figures sont tirées de la Réf. [80].

fissionnants, tous déficients en neutrons, ont été produits au GSI à Darmstadt par fragmentation sur une cible de Béryllium de noyaux d'²³⁸U accélérés à une énergie de 1 GeV par nucléon. Les noyaux résultants sont identifiés en charge et en masse puis envoyés sur une cible secondaire de plomb destinée à les exciter par interaction électromagnétique. Les modes excités de cette façon sont les résonances géantes multipolaires, en particulier la résonance géante dipolaire. Ces modes d'excitations sont situées à une énergie d'environ 11 MeV et ils décroissent essentiellement par fission. La fission observée dans ces noyaux se produit donc à des énergies de l'ordre de 5 à 6 MeV au dessus des barrières. Les distributions à gauche sur la figure 19 sont des distributions en charge et non en masse car seule la charge des fragments de fission a été mesurée. On voit sur cette figure que les noyaux les plus déficients en neutrons, ont tous une composante de fission symétrique importante, voire dominante. La figure ci-contre donne le résultat de la décomposition des distributions en charges expérimentales (les points noirs et courbes continues) de six des 70 novaux étudiés en gaussiennes censées représenter une voie de fission symétrique et deux voies asymétriques [81]. La gaussienne correspondant à la fission symétrique fournit sur les distributions en énergie cinétique de droite la courbe pointillée la plus basse tandis que le mode le moins asymétrique donne la ligne pointillée la plus haute. On en déduit que les fragmentations symétriques proviennent d'événements où les fragments sont formés à relativement grande distance l'un de l'autre (cf. éq. (3-3)) alors que dans les deux modes de fission asymétriques la configuration de scission est plus "compacte". On note par ailleurs que les distributions en charge de quatre des six noyaux présentent des effets pair-impairs marqués (qui ne sont pas pris en compte dans l'ajustement des gaussiennes) tandis que les deux autres ne présentent pas de structure visible.

Les travaux expérimentaux tels que ceux présentés ci-dessus élargissent considéra-



blement l'éventail des données disponibles¹⁸ et constituent des tests supplémentaires sévères des approches théoriques. Ils confirment en particulier que la fission ne s'effectue pas de façon simple. Des "modes" variés peuvent coexister qui font intervenir aussi bien la fission symétrique que différentes configurations de fission asymétrique. Dans cette situation, il est clair que la modélisation de la fission à l'aide d'une barrière unidimensionnelle n'est pas suffisante. Plusieurs types de déformations collectives doivent être envisagés.

C'est l'une des directions vers lesquelles s'orientent les approches théoriques modernes de la fission. Dans la classe d'approches fondées sur la méthode de correction de couches de Strutinski, citons notamment les calculs de SEP à 5 dimensions pour tous les noyaux $Z \leq 100$ réalisés à Los Alamos par M. Möller et collaborateurs [83] avec, pour décrire la composante "goutte liquide" de l'énergie de déformation, le "Finite Range Droplet Model" (FRDM) dont nous avons parlé page 8.

Une approche voisine a été employée par le groupe de Varsovie afin de décrire la fission bi-

¹⁸Une méthode expérimentale similaire a été employée récemment au GSI par une collaboration germanofranco-hispanique pour mesurer l'ensemble des produits de spallation de l'²³⁸U sur une cible d'hydrogène [82]. Au total 1385 nuclides ont été identifiés couvrant la plus grande partie de la table des noyaux et leurs sections efficaces de production mesurées. Cette expérience constitue une étape importante vers la mise au point de procédés de transmutation des déchets nucléaires.



FIG. 20 – A gauche, surface d'énergie potentielle du ²⁵⁸Fm calculée avec la méthode macroscopique-microscopique de Varsovie en fonction de deux paramètres de déformation β_2 et β_4 où les β_{λ} mesurent les déformations multipolaires du noyau. L'énergie de déformation sur cette surface est minimisée par rapport aux paramètres β_3 , β_5 et β_6 . A droite, formes du noyau correspondantes. Les lignes pointillées représentent deux chemins d'action minimale menant du puits de l'état fondamental (point *I*) aux configurations de scission les plus probables. Les deux figures sont tirées de la Réf. [84].

modale dans le ²⁵⁸Fm [84]. En calculant la SEP de ce noyau en fonction de deux paramètres de déformation β_2 et β_4 , les auteurs ont pu montrer que les deux modes de fission qui apparaissent sur les courbes expérimentales de la figure 9 peuvent s'expliquer en supposant que le noyau peut parcourir deux types de chemins différents sur cette surface. Ces chemins sont représentés par les lignes pointillées notées L_1 et L_2 sur la figure 20. Le premier mène à une fission symétrique "compacte" où les fragments sont deux isotopes de l'Etain qui sont destinés à acquérir une énergie cinétique élevée, tandis que le second conduit à une fission asymétrique avec des fragments formés à relativement grande distance l'un de l'autre et qui auront donc une énergie cinétique plus faible. L'existence de deux chemins et de deux types de configuration de scission explique ainsi de façon naturelle la structure des distributions en masse et en énergie cinétique de la figure 9.

Une autre tendance des approches théoriques contemporaines est de se rapprocher autant que possible d'une description microscopique de la fission. Comme nous le verrons plus loin, des approches entièrement microscopiques sont développées et appliquées depuis plusieurs années. Mais leur mise en oeuvre est assez lourde sur le plan pratique et elles ne sont pas encore en mesure de rendre compte de tous les aspects de la fission. Pour cette raison, il est tentant d'envisager de mettre au point des approches "semi-microscopiques" qui combinent les avantages des modèles simples traditionnels et ceux des approches microscopiques. Un exemple d'une telle approche est le modèle de Wilkins semi-microscopique développé très récemment par S. Heinrich dans sa thèse [85].

Le modèle de Wilkins traditionnel [74] a été évoqué page 43. Il s'agit d'un modèle de fragmentation dont l'objectif est de déterminer la distribution en masse et en énergie cinétique des fragments de fission. Les configurations de scission sont modélisées par deux fragments coaxiaux dont les surfaces sont



situées à une distance d l'une de l'autre. Les deux fragments sont caractérisés par leurs charges, leurs masses, leurs déformations β et leurs énergies d'excitation représentées par deux températures, l'une T_{int} associée aux modes d'excitation internes des fragments, l'autre T_{coll} aux excitations collectives relatives au système des deux fragments en interaction. Les indices L et H de la figure se rapportent respectivement au fragment léger et au fragment lourd. La probabilité que la fission conduise à une fragmentation (Z_L, A_L, Z_H, A_H) est écrite sous la forme :

$$P(Z_L, A_L, Z_H, A_H) = \int d\beta_L \int d\beta_H \ e^{-\frac{V(Z_L, A_L, \beta_L, Z_H, A_H, \beta_H, T_{int}, d)}{T_{coll}}}$$
(5-1)

où $V(Z_L, A_L, \beta_L, Z_H, A_H, \beta_H, T_{int}, d)$ est l'énergie potentielle du système, c'est-à-dire la somme de l'énergie de déformation de chacun des fragments et de l'énergie d'interaction (nucléaire + coulombienne) entre les deux fragments. On voit que le modèle dépend de trois paramètres : la distance d et les deux températures T_{int} et T_{coll} . Dans l'étude de Wilkins et al. les énergies de déformation des fragments étaient calculées avec la méthode de Strutinski et les valeurs des paramètres étaient d=1.4 fm, $T_{int}=0.75$ MeV et $T_{coll}=1$ MeV. Les résultats apparaissent en accord qualitatif avec les données expérimentales. Souvent, les distributions en masses calculées sont trop étroites et les énergies cinétiques trop élevées.

L'extension semi-microscopique de S. Heinrich a consisté à éliminer les températures T_{int} et T_{coll} en remplaçant (5-1) par :

$$P(Z_L, A_L, Z_H, A_H) = \int d\beta_L \int d\beta_H \int_0^{E^*(\beta_L, \beta_H)} d\varepsilon \ \rho_{Z_L A_L}(\varepsilon) \ \rho_{Z_H A_H}(E^*(\beta_L, \beta_H) - \varepsilon)$$
(5-2)

Dans cette expression, $\rho_{ZA}(\varepsilon)$ est la densité de niveaux du noyau (Z, A) à l'énergie ε et $E^*(\beta_L, \beta_H)$ est l'énergie d'excitation maximum que peuvent acquérir les fragments c'est-à-dire :

$$E^*(\beta_L, \beta_H) = E - V(Z_L, A_L, \beta_L, Z_H, A_H, \beta_H, d)$$
(5-3)

où E est l'énergie dans la voie de fission et $V(Z_L, A_L, \beta_L, Z_H, A_H, \beta_H, d)$ l'énergie potentielle des deux fragments dans la configuration de scission. Dans cette version du modèle de Wil-



FIG. 21 – Distributions en masse des 228 Th, 226 Th et 222 Th calculées avec le modèle de fragmentation semi-microscopique de la Réf.[85].

kins les énergies de déformation des fragments sont calculées avec l'approche microscopique Hartree-Fock-Bogoliubov et l'interaction effective de Gogny. Il ne reste qu'un seul paramètre phénoménologique, la distance d. Les résultats obtenus concernant les distributions en masse sont en bon accord avec les données expérimentales connues, même si les pics des distributions sont légèrement trop étroits. Un exemple en est donné sur la figure 21. On observe que les distributions en masse calculées dans les trois isotopes du Thorium reproduisent très bien la transition entre une fission asymétrique et une fission exclusivement symétrique qui apparaît dans les distributions expérimentales représentées page 46. Il est intéressant de noter que la valeur de d qui donne les meilleurs résultats est de l'ordre de 5 fm, par conséquent beaucoup plus grande que celle adoptée dans le modèle traditionnel (1.4 fm), et qu'un calcul microscopique Hartree-Fock-Bogoliubov des configurations de scission confirme une telle valeur de la distance entre les surfaces des fragments à la scission.

Les approches complètement microscopiques de la fission sont à l'heure actuelle en plein développement. Elles appliquent le schéma en deux étapes mentionné page 42 en commençant par déterminer les SEP des noyaux à l'aide des théories de champ moyen avec contraintes. Dans ces théories, on se donne une représentation du hamiltonien qui décrit la dynamique de A=N+Z nucléons en interaction :

$$\widehat{H} = \sum_{i=1}^{A} \frac{\widehat{p}_{i}^{2}}{2M} + \frac{1}{2} \sum_{i,j=1}^{A} \widehat{v}_{ij}$$
(5-4)

La structure du noyau dans une configuration caractérisée par un ensemble de paramètres de déformations $\{q\}=(q_1, q_2, \ldots, q_n)$ est décrite par une fonction d'onde $|\phi_{\{q\}}\rangle$ ayant la forme d'un déterminant de quasiparticules indépendantes. Ce type de fonction d'onde représente la dynamique de A nucléons évoluant dans le champ moyen créé par les autres nucléons ainsi que dans le champ d'appariement qui gouverne la formation de paires corrélées au sein du noyau [21]. Les $|\phi_{\{q\}}\rangle$ dépendent de paramètres qui sont les orbitales des nucléons et des quantités qui déterminent l'intensité des corrélations d'appariement. Ces paramètres sont déterminés en appliquant un principe variationnel exprimant que l'énergie totale du noyau est minimale :

$$\delta\langle\phi_{\{q\}}|\widehat{H} - E(\{q\})|\phi_{\{q\}}\rangle = 0 \tag{5-5}$$

et en restreignant les variations des paramètres à ceux qui satisfont aux contraintes :

$$\langle \phi_{\{q\}} | \widehat{N} | \phi_{\{q\}} \rangle = N, \qquad \langle \phi_{\{q\}} | \widehat{Z} | \phi_{\{q\}} \rangle = Z, \qquad \langle \phi_{\{q\}} | \widehat{Q}_i | \phi_{\{q\}} \rangle = q_i, \quad i = 1, \dots, N$$
(5-6)

Ces contraintes servent à imposer au noyau de posséder N neutrons, Z protons ainsi que les déformations q_i . Les opérateurs \hat{Q}_i qui déterminent ces déformations sont généralement des opérateurs multipolaires de la forme $\sum_i r_i^l (Y_l^m(\theta_i, \varphi_i) + c.c.)$ où les Y_l^m sont des harmoniques sphériques. La théorie de Lagrange des problèmes de minimisation avec contraintes permet en fait de réécrire le principe variationnel (5-5) sous la forme :

$$\delta\langle\phi_{\{q\}}|\widehat{H} - \mu_N\widehat{N} - \mu_Z\widehat{Z} - \sum_i \lambda_i\widehat{Q}_i - E(\{q\})|\phi_{\{q\}}\rangle = 0$$
(5-7)

où les μ_N , μ_Z et λ_i sont des multiplicateurs de Lagrange déterminés de façon à ce que les contraintes (5-6) soient vérifiées. Les variations des paramètres contenus dans les $|\phi_{\{q\}}\rangle$ peuvent

alors être prises quelconques. La forme (5-7) du principe variationnel, quand on la compare à la forme (5-5), signifie que l'on minimise l'énergie du noyau après l'avoir plongé dans un ensemble de "champs extérieurs" qui servent à lui donner les bons nombres moyens de nucléons ainsi que les déformations q_i requises.

Le principe variationnel (5-7) est la base de la théorie de Hartree-Fock-Bogoliubov (HFB) avec contraintes. En exprimant (5-7) à l'aide de la forme explicite des $|\phi_{\{q\}}\rangle$ on obtient un ensemble d'équations non linéaires, les équations de HFB avec contraintes, dont la solution détermine complètement la fonction d'onde $|\phi_{\{q\}}\rangle$ qui représente la structure du noyau (Z, N) lorsque celui-ci est dans la configuration caractérisée par les paramètres de déformation q_i . On peut alors se servir de la fonction d'onde $|\phi_{\{q\}}\rangle$ pour calculer des valeurs moyennes d'observables. La plus évidente est l'énergie totale du noyau dans la configuration $\{q\}$:

$$E(\{q\}) = \langle \phi_{\{q\}} | \hat{H} | \phi_{\{q\}} \rangle \tag{5-8}$$

dont l'ensemble des valeurs constitue la surface d'énergie potentielle (SEP) du noyau. D'autres quantités comme les caractéristiques globales du noyau (densité, rayons, ...) ou le tenseur des inerties collectives qui gouverne la dynamique du noyau peuvent également être obtenues.

Il est clair qu'une telle approche de l'étape "statique" du processus de fission ne dépend d'aucun paramètre phénoménologique hormis ceux contenus dans le hamiltonien \hat{H} de l'éq. (5-4), c'est-à-dire dans l'interaction nucléon-nucléon \hat{v}_{ij} . D'après la théorie du champ moyen, cette interaction doit avoir les caractéristiques d'une force "effective" qui décrit l'interaction entre deux nucléons plongés au sein du milieu nucléaire. Dans l'état actuel de la théorie, les forces effectives capables de décrire la structure des noyaux lourds ne sont pas déterminées à partir des théories fondamentales de l'interaction forte mais paramétrées sous forme phénoménologique. Les forces effectives phénoménologiques contiennent de dix à quinze paramètres qui sont ajustés de façon à reproduire les propriétés des noyaux. Les formes les plus utilisées de nos jours sont au nombre de deux : la force de Skyrme et la force de Gogny. La première a l'avantage d'être la plus simple (elle est une force de contact) et existe en de nombreuses versions : SIII [86], SkM* [87], SkP [88], SLy4 [89] , La seconde est un peu plus difficile à utiliser car elle comporte des termes de portée non nulle. Ceux-ci lui permettent notamment de décrire les corrélations d'appariement dans les noyaux, ce qui n'est pas le cas des forces de Skyrme. Elle porte le nom de D1S [90, 77].

Les SEP déterminées avec le type d'approche microscopique qui vient d'être présenté sont qualitativement très proches de celles trouvées avec les méthodes macroscopique-microscopiques. Des différences peuvent cependant se manifester qui proviennent du fait que, dans les approches microscopiques, la forme qu'adopte le noyau n'est pas imposée a priori comme elle l'est avec les méthodes macroscopique-microscopiques. En fait, tous les paramètres de déformation multipolaires non contraints adoptent les valeurs qui minimisent l'énergie de déformation du noyau. Ceci résulte du caractère variationnel de la théorie de HFB avec contraintes.

Nous ne donnons ici que quelques exemples de SEP déterminées avec les approches microscopiques. La SEP du ²³²Th calculée avec la méthode de HFB et l'interaction effective de Gogny a été présentée sur la figure 13. Elle a été déterminée en employant deux contraintes de déformation, l'une sur le moment quadrupolaire axial \hat{Q}_{20} , l'autre sur le moment octupolaire axial \hat{Q}_{30} . Ces deux opérateurs contrôlent respectivement l'élongation du noyau et son asymétrie droite-gauche.



FIG. 22 – A gauche, surface d'énergie potentielle calculée avec l'interaction de Skyrme SkM^{*} du noyau ²⁵⁸Fm où les résultats expérimentaux suggèrent une interprétation "bimodale" de la fission (cf. figure 9). Les variables de déformation sont la distance entre les centres de masse des préfragments et la déformation quadrupolaire Q_{2f} des deux préfragments. A droite, représentation de l'énergie potentielle le long des chemins d'énergie minimale sur la surface. Les symboles "GS" et "SD" dénotent le puits de l'état fondamental et celui de l'isomère de fission. L'abscisse est le moment quadrupolaire total du noyau. Les figures sont tirées de la Réf.[91].

La figure 22 montre la SEP du ²⁵⁸Fm calculée avec l'interaction de Skyrme et deux contraintes permettant l'une d'allonger le noyau, l'autre de modifier la déformation des pré-fragments [91]. La partie droite de la figure indique les chemins d'énergie minimale sur cette surface. Les chemins en traits continus notés "sym CF" (symmetric compact fission) et "sym EF" (symmetric elongated fission) correspondent tous deux à une fission symétrique en deux isotopes de l'Etain. Le premier conduit à une configuration de scission où les deux fragments sont sphériques et proches l'un de l'autre tandis que le second mène à une scission où les fragments sont allongés et comparativement plus éloignés l'un de l'autre. La ligne en pointillé notée "asym EF" (asymmetric elongated fission) décrit un chemin de fission conduisant à une scission en deux fragments inégaux formant une configuration allongée. Ces différents chemins rendent compte qualitativement de l'interprétation bimodale qui a été évoquée à propos des distributions expérimentales de la figure 9. Notons que la SEP de la figure 22 comporte trois chemins d'énergie minimale alors que la SEP de la figure 20 obtenue avec la méthode macroscopique-microscopique qui a été présentée page 47 ne faisait apparaître que deux chemins d'action minimale distincts. En fait, il est difficile de comparer les deux SEP car les paramètres de déformation en fonction desquels elles sont tracées sont différents.

La figure 23 montre également les chemins d'énergie minimale sur la SEP du ²⁵⁸Fm mais obtenus dans un calcul HFB avec l'interaction de Gogny [92]. Dans ce cas, deux chemins et non trois apparaissent qui rendent compte également de l'interprétation bimodale de la fission illustrée par la figure 9. Cette différence entre les résultats des deux approches microscopiques peut s'expliquer par des variations de quelques centaines de keV dans l'énergie potentielle de



FIG. 23 – Energie potentielle le long des chemins d'énergie minimale sur la SEP du ²⁵⁸Fm calculée avec la théorie HFB et l'interaction de Gogny. Les deux chemins trouvés correspondent à une fission symétrique compacte (ligne en trait plein) et à une fission asymétrique en configuration allongée (ligne en tirets). La ligne pointillée au niveau de la première barrière de fission indique l'influence des déformations triaxiales. L'abscisse est le moment quadrupolaire total du noyau. Les figures sont tirées de la Réf. [92].

déformation provenant des propriétés respectives des forces effectives employées et de la façon de traiter les corrélations d'appariement. En particulier, les approches utilisant la force de Skyrme sont fondées sur une méthode de type Hartree-Fock complétée par une description BCS de l'appariement, alors que la force de Gogny permet d'appliquer la théorie de Hartree-Fock-Bogoliubov dans son intégralité, et donc d'inclure l'influence des corrélations d'appariement dans un cadre réellement microscopique.

Pour terminer ce chapitre nous décrivons une étude récente où la seconde étape du schéma en deux étapes mentionné page 42, autrement dit le traitement de la dynamique quantique du noyau dans son évolution vers la fission, a été pour la première fois entreprise. Nous ne donnons que les grandes lignes de cette étude. Tous les détails peuvent être trouvés dans la Réf. [93]. La figure 24 montre la SEP bidimensionnelle du noyau étudié, l'²³⁸U, dans les paramètres de déformation Q_{20} et Q_{30} . Ces quantités mesurent respectivement l'élongation totale du noyau et son asymétrie droite-gauche. Cette surface est l'analogue de celle représentée sur la figure 13 dans le cas du ²³²Th. On distingue en particulier le puits de l'état fondamental, celui de l'isomère de fission et la vallée qui conduit en arrière aux fragmentations asymétriques. La SEP a été calculée en utilisant la méthode de Hartree-Fock-Bogoliubov avec deux contraintes de déformation et la force de Gogny.

La description de la dynamique du noyau sur cette surface a été réalisée en appliquant une version de la méthode de la coordonnée génératrice (GCM) dépendant du temps. Dans cette méthode, on suppose que la fonction d'onde dépendant du temps $|\psi(t)\rangle$ représentant l'évolution du noyau dans la voie de fission est une superposition de l'ensemble des états déformés $|\phi_{\{q\}}\rangle$ déterminés dans l'étape "statique" de l'approche. Dans le cas de la SEP de la figure 24, deux



FIG. 24 – Surface d'énergie potentielle (SEP) du noyau ²³⁸U calculée à l'aide de la méthode de Hartree-Fock-Bogoliubov avec deux contraintes de déformation et la force effective de Gogny. Les paramètres de déformation Q_{20} et Q_{30} mesurent respectivement l'élongation du noyau et son asymétrie droite-gauche. La figure est tirée de la Réf. [93].

paramètres de déformation sont utilisés, et $|\psi(t)\rangle$ s'écrit :

$$|\psi(t)\rangle = \int dq_2 \int dq_3 f(q_2, q_3, t) |\phi_{q_2 q_3}\rangle$$
 (5-9)

où l'on a abrégé le nom des variables Q_{20} et Q_{30} en q_2 et q_3 . Les $f(q_2, q_3, t)$ sont les coefficients de la superposition. Ce sont eux qui contiennent l'information relative à l'évolution du noyau sur la SEP. L'équation qui permet de les déterminer est déduite du principe variationnel dépendant du temps :

$$\frac{\delta}{\delta f^*(q_2, q_3, t)} \int_{t_1}^{t_2} \langle \psi(\tau) | i\hbar \frac{\partial}{\partial t} - \hat{H} | \psi(\tau) \rangle d\tau = 0$$
(5-10)

Ce principe variationnel est celui qui fournit l'équation de Schrödinger dépendant du temps dans le cas d'une fonction d'onde $|\psi(t)\rangle$ de forme générale. Le hamiltonien \hat{H} est identique à celui employé dans l'approche statique. Il est donné par l'éq. (5-4) avec, pour l'interaction \hat{v}_{ij} , la force effective de Gogny. Lorsqu'on remplace dans (5-10) $|\psi(t)\rangle$ par son expression (5-9), on obtient une équation pour f, l'équation de Hill et Wheeler dépendant du temps. Cette équation est une équation intégro-différentielle relativement difficile à résoudre et, dans l'étude présentée ici, elle a remplacée par une équation plus simple qui s'en déduit en utilisant notamment "l'approximation du recouvrement gaussien" ou "GOA" [21]. Avec cette approximation, l'équation à résoudre s'écrit :

$$i\hbar \frac{\partial g(q_2, q_3, t)}{\partial t} = \mathcal{H}_{coll}g(q_2, q_3, t)$$
(5-11)

où g est une fonction reliée à f par une transformation gaussienne. Cette équation se présente comme une équation de Schrödinger dépendant du temps à deux dimensions "spatiales" qu'il est

possible de résoudre numériquement avec les ordinateurs actuels moyennant un certain nombre de techniques mentionnées dans la Réf. [93].

Le hamiltonien \mathcal{H}_{coll} qui gouverne la dynamique du noyau dans (5-11) s'écrit :

$$\mathcal{H}_{coll} = -\frac{\hbar^2}{2} \sum_{i,j=2}^3 \frac{\partial}{\partial q_i} B_{ij}(q_2, q_3) \frac{\partial}{\partial q_j} + V(q_2, q_3)$$
(5-12)

Le terme d'énergie cinétique contient l'inverse $B_{ij}=(M^{-1})_{ij}$ du tenseur des inerties collectives M_{ij} et le terme d'énergie potentielle est $V(q_2, q_3)=E(q_2, q_3)-\Delta E(q_2, q_3)$, où $E(q_2, q_3)$ est la SEP (5-8) et $\Delta E(q_2, q_3)$ une "correction d'énergie de point zéro" [21]. Il se trouve que ces différents ingrédients de \mathcal{H}_{coll} peuvent être tous exprimés à partir des états statiques $|\phi_{q_2q_3}\rangle$. L'approche décrite ci-dessus ne nécessite donc aucun paramètre phénoménologique. Notons cependant que cette approche utilise implicitement l'hypothèse adiabatique mentionnée page 43. En effet, la superposition (5-9) fait intervenir seulement les états $|\phi_{q_2q_3}\rangle$ ayant l'énergie la plus basse à chaque déformation. Dans une approche plus générale, cette superposition devrait inclure aussi les états excités des $|\phi_{q_2q_3}\rangle$, rendant ainsi possible une description où une partie de l'énergie collective du noyau est dissipée en énergie d'excitation de la structure interne.



FIG. 25 – A gauche, distributions en masse du noyau ²³⁸U. La courbe en noir représente une évaluation tirée des données expérimentales [94], la courbe en bleu le résultat de l'approche dynamique microscopique avec la force effective de Gogny et la courbe en rouge celui obtenu en utilisant une version simple de la théorie de la fragmentation décrite page 44. A droite, distribution en énergie cinétique des fragments en fonction de la masse du fragment lourd calculée avec l'approche dynamique microscopique (courbe continue) comparée à l'expérience (points) [95].

L'équation (5-11) a été résolue numériquement dans le cas de l'²³⁸U en supposant une condition initiale constituée d'une superposition d'états collectifs dans le puits de l'état fondamental ayant une énergie d'excitation de 1 MeV au-dessus des barrières de fission. La figure 25 donne deux

des résultats obtenus dans cette étude : la distribution en masse des fragments de fission et la distribution de leurs énergies cinétiques.

La distribution en masse calculée avec l'approche dynamique microscopique est représentée sur le diagramme de gauche par la courbe bleue. On voit qu'elle est en relativement bon accord avec les données expérimentales (courbe noire). Il faut souligner que, dans la plupart des cas, les approches de la fission qui ne s'autorisent pas à employer des paramètres arbitraires ajustés sur les données trouvent toujours des distributions en masse nettement plus étroites que les distributions expérimentales. La théorie de la fragmentation décrite page 44 par exemple, si on l'applique dans sa version simple, c'est-à-dire sans utiliser une température ad hoc, fournit une distribution en masse représentée par la courbe rouge.

Dans la partie droite de la figure, la courbe continue donne la distribution en énergie cinétique des fragments en fonction de la masse du fragment lourd calculée avec l'approche dynamique microscopique. Les points avec leurs barres d'erreur sont les données expérimentales de la Réf. [95]. On observe que le calcul théorique reproduit le "dip" au voisinage de la fragmentation symétrique dont il a été question à propos de la figure 10 page 25. Il subsiste cependant un désaccord quantitatif entre l'énergie cinétique calculée et celle mesurée, notamment dans la région des fragmentations les plus probables. Il semble que dans cette région les configurations de scission obtenues par le calcul soient légèrement trop "compactes".

5.3 L'apport de la théorie dans l'évaluation de données

L'évaluation de données est réalisée à l'heure actuelle essentiellement avec les modèles traditionnels de la structure nucléaire et de la fission : modèle statistique, potentiels optiques phénoménologiques, barrières de fission paraboliques, états de transition de Bohr, densités de niveaux phénoménologiques, etc ... et ils comportent un certain nombre de paramètres qui doivent être ajustés sur les données expérimentales. Celles-ci sont relativement abondantes dans les actinides usuels de sorte qu'elles suffisent en général à déterminer les paramètres nécessaires. Un point important, évoqué page 40, est que les évaluateurs contemporains savent tenir compte de l'interdépendance des sections efficaces correspondant à des processus différents et faisant intervenir différents noyaux. D'autre part, des études de sensibilité et de corrélation vis-à-vis des paramètres employés et des données expérimentales servant de base aux ajustement sont effectuées.¹⁹. Ces techniques donnent aux évaluations les plus récentes un degré de précision et une fiabilité remarquables.

La question que l'on peut se poser est en fait de savoir si les théories récentes de la fission, en particulier les théories microscopiques, sont capables de contribuer efficacement à l'évaluation de données dans les régions de noyaux où peu de données sont disponibles. La réponse à cette question peut être résumée – dans l'état présent de la théorie – de la façon suivante :

• les approches théoriques macroscopique-microscopiques ou microscopiques ne semblent pas actuellement capables de fournir des barrières de fission unidimensionnelles suffisamment précises pour les évaluations de sections efficaces de fission. Le problème est en partie dû à la très grande sensibilité des sections efficaces aux hauteurs des barrières de fission et aux incertitudes inhérentes aux approches théoriques. Il provient aussi de la

 $^{^{19}\}mathrm{Cf.}$ le cours de E. Bauge.

difficulté dont nous avons parlé de définir une barrière de fission à une dimension à partir des SEP multidimensionnelles qui résultent des calculs théoriques.



FIG. 26 – Résultat d'un calcul microscopique des états collectifs de rotation-vibration sur la SEP triaxiale (β, γ) du ²⁴⁰Pu représentée en haut à droite. Les déformations β prises en compte incluent à la fois le puits du fondamental et l'isomère de fission. La courbe d'énergie de déformation située en-dessous est relative aux formes axiales. La courbe bleue correspond à des déformations symétriques droite-gauche et la courbe rouge indique l'influence des déformations asymétriques droite-gauche. Le diagramme de gauche montre quelques-uns des états collectifs calculés. Ils ont été regroupés en bandes de rotation dont certaines (GS band) appartiennent au puits de l'état fondamental et d'autres (SD band) au puits de l'isomère de fission, et mis en regard des niveaux expérimentaux connus. L'interaction nucléaire utilisée est la force effective de Gogny [96].

• en revanche, les approches théoriques peuvent servir de guide afin d'aider à extrapoler les modèles et leurs paramètres aux noyaux inconnus. Les quantités que la théorie est capable ou devrait être capable dans un avenir proche de prédire sont par exemple : le nombre et la hauteur relative des bosses des barrières de fission, le nombre et la nature des chemins de fission les plus probables, les distributions en masse et en énergie cinétiques des fragments, le type et la densité des états de transition de Bohr et la spectroscopie des états collectifs dans le second puits, celui de l'isomère de fission.

Un exemple de calcul fournissant la spectroscopie dans le second puits de la barrière de fission est donné sur la figure 26. Il concerne le noyau ²⁴⁰Pu et résulte d'une approche complètement microscopique fondée sur la théorie HFB et la méthode de la Coordonnée Génératrice (GCM) employées avec la force de Gogny [96]. La figure ne montre que les états de parité positive d'énergies les plus basses ayant une contrepartie expérimentale connue. Beaucoup d'autres sont calculés. L'approche microscopique employée est suffisamment robuste pour que les niveaux ainsi déterminés puissent servir à encadrer les valeurs des paramètres de barrières de fission utilisés dans les évaluations. De fait, les évaluations réalisées de nos jours utilisent de plus en plus les résultats des approches microscopiques tels que celui présenté ci-dessus. Cette interaction entre l'évaluation et la théorie n'en est cependant qu'à son début. Des améliorations diverses sont introduites actuellement dans les approches théoriques de la fission afin d'en étendre le champ d'application et réaliser l'interface avec les modèles en limitant le nombre des paramètres nécessaires. Par exemple, des développements sont en cours afin de traiter la dynamique quantique au-delà de l'approximation adiabatique. De même, des travaux sont consacrés à la dérivation de barrières unidimensionnelles "effectives" capables de simuler l'évolution sur les surfaces d'énergie potentielle à plusieurs dimensions. L'objectif de ces études est de parvenir d'une part à une compréhension plus fondamentale du phénomène, d'autre part à des prédictions théoriques les plus réalistes possibles. Les progrès déjà réalisés dans cette direction et ceux envisageables dans les années qui viennent semblent indiquer que la théorie sera l'un des auxiliaires les plus importants du travail d'évaluation dans le futur.

Références

- [1] L. L. Quill, Chem. Rev. 23 (1938) 87
- [2] O. Hahn and F. Strassmann, Naturwissenschaften **27** (1939) 11
- [3] O. Hahn and F. Strassmann, Naturwissenschaften 27 (1939) 89
- [4] L. Meitner and O. R. Frisch, Nature (London) **143** (1939) 239
- [5] O. R. Frisch, Nature (London) **143** (1939) 276
- [6] N. Bohr and J.A. Wheeler, Phys. Rev. 56 (1939) 426
- [7] F. Joliot, Comptes rendus hebd. Académie des Sciences, **208** (1939) 341
- [8] F. Joliot, Comptes rendus hebd. Académie des Sciences, 208 (1939) 647
- [9] F. Joliot, Comptes rendus hebd. Académie des Sciences, 208 (1939) 995
- [10] I. Noddack-Tacke, Angew. Chem. 47 (1934) 653
- [11] W. Noddack, I. Tacke and O. Berg, Naturwissenschaften 13 (1925) 567
- [12] R. Zingales, J. Chem. Educ. 82 (2005) 221; réponse à l'article dans J. Chem. Educ. 83 (2006) 213
- [13] W. D. Myers and W. J. Swiatecki, Ann Phys. (N.Y.) 55 (1969) 395; Ann Phys. (N.Y.) 84 (1974) 186
- [14] K. Pomorski and J. Dudek, Phys. Rev. C 67 (2003) 044316
- [15] H. J. Krappe, J. R. Nix and A. J. Sierk, Phys. Rev. C 20 (1979) 992
- [16] P. Möller, J. R. Nix, W. D. Myers, and W. J. Swiatecki, Atomic Data Nucl. Data Tables 59 (1995) 185
- [17] O. Haxel, J. H. D. Jensen, and H. E. Suess, Phys. Rev. **75** (1949) 1766
- [18] M. G. Mayer, Phys. Rev. **75** (1949) 1969
- [19] S. G. Nilsson, Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. 29 (1955) No. 16
- [20] V. M. Strutinski, Nucl. Phys. A 95 (1967) 420; Nucl. Phys. A 122 (1968) 1

- [21] P. Ring and P. Schuck, The Nuclear Many-Body Problem, Springer-Verlag, New York, 1980.
- [22] M. Brack and P. Quentin, in *Nuclear Self-consistent Fields*, edited by G. Ripka and M. Porneuf (1975) p. 399
- [23] J. R. Nix, Ann. Rev. Nucl. Sci. **22** (1972) 65
- [24] S. M. Polikanov et al., Sov. Phys. JETP 15 (1962) 1016
- [25] W. D. Myers and W. J. Swiatecki, Nucl. Phys. 81 (1966) 1
- [26] M. Morjean et al., Nucl. Phys. A **591** (1995) 386
- [27] M. Morjean et al., Nucl. Phys. A **630** (1998) 207c
- [28] W. D. Myers and W. J. Swiatecki, Ark. Fys. **36** (1967) 343
- [29] A. C. Wahl, in *Physics and Chemistry of Fission*, Vol I (Vienna, IAEA, 1965) p. 317
- [30] K. F. Flynn et al., Phys. Rev. C 5 (1972) 1725
- [31] R. C. Jensen and A. W. Fairhall, Phys. Rev. **109** (1958) 942
- [32] L. E. Glendenin et al., Phys. Rev. C 24 (1981) 2600
- [33] C. Wagemans al., Phys. Rev. C **30** (1984) 218
- [34] C. Wagemans al., in Proc. Int. Conf. Fifty Years Research in Nuclear Fission, Berlin, 1989
- [35] J. C. D. Milton and J. S. Fraser, Can. J. Phys. 40 (1962) 1626
- [36] F. Pleasanton, Phys. Rev. **174** (1968) 1500
- [37] E. K. Hulet, in Proc. Conf. Fiftieth Anniversary of Nuclear Fission, Leningrad, 1989
- [38] A. C. Wahl, in *New Directions in Physics*, N. R. Metropolis, ed., Academic Press, New York, 1987, p. 163
- [39] E. K. Hulet et al., Phys. Rev. Lett. 56 (1986) 31; Phys. Rev. C 40 (1989) 770
- [40] J. N. Neiler, F. J. Walker, and H. W. Schmitt, Phys. Rev. 149 (1966) 894
- [41] H. Thirens et al., Phys. Rev. C 23 (1981) 2104
- [42] L. Lachkar et al., J. Physique **36** (1975) L-70
- [43] J. R. Huizenga and R. Vandenbosch in *Nuclear Reactions*, Vol II, P. M. Endt and P. B. Smith editors, North-Holland Publ., Amsterdam, 1962
- [44] R. B. Leachman, in Proc. Int. Conf. Peaceful Uses At. Energy, United Nations, New York 2 (1956) 193
- [45] V. F. Apalin et al., Nucl. Phys. 55 (1964) 249
- [46] J. Terrell, in *Physics and Chemistry of Fission*, Vol II (Vienna, IAEA, 1965) p. 3
- [47] S. E. Larsson and G. Leander, in *Physics and Chemistry of Fission* (Vienna, IAEA, 1974) Vol I, p. 177
- [48] J. E. Lynn, in Modern Fission Theory for Criticality, Los Alamos Report LA-14098, 2004
- [49] P. Möller and J. R. Nix, in *Physics and Chemistry of Fission* (Vienna, IAEA, 1974) Vol I, p. 103
- [50] A. Michaudon, in Advances in Nuclear Physics, Vol 6, M. Baranger and E. Vogt editors, (Plenum Press, New York, 1973)
- [51] P. Romain, CEA Bruyères-le-Châtel, private communication

- [52] D. L. Hill and J. A. Wheeler, Phys. Rev. 89 (1953) 1102
- [53] J. D. Cramer and J. R. Nix, Phys. Rev. C 2 (1970) 1048
- [54] A. V. Ignatyuk et al., Phys. Lett. B **29** (1969) 209
- [55] A. Fubini, J. Blons, A. Michaudon, and D. Paya, Phys. Rev. Lett. 20 (1968) 1373
- [56] W. Kolar and K. H. Böckhoff, in Proc. Int. Conf. Neutron Cross Sections and Technology, Vol I, NBS Special Publ. 299 (1968) 519
- [57] E. Migneco and J. P. Theobald, Nucl. Phys. A **112** (1968) 603
- [58] A. Bohr, in Proc. Int. Conf. on the Peaceful Uses of Atomic Energy (United Nations, New York, 1956) Vol 2, p. 151
- [59] C. Mahaux and H. A. Weidenmüller, Shell-Model Approach to Nuclear Reactions, (North Holland, Amsterdam, 1969)
- [60] P. A. Moldauer, in Nuclear Theory for Applications, (IAEA, Vienna, 1980) p. 165
- [61] W. Hauser and H. Feshbach, Phys. Rev. 87 (1952) 366
- [62] A. M. Lane and R. G. Thomas, Rev. Mod. Phys. **30** (1958) 257
- [63] J. W. Negele et al, Phys. Rev. C 17 (1978) 1098
- [64] H. Hofmann and P. J. Siemens, Nucl. Phys. A 257 (1976) 165
- [65] P. Grangé, H.C. Pauli and H. A. Weidenmüller, Phys. Lett. B 88 (1979) 9; H. A. Weidenmüller, and Z. Jing-Shang, Phys. Rev. C 29 (1984) 879; P. Grangé et al., Phys. Rev. C 34 (1986) 209; S. Hassani and P. Grangé et al., Z. Phys. A 325 (1986) 95
- [66] J. R. Nix, A. J. Sierk, H. Hofmann, F. Scheuter and D. Vautherin, Nucl. Phys. A 424 (1984) 239
- [67] G. D. Adeev and I. I. Gonchar, Z. Phys. A **322** (1985) 479; G. D. Adeev et al., Sov. J. Nucl. Phys. **42** (1985) 25; **43** (1986) 727; **44** (1986) 579
- [68] R. W. Hasse and W. D. Myers, Geometrical Relationships of Macroscopic Nuclear Physics (Springer-Verlag, Berlin, 1988)
- [69] K. T. R. Davies, A. J. Sierk, and J. R. Nix, Phys. Rev. C 13 (1976) 2385; A. J. Sierk, and J. R. Nix, Phys. Rev. C 21 (1980) 982
- [70] K. Pomorski, J. Bartel, J. Richert and K. Dietrich, Nucl. Phys. A 665 (1996) 87
- [71] P. Fong, Statistical Theory of Nuclear Fission (Gordon and Breach, New York, 1969)
- [72] U. Brosa and S. Grossmann, Z. Phys. A **310** (1983) 177; Phys. Lett. B **126** (1983) 125;
 U. Brosa, Phys. Rev. C **32** (1985) 1438
- [73] F. Dickmann and K. Dietrich, Nucl. Phys. A 129 (1969) 241
- [74] B. D. Wilkins, E. P. Steinberg and R. R. Chasmann, Phys. Rev. C 14 (1976) 1832
- [75] J. Marhun and W. Greiner, Phys. Rev. Lett. 32 (1974) 548; Phys. Rev. C 13 (1976) 2404
- [76] J-F. Berger et al., Nucl. Phys. A **428** (1984) 23c
- [77] J-F. Berger et al., Comp. Phys. Comm. 63 (1991) 365
- [78] H. Goutte et al., Phys. Rev. C **71** (2005) 024316
- [79] P. Möller, Nucl. Phys. A **192** (1972) 529
- [80] K-H. Schmidt et al., Nucl. Phys. A 665 (2000) 221

- [81] K-H. Schmidt et al., Nucl. Phys. A 693 (2001) 169
- [82] P. Armbruster et al., Phys. Rev. Lett. 93 (2004) 212701
- [83] P. Möller et al., Nature **409** (2001) 785; Phys. Rev. Lett. **92** (2004) 072501
- [84] S. Cwiok et al., Nucl. Phys. A **491** (1989) 281
- [85] S. Heinrich, Thèse (2006)
- [86] M. Beiner et al., Nucl. Phys. A 238 (1975) 29
- [87] J. Bartel et al., Nucl. Phys. A **386** (1982) 79
- [88] J. Dobaczewski et al., Nucl. Phys. A 422 (1984) 103
- [89] E. Chabanat et al., Nucl. Phys. A 627 (1997) 710; Nucl. Phys. A 635 (1998) 231
- [90] J. Dechargé and D. Gogny, Phys. Rev. C **21** (1980) 1568
- [91] L. Bonneau, Phys. Rev. C 74 (2006) 014301
- [92] M. Warda et al., Phys. Rev. C 66 (2002) 014310
- [93] H. Goutte et al., Phys. Rev. C **71** (2005) 024316
- [94] A. C. Wahl, Los Alamos Report LA-13928, 2002
- [95] S. Pommé et al., Nucl. Phys. A 560 (1993) 689
- [96] J-P. Delaroche et al., Nucl. Phys. A 771 (2006) 103

Bibliographie générale

- 1. N. Bohr and J.A. Wheeler, The Mechanism of Nuclear Fission, Phys. Rev. 56 (1939) 426
- 2. L. Wilets, Theories of Nuclear Fission, Clarendon Press, Oxford, 1964
- M. Brack et al., Funny Hills : The Shell-Correction Approach to Nuclear Shell Effects and Its Applications to the Fission Process, Rev. Mod. Phys. 44 (1972) 320
- 4. R. Vandenbosch and J.R. Huizenga, Nuclear Fission, Academic Press, New York, 1973
- 5. I.S. Grant, The Fission Process, Rep. Prog. Phys. 39 (1976) 955
- S. Bjornholm, and J.E. Lynn, *The Doubled Humped Fission Barrier*, Rev. Mod. Phys. 52 (1980) 725
- 7. K. S. Krane, Introductory Nuclear Physics, John Wiley & Sons, 1988, Chap. 13
- 8. C. Wagemans, The Nuclear Fission Process, CRC Press, 1991
Physique des Réacteurs Nucléaires

Peter Baeten

SCK-CEN, Centre d'Etudes de l'Energie Nucléaire, Boeretang 200, B-2400 Mol

RESUME

Ce cours donne une introduction à la Physique des Réacteurs Nucléaires. Le premier chapitre offre une explication des paramètres et concepts les plus importants dans la physique des réacteurs nucléaires comme le phénomène de la fission, les sections efficaces et le facteur de multiplication effectif. Ensuite, dans le deuxième chapitre les distributions de flux dans un réacteur stationnaire sont dérivées à partir de l'équation de diffusion. La cinétique, le contrôle et la dynamique (les effets des contre-réactions) du réacteur sont traités dans les trois chapitres suivants. Le cours termine avec une description courte de différents types de réacteurs actuels et de futurs types de réacteurs.

ABSTRACT

This course gives an introduction to Nuclear Reactor Physics. The first chapter explains the most important parameters and concepts in nuclear reactor physics such as fission, cross sections and the effective multiplication factor. Furtheron, in the second chapter, the flux distributions in a stationnary reactor are derived from the diffusion equation. Reactor kinetics, reactor control and reactor dynamics (feedback effects) are described in the following three chapters. The cours concludes with a short description of the different types of existing and future reactors.

Table de matières

1	Neutro	nique	64
	1.1 Ener	gie de liaison des noyaux	64
	1.2 Ener	gie dégagée	65
	1.3 Prod	luits de fission	66
	1.4 Les	interactions neutron-matière	66
	1.5 Sect	ions efficaces microscopiques	67
	1.6 Ener	gie des neutrons dans un réacteur	69
	1.7 Réa	tion en chaîne: bilan neutronique	71
	1.7.1	Facteur de multiplication dans un milieu infini	71
	1.7.2	Facteur de multiplication dans un milieu fini	74
2	Statiqu	e des Réacteurs Nucléaires	76
	2.1 Théo	rie de diffusion à un groupe pour un réacteur réfléchi	76
	2.1.1	Etablissement de l'équation de diffusion	76
	2.1.2	Distribution de flux dans le cœur	
	2.1.3	Distribution de flux dans le réflecteur	79
	2.2 Dim	ensions du réacteur	
	2.2.1	Longueur extrapolée	
	2.2.2	Laplacien géométrique	
	2.2.3	Volume critique	
	2.3 Théo	rie de diffusion à 2 groupes pour un réacteur nu	
-	2.4 Theo	rie de diffusion à 2 groupes pour un reacteur reflechi	
3	Cinétic	lue des réacteurs nucléaires	84
	3.1 Prin	cipes de base de la cinétique	
	3.1.1	Neutrons prompts	
	3.1.2	Neutrons retardés	
	3.1.3	Neutrons de sources	
	3.1.4	Facteur de multiplication: moteur de la cinetique	
	3.2 Equi	itions de la cinétique	88
	3.3 Com	portement cinétique sans neutrons retardés et sans source	
	3.4 Com	Solution générale et interprétation de l'équation de Nordhaim	
	2 4 2	Solution des éguations de la cinétique pour de notites valours de réactivité la CCP	
	5.4.2 2.4.2	Solution de l'équations de la cinétique pour de grandes valeurs de réactivité $p > 0$	
4	5.4.5 Cantu?	solution de requation de la cinetique pour de grandes valeurs de reactivité pp	
4	Contro	le du reacteur	
	4.1 Prin	cipe du controle d'un reacteur nucleaire	
	4.2 Lea	emarrage du reacteur	
	4.2.1	Fisher de missence pendent le démorrage	
	4.2.2	Appreciate sous critique	
	4.2.5 13 Rági	Approche sous-critique	
	4.5 Kegi	Réglage de nuissance instantané	
	432	Réglage de puissance compensatoire	101
	4.4 L'ar	rêt du réacteur	102
5	Dynan	ique des Réacteurs Nucléaires	103
5	5 1 Intro	inque des Reacteurs Nuclearres	103
	5.1 Intro	réactif de température	105 104
	5.2 Ejjel	Effet réactif de température rapide: coefficient de température de combustible	
	522	Effet réactif de température retardé: coefficient de température de confoisible	
	5.3 Effe	réactif de vide	
	5.4 Effe	réactif de hurn-un	
	5.5 Effe	réactif lié aux produits de fissions significativement absorbants	
	5.5.1	Empoisonnement de Samarium	
	5.5.2	Empoisonnement de Xénon	110

6	Гурез	de reacteurs nucleaires	
6.1	Prin	ncipes et types actuels de réacteurs nucléaires de puissance	
6	5.1.1	Réacteur à eau pressurisée (REP)	
6	5.1.2	Réacteur à eau bouillante (REB)	
6	5.1.3	Réacteur à gaz avancé (RGA)	
6	5.1.4	Réacteur à eau lourde pressurisée (RELP)	
6	5.1.5	Réacteur de type "RBMK"	
6	5.1.6	Réacteur à neutrons rapides (RNR)	
6.2	Futi	ur proche du nucléaire: Génération III	
6.3	Le p	parc nucléaire à partir de 2025	
6	5.3.1	Nouvelles applications	
6	5.3.2	Nouvelles types de réacteurs nucléaires: Génération IV	
6	5.3.3	Les systèmes sous-critiques pilotés par un accélérateur	

1 NEUTRONIQUE

1.1 Energie de liaison des noyaux

Selon la théorie D'Einstein il existe une relation d'interchangeabilité entre la masse et l'énergie. Cette relation est donnée par l'expression suivante

 $\mathbf{E} = \mathbf{m} \cdot \mathbf{c}^2 \quad (1)$

Avec E: énergie totale (J) m: masse c: la vitesse de la lumière dans le vide (2.998 10⁸ m/s)

La détermination directe de la masse des différents nucléides par une spectrométrie de masse a montré que la véritable masse est toujours plus petite que la somme des masses des différents nucléons formant les nuclides.

La somme des masses de chaque particule desquelles l'atome ou l'isotope est constitué sera donné par: $Z \cdot m_n + Z \cdot m_e + (A - Z) \cdot m_n$ (2)

 m_p : la masse au repos d'un proton (1.007267 u), m_e : la masse au repos d'un électron (0.000549 u), m_n : la masse au repos d'un neutron (1.007825 u), u: l'unité de masse atomique¹ (1.661 10⁻²⁷ kg)

En physique nucléaire on utilise souvent comme unité pour l'énergie: l'électronvolt (($1 \text{ eV} = 1.602 \text{ } 10^{-19} \text{ J}$). Comme évoqué précédemment la véritable masse et donc aussi l'énergie d'un atome d'un isotope est toujours plus petite que la somme des masses des particules prises individuellement.

 $\Delta m = Z \cdot \left(m_{p} + m_{e} \right) + \left(A - Z \right) \cdot m_{n} - M \qquad (3)$

En d'autres termes, si un atome est formé à partir de particules individuelles, il va perdre de sa masse. Cette perte de masse est transformée en énergie $E=\Delta m c^2$. Cette énergie est libérée par la liaison entre les particules libres et l'atome qui est aussi appelée l'énergie de liaison (BE) Inversement, une quantité d'énergie identique doit être apportée à l'atome pour en extraire les particules originales. Couramment on exprime l'énergie de liaison d'un atome par nucléon

$$\frac{BE}{A} = \frac{931.5}{A} \cdot (1.007825 \cdot Z + 1.008665 \cdot (A - Z) - M) MeV \quad (4)$$

Si l'on exprime l'énergie de liaison par nucléon en fonction du nombre de masse on obtient une courbe comme à la figure 1. La figure montre clairement que cette courbe est caractérisée par une valeur maximum pour un nombre de masse entre grosso modo 60 et 80.

On peut démontrer que lorsqu'on transforme des noyaux avec une énergie de liaison basse en noyaux avec une énergie de liaison plus importante par nucléon cela va de paire avec une libération d'énergie et c'est énergétiquement favorable. De la figure 1 on peut déduire que la combinaison (ou fusion) de noyaux légers ou la fission de noyaux lourds, peut fournir de l'énergie.



Figure 1: Lien entre l'énergie moyenne de liaison et le nombre de masse

Lorsque l'on fissionne un noyau avec un très haut nombre de masse (par ex.²³⁵U) en deux, il y aura une libération d'énergie. Les deux fragments auront en tous cas une énergie supérieure par nucléon que le noyau originel. Dans les réacteurs nucléaires on utilise cette libération d'énergie pour produire de la chaleur. L'énergie qui se libère lors d'une fission est d'environs 200MeV. Si l'on compare celle-ci avec l'énergie libérée lors de la combustion complète d'un atome de carbone (4eV) on remarque immédiatement l'apport énorme d'énergie par quantité de combustible que dégage une réaction de fission nucléaire.

1.2 Energie dégagée

L'énergie moyenne de liaison par nucléon $d^{236}U$ est de 7.55 MeV (voir figure 1) Pour les produits de fission cette énergie est d'environs 8.4MeV. Avec la fission, il y a une quantité d'énergie produite comparable à :

$$236 \cdot (8.4 - 7.55) \text{ MeV} \approx 200 \text{ MeV}$$
 (5)

Cette énergie est partagée comme ceci :

énergie cinétique des produits de fission	168 MeV
énergie cinétique des neutrons	5 MeV
rayonnement gamma primaire	7 MeV
rayonnement gamma des produits de fission	6 MeV
rayonnement β des produits de fission	7 MeV
neutrinos	10 MeV

La plus grande partie de cette énergie est délivrée sous forme d'énergie cinétique des produits de fission et se manifeste pratiquement par un dégagement de chaleur. Les rayonnements β et γ peuvent être récupérés sous forme de chaleur étant donné l'interaction des rayonnements β et γ avec les matériaux du réacteur. L'énergie des neutrinos ne peut être utilisée car les neutrinos n'interagissent que peu ou pas du tout avec la matière.

L'énergie que nous pouvons extraire de la fission de l'²³⁵U peut ainsi être calculée:

$$1 g^{235} U \text{ conteint} \frac{N_A}{M} = \frac{6.024 \cdot 10^{25}}{235} = 2.56 \cdot 10^{21} \text{ atomes}$$
 (6)

Par atome se libère 200 MeV qui peut se traduire en une quantité d'énergie exprimée en Joule de:

$$200 \text{ MeV} = (200 \cdot 10^6) \cdot (1.6 \cdot 10^{-19} \text{ J}) = 32 \cdot 10^{-12} \text{ J}$$
 (7)

Pour une fission complète de 1g²³⁵U il y a une production d'énergie totale de

$$(2.56 \cdot 10^{21}) \cdot (32 \cdot 10^{-12} \text{ J}) = 8.2 \cdot 10^{10} \text{ J} = 8.2 \cdot 10^{10} \text{ W} \cdot \text{s} = 0.95 \text{ MWd}$$
(8)

Pour avoir le même dégagement d'énergie avec la combustion du charbon, il faudrait environs 2.55 tonnes.

1.3 Produits de fission

La fission nucléaire peut se produire de bien diverses façons. Dans la plupart des cas apparaissent deux noyaux moyennement lourds et deux ou trois nouveaux neutrons. Un exemple d'une réaction de fission est donné par l'équation:

$${}^{235}_{92}\text{U} + {}^{1}_{0}\text{n} \implies {}^{93}_{38}\text{Sr} + {}^{140}_{54}\text{Xe} + 3 {}^{1}_{0}\text{n} \quad (9)$$

Figure 2: Production de produits de fission lors de la fission de $l^{235}U$ par des neutrons thermiques

Au total il existe environ 400 produits de fission différents. La probabilité qu'un produit de fission soit formé est donnée dans la figure 2.

1.4 Les interactions neutron-matière

Les neutrons libres dans le milieu peuvent réagir de manières différentes avec les noyaux des atomes. Les différentes interactions peuvent se diviser en 3 groupes: diffusion, absorption et fission.

Diffusion

On parle de diffusion ou scattering lorsque le résultat net de l'interaction est seulement un échange d'énergie entre le neutron et le noyau. Le terme diffusion vient du fait que le neutron après interaction se déplace, dans la plupart des cas, dans une autre direction. On fait la différence entre deux sortes de diffusion: élastique et inélastique. Lors de la diffusion élastique, l'échange d'énergie est totalement cinétique. Etant donné que l'énergie cinétique du neutron est supérieure à celui provenant de l'atome, il va alors perdre une partie de son énergie, alors que l'énergie cinétique de l'atome concerné va augmenter. Pour une collision inélastique, une partie de l'énergie cinétique va être transmise comme

énergie potentielle à l'atome. L'atome rencontré se trouve alors dans un état excité. La désexcitation du noyau se produit dans la plupart des cas par une émission de rayons gamma. La diffusion élastique est possible pour toutes les énergies concevables du neutron. La diffusion inélastique est seulement possible si l'énergie du neutron est suffisante pour amener l'atome dans un état excité.

Capture neutronique

Lorsqu'un neutron est capturé par un noyau, apparaît un noyau composé, la plupart du temps dans un état excité (avec une énergie supérieure) .Lors de la collision inélastique, un neutron d'une énergie plus faible est expulsé immédiatement, le noyau reste dans un état excité. A la place de l'expulsion d'un neutron on peut avoir un noyau composé qui se désintègre par un autre processus. Par exemple, le noyau peut céder son énergie sous la forme d'un rayonnement gamma, ou des particules béta ou alpha, c'est ce procédé que l'on appelle la capture neutronique. Ce type d'interaction est fréquent et aura dans la plupart des cas une plus grande probabilité de se produire pour des neutrons de basse énergie. On parle généralement d'absorption neutronique. S'il n'y a pas de nouvelle émission de neutron on parle alors plus spécifiquement de capture neutronique.

Fission induite

La fission induite est une forme particulière de l'absorption neutronique. Après que le noyau ait absorbé le neutron l'atome va se décomposer en 2 noyaux plus légers et un certain nombre de neutrons seront émis comme mentionné dans le paragraphe précédent.

1.5 Sections efficaces microscopiques

L'interaction des neutrons peut être décrite d'une manière quantitative à l'aide du concept de section efficace. Si un matériau est exposé à un faisceau de neutron, le taux de réaction sera dépendant du nombre de neutron, de leurs vitesses, du nombre et du type de noyaux dans le matériau considéré. C'est pourquoi la section efficace est une mesure de la probabilité avec laquelle une interaction neutron-noyau peut avoir lieu et est une caractéristique du noyau et de l'énergie du neutron incident.

Supposons un faisceau I de neutron mono énergétique uniforme qui arrive perpendiculairement sur une fine surface (d'épaisseur dx) par unité de surface (m²) d'un matériau ayant N atomes par m³. Il y a donc N.dx atomes par m². On définit C comme étant le nombre d'interaction individuelle (par ex capture) qui surviennent par m². La section efficace σ pour un type d'interaction particulier (pour une énergie donnée du neutron incident) est alors définie par le taux de réaction moyen par noyau et par neutron dans le faisceau

$$\sigma = \frac{C}{(N.dx)I} \quad m^2 / noyau \quad (10)$$

Parce que la plupart des interactions sont de l'ordre de 10^{-26} à 10^{-30} m² par noyau, on utilise une unité appelée le barn qui correspond à 1 barn= 10^{-24} cm² soit 10^{-28} m². Les différentes interactions avec leur section efficace respective sont :

- σ_a : absorption
- $\sigma_{\rm f}$: fission
- σ_c : capture
- σ_s : diffusion (scattering)
- σ_{el} : diffusion élastique
- σ_{in} : diffusion inélastique
- σ_t : section efficace totale

Qui vaut:

$$\sigma_{t} = \sigma_{s} + \sigma_{a} = \sigma_{el} + \sigma_{in} + \sigma_{c} + \sigma_{f}$$

$$\sigma_{t} \begin{cases} \sigma_{s} & \{\sigma_{el} \\ \sigma_{in} \\ \sigma_{a} & \{\sigma_{f} \\ \sigma_{c} \end{bmatrix} \end{cases}$$
(11)

Ces différentes sections efficaces sont dépendantes du nucléide, de l'énergie du neutron et du type d'interaction.

La dépendance de la section efficace par rapport à l'énergie est une donnée complexe qui dépend du type de nucléide et du type d'interaction. Elle est généralement subdivisée en trois régions Dans la première partie la section efficace diminue fortement avec l'augmentation de l'énergie. La section efficace d'absorption est inversement proportionnelle à la racine carrée de l'énergie du neutron incident. Etant donné que l'énergie est proportionnelle au carré de la vitesse, la section efficace varie selon une loi en 1/v. Après la partie basses énergies, il y a la zone de résonnances pour des neutrons incidents ayant une énergie de 0.1 eV à 1 keV. Cette zone est caractérisée par la présence de pics très fins et à certaines énergies bien définies. Certains éléments comme le Cadmium ont seulement un pic de résonnance par contre d'autre comme l'Uranium-238, l'Indium et l'Argent possèdent plusieurs pics. La section efficace à la position du pic peut dans certains cas être très élevée $2x10^4$ barn pour le Cadmium pour 0.17 eV et 3.4x10⁶ barn pour le Xénon-135 pour 0.7eV. Après le domaine de résonnances, la section efficace diminue de façon abrupte avec l'augmention d'énergie. Le domaine avec une énergie supérieure à 10keV est appelé le domaine d'énergie rapide et possède une section efficace qui est inférieure à 10 barns dans la plupart des cas et devient encore plus petite dans le voisinage des 0.1 MeV. Les sections efficaces pour l'absorption sont du même ordre de grandeur que la "section géométrique" du noyau soit environ 2 à 3 barns.



Figure 3: Section efficace microscopique en fonction de l'énergie : a) Absorption pour le Cd et le B; b) Absorption pour l'U-235; c) Fission pour l'U-233 et l'U-235 ;d) Absorption pour le Pu-240 et fission pour le Pu-239 et le Pu-241.

La section efficace pour la diffusion élastique est généralement caractérisée par un comportement relativement constant dans la plus grande partie du domaine d'énergie. Ceci est de 4 barns pour le C-12 et de 8 à 10 barns pour l'U-238 dans le domaine des basses énergies. Pour l'hydrogène, la section efficace est d'environ 20 barns et est constante jusqu'à 10 keV. Ensuite elle chute rapidement et n'atteint pour 10 MeV que 1 barn. L'eau est très diffusante pour les neutrons lents et est relativement transparente pour les neutrons rapides.



Figure 4: Section efficace microscopique en fonction de l'énergie :a) Totale (diffusion élastique) pour *l'H-1; b) diffusion élastique pour l'U-235*

1.6 Energie des neutrons dans un réacteur

Les neutrons, qui naissent lors d'une fission, sont hautement énergétiques et ont une énergie moyenne d'environ 1MeV. Etant donné que la probabilité pour différentes interactions comme ci-dessus dépend

fortement de l'énergie du neutron et la probabilité d'interaction (par fission) augmente fortement, on va faire diminuer l'énergie du neutron par de multiples interactions de diffusion.

Comme conséquence de la diffusion, le neutron originel de haute énergie va réagir avec le noyau du matériau et l'énergie du neutron va diminuer et finalement on va obtenir un neutron lent. Ce processus est appelé modération. Finalement, l'énergie du neutron deviendra si basse que l'énergie du neutron sera du même ordre que l'énergie cinétique des atomes.

Lorsque les neutrons dans un matériau amassent, lors des collisions, autant d'énergie qu'ils en cèdent, on dit alors qu'ils sont dans un équilibre thermique avec le matériau dans lequel ils se trouvent. L'énergie cinétique est alors dépendante de la température et l'on parle alors aussi de neutrons thermiques. La distribution d'énergie des neutrons thermiques sera décrite par l'équation de Maxwell-Boltzmann:

$$\frac{n(E)}{n} = \frac{2}{\sqrt{\pi kT}} \cdot \sqrt{\frac{E}{kT}} \cdot e^{-\frac{E}{kT}}$$
(12)

Avec n: la densité neutronique en neutron /cm³

T: la température en °K

k : la constante de Boltzmann = $13.8 \ 10^{-24} \ \text{J/}^{\circ}\text{K}$

La distribution de Maxwell-Boltzmann peut être déduite de la cinétique de la théorie des gaz ou à l'aide des méthodes dans la mécanique statistique. Cette distribution de Maxwell-Boltzmann est proposée graphiquement à la figure 5.



Figure 5: Distribution d'énergie des neutrons à T = 300 °K

L'énergie la plus probable est donnée par E_{th} =kT. L'énergie moyenne est de 1.5 kT. L'énergie des neutrons la plus probable peut être déterminée par:

$$v_{th} = \sqrt{\frac{2 \cdot E_{th}}{m}} = 2200 \frac{m}{s} \quad (13)$$

avec $E_{th} = 0.025 \text{ eV}$

Ces valeurs seront utilisées en physique des réacteurs lorsque l'on parle de neutrons thermiques. En physique des réacteurs, on fait alors une distinction entre les différents neutrons en fonction de leur énergie:

- Neutrons rapide avec une énergie E>1keV
- Neutrons épithermiques avec une énergie comprise entre 0.4eV<E<1keV
- Neutrons thermiques avec une énergie E<0.4 eV

1.7 Réaction en chaîne: bilan neutronique

1.7.1 Facteur de multiplication dans un milieu infini

Dans un milieu contenu des matières fissiles, la population neutronique initiale sera multipliée et ensuite une réaction en chaîne se produit. Pour entretenir la réaction en chaîne chaque neutron initial doit être remplacé par un nouveau neutron. De cette façon la population neutronique reste constante. L'évolution de la population neutronique dépendra de la mesure dans laquelle le nombre de neutrons de fission induits évolueront en moyenne d'une génération à l'autre Le rapport du nombre de neutrons de fission induits d'une génération n_i au nombre d'une génération suivante n_{i+1} sera donné par le facteur de multiplication effectif k_{eff} :

$$k_{eff} = \frac{n_{i+1}}{n_i} \quad (14)$$

Le facteur de multiplication, ou le facteur avec lequel le nombre de neutrons s'accroît en un cycle de fission, dépend de différents éléments. Une image schématique des différentes contributions est donnée à la figure 6.



Figure 6: Facteur de multiplication pour un réacteur infini

Supposons que dans un réacteur infini se trouvent n_i neutrons rapides, qui par fission prennent naissance. Les neutrons rapides, peu importe leur énergie, peuvent rapidement induire une réaction de fission dans des noyaux de U-235. Lorsque l'énergie d'un neutron est supérieure à 1.3MeV le neutron peut en outre amener un noyau d'U-238 à la fission. Le nombre de neutrons rapides dans un réacteur s'accroît par conséquent avec un facteur de fission rapide ε jusqu'à $n_i \varepsilon$.

Ces neutrons seront par la suite modérés par des collisions dans le modérateur. De ce fait ils doivent passer dans un domaine d'énergie, dans lequel la section efficace, pour l'absorption pour l'U-238 a des

valeurs élevées, appelés pics de résonnance. La probabilité qu'un neutron rapide devienne thermique sans être capturé par des noyaux d'U-238, est appelé facteur d'échappement de résonnance p Le nombre de neutrons qui deviennent thermiques est donc $n_i \varepsilon p$.

Une partie des neutrons thermiques sera absorbée dans le modérateur, le fluide caloporteur ou dans des matériaux présents dans le réacteur. La partie de neutrons qui sera absorbée dans le combustible se nomme le facteur de rendement thermique *f*. Dans le combustible il y aura donc la capture de n_i ϵ p f neutrons. Ces neutrons produisent en moyenne η nouveaux neutrons de fission de telle manière que, commençant de n_i neutrons rapides le nombre de nouveaux neutrons rapides après un cycle est donné par:

$$n_{i+1} = \varepsilon \cdot \mathbf{p} \cdot \mathbf{f} \cdot \eta \cdot \mathbf{n}_i$$
 (15)

Tenant compte de la définition du facteur de multiplication dans un milieu le produit de ces quatre facteurs est équivalent au facteur de multiplication:

$$\mathbf{k}_{\infty} = \boldsymbol{\varepsilon} \cdot \mathbf{p} \cdot \mathbf{f} \cdot \boldsymbol{\eta} \qquad (16)$$

Nous allons maintenant étudier plus en détails ces différents facteurs.

Facteur de fission rapide

Quand un neutron de fission est une fois entré en réaction avec un atome de modérateur, son énergie est trop basse pour encore engendrer une fission rapide dans l'U-238. Dans un réacteur homogène, où le combustible et le modérateur sont mélangés de manière homogène, la probabilité qu'un neutron rapide crée une fission est négligeable et ε peut être considéré comme égal à 1. Dans un réacteur hétérogène, où le combustible se présente sous la forme de crayon de combustible, la probabilité d'une fission rapide n'est pas négligeable. En fonction du diamètre des crayons de combustible, la probabilité qu'un neutron rapide engendre une fission devient non nulle, comme indiqué à la figure 7.



Figure 7: Facteur de fission rapide en fonction du rayon d'un crayon de combustible

Facteur anti-trappe

La section efficace pour l'absorption σ_a dans l'U-238 en fonction de l'énergie est donnée par la figure 8. Cette figure montre clairement de grands pics, pour certaine énergie entre 1 et 200eV. Ces pics sont appelés pics de résonnance. La probabilité qu'un neutron ne soit pas absorbé dans l'U-238 lors de la modération peut être augmentée par :

• en maintenant petit le nombre d'atomes d'U-238 par unité de volume $N_v(U-238)$

- en maintenant élevée la section efficace pour la diffusion dans le modérateur Σ_s (epith)
- en maintenant élevée la perte d'énergie moyenne par collision de manière à ce que la modération ne se fasse que par grande étape.

Le facteur anti trappe sera donc proportionnelle à $\frac{\xi \Sigma_s}{N_v (^{238}U)}$

Avec des densités élevées de l'U-238 (réacteur hétérogène avec faible facteur d'enrichissement) la probabilité d'absorption sera influencée par la température. Ceci est du à l'effet Doppler, où les pics de résonnance deviennent plus large avec l'augmentation de température.



Figure 8: Section efficace pour l'absorption de l'U-238

Facteur d'utilisation thermique

Par utilisation thermique on entend la fraction de neutrons thermiques qui sont absorbés dans le combustible (²³⁵U et ²³⁸U).Pour un réacteur homogène, la relation suivante peut être donnée:

. .

$$f = \frac{N_v \sigma_a(combustible)}{N_v \sigma_a(combustible) + N_v \sigma_a(autres)}$$
(17)

Pour un réacteur hétérogène le flux de neutrons thermique dans le combustible est plus bas que dans le modérateur .Le facteur de "désavantage" *F* en tient compte et est défini comme le rapport de flux dans le modérateur et dans le combustible. De là découle ;

$$f = \frac{N_v \sigma_a(combustible)}{N_v \sigma_a(combustible) + FN_v \sigma_a(autres)}$$
(18)

Le facteur f est dépendant de :

- des dimensions du crayon combustible,
- la distance entre les crayons
- la section efficace d'absorption pour le combustible,
- · les propriétés du modérateur

Facteur de reproduction

On définit le facteur de reproduction du rendement de fission η comme le nombre de neutrons de fission thermiques qui sont libérés en moyenne par l'absorption d'un neutron thermique dans un noyau de combustible. Pour l'uranium naturel ou enrichi cela vaut:

$$\eta = \frac{\sum_{f} (^{235}U)}{\sum_{f} (^{235}U) + \sum_{c} (^{235}U) + \sum_{c} (^{238}U)} \cdot \overline{\nu}$$

$$= \frac{\sigma_{f} (^{235}U)}{\sigma_{f} (^{235}U) + \sigma_{c} (^{235}U) + \frac{N(^{238}U)}{N(^{235}U)} \cdot \sigma_{c} (^{238}U)} \cdot \overline{\nu}$$
(19)

Avec \overline{v} , le nombre moyen de neutrons de fission qui sont libérés en moyenne lors d'une fission d'U-235 par des neutrons thermiques. Le tableau 1 donne différentes valeurs de comparaison pour différents combustibles

	²³⁵ U	²³⁸ U	Nat. U	²³³ U	²³⁹ Pu
ν	2.46		2.46	2.54	2.88
σ_{f} (in b)	580		4.14	533	738
σ _c (in b)	107	2.73	3.49	52	315
n	2.08		1.34	2.31	2.03

Tableau 1: Facteur de reproduction par combustible

La figure 9 donne le rendement de fission en fonction du taux d'enrichissement.



Figure 9: Rendement de fission en fonction du taux d'enrichissement

1.7.2 Facteur de multiplication dans un milieu fini

Dans des réacteurs avec des dimensions finies on tient compte aussi des fuites de neutrons pendant la modération ainsi que pendant la diffusion et le facteur de multiplication effectif est alors défini par :

$$k_{eff} = P.k_{\infty} \quad (20)$$

La probabilité de non-fuite, sous certaines conditions, peut être alors décrit par:

$$P = \frac{1}{1 + B^2 M^2}$$
(21)

Où

- $> B^2$: Le Laplacien géométrique du réacteur est le paramètre qui dépend seulement des dimensions du réacteur et est inversement proportionnel aux différentes dimensions du réacteur
- $> M^2$:La surface de migration est une propriété du matériau et est liée à la longueur moyenne au carré qu'un neutron parcourt depuis sa naissance jusqu'à sa disparition

Pour résumer nous pouvons donc écrire que le facteur de multiplication effectif est donné par

$$k_{eff} = \frac{1}{1 + B^2 M^2} \varepsilon p f \eta \qquad (22)$$

Le facteur de multiplication effectif est donc dépendant tant des propriétés du modérateur et du combustible que des dimensions géométriques du réacteur.

Dans un réacteur on essaie donc de maintenir le k_{eff} égale à 1 pour ainsi créer un niveau de puissance stationnaire. A la place du facteur de multiplication k_{eff} on utilise aussi souvent la réactivité ρ qui est définie comme suit :

$$\rho = \frac{k_{eff} - 1}{k_{eff}} \quad (23)$$

En fonction des valeurs du k_{ef} par rapport à 1 on distingue donc trois situations

- Si $k_{ef} = 1$ ($\rho = 0$) la densité neutronique ne changera pas dans le réacteur. On parle d'un réacteur critique
- Si $k_{ef} < 1$ ($\rho = <0$) la densité neutronique dans le réacteur va diminuer. On parle d'un réacteur souscritique
- Si $k_{ef} \ge 1$ ($\rho \ge 0$) la densité neutronique dans le réacteur va augmenter. On parle d'un réacteur surcritique

Souvent la réactivité est aussi exprimée en dollars (\$), qui est donc définie comme suit;

$$\rho_{\$} = \frac{\rho}{\beta_{eff}}$$

Où β_{eff} représente la fraction de neutrons retardés effective.

2 STATIQUE DES RÉACTEURS NUCLÉAIRES

2.1 Théorie de diffusion à un groupe pour un réacteur réfléchi

L'énergie des neutrons qui sont libérés lors d'une fission est très élevée (2MeV). A la suite de collisions avec les atomes des diverses matériaux qui se trouvent dans le réacteur, cette énergie va décroître. Dans un réacteur, les neutrons auront toutes sortes de niveaux d'énergie qui seront fonction du lieu et du temps. La distribution des neutrons dans le réacteur en fonction de l'énergie, de l'angle solide et du temps peut être déterminé grâce à la théorie de transport. Celle-ci utilise des équations qui sont aussi appelées équations de Boltzmann, en raison de similitudes avec celles de Boltzmann établies de la théorie de la cinétique des gaz.

Sur base de la théorie de transport, la balance neutronique est établie pour un volume unitaire quelque part dans le réacteur. Des formules mathématiques ont été établies pour la vitesse et la direction avec lesquelles le neutron entre et sort de ce volume. Ces calculs sont très souvent compliqués et sont entre autre appliqués pour le calcul de criticité et pour le calcul de dépendance des calculs de la densité de flux en fonction de l'endroit et du temps ainsi que de l'énergie.

Pour avoir un modèle plus simple et plus pratique on fait souvent une approximation dans la théorie de transport. La théorie de diffusion est ici une des plus connues. Les équations de diffusion peuvent être dérivées des équations de transports mais ceci est très complexe. Une autre méthode vient des lois de Fick qui décrivent la diffusion des gaz et des liquides. Avec la théorie de diffusion, on peut très bien décrire le comportement des neutrons pour des endroits qui sont suffisamment loin (au moins 2 à 3 parcours libres) de la source de neutrons, d'absorbeurs élevés ou d'interfaces.

Aller plus en profondeur dans cette théorie sort du cadre de ce cours. Par conséquent seules les équations de base et les résultats importants seront donnés sans les mathématiques sous-jacentes.

2.1.1 Etablissement de l'équation de diffusion

Dans la théorie à un groupe on suppose que tous les neutrons ont la même énergie. Dans la dérivation ci-dessous on suppose un réacteur homogène infini dans les directions Y et Z: la densité neutronique varie donc uniquement dans la direction des X.

Le principe est la conservation des neutrons: le nombre total de neutrons reste constant. De là on établit la balance des neutrons pour un volume unitaire (ce volume peut être soit dans le réacteur soit dans le réflecteur). Le changement du nombre de neutrons par unité de temps dans un volume unitaire doit être égal à la vitesse de production diminué par les fuites par unité de temps et diminué par l'absorption par unité de temps, en d'autres termes

Production – Fuite – Absorption =
$$\frac{dn}{dt}$$
 (24)

Vu que nous cherchons la solution stationnaire vaut $\frac{dn}{dt} = 0$

Le nombre de neutrons dans un volume unitaire ne varie pas avec le temps (état stationnaire). Dans un volume unitaire vaut donc

Production = Fuite + Absorption
$$(25)$$

Chacun de ces trois termes sera approfondi plus loin et ils rempliront l'équation ci-dessus.

Nous choisissons comme un volume unitaire un bloc avec une face avant de $1m^2$ (situé dans le plan Y-Z) avec une épaisseur dx dans l'axe des X.

La production des neutrons dans ce volume est le nombre de neutrons thermiques produits par seconde et est donné par:

$$\mathbf{k}_{\infty} \cdot \Phi \cdot \sum_{a} \cdot 1 \cdot dx$$
 (26)

L'absorption est donné par:

 $\Phi \cdot \sum_{a} \cdot 1 \cdot dx$ (27)

On peut démontrer que la densité de courant neutronique J (le nombre de neutrons qui par seconde passent à travers une surface unitaire) dépend de la variation de la densité de flux neutronique et est donné par (Loi de Fick):

$$\mathbf{J} = -\mathbf{D} \cdot \frac{\mathrm{d}\Phi}{\mathrm{d}x} \quad (28)$$

Avec D: coefficient de diffusion

 $\Phi(x)$: densité de flux neutronique

x: direction dans laquelle la variation se manifeste



Figure 10: Détermination des fuites

Considérons un élément de volume (figure 10 avec une épaisseur dx et une surface unitaire). La densité de courant neutronique qui entre et celle qui sort de cette surface sont appelées J_{in} et J_{uit} . La densité de courant neutronique se comporte respectivement pour la surface d'entrée et celle de sortie comme Φ_0 et $\Phi_0 + \frac{d\Phi}{dx} \cdot dx$. Le facteur final pour les fuites devient donc selon la formule précédente:

Fuites =
$$J_{uit} - J_{in} = -D\left[\frac{d\Phi}{dx}\right]_0 - D\frac{d^2\Phi}{dx^2}dx + D\left[\frac{d\Phi}{dx}\right]_0$$
 (29)
Fuites = $-D\frac{d^2\Phi}{dx^2}dx$

Si l'on remplace 26,27 et 29 dans la formule 25 on obtient:

$$k_{\infty} \cdot \Phi \cdot \sum_{a} \cdot dx = -D \cdot \frac{d^{2}\Phi}{dx^{2}} \cdot dx + \Phi \cdot \sum_{a} \cdot dx$$
ou
$$D \cdot \frac{d^{2}\Phi}{dx^{2}} - \Phi \cdot \sum_{a} + k_{\infty} \cdot \Phi \cdot \sum_{a} = 0$$
(30)
ou
$$\frac{d^{2}\Phi}{dx^{2}} + \frac{k_{\infty} - 1}{L^{2}} \cdot \Phi = 0$$

$$L = \sqrt{\frac{D}{\sum_{a}}} \text{ où } L \text{ est appelé longueur de diffusion.}$$

L'équation 30 est l'équation de la diffusion pour un réacteur plaque et homogène avec des dimensions infinies en Y et en Z. L'équation générale de la diffusion est donnée selon l'équation 31

$$\nabla^{2}\Phi + \frac{k_{\infty} - 1}{L^{2}} \cdot \Phi = 0$$

waar $\nabla^{2}\Phi = \frac{\partial^{2}\Phi}{dx^{2}} + \frac{\partial^{2}\Phi}{dy^{2}} + \frac{\partial^{2}\Phi}{dz^{2}}$ ⁽³¹⁾

La solution et la résolution de cette équation seront discutées dans le prochain paragraphe

2.1.2 Distribution de flux dans le cœur

Avec

Dans un réacteur la production de neutrons est non nulle. Selon l'équation 15 cela peut aussi être écrit comme:

$$\frac{d^{2}\Phi}{dx^{2}} + B^{2} \cdot \Phi = 0$$

waar (32)
$$\frac{k_{\infty} - 1}{L^{2}} = B^{2}$$

Le coefficient B est déterminé par la forme d'un réacteur et est appelé le "Laplacien géométrique" (facteur de courbure). L'équation 32 donne comme solution générale:

$$\Phi = A_1 \cdot \cos(\mathbf{B} \cdot \mathbf{x}) + A_2 \cdot \sin(\mathbf{B} \cdot \mathbf{x}) \quad (33)$$

La distribution de flux dans un réacteur plaque est symétrique par rapport au centre. Si l'on prend le centre comme x=0, la constante A2 doit être égale à 0. Si bien que l'équation 33 se ramène à

$$\Phi = \mathbf{A} \cdot \cos(\mathbf{B} \cdot \mathbf{x}) \quad (34)$$

Où A est à nouveau une constante qui est déterminée par la puissance du réacteur.

2.1.3 Distribution de flux dans le réflecteur

Dans le réflecteur, où il n'y a pas de combustible présent et donc pas de production de neutrons, le facteur de production est égal à 0 ($k_{\infty}=0$). L'équation de diffusion devient donc:

$$\frac{\mathrm{d}^2\Phi}{\mathrm{dx}^2} - \frac{1}{\mathrm{L}^2} \cdot \Phi = 0 \ (35)$$

Une solution générale est donnée par l'équation 35:

$$\Phi = \mathbf{A}_1 \cdot \mathbf{e}^{\frac{\mathbf{x}}{\mathbf{L}}} + \mathbf{A}_2 \cdot \mathbf{e}^{-\frac{\mathbf{x}}{\mathbf{L}}}$$
(36)

Etant donné qu'à une grande distance x la densité du flux doit être égale à 0, A1 doit aussi être égal à 0 et l'équation 36 se ramène à:

$$\Phi = \mathbf{A} \cdot \mathbf{e}^{-\frac{\mathbf{x}}{\mathbf{L}}}$$
(37)

Où A est une constante qui sera déterminée par la puissance du réacteur.

2.2 Dimensions du réacteur

2.2.1 Longueur extrapolée

L'évolution cosinusoïdale du flux pour un réacteur plaque infini, vaut aussi pour un réacteur fini dans chaque direction perpendiculaire aux deux plans (murs) parallèles. Il semble que le flux sur une paroi du réacteur sans réflecteur ne soit pas égal à 0 (cfr figure 11).



Figure 11: Distribution de flux dans un réacteur plaque, homogène et nu.

Dans ce réacteur, x est la dimension du réacteur dans la direction considérée. On appelle la distance entre la paroi du réacteur et l'endroit où la densité de flux vaut 0, la distance d'extrapolation d. La dimension apparente est appelée la longueur extrapolée du réacteur et est donnée par l'équation suivante:

$$d = \frac{x_0 - x}{2} = 2D \quad (38)$$

Avec D: le coefficient de diffusion

2.2.2 Laplacien géométrique

Selon 19 pour un réacteur plaque avec une épaisseur extrapolée x₀:

$$A \cdot \cos\left(B \cdot \frac{x_0}{2}\right) = 0$$

$$\Rightarrow \qquad (39)$$

$$B \cdot \frac{x_0}{2} = \frac{\pi}{2} \quad ou \quad B = \frac{\pi}{x_0}$$

Le facteur B est lié aux dimensions du réacteur et est appelé le Laplacien géométrique B_g . On peut démontrer que pour un réacteur respectivement rectangulaire, cylindrique ou sphérique les équations suivantes sont valables pour B_g :

Rectangulaire avec dimensions a, b, c

$$\mathbf{B}_{g}^{2} = \left(\frac{\pi}{a}\right)^{2} + \left(\frac{\pi}{b}\right)^{2} + \left(\frac{\pi}{c}\right)^{2}$$

Cylindrique avec hauteur H et rayon R

$$B_{g}^{2} = \left(\frac{\pi}{H}\right)^{2} + \left(\frac{2.405}{R}\right)^{2}$$
 (40)

Sphérique avec rayon R

$$B_g^2 = \left(\frac{\pi}{R}\right)^2$$

Le facteur qui ne dépend que des propriétés des matériaux dans le réacteur sera également appelé le Laplacien matière B_m . De par l'équation 32:

$$B_{m}^{2} = \frac{k_{\infty} - 1}{M^{2}}$$
(41)

Dans un réacteur critique les deux Laplacien doivent être égaux, donc:

$$B_g = B_m = B (42)$$

2.2.3 Volume critique

Le volume d'un réacteur, d'une composition et d'une forme déterminées, pour lequel le réacteur est juste critique est appelé le volume critique. Avec l'aide des équations 40 et 42 on peut déterminer le volume critique d'un réacteur. Ainsi on obtient respectivement pour des réacteurs de formes rectangulaire, cylindrique et sphérique les expressions suivantes pour le volume critique

Rectangulaire :
$$V_{min} \approx \frac{162}{B^3}$$

Cylindrique : $V_{min} \approx \frac{148}{B^3}$ (43)
Sphérique : $V_{min} \approx \frac{130}{B^3}$

1 ()

Pour des réacteurs de même composition, mais d'une autre géométrie, il s'avère donc que la sphère a le plus petit volume critique. C'est aussi intuitif : la surface d'un réacteur détermine plus précisément les fuites de neutrons, tandis que le volume donne la production. Pour une sphère, le rapport entre la surface et le volume est le plus petit, en d'autres termes le rapport entre les fuites et la production est le plus petit.

2.3 Théorie de diffusion à 2 groupes pour un réacteur nu

Dans la théorie à deux groupes, on suppose qu'il y a deux groupes de neutrons présent : des neutrons rapides (avec l'index 1) et des neutrons thermiques (avec l'index 2). Par analogie au raisonnement pour la théorie à un groupe, on peut établir les équations d'un réacteur critique (état stationnaire):

$$D_{1} \cdot \frac{d^{2} \Phi_{1}}{dx^{2}} - \sum_{1} \cdot \Phi_{1} + k_{\infty} \cdot \sum_{2} \cdot \Phi_{2} = 0$$

$$D_{2} \cdot \frac{d^{2} \Phi_{2}}{dx^{2}} - \sum_{2} \cdot \Phi_{2} + \sum_{1} \cdot \Phi_{1} = 0$$
(44)

Le second terme de la première équation donne la perte de neutrons rapides et donc également la production de neutrons thermiques.

Les deux équations doivent satisfaire à $\left(\frac{d^2\Phi}{dx^2} = -B^2 \cdot \Phi\right)$ pour que 44 puissent s'écrire $\left(D_1 \cdot B^2 + \Sigma_1\right) \cdot \Phi_1 = k_{\infty} \cdot \Sigma_2 \cdot \Phi_2$ (45) $\Sigma_1 \cdot \Phi_1 = \left(D_2 \cdot B^2 + \Sigma_2\right) \cdot \Phi_2$

Si nous divisons les deux équations l'une par l'autre on arrive à:

$$\frac{D_{1} \cdot B^{2} + \Sigma_{1}}{\Sigma_{1}} = \frac{k_{\infty} \cdot \Sigma_{2} \cdot \dots}{D_{2} \cdot B^{2} + \Sigma_{2}} \Longrightarrow 1 + \frac{D_{1}}{\Sigma_{1}} \cdot B^{2} = \frac{k_{\infty}}{1 + \frac{D_{2}}{\Sigma_{2}} \cdot B^{2}}$$

$$\Longrightarrow 1 = \frac{k_{\infty}}{\left(1 + \frac{D_{1}}{\Sigma_{1}} \cdot B^{2}\right) \cdot \left(1 + \frac{D_{2}}{\Sigma_{2}} \cdot B^{2}\right)}$$
(46)

Même que pour la théorie à un groupe posons $L = \sqrt{\frac{D_2}{\Sigma_2}}$, la longueur de diffusion et de manière analogue $\tau = \sqrt{\frac{D_1}{\Sigma_1}}$, l'âge de Fermi, qui est une mesure pour le carré de la distance qu'un neutron rapide parcourt durant le processus de modération.

Dans un réacteur critique keff=1 et donc cfr 46, donne :

$$k_{eff} = 1 = \frac{k_{\infty}}{(1 + B^2 \cdot L^2) \cdot (1 + B^2 \cdot \tau)}$$

ou pour un réacteur non - critique (47)
$$k_{eff} = \frac{k_{\infty}}{(1 + B^2 \cdot L^2) \cdot (1 + B^2 \cdot \tau)}$$

D'après 47 on peut aussi déterminer le facteur anti-fuite thermique et rapide:

$$P_{th} = \frac{1}{\left(1 + B^2 \cdot L^2\right)}$$

$$P_{f} = \frac{1}{\left(1 + B^2 \cdot \tau\right)}$$
(48)

Pour de grands réacteurs aussi bien $B^2 \cdot L^2$ que $B^2 \cdot \tau$ sont petits par rapport à 1 si bien que par approximation on peut écrire:

$$(1+B^2 \cdot L^2) \cdot (1+B^2 \cdot \tau) \approx 1+B^2 \cdot (L^2 + \tau) \approx 1+B^2 \cdot M^2$$
 (49)

Dans laquelle M est la longueur de migration, qui est la mesure pour la distance totale qu'un neutron parcourt avant d'être absorbé. L'équation 47 devient donc

$$k_{eff} = \frac{k_{\infty}}{1 + B^2 \cdot M^2} \quad (50)$$

Dans le tableau 2 sont données les valeurs de D, L et τ pour chaque type de matériaux

Matériau	D (m)	L (m)	τ (m ²)
Eau	0.0016	0.0285	0.00314
Eau Lourde	0.0088	1.16	0.0125
Béryllium	0.0048	0.21	0.0097
Graphite	0.0092	0.52	0.0364

Tableau 2: Données pour chaque type de modérateur

Etant donné que dans un réacteur il y a plus d'atomes de modérateur que d'atomes de combustible et vu que les sections efficaces de diffusion pour ces matériaux sont du même ordre de grandeur on peut admettre que la plupart des collisions des neutrons se produisent avec les atomes du modérateur. Les valeurs de D en τ qui sont valables pour un modérateur pur peuvent être appliquées dans un réacteur. Ceci n'est pas valable pour la longueur de diffusion, étant donné qu'un atome de combustible a une section efficace beaucoup plus grande pour l'absorption qu'un atome de modérateur, la longueur de diffusion L dans un réacteur sera beaucoup plus petite dans le modérateur. Dans le modérateur cela vaut:

$$L_m^2 = \frac{D}{\sum_a(m)} (51)$$

Pour un réacteur hétérogène on se sert dans 51 de la valeur moyenne de la section efficace macroscopique.

2.4 Théorie de diffusion à 2 groupes pour un réacteur réfléchi

Sur base de la méthodologie générale pour la détermination de la criticité du réacteur, on va supposer $d\phi/dt=0$ pour le cœur et le réflecteur. Pour déterminer la solution on doit tenir compte des conditions limites.

Pour le cœur on arrive à :

$$D_1 \Delta \varphi_1 + \nu_1 \Sigma_{f1} \varphi_1 - \Sigma_1 \varphi_1 + \nu_2 \Sigma_{f2} \varphi_2 = 0$$

$$D_2 \Delta \varphi_2 + \Sigma_{1 \to 2} \varphi_1 - \Sigma_2 \varphi_2 = 0$$
 (52)

Pour le réflecteur:

$$D_{1}\Delta\varphi_{1} - \Sigma_{1}\varphi_{1} = 0$$

$$D_{2}\Delta\varphi_{2} + \Sigma_{1\rightarrow 2}\varphi_{1} - \Sigma_{2}\varphi_{2} = 0$$
(53)

Les solutions de ses équations pour le flux thermique et rapide dans le cœur et le réflecteur sont représentées graphiquement:



Figure 12: Flux rapide et thermique dans le cœur et le réflecteur

Avant tout on remarque que le flux thermique à l'interface noyau-réflecteur croît à nouveau. Ceci est physiquement dû à la thermalisation des neutrons rapides dans le réflecteur. Le maximum de cette bosse dans le réflecteur se trouve à x=0.879, cela veut dire à environ 1cm (une demi-longueur de diffusion) de l'interface dans le réflecteur. De par cette bosse, une allure générale d'aplatissement de la distribution du flux est présente. Cet aplatissement est dans cet exemple encore plus prononcé pour dimensions limitées.

De plus on voit que le flux transitoire est seulement important à l'interface cœur-réflecteur et que ce flux transitoire est presque négligeable pour un flux rapide. Le plus important est vraiment que le flux thermique dans le centre du cœur n'est pas perturbé par ce flux transitoire et est équivalent au mode fondamental de flux qui dépend seulement du Laplacien matière. C'est une propriété fondamentale. Dans un réacteur critique la distribution spatiale de flux s'approche du mode fondamental déterminé par le Laplacien matière quand on se rend vers le centre du cœur. Cette remarque vaut aussi bien pour le flux rapide que pour le flux thermique. Parce que la distribution de flux rapide est moins perturbée par le flux transitoire, elle atteint un domaine plus élevé où elle est égale au mode fondamental.

3 CINÉTIQUE DES RÉACTEURS NUCLÉAIRES

3.1 Principes de base de la cinétique

La cinétique des réacteurs décrit en premier lieu, comment la population totale de neutron va varier en fonction du temps. La population totale de neutron n'est pas une entité homogène. Il y a différents groupes de neutron qui ont chacun un comportement cinétique différent. Il est donc important de décrire les différents groupes et de mettre en avant leurs caractéristiques cinétiques spécifiques.

La force d'entrainement derrière le changement de quantité des différents groupes de neutron est le facteur de multiplication effectif k_{eff} du réacteur. Ce facteur de multiplication k_{eff} dépend de la proportion de combustible et de modérateur et des dimensions du réacteur. Le facteur de multiplication effectif est une mesure pour l'entretien de la réaction en chaîne nucléaire. Le facteur de multiplication effectif détermine si la population neutronique va augmenter ou si elle va diminuer en fonction du temps.

La cinétique des réacteurs nucléaires est donc l'étude du comportement de la population neutronique totale en fonction du temps, dans lequel chaque groupe de neutron peut réagir individuellement à une variation du facteur de multiplication effectif. Etant donné qu'il y a directement une relation linéaire entre la population neutronique, le flux et la puissance d'un réacteur, la cinétique décrit aussi comment la puissance change en fonction du temps après des variations du facteur de multiplication.

La population neutronique totale se compose de trois groupes. Les deux premiers groupes seront créés par la fission du noyau induite par un neutron incident (fission induite), en revanche les neutrons du troisième groupe seront émis spontanément par une source de neutron. Les trois groupes peuvent donc se distinguer en:

- Immédiatement (prompt) après la fission induite un groupe de neutrons sera émis que l'on appelle des neutrons prompts
- A côté des neutrons prompts, prennent également naissance lors d'une réaction de fission, des neutrons qui après un certain temps seront libérés. Ce groupe de neutrons est appelé neutrons retardés
- Mis à part ces deux groupes de neutrons qui sont produits à la suite d'une réaction de fission induite, peuvent également être présents dans le réacteur, des neutrons qui proviennent d'une source de neutron. Ces neutrons de source forment le troisième groupe.

3.1.1 Neutrons prompts

Quand une fission induite se produit, des neutrons seront émis en moins de 10^{-14} s après la fission. Vu ce temps très court (sur une échelle de temps pour les phénomènes de cinétique des réacteurs) entre fission et émission, ces neutrons seront appelés neutrons prompts. Le nombre de neutrons qui est libéré par fission est appelé la multiplicité neutronique μ . La probabilité qu'un nombre de neutrons déterminé μ soit émis dans une fission sera déterminé par la distribution de probabilité $P(\mu)$ des multiplicités neutroniques. Cette distribution de probabilité est différente pour chaque nuclide et dépend de l'énergie du neutron incident dans une fission induite. Le nombre de neutrons moyen $\overline{\mu}$ obtenu après une fission du noyau est donné par :

$$\overline{\mu} = \sum_{\mu} \mu P(\mu) \quad (54)$$

Les neutrons prompts émis ont une relativement haute énergie et sont donc très rapides. Ici aussi il y a une certaine distribution de probabilité de l'énergie avec laquelle les neutrons prompts seront émis, mais l'énergie est d'environ 1MeV. Quand ces neutrons rapides naissent dans le réacteur, ils sont d'abord ralentis, ce qu'on appelle modération, jusqu'à ce qu'ils atteignent une énergie qui correspond avec l'équilibre thermique du système et que l'on appelle énergie thermique $E_{th}=0.025$ eV). Malgré le fait que le temps de modération d'un neutron soit relativement court (10^{-5} à 10^{-4} s) le neutron parcourt encore une relativement grande distance que l'on appelle Age de Fermi τ (généralement exprimé en cm²). Quand le neutron est modéré, il sera encore diffusé dans le réacteur. Etant donné la faible énergie du neutron à ce moment, ce temps est plus long, cependant la distance parcourue, donnée par la longueur de diffusion *L* (généralement exprimé en cm), est du même ordre de grandeur que l'Age de Fermi (voir tableau 3).

La durée de vie moyenne d'un neutron l_{∞} dans un milieu infini peut être calculée grâce au libre parcours moyen d'absorption λ_a et la vitesse moyenne du neutron v dans le réacteur par l'expression suivante:

$$l_{\infty} = \frac{\lambda_a}{v} = \frac{1}{v\Sigma_a} \qquad (55)$$

Avec Σ_a : la section efficace macroscopique d'absorption

Le tableau 3 donne un aperçu de la durée de vie moyenne l_{∞} , de l'Age de Fermi τ et de la longueur de diffusion *L* pour différents matériaux de modérateur

Tableau 3: Durée de vie moyenne l_{∞} , Age de Fermi τ et longueur de diffusion L pour différents types de modérateurs.

ac model area s.			
Modérateur	τ (cm ²)	L^2 (cm ²)	$l_{\infty}(\mathbf{s})$
Eau (H_2O)	27	8.12	2.1 10 ⁻⁴
Eau lourde (D_2O)	131	28900	0.14
Graphite	368	3481	0.016

Pour obtenir la durée de vie moyenne dans un milieu fini, on se sert de l_{∞} qui doit encore être corrigé pour les fuites de neutrons dans le milieu pendant la modération et la diffusion à l'aide de l'expression suivante:

$$l = \frac{l_{\infty}}{1 + B^2 . M^2} \qquad (56)$$

 B^2 : facteur qui tient compte des dimensions géométriques du noyau (Laplacien géométrique) M^2 :longueur de migration qui détermine la distance moyenne qu'un neutron parcourt pour une absorption thermique et qui est donné par la formule $M^2 = \tau + L^2$.

L'expression 56 nous enseigne que la durée de vie moyenne d'un neutron est donc dépendante des propriétés du matériau du modérateur comme des dimensions géométriques du cœur du réacteur.

3.1.2 Neutrons retardés

Bien qu'après la fission induite une grande partie du nombre total de neutrons soit émis immédiatement après la fission, il existe une petite fraction de neutrons (environ 1%) qui avec un

certain retard vont peupler l'environnement du réacteur. Ces neutrons sont appelés neutrons retardés et sont très importants pour la conduite et le contrôle du réacteur comme nous le verrons plus tard.

Ces neutrons retardés sont originaires de la décroissance radioactive de produits de fission déterminés qui naissent lors de fission nucléaire. Vu que la décroissance radioactive est caractérisée par une constante spécifique de décroissance qui détermine le temps entre l'apparition d'un produit de fission (appelé précurseur) et l'émission du neutron, à chaque précurseur appartient, un temps de retard moyen pour l'émission d'un neutron. En général, les différents précurseurs seront groupés en 6 familles différentes sur base de la constante de décroissance. Le tableau 4 donne un aperçu des constantes de décroissance moyenne de chaque groupe de précurseur et de la fraction de neutrons retardés β_i du groupe de précurseur *i*.

pour 0 el Pu				
	²³⁵ U		²³⁹ Pu	
Groupe i	$T_{1/2}$ (s)	β_i	$T_{1/2}$ (s)	β_i
1	55.72	$2.15 \ 10^{-4}$	54.28	7.3 10 ⁻⁵
2	22.72	1.424 10 ⁻³	23.04	$6.26 \ 10^{-4}$
3	6.22	1.274 10 ⁻³	5.6	4.43 10 ⁻⁴
4	2.30	$2.568 \ 10^{-3}$	2.13	6.85 10 ⁻⁴
5	0.61	7.48 10 ⁻⁴	0.618	1.81 10 ⁻⁴
6	0.23	2.73 10-4	0.257	9.2 10 ⁻⁵
Moyenne	9.03	$6.50\ 10^{-3}$	10.7	2.10 10-3

Tableau 4.*Demi-vie moyenne* $T_{1/2}$ *et fraction de neutrons retardés* β_i *de chaque groupe de précurseur pour* ²³⁵*U et* ²³⁹*Pu*

La constante de décroissance détermine de façon univoque le temps de demi-vie qui est nécessaire pour diminuer de moitié la concentration du groupe précurseur. Du temps de demi-vie on peut déduire le temps d'émission qui donne le temps moyen entre fission et émission d'un neutron. Le lien entre le temps d'émission, la demi-vie et la constante de décroissance est donné par :

$$t_i = \frac{1}{\lambda_i} = \frac{T_{1/2}}{\ln 2}$$
 (57)

Utilisation faite du temps d'émission et la fraction de neutrons retardés pour chaque groupe, on peut définir un temps total moyen d'émission t_m

$$t_m = \frac{1}{\beta} \sum_{i=1}^{6} \beta_i t_i \qquad (58)$$

Où la fraction de neutrons retardés est donnée par :

$$\beta = \sum_{i=1}^{6} \beta_i \quad (59)$$

Bien que la fraction totale de neutrons β soit très petite, le temps d'émission moyen t_m est grand en comparaison avec la durée de vie moyenne d'un neutron prompt. Avec la durée de vie moyenne de la fraction de neutrons prompts $(1-\beta)$ et le temps de vie moyen (t_m+l) de la fraction β de neutrons retardés, on peut calculer le temps de vie moyen d'un neutron de fission ;

$$l^* = (1 - \beta)l + \beta(t_m + l) = l + \beta t_m \approx \beta t_m \quad (60)$$

Vu que le temps de vie moyen d'un neutron de fission l^* est plus grand d'un facteur 10^2 à, 10^5 que la durée de vie moyenne d'un neutron prompt et de l'ordre de 0.1 s, le réacteur est contrôlable. Cette

comparaison montre l'importance de la petite fraction de neutrons retardés pour le comportement cinétique du réacteur.

Pour la description du comportement cinétique du réacteur, on se sert du temps moyen entre deux générations de neutrons, la durée de génération moyenne de neutrons *A*, est défini comme :

$$\Lambda = \frac{l}{k_{eff}} \qquad (61)$$

3.1.3 Neutrons de sources

Mis à part les neutrons provenant de la fission induite, il existe, dans le réacteur, encore des neutrons d'une autre origine. Vu globalement, on peut différencier deux groupes, les sources intrinsèques de neutrons et les sources externes de neutrons.

Les sources intrinsèques de neutrons sont dues à la présence de combustible dans le cœur du réacteur, et ne peuvent pas être éliminées. La plupart du temps la source intrinsèque de neutrons sera équivalente aux fissions spontanées dans le combustible. Quand le cœur du réacteur contient uniquement de l'uranium, la source intrinsèque est attribuable aux fissions spontanées de ²³⁸U, en revanche pour le combustible MOX, la source intrinsèque peut être entièrement due aux fissions spontanées de plutonium.

Les sources externes peuvent être sous-divisées en neutrons provenant des sources isotopiques de neutrons et des neutrons générés par un accélérateur de particules ou une réaction de fusion.

Pour les sources de neutrons isotopiques on peut encore pousser le classement à mesure que la réaction nucléaire qui est responsable pour la production de neutron soit:

- Sources de fission spontanée principalement ²⁵²Cf
- (α, n)- Sources comme Am-Be, Ra-Be, Am-Li, Pu-Be, ...
- (γ,n)-Sources comme Sb-Be, Sb-D₂O, ...

Toutes ces sources de neutrons ont un spectre d'énergie neutronique qui leur est propre, ce qui ne correspond pas avec le spectre d'énergie dû à la fission induite.

3.1.4 Facteur de multiplication: moteur de la cinétique

A tous moments dans le temps, la population neutronique consiste en une certaine quantité et une proportion de différents groupes de neutron. L'évolution de la quantité totale de neutron va dépendre de la mesure où les neutrons de fission induite évolueront d'une génération à l'autre. La proportion du nombre de neutron de fission induite d'une génération n_i à l'autre n_{i+1} est donné par le facteur de multiplication effectif k_{eff} :

$$k_{eff} = \frac{n_{i+1}}{n_i} \quad (62)$$

Selon la valeur du k_{eff} on peut distinguer trois situations:

- $k_{eff} < 1$: le nombre de neutrons de fission induite va diminuer de génération en génération ; par conséquent la réaction en chaîne ne sera pas maintenue; dans cette situation le réacteur est sous-critique.
- *k_{eff}=1*: le nombre de neutrons de fission induite reste constant dans les générations successives
 ; la réaction en chaîne est entretenue ; le réacteur est critique
- $k_{eff} > 1:le$ nombre de neutrons de fission induite va augmenter de génération en génération ; le réacteur va diverger, dans cette situation le réacteur est sur-critique.

Vu qu'un léger écart du facteur de multiplication par rapport à "1" peut avoir de grands effets pour le comportement cinétique du réacteur, on fait aussi souvent usage d'un autre paramètre pour décrire le processus de multiplication, la réactivité ρ , qui est donné par :

$$\rho = \frac{k_{eff} - 1}{k_{eff}} \quad (63)$$

Souvent la réactivité s'exprime aussi en dollars (\$), qui peut être défini par:

$$\rho_{\$} = \frac{\rho}{\beta} \qquad (64)$$

3.2 Equations de la cinétique

Afin de décrire l'évolution de la population neutronique totale en fonction du temps pour des variations spécifiques de la réactivité, nous allons établir les équations de cinétiques. Pour réduire la complexité mathématique du problème général de la cinétique, nous allons poser les hypothèses suivantes:

- L'approximation d'un réacteur point va être utilisé, ce qui veut dire qui ni l'espace, ni l'énergie ou la dépendance angulaire due comportement cinétique n'est pris en compte.
- Il existe seulement un groupe de précurseurs moyen.

Avec ces hypothèses, il est possible d'établir des équations qui peuvent bien décrire le comportement cinétique réel.

Pour établir les équations de la cinétique, nous allons partir d'une équation d'équilibre pour la population neutronique n et la population de précurseurs C en fonction du temps t. On suppose qu'au début une population neutronique n et une population C de précurseur sont présentes dans le réacteur.

Pour établir l'équation d'équilibre de la population neutronique, on va donc étudier la variation de la population neutronique totale Δn pendant un intervalle de temps élémentaire. La variation de la population neutronique totale Δn sera donnée par la différence de l'augmentation Δn^+ et de la diminution de la population neutronique totale Δn^- pendant un intervalle de temps élémentaire Δt :

$$\Delta n = \Delta n^+ - \Delta n^- \quad (65)$$

La diminution de la population neutronique totale pendant un intervalle de temps élémentaire Δt est donnée par :

$$\Delta n^{-} = n \frac{\Delta t}{l} \tag{66}$$

L'augmentation de la population neutronique totale pendant l'intervalle de temps élémentaire est donnée par l'augmentation attribuable à trois différents groupes neutroniques:

$$\Delta n^{+} = \Delta n_{p}^{+} + \Delta n_{c}^{+} + \Delta n_{s}^{+} \qquad (67)$$

Où:

- Δn_p^+ : l'augmentation attribuable aux neutrons prompts pendant Δt
- Δn_c^+ : l'augmentation attribuable aux neutrons retardés pendant Δt
- Δn_s^+ : l'augmentation attribuable à une source de neutron pendant Δt

L'augmentation de la population neutronique totale attribuable aux neutrons prompts pendant Δt sera donnée par :

$$\Delta n_p^{+} = (1 - \beta) k_{eff} n \frac{\Delta t}{l} \quad (68)$$

L'augmentation de la population neutronique totale attribuable aux neutrons retardés pendant Δt sera donnée par :

$$\Delta n_c^{+} = C \frac{\Delta t}{t_m} \qquad (69)$$

L'augmentation de la population neutronique totale attribuable à une source de neutrons pendant Δt sera donnée par :

$$\Delta n_s^{+} = S \Delta t \tag{70}$$

Avec *S*: l'intensité de la source (n/s)

La variation de la population neutronique totale pendant un temps Δt est donnée par:

$$\Delta n = (1 - \beta)k_{eff} n \frac{\Delta t}{l} + C \frac{\Delta t}{t_m} + S \Delta t - n \frac{\Delta t}{l}$$
(71)

Après regroupement de certains termes et l'utilisation de la définition de la constante de décroissance l'expression devient :

$$\frac{\Delta n}{\Delta t} = \frac{\left(k_{eff}\left(1-\beta\right)-1\right)}{l}n + \lambda C + S \qquad (72)$$

L'utilisation des définitions de la réactivité et la durée de génération moyenne et par la limite d'une très petite variation, on obtient:

$$\frac{dn}{dt} = \frac{\rho - \beta}{\Lambda} n + \lambda C + S \tag{73}$$

Pour l'établissement de l'équation d'équilibre de la population de précurseurs, on va examiner la variation de la population de précurseurs ΔC pendant l'intervalle de temps élémentaire Δt . La variation de la population de précurseurs ΔC est donnée par :

$$\Delta C = \beta \left(k_{eff} n \right) \frac{\Delta t}{l} - C \frac{\Delta t}{t_m}$$
(74)

Utilisant les définitions de la durée de génération moyenne et la constante de décroissance et par la « limite » d'une très petite variation, on arrive à:

$$\frac{dC}{dt} = \frac{\beta}{\Lambda} n - \lambda C \quad (75)$$

Les équations 73 et 75 sont appelées les équations de la cinétique et donnent une très bonne approximation pour décrire le comportement réel d'un réacteur. Dans les paragraphes suivants, nous allons examiner ces équations pour des conditions spécifiques d'exploitation.

3.3 Comportement cinétique sans neutrons retardés et sans source

En première instance, nous allons examiner quelle solution donne les équations cinétiques pour la situation où aucune source n'est présente et où il n'y a pas de neutrons retardés. Grâce au fait que cette situation est purement hypothétique, étant donné que des neutrons retardés sont toujours présents, nous pouvons déjà, en tenant compte de cette situation, constater un nombre de phénomènes cinétiques caractéristiques intéressants.

Si donc nous posons dans les équations cinétiques du paragraphe précédent $\beta=0$, C=0 et S=0, ces équations se réduisent jusqu'à l'expression:

$$\frac{dn}{dt} = \frac{\rho}{\Lambda} n \quad (76)$$

La solution pour cette équation avec une réactivité constante est une simple fonction exponentielle donnée par:

$$n = n_0 e^{\frac{\rho}{\Lambda}t} = n_0 e^{\frac{t}{T}} \quad (77)$$

Où n_0 : est la population neutronique au temps t=0

Etant donné que dans un modèle de flux à un groupe d'énergie le flux ($\varphi=n.v$) et la puissance ($P=c\varphi\Sigma_f$) sont proportionnels à la population neutronique vaut également:

$$\varphi = \varphi_0 e^{\frac{\rho}{\Lambda}t} = \varphi_0 e^{\frac{t}{T}}$$

$$P = P_0 e^{\frac{\rho}{\Lambda}t} = P_0 e^{\frac{t}{T}}$$
(78)

Où φ_0 : le flux à t=0 P_0 : la puissance à t=0.

La période *T* est définie comme le temps nécessaire pour faire diminuer la puissance d'un facteur e=2.7183 et sera donc donnée par:

$$T = \frac{\Lambda}{\rho} \approx \frac{l}{\rho} \tag{79}$$

Selon la valeur de la réactivité on peut avoir trois situations:

- $\rho < 0 \rightarrow T < 0$: donc la puissance diminue
- $\rho > 0 \rightarrow T > 0$: donc la puissance augmente
- $\rho=0 \rightarrow T=\infty$: donc la puissance reste constante

Nous voyons aussi que pour des réactivités positives, une réactivité élevée a pour conséquence une courte période, ce qui veut dire que la puissance du réacteur va rapidement augmenter.

Comme illustration, nous pouvons calculer la montée de la puissance du réacteur pour une réactivité positive de 0.1% (100 pcm) et une durée de $l=2 \ 10^{-5}$ s (réacteur à eau). Pour ces données numériques, la période du réacteur sera égal à T=0.02s. Cela veut dire qu'après:

0.02 s: t/T=1 et n= $n_0e^1=2.7n_0$ 0.04 s: t/T=2 et n= $n_0e^2=7.4n_0$ 0.1 s: t/T=4 et n= $n_0e^4=148n_0$

La puissance du réacteur va augmenter donc en 0.04 seconde avec un facteur d'un peu plus de 7 et après 0.1 seconde déjà avec un facteur d'environ 150. Il est impossible dans cette situation de contrôler le réacteur.

Cet exemple numérique montre donc clairement que quand il n'y a pas de neutrons retardés présents le réacteur devient incontrôlable.

3.4 Comportement cinétique avec neutrons retardés et sans source

3.4.1 Solution générale et interprétation de l'équation de Nordheim

Les équations cinétiques avec des neutrons retardés sont données dans le cas sans source (S=0) par l'expression:

$$\frac{dn}{dt} = \frac{\rho - \beta}{\Lambda} n + \lambda C$$

$$\frac{dC}{dt} = \frac{\beta}{\Lambda} n - \lambda C$$
(80)

La solution de ces équations pour la population neutronique vient de la somme de deux fonctions exponentielles et est alors donnée par:

$$n = n_0 \left(A_1 e^{\omega_1 t} + A_2 e^{\omega_2 t} \right)$$
 (81)

La valeur des deux constantes de temps $T_i = 2\pi/\omega_i$ est dépendante de la réactivité et est donnée par l'équation de Nordheim:

$$\rho = \Lambda \omega + \frac{\beta \omega}{\lambda + \omega} \quad (82)$$

Equations 82 est représentée graphiquement à la figure 13.



Figure 13: Représentation graphique de l'équation de Nordheim

La figure 13 contient deux fonctions différentes, nommément:

$$F_{1}(\omega) = \Lambda \omega + \frac{\beta \omega}{\lambda + \omega}$$
(83)
$$F_{2}(\omega) = \rho$$

Pour $F_1=F_2$ satisfaisant à l'équation de Nordheim, cherchons les points d'intersections des deux courbes de la figure 13. Nous avons vu que pour chaque valeur de la réactivité nous avons deux intersections qui ont une concordance avec $\omega_l=2\pi/T_l$ en $\omega_2=2\pi/T_2$.

La figure 13 montre également que pour des valeurs de réactivité négative, deux périodes négatives apparaissent. Par la même, la population neutronique va s'éteindre en fonction du temps. Cette conclusion est la même que celle que nous avons vue dans le cas sans neutrons retardés. De la figure

13 on peut également tirer que pour des valeurs de période négative, une des deux périodes est très petite et que cette composante va rapidement disparaître.

Pour des valeurs de réactivité positive, nous avons une période positive et une négative. Le terme avec la valeur négative va rapidement disparaître, ainsi la solution complète sera gérée par le terme avec la période positive. De là, la population neutronique va croître exponentiellement, ainsi nous arrivons aux mêmes conclusions que dans le cas sans neutrons retardés.

La différence essentielle entre la solution des équations cinétiques avec et sans neutrons retardés n'apparaît pas dans un comportement cinétique qualitativement différent en fonction de la réactivité, mais est liée à la valeur quantitative des périodes et donc avec le temps d'interaction possible de l'opérateur.

3.4.2 Solution des équations de la cinétique pour de petites valeurs de réactivité $|\rho| << \beta$

Pour obtenir une évaluation quantitative du résultat dans cette situation, nous allons résoudre les équations cinétiques pour des petites valeurs de la réactivité aux alentours de la criticité ($\rho=0$), cela veut dire pour $|\rho| < <\beta$. La solution des équations cinétiques pour cette situation sera donnée par :

$$n(t) = n_0 \left(\frac{\beta}{\beta - \rho} e^{\frac{\lambda \rho}{\beta - \rho}t} - \frac{\rho}{\beta - \rho} e^{\frac{\rho - \beta}{\Lambda}t} \right)$$
(84)

Etant donné que la constante de décroissance du deuxième terme est très négative, alors ce premier terme et donc la deuxième exponentielle va rapidement être nulle, la solution peut après une courte phase de transition très bien être donnée par:

$$n(t) = n_0 \left(\frac{\beta}{\beta - \rho} e^{\frac{\lambda \rho}{\beta - \rho}t}\right)$$
(85)

De cette équation nous pouvons déduire à nouveau la période du réacteur qui dans ce cas est donnée par:

$$T = \frac{\beta - \rho}{\rho} t_m \approx \frac{\beta}{\rho} t_m \approx \frac{l^*}{\rho}$$
(86)

Nous voyons donc que par rapport à l'expression de la période du réacteur sans neutrons retardés, la durée de vie moyenne d'un neutron prompt est remplacée par le temps de vie moyen d'un neutron de fission dans le réacteur. Etant donné que le temps de vie moyen d'un neutron de fission est d'environ supérieur d'un facteur 10^2 à 10^5 à la durée de vie moyenne d'un neutron prompt, le réacteur est alors contrôlable, ceci est visible dans l'exemple numérique suivant.

Pour $\rho=0.1\%$ (100 pcm) $l^{*}=0.085$ (pour ²³⁵U) $l^{*}=0.032$ (pour ²³⁹Pu)

Donne: T=85s (pour ²³⁵U) T=32s (pour ²³⁹Pu)

Si nous comparons ces valeurs pour la période du réacteur avec une valeur de 0.02 s quand aucun neutron retardé n'est pris en compte, nous pouvons dire que nous avons environ mille fois plus de temps pour intervenir dans le comportement cinétique. Des périodes de 32 s à 85 s laissent, à l'opérateur, le temps de réagir sur le changement de flux. Nous voyons que la période du réacteur va diminuer à mesure que le ²³⁹Pu est présent dans le combustible. Le contrôle d'un réacteur avec un cœur MOX est alors plus difficile.

De cette étude de la période du réacteur ressort l'importance des neutrons retardés pour le comportement cinétique du réacteur. Le comportement cinétique instantané du réacteur sera réellement déterminé par la présence de neutrons prompts. Lorsque nous examinons la solution complète pour une petite réactivité négative, comme indiqué sur la Figure 14, on constate directement qu'une fraction de la population totale de neutrons $\frac{(-\rho)}{\beta+(-\rho)}$ disparaît. On appelle cette fraction le "saut

prompt".



Figure 14: Evolution du flux après un petit « saut » de réactivité négative

Pour une petite réactivité positive on considère dans la Figure 14 que la population neutronique augmente directement avec la fraction de neutron prompt. Cette "fraction de saut prompt" s'élève à $\frac{\rho}{\rho-\beta}$ de la population neutronique totale.



Figure 15: *Evolution du flux après un petit échelon de réactivité positive*

Etant donné la proportionnalité entre la population neutronique et la puissance du réacteur, il y aura après un changement de réactivité aussi un saut en puissance rapide qui sera suivi par une évolution exponentielle avec comme constante de temps la période du réacteur.

3.4.3 Solution de l'équation de la cinétique pour de grandes valeurs de réactivité ρ>>β

Si nous résolvons les équations de la cinétique (34) pour de grandes valeurs de la réactivité $\rho >> \beta$ la solution générale donnée par l'équation reste valable et ω_1 et ω_2 sont encore les solutions de l'équation de Nordheim. Vu qu'une des deux constantes de décroissance est négative, la solution sera complètement déterminée par le terme avec le temps de décroissance positif. La période du réacteur peut être déterminée par l'équation de Nordheim en considérant que $\omega >> \lambda$:

$$\rho = \Lambda \omega + \frac{\beta \omega}{\lambda + \omega} \approx \Lambda \omega + \beta \quad (87)$$

D'où:

$$T = \frac{\Lambda}{\rho - \beta} \tag{88}$$

Comparant à l'aide de la relation pour la période du réacteur dans l'approximation de la situation sans neutrons retardés il y a donc une grande similitude. Seulement la réactivité est diminuée par la fraction de neutrons retardés. Les neutrons retardés ne sont plus nécessaires pour maintenir la réaction en chaîne. La réaction en chaîne est maintenue uniquement par les neutrons prompts. Le réacteur est dans ce domaine de réactivité plus que "prompt critique" ou autrement dit prompt supercritique. Dans ce cas, la population neutronique et donc aussi la puissance du réacteur vont rapidement augmenter. Prenons par exemple une variation de 2% (> β), alors la période du réacteur vaut T=0.0015 s (pour *l*=2 10^{-5} s en β =650 pcm).

Nous pouvons conclure que la limite pour une conduite contrôlée du réacteur, c'est la criticité prompte. Avec l'expression de la réactivité exprimée en dollars cela veut dire que la réactivité doit être inférieure que 1 \$.

4 CONTRÔLE DU RÉACTEUR

4.1 Principe du contrôle d'un réacteur nucléaire

Dans le chapitre précédent nous avons démontré que pour des valeurs de réactivité positives nous obtenons une croissance exponentielle de la puissance et que pour des valeurs négatives, une décroissance exponentielle, les deux après un saut prompt de la puissance bien entendu. Lorsque ces valeurs de réactivités sont plus petites en valeur absolue qu'1 \$ le réacteur est bien contrôlable.

Lorsque maintenant donc nous désirons évoluer d'un niveau de puissance stable vers un niveau stable supérieur, nous devons introduire en première instance une réactivité légèrement positive (voir Figure 16). La puissance du réacteur va maintenant s'élever exponentiellement avec un facteur d'augmentation qui dépend de la réactivité introduite. Quand la puissance atteint la puissance supérieure désirée, la réactivité totale est ramenée à zéro ainsi le réacteur peut se stabiliser à ce niveau de puissance.



Figure 16: Contrôle du réacteur par des variations de réactivité

Lorsque l'on veut descendre d'un niveau stable de puissance vers un niveau inférieur, nous introduisons une petite anti-réactivité (réactivité négative) (voir Figure 16). La puissance va diminuer jusqu'au moment où la réactivité est ramenée à zéro et la puissance se stabilise à ce niveau de puissance.

De cette manière, on peut obtenir un niveau de puissance stable quelconque (dans les limites d'exploitation bien entendu) en faisant varier la valeur de la réactivité. Nous voyons donc que la réactivité est le moteur de la régulation de la puissance, mais que la réactivité ne détermine aucunement le niveau de puissance.

Quand la puissance désirée est atteinte, on désire garder cet état stable. Un nombre de phénomènes physiques intrinsèques vont introduire des variations de réactivité involontaire pendant le fonctionnement du réacteur. Ces phénomènes physiques mènent à des effets de réactivités et des contre-réactions que nous allons décrire dans le prochain chapitre. Pour saisir réellement ces effets de réactivité, il doit y avoir une compensation active de la réactivité qui fait en sorte que la réactivité reste constante. Donc ici aussi une régulation de puissance sur base de la réactivité est à nouveau nécessaire. Dans ce chapitre, nous allons investiguer plus en détails les différentes manières de régulation de la puissance.

En dehors de la régulation du niveau de puissance sont présentes, en fonctionnement ; les actions de démarrage et d'arrêt du réacteur. Vu que le démarrage du réacteur, par la présence d'une source de neutrons de démarrage, est fortement différent de la régulation en fonctionnement, nous allons éclaircir cet aspect dans ce chapitre. Nous allons aussi voir dans ce chapitre les aspects spécifiques liés à l'arrêt du réacteur.

4.2 Le démarrage du réacteur

Quand le réacteur est démarré à partir de zéro, le facteur de multiplication effectif k_{eff} est beaucoup plus petit que 1. La réactivité ρ est assez négative. Les neutrons présents dans le réacteur vont alors rapidement disparaître par absorption ou fuite. Aucun des détecteurs de neutrons ne donnera un signal mesurable.

Si pour démarrer le réacteur, le facteur de multiplication effectif est augmenté, il ne va pas se produire grand chose dans cet état tant que $k_{eff} < 1$. Bien que plus des neutrons arrivent continuellement au réacteur et en cela disparaissent moins vite à mesure que la valeur de k_{eff} se rapproche de 1, leur nombre est encore trop faible pour atteindre un niveau de neutron mesurable. L'emploi d'une source de neutrons au démarrage est alors aussi indispensable.

De par l'emploi d'une source de neutrons avec une intensité S, le niveau de neutron va déjà s'élever pour une petite valeur de k_{eff} . Parce que ce niveau est dépendant de la valeur du k_{eff} et de S on a aussi une indication directe de la situation.

L'intensité de la source nécessaire pour recevoir un signal mesurable sur les détecteurs de neutron, est déterminée par l'efficience du détecteur et la valeur du facteur de multiplication effectif au démarrage. Vu le nombre de fission spontanée de ²³⁸U relativement petit, on utilise généralement pour un cœur d'uranium pur une source externe de neutron, d'ordinaire une source isotopique. Pour un cœur en plutonium les fissions spontanées sont souvent suffisantes pour avoir une réponse mesurable sur les détecteurs et donc l'utilisation d'une source externe n'est pas nécessaire.

4.2.1 Niveau sous-critique stationnaire

Lorsqu'une source de neutrons est présente dans le réacteur, il sera multiplié sous influence du facteur de multiplication effectif. Le niveau de puissance stable après multiplication des neutrons de la source, peut être déterminé sur base du raisonnement suivant.

Posons qu'au temps t=0 une source de neutrons S soit placée dans le milieu "multiplicateur" du réacteur. Pendant chaque intervalle de temps l (la durée de vie moyenne d'un neutron) S l neutrons sont produits par la source S et le nombre total de neutrons d'une génération à l'autre est multiplié par définition par le k_{eff} . Dans le tableau 5, l'évolution de la population neutronique, dans les générations successives, est résumée dans le cas d'une source dans un milieu "multiplicateur" sous-critique.

source dans un mittell manipheatell sous chilque			
Génération	Population neutronique		
1	S. <i>l</i>		
2	$S.l + k_{eff}.S.l = S.l. (l + k_{eff})$		
3	$S.l + k_{eff}(S.l + k_{eff}S.l) = S.l. (l + k_{eff} + k_{eff}^2)$		
m	S.l. $(1 + k_{eff} + k_{eff}^2 + + k_{eff}^{m-1})$		

Table 5: L'évolution de la population neutronique, dans les générations successives, dans le cas d'une source dans un milieu multiplicateur sous-critique

Après un temps suffisamment long, la population neutronique va atteindre un niveau stable souscritique donné par :
$$n = Sl(1 + k_{eff} + k_{eff}^{2} + ..) = \frac{Sl}{1 - k_{eff}} = \frac{S\Lambda}{(-\rho)} \approx \frac{Sl}{(-\rho)}$$
(89)

Cette expression peut aussi être dérivée des équations cinétiques en cherchant l'état stable pour un système avec une source. L'état stable est donné en mettant la variation de la population neutronique et de précurseurs en fonction du temps égalé à zéro. Par substitution de l'équation des précurseurs dans l'équation de la population neutronique on arrive à l'expression ci-dessus.

Le nombre de neutrons détectés est donné par:

$$n_{\rm det} = \varepsilon \frac{Sl}{1 - k_{eff}} \qquad (90)$$

Avec ε : l'effience du détecteur en coups/population neutronique.

Nous voyons donc que l'intensité de la source qui est nécessaire pour avoir une lecture décelable au démarrage, est déterminé par l'efficience de détecteur et le facteur multiplicatif effectif au démarrage.

4.2.2 Evolution de puissance pendant le démarrage

Le niveau sous-critique stable calculé dans le paragraphe précédent n'est pas obtenu instantanément. Il existe une phase transitoire jusqu'à ce que le niveau soit atteint. Pour décrire le comportement de la transition de la population neutronique pendant le démarrage, nous pouvons résoudre les équations cinétiques dans le cas avec une source de démarrage. Dans cette situation la solution est donnée par :

$$n = \frac{S\Lambda}{-\rho} \left(-\frac{(-\rho)}{(-\rho)+\beta} e^{\frac{-(-\rho)+\beta}{\Lambda}t} + 1 - \frac{\beta}{(-\rho)+\beta} e^{\frac{-\lambda(-\rho)}{(-\rho)+\beta}t} \right)$$
(91)

Cette solution contient trois termes. Le premier décrit le saut prompt de la population neutronique dû à la réaction de la population neutronique prompte à l'apport de la source de neutrons. Vu que ce terme va très rapidement disparaître, la suite de l'évolution sera déterminée par les deux derniers termes. Ces termes montrent que la population neutronique va évoluer de manière asymptotique vers une valeur stable avec un caractère exponentiel avec comme constante de temps caractéristique T_{as} :

$$T_{as} = \frac{(-\rho) + \beta}{(-\rho)\lambda} = \frac{(-\rho) + \beta}{(-\rho)} t_m$$
(92)

L'expression 92 montre que la constante de temps augmente à mesure que l'on s'approche de la criticité ($\rho=0$). Cela veut dire qu'à mesure que l'on se rapproche de $k_{eff}=1$, plus long sera le temps pour atteindre le niveau stable (voir Figure 17)



Figure 17: Evolution du flux pour une augmentation de k_{eff} pour le cas d'une source de démarrage dans un milieu sous-critique.

En utilisant les équations de la cinétique on peut montrer que lorsque le réacteur devient critique avec encore la présence de la source de neutrons dans le réacteur, une augmentation linéaire de la population neutronique et donc de la puissance du réacteur va avoir lieu. Lorsqu'à ce moment on retire la source, le niveau de puissance va rester stable étant donné le facteur de multiplication qui est égal à 1.

4.2.3 Approche sous-critique

Pour garantir que nous n'atteignons pas une condition critique non-prévue pendant le démarrage et par conséquent le danger de rendre le réacteur prompt critique, il est nécessaire lors d'un démarrage avec une nouvelle configuration de cœur, d'effectuer une approche sous-critique. Cette approche consiste à faire varier en de petites étapes un paramètre fortement lié au k_{eff} (par exemple la hauteur des barres de contrôle) et de suivre l'évolution du niveau stable sous-critique. Ici on se base sur la relation 90 qui après réarrangement donne une relation entre $1/n_{det}$ et k_{eff} .

$$\frac{1}{n_{\rm det}} = \frac{1}{\varepsilon Sl} \left(1 - k_{eff} \right) \tag{93}$$

Si nous traçons l/n_{det} en fonction de k_{eff} (voir Figure 18), nous remarquons que l'extrapolation de la droite $l/n_{det} \rightarrow 0$ donne précisément l'état critique ($k_{eff}=1$). Vu que k_{eff} n'est pas directement mesurable, un paramètre lié au k_{eff} est utilisé comme grandeur mesurable (par exemple la hauteur des barres de contrôle). L'extrapolation de la courbe vers la situation $l/n_{det} \rightarrow 0$ donne la valeur de la quantité concernée pour laquelle le réacteur est critique.



Figure 18: Evolution de $1/n_{det}$ en fonction de k_{eff} pour une approche sous-critique

Pour déterminer les dernières valeurs de l/n_{det} on doit attendre suffisamment longtemps. Le niveau de puissance doit avoir atteint premièrement le niveau stable sous-critique, avant qu'une mesure correcte puisse être effectuée.

La valeur ainsi trouvée du paramètre lié au k_{eff} correspondant au niveau critique est alors utilisée comme valeur de référence pour la stabilisation du réacteur sans source de neutrons.

4.3 Réglage de la puissance

Pour régler la puissance ce qui veut dire l'augmenter ou la diminuer ou la garder constante, on doit modifier le facteur de multiplication effectif. Vu que le facteur de multiplication effectif est défini comme la production de neutrons par la fission divisée par l'absorption neutronique et les fuites et donc dépend essentiellement du rapport de fuites et d'absorption par rapport à la production, on peut en principe intervenir sur chacune des deux différentes proportions pour modifier le facteur de multiplication. En pratique on va modifier généralement la proportion de l'absorption par rapport à la production.

Selon la vitesse d'impact sur le comportement cinétique, on peut sous-diviser les différents mécanismes de contrôle en éléments pour une régulation de puissance instantanée et autrement pour une régulation compensée.

4.3.1 Réglage de puissance instantané

Le réglage de la puissance instantané consiste généralement à l'introduction des barres de réglage. Ces barres de réglage ont comme propriété commune qu'elles sont faites d'un matériau fortement absorbant pour les neutrons comme le bore, le cadmium, l'argent ou l'indium. La forme physique peut être différente. Nous connaissons par exemple; des aiguilles et des plaques.

Selon le but on fait la distinction aussi entre barres de sécurité, barres de contrôle et barres de fins réglages. Les barres de sécurité sont, en temps de fonctionnement normal complètement sorties du réacteur et ne seront libérées en cas d'urgence pour diminuer rapidement la réactivité et faire descendre la puissance. Les barres de contrôle sont utilisées en temps de fonctionnement normal pour obtenir des transitoires qui sont nécessaires au démarrage, à l'arrêt et à la stabilisation au niveau désiré. En outre, les barres de fins réglages peuvent être utilisées pour maintenir la puissance stable au niveau désiré sans devoir utiliser les barres de contrôle (avec une valeur de réactivité spécifique supérieure).

L'introduction des barres de contrôle entraîne une déformation du flux du fait que localement plus de neutrons sont absorbés. La figure 19 montre comment la distribution de flux axiale est perturbée par l'introduction d'une barre de réglage absorbante.



Figure 19: Perturbation de la distribution de flux axiale par l'introduction des barres de réglages

La figure 20 illustre dans quelle mesure la distribution de flux radiale est perturbée par l'introduction des barres de réglage.



Figure 20: Perturbation de la distribution de flux radiale par l'introduction d'une barre absorbante

Le changement de réactivité introduit par le fait d'enfoncer ou de sortir une barre absorbante est dépendant de la position de la barre de réglage. Lorsque la barre de réglage est située à la périphérie du cœur du réacteur, l'impact est plus faible que lorsque la barre se trouve au centre du cœur. L'impact relatif des barres de réglages en fonction de la position est mis en évidence avec l'efficacité différentielle illustrée dans la Figure 20. L'efficacité différentielle est définie comme la variation de réactivité dans le cœur introduit par un déplacement petit (1 cm) de la barre de contrôle, en partant de l'état donné sur l'abscisse. Ceci est exprimé en pcm/cm.



Figure 21: Efficacité différentielle d'une barre de réglage

Lorsque l'on trace l'anti-réactivité totale introduite par les barres absorbantes en fonction de la position des barres de réglages, on obtient l'efficacité intégrale comme montrée à la Figure 22.



Figure 22: Efficacité intégrale d'une barre de réglage

Dans certains réacteurs expérimentaux on joue aussi sur le rapport fuite/production pour modifier la valeur de la réactivité. Etant donné que la fuite est proportionnelle avec la surface et la production proportionnelle au volume, le rapport fuite/production est minimalisé par un rapport surface/volume le plus petit. En première instance on choisira une forme la plus compacte possible. Pour une forme déterminée, on peut minimaliser le rapport fuite/production en augmentant les dimensions. Ceci peut se faire par exemple en modifiant la hauteur d'un cœur cylindrique, ce qui revient en pratique pour un réacteur modéré à l'eau, à laisser monter le niveau de l'eau (VENUS). De cette manière un tel réacteur est rendu critique en augmentant le niveau d'eau. Le contrôle du réacteur n'est donc pas fait sur base des barres d'absorption, mais sur base du changement du niveau d'eau.

4.3.2 Réglage de puissance compensatoire

Toutes les variations de réactivité ne demandent pas une mise en œuvre de certains mécanismes de contrôle de la réactivité, comme cités dans le paragraphe précédent. Certains processus physiques s'étendent sur une plus longue période (par ex. mois, année) ainsi on choisit pour une régulation de puissance compensatoire à long terme.

Pour les réacteurs de puissance qui souvent sont en fonctionnement un an ou plus, il peut y avoir une grande différence de réactivité entre la réactivité d'un cœur neuf au début de l'exploitation et la réactivité une année ou plus après avoir été en fonctionnement. C'est en pratique infaisable et physiquement non attractif de compenser cette différence de réactivité par des barres de réglages. C'est pourquoi on utilise une régulation de la réactivité compensatoire sur base d'un absorbeur de neutron consommable ou sur base de la variation de la teneur d'acide borique (utilisé dans des réacteurs modérés à l'eau).

La régulation de la réactivité compensatoire sur base d'un neutrophage consommable repose sur un matériau avec une absorption neutronique élevée qui peut être incorporé dans le modérateur, le combustible, l'assemblage (gainage) ou des plaques ou barreaux. Lors de l'absorption d'un neutron, un noyau avec une grande section efficace pour l'absorption neutronique est changé en un noyau avec une petite section efficace pour l'absorption neutronique, alors on parle d'un poison neutronique consommable. Par un choix précis de la concentration en poison au début de l'exploitation on peut compenser la variation de réactivité due à la fission de l'uranium, en grande partie par la consommation du poison. Des exemples de poison sont le bore et le gadolinium.

Par opposition aux poisons solides, l'emploi de l'acide borique a l'avantage que l'effet de réactivité pendant le fonctionnement peut être influencé par une modification de la concentration en acide borique. L'avantage est une distribution d'absorption plus homogène et ainsi une distribution de puissance plus homogène que dans le cas avec seulement des barres de réglages. Le cœur peut rester, en grande partie, libre de barres de contrôle. Par une modification de la concentration en acide borique, les changements de réactivité à long terme, entre autre causés par la fission de l'uranium, seront compensés.

Aussi pendant le changement de combustible, la sous-criticité peut être diminuée de manière additionnelle par une augmentation de la concentration en acide borique. L'effet de l'acide borique est dépendant de la situation de fonctionnement et s'élève à environ 10 pcm par ppm. Les concentrations en acide borique varient entre 0-2000 ppm.

4.4 L'arrêt du réacteur

Mis à part le démarrage et le réglage du réacteur en fonctionnement, le réacteur doit pouvoir être arrêté. Pour arrêter le réacteur et donc faire diminuer la puissance, il faut interrompre rapidement la réaction en chaîne par l'introduction d'une grande réactivité négative. Cela se produit généralement par l'introduction des barres de contrôle ou par un arrêt d'urgence par l'introduction des barres de sécurité. Pour certains réacteurs expérimentaux, il existe d'autres manières de stopper le réacteur.

La solution des équations cinétiques pour l'introduction d'une grande réactivité négative peut être décrite par :

$$n(t) = n_0 \frac{1}{1 + (-\rho_{\$})} e^{-\frac{t}{80}} = n_0 \frac{1}{1 + (-\rho_{\$})} 10^{-\frac{t}{184}}$$
(94)

Cette équation est valable à partir de quelques secondes après l'apport de réactivité quand la population de neutrons prompts a disparu et seulement le groupe de précurseurs avec de long temps de décroissance reste. L'équation (47) montre que la population neutronique est réduite directement à $1/(1+(-\rho_s))$ de sa valeur originale. On voit donc que la réactivité exprimée en dollars décrit directement la diminution prompte de puissance. Le reste de la puissance diminue lentement avec une constante de temps caractéristique de 80 s. Cela à pour conséquence que la puissance diminue seulement d'une décade toutes les 184 secondes. Il est clair qu'après l'arrêt du réacteur, une grande quantité d'énergie est présente, celle-ci est stockée dans le système, dans le groupe de précurseurs à longue demi-vie. La quantité d'énergie résiduelle, doit être évacuée de manière efficace.

5 DYNAMIQUE DES RÉACTEURS NUCLÉAIRES

5.1 Introduction

La régulation de puissance comme décrite dans le chapitre précédent ne sert pas seulement à atteindre le niveau de puissance désiré mais aussi à compenser certains effets de réactivité intrinsèques qui sont liés au fonctionnement du réacteur. Ces effets de réactivité sont différenciés selon leur vitesse d'impact en effets de réactivité rapides et lents.

Les deux effets les plus importants de réactivité sont liés au changement de température ou à la fraction de vide par unité de volume. Pour chaque effet de réactivité rapide il faut garantir que cet effet ne fait pas diverger le réacteur, en d'autres mots qu'il se stabilise de lui-même. Une condition nécessaire et suffisante est que les coefficients de réactivité rapides soient négatifs, ce qui est expliqué dans la Figure 23.



Figure 23: Influence des effets réactifs sur le fonctionnement du réacteur.

Imaginons que dans la Figure 23 pour une raison ou une autre une petite réactivité positive survienne. Par cet apport de réactivité positive, le flux et donc la puissance vont augmenter. De par l'augmentation de puissance, la température et la fraction de vide augmentent. Si maintenant le coefficient de réactivité de température (fraction de vide), défini comme le changement de réactivité par changement de température $\Delta \rho / \Delta T$ (fraction de vide $\Delta \rho / \Delta f_v$), est négatif, la réactivité va diminuer. Dans cette situation, le coefficient de réactivité travaille en tant que stabilisateur. Lorsque le coefficient de réactivité est positif, la réactivité et donc aussi la puissance continueront de croître. De là le réacteur va diverger sans intervention de l'extérieur. Donc, avoir des coefficients d'effets réactifs rapides négatifs est une condition nécessaire pour un fonctionnement sûr d'un réacteur.

En dehors de ces effets réactifs, il existe aussi des effets réactifs plus lents qui sont principalement attribuables à un changement de composition du combustible au cours de l'exploitation. Exemples étant la production des produits de fission absorbants, la consommation des matières fissile et l'éventuelle production de matières fissiles à partir des noyaux fertiles, par exemple ²³⁹Pu (fissile) venant de ²³⁸U (fertile).

Pour avoir une idée du changement de la réactivité suite à une variation d'un paramètre déterminé, nous devons évaluer quelle est l'influence de ce paramètre sur chacun des 6 différents facteurs dans l'expression du facteur de multiplication effectif

$$k_{eff} = k_{\infty} P_f P_{th} = \varepsilon p f \eta P_f P_{th} \qquad (95)$$

5.2 Effet réactif de température

Différents phénomènes physiques seront responsables pour que la réactivité varie, lors d'un changement de température. Ces coefficients de réactivité seront aussi différents selon que cela concerne un réacteur thermique ou rapide. Nous allons ici dans le cadre de ce cours nous limiter à la description des coefficients de température de réacteurs thermiques étant donné que les réacteurs thermiques constituent la plus grande partie du parc des réacteurs nucléaires.

Pour avoir une meilleure idée sur les facteurs physiques qui déterminent les coefficients de réactivité, nous allons déterminer le coefficient de température isothermique. Le coefficient de température isothermique détermine la variation de réactivité totale pour un changement spécifique de température dans le cas où la température est uniforme dans tout le réacteur. Le coefficient de température isothermique est donné par:

$$\frac{d\rho}{dT} = \frac{1}{k_{eff}^2} \frac{dk_{eff}}{dT} \approx \frac{1}{k_{eff}} \frac{dk_{eff}}{dT} \quad (96)$$

Avec *T* : la température du réacteur.

En utilisant la définition du facteur de multiplication effectif, le coefficient de température isothermique peut être écrit comme :

$$\frac{d\rho}{dT} \approx \frac{1}{P_f} \frac{dP_f}{dT} + \frac{1}{P_{th}} \frac{dP_{th}}{dT} + \frac{1}{\varepsilon} \frac{d\varepsilon}{dT} + \frac{1}{p} \frac{d\rho}{dT} + \frac{1}{f} \frac{df}{dT} + \frac{1}{\eta} \frac{d\eta}{dT}$$
(97)

En général, on peut admettre que les fuites de neutrons augmentent avec l'augmentation de température et donc donne une contribution négative au coefficient de température isothermique. Vu que la valeur de cette contribution est négligeable en comparaison aux autres termes, on admet que:

$$\frac{dP_f}{dT} \approx 0 \tag{98}$$
$$\frac{dP_{th}}{dT} \approx 0$$

Vu que l'influence de la température sur le facteur de fission rapide ε est négligeable on peut sans problème admettre que:

$$\frac{d\varepsilon}{dT} \approx 0 \qquad (99)$$

Le terme attribuable à la variation du facteur de rendement neutronique en fonction de la température donne généralement une contribution négative au coefficient de température, ce qui est certainement le cas pour le plutonium 239. Etant donné que la valeur de ce terme est petite par rapport aux autres termes nous pouvons adopter:

$$\frac{d\eta}{dT} \approx 0 \qquad (100)$$

Tenant compte d'évaluations précédentes, nous arrivons pour l'expression du coefficient de température isothermique à :

$$\frac{d\rho}{dT} \approx \frac{1}{p}\frac{dp}{dT} + \frac{1}{f}\frac{df}{dT} \qquad (101)$$

Etant donné que dans la plupart des réacteurs thermiques, le combustible et le modérateur sont séparés, une distinction peut être faite entre un coefficient de réactivité de température pour le

combustible $\frac{d\rho_F}{dT}$ et un pour le modérateur $\frac{d\rho_M}{dT}$. En outre le temps qui est nécessaire pour induire une variation de réactivité suite à un changement de température, pour le combustible et le modérateur sont clairement différents. La constante de temps pour le combustible est beaucoup plus courte que celle du modérateur, vu que la chaleur est générée dans le combustible et que la transmission de chaleur dans le combustible vers le modérateur demande un certain temps. C'est pourquoi on appelle aussi souvent le coefficient de température pour le combustible, le coefficient de température rapide et le coefficient de température du modérateur, le coefficient de température retardé.

Vu que l'effet de la température sur le combustible est attribuable à l'effet Doppler des résonnances d'absorption, nous pouvons poser que le coefficient de température diminue avec la variation du facteur anti-trappe, à savoir:

$$\frac{d\rho_F}{dT_F} = \frac{1}{p} \frac{dp}{dT_F} \quad (102)$$

Etant donné que le facteur d'utilisation thermique dépend fortement des propriétés du modérateur et est spécifique de la proportion entre le modérateur et le combustible, le coefficient de réactivité du modérateur sera lié aussi aux effets de température au facteur d'utilisation thermique *f*.

$$\frac{d\rho_M}{dT_M} = \frac{1}{p}\frac{dp}{dT_M} + \frac{1}{f}\frac{df}{dT_M}$$
(103)

5.2.1 Effet réactif de température rapide: coefficient de température de combustible

Le coefficient de température est fortement lié à l'effet Doppler. L'effet Doppler décrit dans quelle mesure l'accroissement de température influence la largeur des résonnances dans le domaine épithermique. Pour un effet Doppler important, les résonnances vont devenir significativement plus large, l'absorption va augmenter dans le domaine épithermique et donc le facteur anti-trappe (probabilité d'échapper aux résonnances d'absorption) diminue. Un effet Doppler significatif a donc pour conséquence un coefficient de température de combustible significativement négatif.

Etant donné que l'uranium-238 a des pics de résonnance clairement séparés et de différentes hauteurs dans le domaine d'énergie de 6 à 100 eV, l'effet Doppler a une influence négative importante sur le coefficient de réactivité du combustible dans le cas de l'uranium 238.Cela vaut aussi pour les réacteurs qui contiennent une grande quantité de thorium-232.

5.2.2 Effet réactif de température retardé: coefficient de température de modérateur

Pour déterminer l'influence des différents paramètres sur le facteur anti-trappe et le facteur d'utilisation thermique, nous allons donner des expressions plus détaillées pour ces deux facteurs:

$$p = 1 - \frac{N_a}{\overline{\xi} \left(\Sigma_m + \Sigma_{pot} \right)} I_{eff,NRNR} (104)$$
$$f = \frac{V_F \Sigma_{aF} \phi_F}{V_F \Sigma_{aF} \phi_F + V_M \Sigma_{aM} \phi_M} = \frac{N_F}{N_F + N_M R_\sigma R_\phi}$$
(105)

Avec

$$R_{\sigma} = \frac{\sigma_{aM}}{\sigma_{aF}}$$
 en $R_{\phi} = \frac{\phi_M}{\phi_F}$ (106)

Aussi bien le facteur anti-trappe comme le rendement thermique dépendent fortement de la proportion modérateur-combustible. Par la diminution de la densité du modérateur par rapport à la densité fixée

du combustible il y aura relativement parlant moins d'atomes de modérateur présents. Principalement deux effets différents entreront en compétition.

Le faite d'avoir moins d'atomes de modérateur a pour conséquence que moins de neutrons seront absorbés dans le modérateur et plus dans le combustible, ce qui mène à une augmentation de facteur d'utilisation thermique et une contribution positive au coefficient de température du modérateur.

Moins d'atomes de modérateur veut aussi dire qu'il y aura moins de modération, ce qui se traduit en une population neutronique ayant une énergie moyenne supérieure. Cette puissance de modération diminuée fait en sorte que qu'il y a moins de neutrons thermiques, ainsi la probabilité d'échappement aux résonnances va diminuer. Ce spectre durci vaut pour une contribution négative au coefficient de température du modérateur.

Les deux aspects compétitifs mènent pour la plupart des réacteurs thermiques à un certain rapport optimal du rapport modérateur-combustible. Quand le réacteur a un rapport modérateur –combustible plus petit que l'optimal, on appelle le réacteur sous-modéré (voir Figure 24). Quand le rapport est supérieur à l'optimal on parle d'un réacteur sur-modéré.



Figure 24: k_{∞} *en fonction du rapport modérateur-combustible*

Lorsque pour un réacteur sous-modéré (la plupart du temps) la température augmente et donc le rapport diminue par l'expansion de l'eau, le produit diminue, ce qui donne un coefficient de température de modérateur négatif. Pour un réacteur sur-modéré on aura un coefficient de température de modérateur positif.

Dans un PWR commercial une concentration déterminée d'acide borique est ajoutée pour compenser l'excès de réactivité au début du cycle du combustible. Lorsque cette concentration en acide borique devient trop élevée, le réacteur peut se trouver dans un état sur-modéré, de telle sorte qu'un coefficient de température de modérateur positif existe. Pour éviter une telle situation la concentration maximale d'acide borique est limitée.

En dehors de ces deux effets majeurs, il existe encore un certain nombre de modifications qui ont pour la plupart une influence plus petite sur les variations du coefficient de température. De ces différents effets, l'effet du déplacement spectral dans le domaine d'énergie thermique (envers l'augmentation de température) sur la section efficace est le plus important. Nous savons du moins que pour des nucléides qui ne montrent pas un comportement en 1/v parfait pour les sections efficaces thermiques, il se produit des variations du paramètre R_{σ} . Pour la plupart des nucléides de combustible (U-238, U-

235, U-233), le comportement en 1/v est bien suivi et le facteur de Wescott est donc petit. Seulement pour le Pu-239, le facteur de Wescott est fortement croissant en fonction de l'augmentation de température, il peut finalement ainsi avoir une contribution significative au coefficient de réactivité. Cette contribution positive sera cependant partiellement contrecarrée par l'absorption additionnelle dans le Pu-240 pour des combustibles MOX.

Les effets de modérateur ont une constante de temps qui est supérieure à celle du combustible et cette constante de temps fait en sorte que l'opérateur, dans la plupart des cas, a assez de temps pour compenser le comportement des effets de réactivité.

5.3 Effet réactif de vide

Un autre effet réactif important est le changement de réactivité qui suit l'apparition de vide (bulle) dans le fluide caloporteur. Le coefficient de réactivité va être déterminé par le changement du facteur antifuite, le facteur anti-trappe et le facteur d'utilisation thermique en fonction d'une variation de la fraction de vide et peut donc être donné par:

$$\frac{d\rho}{df_V} \approx \frac{1}{P} \frac{dP}{df_V} + \frac{1}{f} \frac{dp}{df_V} + \frac{1}{f} \frac{df}{df_V}$$
(107)

Etant donné que l'augmentation de la fraction de vide a une plus grande probabilité d'entrainer des fuites de neutrons, le facteur anti-fuite et donc la réactivité va diminuer. Ce qui donne une contribution négative au coefficient de réactivité de vide.

Par une augmentation de la fraction de vide, la puissance de modération va diminuer et par la suite moins de neutrons atteindront le domaine thermique. Le facteur anti-trappe va diminuer à l'augmentation de la fraction de vide et donc donner une contribution négative au coefficient de réactivité de vide. L'influence de la fraction de vide sur le facteur d'utilisation thermique s'explique par le fait que suite à la naissance de plus de "bulles" l'absorption des neutrons va diminuer dans ce milieu de vapeur. Cela va donc favoriser l'absorption thermique préférentielle dans le combustible et donc donner une contribution positive au coefficient de réactivité de vide. A nouveau le rapport eau-combustible pour les réacteurs à eau est déterminant. Ce rapport diminue à l'apparition des "bulles". Dans des réacteurs sur-modérés le coefficient de vide est positif et dans les sous-modérés, négatif.

Pour l'évaluation de la sûreté d'un réacteur on tient compte avec le fait que les effets de vide ont des constantes de temps relativement rapides (petites) qui rendent une intervention instantanée de l'opérateur impossible.

5.4 Effet réactif de burn-up

En dehors des effets réactifs à court terme qui sont attribuables aux variations d'un certain nombre de paramètres physiques comme la température et la fraction de vide, la réactivité va varier au cours de l'exploitation par un lent changement dans la composition des éléments du combustible. Cette modification dans la composition du combustible en fonction du temps d'exploitation ou mieux en fonction de l'énergie produite est appelée le burn-up du combustible. Le burn-up est généralement exprimé en MWatt jour /tonne de métal lourd (uranium), ce qui donne l'énergie produite par unité de masse. La réactivité sera modifiée en fonction du burn-up par:

- La création de produits de fission avec une section efficace d'absorption élevée
- La diminution du nombre de noyaux fissiles
- La production de noyaux fissiles par la capture neutronique dans les noyaux fertiles

Les deux premiers effets ont pour conséquence une diminution de la réactivité en fonction du burn-up, tandis que le troisième effet est responsable de l'augmentation de la réactivité. L'apparition des produits de fission fortement absorbant va être étudiée plus en détails dans le paragraphe suivant.

Par la baisse du nombre de noyaux fissiles la réactivité diminue environ de 0.01 pcm par gramme ²³⁵U consommés. Lors de l'utilisation de 1.25 gramme ²³⁵U une quantité d'énergie d'environ 1MWj (mégaWatt jour) sera produite.

En même temps suite à la capture de neutrons par des noyaux fertiles comme ²³⁸U et ²³²Th, de nouvelles matières fissiles seront créées, respectivement ²³⁹Pu et ²³³Th. La proportion du nombre de noyaux fissiles produits par rapport au nombre de noyaux fissiles utilisés est appelée facteur de conversion. Dans les réacteurs rapides, (par opposition aux réacteurs thermiques) un facteur de conversion plus élevé que 1 peut être obtenu. Dans les réacteurs thermiques la conversion de noyaux fissiles est principalement utilisée pour compenser partiellement les deux autres effets de réactivité négatifs en fonction du burn-up.

5.5 Effet réactif lié aux produits de fissions significativement absorbants

Lors de la fission de noyaux fissiles, des produits de fission sont formés. La plupart des produits de fission ont seulement une petite section efficace de capture. Il y a deux produits de fission qui ont une grande section efficace de capture, à savoir ¹³⁵Xe avec une section efficace de 2.65 10⁶ pour l'absorption de neutrons thermiques (E=0.025 eV) et ¹⁴⁹Sm avec une section efficace de 4.1 10⁴ barn. La production de ces isotopes absorbants (poisons) a pour conséquence que la réactivité va diminuer. Si nous exprimons la réactivité au début comme étant ρ et après la production de ces poisons comme étant ρ^* la réactivité est donnée par:

$$\Delta \rho = \rho^* - \rho = \frac{1}{k_{eff}} \left(1 - \frac{k_{eff}}{k_{eff}^*} \right) \approx \left(1 - \frac{k_{eff}}{k_{eff}^*} \right) \quad (108)$$

Où "*" indique la situation après la production du poison.

Si nous exprimons le k_{eff} à partir de la formule des 6 facteurs et que l'on tient compte du fait que l'apport du poison influence seulement en première instance le facteur d'utilisation thermique, la nouvelle expression pour la variation de réactivité devient:

$$\Delta \rho = 1 - \frac{f}{f^*} \qquad (109)$$

Nous allons maintenant exprimer f et f^* en fonction des différents paramètres physiques. Pour un réacteur homogène on a:

$$f = \frac{(\Sigma_a)_{combustible}}{(\Sigma_a)_{combustible} + (\Sigma_a)_{autres matériaux}}$$

$$f^* = \frac{(\Sigma_a)_{combustible}}{(\Sigma_a)_{combustible} + (\Sigma_a)_{poison} + (\Sigma_a)_{autres matériaux}}$$
(110)

Où

$$\left(\Sigma_{a}\right)_{poison} = \sigma_{poison} N_{poison} \tag{111}$$

Si nous substituons les expressions 110 et 111 dans l'expression 109, on arrive pour la variation de réactivité à:

$$\Delta \rho = -f \frac{\sigma_{poison} N_{poison}}{(\Sigma_a)_{combustible}}$$
(112)

Cette expression montre directement que la variation de réactivité due à la production de produits de fission absorbants est directement proportionnelle avec la concentration en poison. Pour connaître l'évolution de la variation de réactivité négative, on doit connaître l'évolution de la concentration du poison en fonction du temps. Dans les prochains paragraphes, nous allons étudier l'évolution de ¹⁴⁹Sm et ¹³⁵Xe en fonction du temps.

5.5.1 Empoisonnement de Samarium

Pour calculer la variation de réactivité provenant de la production de ¹⁴⁹Sm, on doit d'abord établir l'évolution de la concentration de Sm en fonction du temps. Le nucléide ¹⁴⁹Sm est formé par la décroissance de ¹⁴⁹Nd via:

$${}^{49}_{60}Nd \xrightarrow{\beta^- 1.73h} {}^{149}_{61}Pm \xrightarrow{\beta^- 53.1h} {}^{149}_{62}Sm (stable) (113)$$

Le nucléide ¹⁴⁹Nd provient de la fission d'²³⁵U avec un rendement de fission de γ_{Nd} =1.09%. La production de ce nuclide est donc dépendante du flux neutronique. Les autres nucléides considérés ne sont pas formés par la fission ou absorption neutronique. Le changement de la concentration de ¹⁴⁹Sm est donc décrit par l'équation suivante:

$$\frac{dN_{Pm}}{dt} = \gamma_{Nd} \Sigma_f \varphi - \lambda_{Pm} N_{Pm}$$

$$\frac{dN_{Sm}}{dt} = \lambda_{Pm} N_{Pm} - N_{Sm} \sigma_{Sm} \varphi$$
(114)

Après avoir travaillé quelques temps à puissance constante (flux φ_0), apparaît une situation d'équilibre (dN_{Pm}/dt=0 en dN_{Sm}/dt=0) avec des concentrations d'équilibre données par:

$$N_{Pm0} = \frac{\gamma_{Nd} \Sigma_f \varphi_0}{\lambda_{Pm}}$$

$$N_{Sm0} = \frac{\gamma_{Nd} \Sigma_f}{\sigma_{Sm}}$$
(115)

La concentration d'équilibre de ¹⁴⁹Sm est indépendante du flux. La diminution de réactivité qui va avec la concentration d''équilibre N_{Sm0} est donnée par:

$$\Delta \rho = -f \frac{N_{Sm0} \sigma_{Sm}}{(\Sigma_a)_{combustible}} = -f \frac{\gamma_{Nd} \Sigma_f}{(\Sigma_a)_{combustible}} = -f \gamma_{Nd} \frac{\eta}{\nu} = -0.65\%$$
(116)

Cette anti-réactivité d'équilibre due à la production de ¹⁴⁹Sm devra être compensée pendant le fonctionnement par le contrôle du réacteur.

Quand le réacteur est arrêté, la concentration de ¹⁴⁹Sm va augmenter par la décroissance de ¹⁴⁹Pm et ¹⁴⁹Nd. Après un temps suffisamment long (environs 10 jours) la valeur asymptotique suivante sera atteinte:

$$N_{Sm\infty} = \frac{\gamma_{Nd} \Sigma_f}{\sigma_{Sm}} \left(1 + \frac{\sigma_{Sm} \varphi_0}{\lambda_{Pm}} \right)$$
(117)

La variation de réactivité qui y correspond est donnée par:

$$\Delta \rho = -f\gamma_{Nd} \frac{\eta}{\nu} \left(1 + \frac{\sigma_{Sm}\varphi_0}{\lambda_{Pm}} \right)$$
(118)

Pour un flux, juste avant l'arrêt du réacteur, de $\varphi_0=2$ 10¹⁴ cm⁻² s⁻¹, la variation de réactivité asymptotique s'élève à $\rho_{\infty}=-2.1\%$.



Figure 25: Modification de l'anti-réactivité due au Samarium-149 pendant l'exploitation du réacteur

Lorsque le réacteur est redémarré, l'équilibre de concentration va à nouveau être atteint (voir Figure 12). Pour démarrer le réacteur un minimum d'excès de réactivité est nécessaire par rapport à la situation d'équilibre comme illustré à la Figure 12.

5.5.2 Empoisonnement de Xénon

Pour calculer le changement de réactivité dû à la production de ¹³⁵Xe, nous devons établir l'évolution de la concentration en fonction du temps. Le produit de fission ¹³⁵Xe est pour une petite partie directement formé par la fission d'²³⁵U avec un rendement de fission de γ_{Xe} =0.25%, mais la plus grande partie est formée par décroissance du ¹³⁵Te. Ce nucléide a un rendement de fission de γ_{Te} =3.3% pour la fission de ²³⁵U et décroît ensuite selon la réaction:

$$^{135}_{52}Te \xrightarrow{\beta^-19.2s}{53}I \xrightarrow{\beta^-6.6h}{54}Xe \xrightarrow{\beta^-9.2h}{55}Cs \xrightarrow{\beta^-2.610^6 yr}{56}Ba (stabiel)$$
(119)

Le taux de production de ¹³⁵Te dépend du flux et la vitesse de décroissance dépend de la période du nuclide. Le nuclide ¹³⁵I est directement formé par la fission de ²³⁵U avec un rendement de fission de $\gamma_I=3.1\%$.

Etant donné que la demi-vie du ¹³⁵Te est très courte, nous considérons l'¹³⁵I comme produit de fission primaire avec un rendement de fission de $\gamma_{Te-I}=\gamma_{Te}+\gamma_{I}=6.4\%$. L'évolution de la concentration en ¹³⁵I en fonction du temps N_I peut alors être décrite par:

$$\frac{dN_I}{dt} = \gamma_{I-Te} \Sigma_f \varphi - \lambda_I N_I \qquad (120)$$

L'évolution de la concentration de 135 Xe en fonction du temps N_{Xe} dans le réacteur peut alors être décrite par:

$$\frac{dN_{Xe}}{dt} = \lambda_I N_I + \gamma_{Xe} \Sigma_f \varphi - \lambda_{Xe} N_{Xe} - N_{Xe} \sigma_{Xe} \varphi \qquad (121)$$

Quelques jours après avoir travaillé à puissance constante, apparaît une situation d'équilibre $(dN_I / dt=0, dN_{Xe} / dt=0)$ avec une concentration d'équilibre N_{Xe0} de ¹³⁵Xe qui est donnée par:

$$N_{Xe0} = \frac{\lambda_I N_{I0} + \gamma_{Xe} \Sigma_f \varphi}{\lambda_{Xe} + \sigma_{Xe} \varphi} = \frac{(\gamma_{I-Te} + \gamma_{Xe}) \Sigma_f \varphi}{\lambda_{Xe} + \sigma_{Xe} \varphi}$$
(122)

La diminution de réactivité qui est en rapport avec la concentration d'équilibre s'élève à:

$$\Delta \rho = -f \frac{N_{Xe0}\sigma_{Xe}}{(\Sigma_a)_{splijtstof}} = -f \frac{(\gamma_{I-Te} + \gamma_{Xe})\Sigma_f \varphi}{\lambda_{Xe} + \sigma_{Xe} \varphi} \frac{\sigma_{Xe}}{(\Sigma_a)_{splijtstof}} = -\frac{(\gamma_{I-Te} + \gamma_{Xe})\sigma_{Xe} \varphi}{\lambda_{Xe} + \sigma_{Xe} \varphi} \frac{\eta^r}{\nu}$$
(123)

Pour des réacteurs à eau légère on obtient pour un enrichissement moyen de 2.5% ²³⁵U η =1.8, v=2.4 et f=0.8.

Dans la Figure 26, la concentration d'équilibre est donnée comme fonction du flux φ . En dessous d'un flux moyen de 10^{12} neutrons par cm⁻².s⁻¹ l'empoisonnement au Xe ne joue aucun rôle. A mesure que le flux neutronique s'élève, la concentration d'équilibre augmente jusqu'à une valeur maximale pour un flux d'environ 10^{15} neutrons par cm⁻².s⁻¹. Dans ce cas la perte de réactivité dans les situations d'équilibre est égale à:

$$\Delta \rho = -f \frac{\eta}{\nu} (\gamma_{I-Te} + \gamma_{Xe}) \approx -4\% \qquad (124)$$



Figure 26: L'évolution de la réactivité d'équilibre du Xe en fonction du flux stationnaire

Lorsque le réacteur est arrêté, le flux va baisser rapidement jusqu'à une valeur négligeable. Par conséquent la concentration en xénon N_{Xe} va d'abord augmenter car il n'y a plus de xénon qui disparaît par capture neutronique et la production de ¹³⁵Xe par décroissance de ¹³⁵I va plus vite que la décroissance de ¹³⁵Xe vers ¹³⁵Cs. Après un certain temps un maximum est atteint en concentration en xénon et donc un empoissonnement en xénon, après quoi la concentration en xénon diminue à cause

de la décroissance vers ¹³⁵Cs .L'évolution de la concentration en xénon en fonction du temps lors de l'arrêt du réacteur est montré dans la Figure 27.



Figure 27: L'évolution de la concentration en xénon en fonction du temps lors de l'arrêt du réacteur

La figure 27 montre que le maximum de la concentration en xénon et donc aussi l'empoisonnement en xénon se manifeste après environ 11 heures. Le maximum d'anti-réactivité dû à la production de xénon est dépendant de la valeur du flux directement après l'arrêt du réacteur.

Pour un réacteur avec un flux moyen d'environ 1×10^{13} cm⁻² s⁻¹ la perte de réactivité sous l'effet d'un équilibre de xénon est d'environ 2 %. Dès que le réacteur est arrêté l'effet de réactivité du xénon augmente à la suite de l'augmentation de la concentration jusqu'à environ 2.6%. Il faut avoir un excès de réactivité de 0.6% pour pouvoir redémarrer le réacteur. Si cela n'est pas le cas, alors on doit attendre la décroissance jusqu'à la situation d'équilibre. Dans cette situation il faut attendre 14 heures pour pouvoir redémarrer le réacteur.

Pour les réacteurs à haut flux, la perte de réactivité après l'arrêt du réacteur est plus importante. Pour un flux de 1×10^{14} la valeur d'équilibre pour l'empoisonnement au xénon est d'environ 4%. Après l'arrêt du réacteur, cette réactivité négative augmente jusqu'à 20% sur une période de 11 heures. Etant donné l'impossibilité d'avoir un aussi grand excès de réactivité, le réacteur dans cette situation ne peut pas être démarré et on doit charger un nouveau cœur ou attendre la décroissance du xénon. Cela dure pour les réacteurs à haut flux jusqu'à environ 48 heures.

Le temps qui est disponible pour encore pouvoir démarrer après un arrêt rapide, s'élève, selon l'excès de réactivité disponible de 10 à 30 minutes. La marge de réactivité est d'environ 5 à 7 %.

La Figure 28 illustre l'évolution de l'anti-réactivité due au Xe-135 pendant l'exploitation du réacteur.



Figure 28: L'évolution de l'anti-réactivité due au xénon-135 pendant l'exploitation du réacteur.

L'anti-réactivité introduite par la concentration en xénon existante n'apporte pas uniquement des problèmes au démarrage après arrêt, mais également les oscillations du xénon, radiales ou axiales, pendant l'exploitation dans les réacteurs à grande puissance. Si dans un état stationnaire il y a une perturbation de la distribution de puissance radiale (axiale) dans le cœur, alors dans la partie du cœur où la puissance s'est élevée, la concentration de xénon va temporairement diminuer car il y a plus de xénon consommé qu'il n'en est formé. Cela signifie que la puissance dans cette partie augmente encore plus fortement et que dans une autre partie du cœur elle diminue encore plus car ici la concentration de xénon augmente. Ici, il y aura plus de formation de xénon par la décroissance radioactive de ¹³⁵I qu'il en sera consommé.

Ce processus continue jusqu'à ce que l'empoisonnement soit à l'équilibre avec la nouvelle distribution de puissance. Dans ce cas l'empoisonnement en xénon dans la partie avec la plus haute puissance, est aussi le plus élevé et dans l'autre partie le plus bas. Cela veut dire que la distribution de puissance change à nouveau avec comme résultat à nouveau un renforcement de la variation par une adaptation progressive de la concentration en xénon. La période d'une telle oscillation est de l'ordre d'un jour. Par un "contre-pilotage" adapté avec des barres de réglages on peut directement contenir l'oscillation xénon à l'apparition.

6 Types de reacteurs nucleaires

6.1 Principes et types actuels de réacteurs nucléaires de puissance

Les principes pour utiliser l'énergie nucléaire pour la production d'électricité sont les mêmes pour la plupart des réacteurs de puissance. L'énergie qui provient de la fission des atomes de combustibles est utilisée sous forme de chaleur présente dans l'eau ou dans le gaz et est par la suite convertie en vapeur. Cette vapeur sert pour l'entrainement de turbines qui via un alternateur produisent de l'électricité. Les différents réacteurs de puissance se reposent cependant sur un certain nombre d'éléments communs:

- Le combustible: généralement des pastilles sous forme de dioxyde d'uranium (UO₂) placées dans un gainage pour former ainsi un crayon de combustible; ces crayons sont regroupés pour formés un assemblage qui est placé dans le réacteur
- Le modérateur: c'est un matériau qui ralentit les neutrons, créés lors de la fission, pour induire plus de fissions; généralement de l'eau, de l'eau lourde, ou du graphite.
- Les barres de contrôle: ces barres contiennent un élément absorbant: comme le cadmium, l'hafnium ou le bore, elles peuvent être introduites ou retirées du réacteur pour contrôler la puissance du réacteur.
- Le caloporteur: c'est un liquide ou un gaz qui circule à travers le cœur pour que la chaleur produite soit transférée au caloporteur.
- <u>Cuve pressurisée ou tubes pressurisés:</u> soit une cuve robuste en acier qui contient le cœur (avec le modérateur) ou bien une série de tuyaux qui contiennent le combustible et le fluide caloporteur et traversent le modérateur.
- Le générateur de vapeur: partie du système de refroidissement où la chaleur du réacteur est utilisée pour faire de la vapeur pour la turbine.
- L'enceinte de confinement: structure autour du réacteur qui est développée pour protéger le réacteur contre chaque intrusion externe et pour protéger le monde extérieur pour les effets des radiations ou une anomalie à l'intérieur.

Il existe de différents types de réacteurs de puissance, développés et construits comme reproduit dans le tableau 6.

Reactor type	Main Countries	Number	GWe	Fuel	Coolant	Moderator		
Pressurised Water Reactor (PWR)	US, France, Japan, Russia	252	235	enriched UO ₂	water	water		
Boiling Water Reactor (BWR)	US, Japan, Sweden	93	83	enriched UO ₂	water	water		
Gas-cooled Reactor (Magnox & AGR)	UK	34	13	natural U (metal), enriched UO ₂	CO ₂	graphite		

Tableau 6: Différents types de réacteurs de puissance

Nuclear power plants in commercial operation

Pressurised Heavy Water Reactor "CANDU" (PHWR)	Canada	33	18	natural UO ₂	heavy water	heavy water
Light Water Graphite Reactor (RBMK)	Russia	14	14	enriched UO ₂	water	graphite
Fast Neutron Reactor (FBR)	Japan, France, Russia	4	1.3	PuO ₂ and UO ₂	liquid sodium	none
Other	Russia, Japan	5	0.2			
	TOTAL	435	364			

GWe = capacity in thousands of megawatts.

Source: Nuclear Engineering International handbook 2000 updated, including Pickering A in Canada.

La plupart des réacteurs doivent être arrêtés pour le rechargement, de manière à ce que la cuve puisse être ouverte. Dans ce cas le rechargement se produit dans des intervalles de 1 an à 2 ans et généralement un tiers ou un quart des assemblages sont remplacés par du combustible neuf. Les types CANDU et RMBK ont des tubes pressurisés à la place d'une cuve pressurisée et peuvent donc être rechargés pendant le fonctionnement en déconnectant individuellement les tubes pressurisés.

Si du graphite ou de l'eau lourde est utilisée comme modérateur, il est possible de faire tourner le réacteur avec de l'uranium naturel à la place d'uranium enrichi. L'uranium naturel a la même composition isotopique que le minerai (0.7% U-235 en 99.3% U-238). Dans l'uranium enrichi la quantité en U-235 a été augmentée à un pourcentage (ce que l'on appelle l'enrichissement) généralement entre 3.5 % et 5%. Dans ce cas le modérateur peut simplement être de l'eau et de tels réacteurs sont aussi appelés réacteurs à eau légère.

Le combustible le plus utilisé est la céramique de dioxyde d'uranium enrichi en U-235. Les pastilles de combustible (typiquement un diamètre de 1 cm et d'une longueur de 1 à 1.5 cm) sont chargées dans un gainage en zircaloy. Le zircaloy est un alliage de zirconium qui est un matériau dur et résistant à la corrosion et qui de plus est transparent pour les neutrons.

Ci-dessous nous allons voir plus en détails les aspects spécifiques des différents réacteurs.

6.1.1 Réacteur à eau pressurisée (REP)

Les réacteurs à eau pressurisée sont le type de réacteur le plus répandu dans le monde. Au total il y a 230 réacteurs en service pour la production d'électricité et encore environ une centaine pour la propulsion de navire. Le projet vient d'un réacteur de puissance pour un sous-marin. Les REP utilisent de l'eau "normale" comme modérateur et caloporteur. L'aspect spécifique de ce genre de réacteur est qu'un circuit de refroidissement primaire traverse le cœur du réacteur sous très haute pression et que dans le circuit secondaire de la vapeur est générée pour alimenter la turbine. (Voir Figure 29)



Figure 29: Schéma de principe du fonctionnement d'un REP

Une centrale REP contient des assemblages de combustible qui sont constitués de 200 à 300 crayons de combustibles qui sont disposés verticalement dans le réacteur. Un grand REP contient environ 150 à 250 assemblages de combustible, ce qui fait entre 80 à 100 tonnes d'uranium.

L'eau dans le réacteur atteint environ 325°C, ce qui veut dire que pour empêcher l'ébullition on doit avoir une pression d'environ 150 bars. La pression est contrôlée par la fraction de vapeur dans le pressuriseur. L'eau du circuit primaire sert également de modérateur, ainsi dans le cas où l'eau est transformée en vapeur, la réaction en chaîne ne sera plus entretenue. Cette contre-réaction négative est une des plus importantes caractéristiques intrinsèques de sûreté de ce type de réacteur. Le deuxième système d'urgence (scram) consiste en l'injection d'acide borique dans l'eau du circuit primaire.

Le circuit secondaire est continuellement sous une pression plus basse pour que l'eau qui est dans les échangeurs puisse bouillir et en d'autres mots produise de la vapeur. La vapeur alimente ensuite la turbine, elle sera ensuite condensée et retournera vers les échangeurs qui sont en contact avec le circuit primaire.

Les réacteurs sous pression russes VVER montrent beaucoup de ressemblances avec les REPs occidentaux.

6.1.2 Réacteur à eau bouillante (REB)

Les réacteurs à eau bouillante ont beaucoup de points communs avec le type REP, à part le fait qu'il n'y a qu'un circuit de refroidissement avec de l'eau sous basse pression (75 bar) ainsi que l'eau bout dans un tel réacteur à 285 °C. Le réacteur est conçu pour travailler avec 12 à 15 % de l'eau sous forme de vapeur dans la partie supérieure du cœur. La puissance de modération est là donc moins efficace.

La vapeur est séparée de l'eau par un séparateur et un sécheur de vapeur, puis amenée directement à la turbine qui fait partie intégralement du circuit de refroidissement primaire (voir Figure 30). Vu que l'eau circulant à travers le cœur du réacteur contient des traces de radionucléides, que la turbine doit donc être protégée et munie de protection radiologique pendant l'entretien. Les coûts y associés sont environ en équilibre avec les économies réalisées par le design plus simple. La plupart des radionucléides présents dans l'eau ont une courte demi-vie, si bien que le hall turbine peut être rapidement accessible après l'arrêt du réacteur. Le nuclide le plus présent est le N-16 avec une demi-vie de 7 secondes.



Figure 30: Schéma de principe de fonctionnement d'un REB

Un assemblage de combustible d'un REB est constitué de 90 à 100 crayons de combustibles. Au total il y a 750 assemblages dans le réacteur, ce qui représente une masse de 140 tonnes d'uranium.

6.1.3 Réacteur à gaz avancé (RGA)

Les réacteurs à gaz avancés sont développés sur base des réacteurs précédents MAGNOX dont certains sont encore en fonctionnement maintenant au Royaume Uni. Le réacteur MAGNOX est un réacteur modéré au graphite et refroidi par du CO₂ qui utilise comme combustible de l'uranium naturel métallique dans un gainage d'alliage de magnésium.

Le choix du CO_2 comme moyen de refroidissement n'est tenant compte des diverses exigences pas le premier choix, étant donné qu'un réacteur qui est modéré par un autre matériau que le caloporteur, exige un caloporteur avec les propriétés suivantes:

- Propriétés neutroniques: faible section efficace d'absorption
 - Pour obtenir une bonne économie neutronique
 - Une probabilité de capture neutronique signifie une réactivité négative élevée; la perte du caloporteur mène à une augmentation non désirée de la réactivité
 - Une capture neutronique élevée entraine également une radioactivité non désirée du fluide caloporteur
- Propriétés physiques
 - Un caloporteur lourd exige des pompes de puissances plus élevées
 - Excellente propriété de transmission de chaleur
- Propriétés chimiques:
 - o Stabilité à haute température
 - o Compatibilité avec les matériaux de construction

L'hélium est le caloporteur qui répond le mieux à ces critères, mais il est rare et coûteux. Le CO_2 est donc le meilleur deuxième choix en tant que caloporteur.

Le choix du graphite comme modérateur est un bon choix pour le ralentissement des neutrons et pour l'absorption neutronique, mais à cause des distances importantes que les neutrons doivent parcourir avant d'atteindre la modération optimale cela mène à des dimensions de réacteurs importantes. Le graphite est sujet à des dégradations suite aux radiations et l'énergie accumulée, appelée l'énergie de Wigner, doit être libérée d'une manière contrôlée par un recuit du graphite après un certain temps.

Pour atteindre un plus haut rendement énergétique avec des réacteurs refroidis à gaz, il est nécessaire d'avoir une plus haute température dans le combustible. Vu que le MAGNOX à l'uranium métallique a

peu de résistance à la dilatation, les générations suivantes de réacteurs refroidis à gaz, les RGA's, ont évolué vers des pastilles UO_2 comme combustible. Etant donné que ces pastilles ont été encapsulées dans un gainage en inox, le combustible doit être légèrement enrichi jusqu'à 2.5-3.5%.



Figure 31: Schéma de principe de fonctionnement d'un RGA

Le caloporteur CO_2 qui circule à travers le cœur atteint une température de 650°C, va vers les tuyaux du générateur de vapeur en dehors du cœur (mais encore dans le béton et l'acier de la cuve (Figure 31). Les barres de contrôle pénètrent dans le modérateur et un deuxième système de scram consiste en l'injection d'azote dans le caloporteur.

Bien que ce type de réacteur ne soit pas économiquement compétitif avec les REP et REB, ils ont servi pour acquérir suffisamment d'expérience pour faire le développement de leurs successeurs possibles: les réacteurs à hautes températures.

6.1.4 Réacteur à eau lourde pressurisée (RELP)

Le type de réacteur à eau lourde pressurisée est le plus représenté sous la forme canadienne: les CANDU (CANadian Deuterium natural Uranium reactor). Le CANDU utilise du dioxyde d'uranium naturel comme combustible et est donc obligé d'utiliser un modérateur plus efficace, dans ce cas de l"eau lourde (D₂O). Le modérateur est constitué d'un grand réservoir appelé calandria, qui est parcouru par des centaines de tubes pressurisés horizontaux qui forment des canaux pour le combustible dans lesquels circule de l'eau lourde. Cette eau circule sous haute pression dans la boucle primaire de refroidissement à une température qui peut aller jusqu'à 290°C. Comme dans un REP, le caloporteur primaire sert pour la création de vapeur dans le circuit secondaire pour les turbines (voir Figure 32). La conception des tuyaux pressurisés permet au réacteur d'être rechargé progressivement sans arrêter celui-ci en isolant individuellement les tuyaux pressurisés du circuit de refroidissement.



Figure 32: Schéma de principe de fonctionnement du réacteur CANDU

Un assemblage de combustible pour un CANDU est constitué d'un ensemble de 37 crayons d'un demimètre (pastilles céramiques dans un tuyau de zircalloy) plus une structure portante. Un canal de combustible comporte 12 ensembles qui se trouvent l'un derrière l'autre.

Les barres de contrôle pénètrent verticalement dans le réacteur et un deuxième système de scram est constitué par l'addition de gadolinium au modérateur.

6.1.5 Réacteur de type "RBMK"

Le réacteur RBMK est de conception russe et originellement développé pour la production de plutonium pour le programme militaire et plus tard adapté pour la production d'électricité. Il consiste en des tubes pressurisés verticaux de 7 mètres de long qui traversent le graphite. Le réacteur est refroidi par de l'eau bouillante d'une température de 209°C, comme dans les REB. Le combustible est de dioxyde d'uranium légèrement enrichi placé dans un assemblage de 3.5 m de long.

L'inconvénient de ce type de réacteur est que la modération est attribuable en grande partie au graphite. Par de fortes ébullitions le refroidissement va fortement diminuer sans interrompre la réaction en chaîne. De plus l'absorption neutronique va fortement chuter, ce qui peut entrainer un coefficient de contre-réaction positif.

6.1.6 Réacteur à neutrons rapides (RNR)

Les réacteurs rapides ont été en premiers lieux développés pour la production de matériel fissile à partir de matière fertile. Ceci est possible seulement si suffisament de neutrons sont libérés à la fission. Vu qu'un neutron est toujours nécessaire pour entretenir la réaction en chaîne et dans le souhait d'utiliser, par l'absorption, un noyau fertile à transformer en noyau fissile, on désire avoir à disposition au moins 2 neutrons par fission.

Tableau 7: Neutrons émis par fission par nuclide et selon' énergie du neutron

		U-235	Pu-239
Neutrons	thermiques	2.07	2.09
Neutrons	rapides	2.18	2.74

Du tableau 7 ressort que les fissions pour les neutrons rapides sur les noyaux de plutonium sont les plus intéressantes. De là pour la production de noyaux fissiles à partir de noyaux fertiles un réacteur rapide est exigé. Un tel réacteur rapide provient en ne ralentissant pas les neutrons et ensuite en n'installant pas de modérateur. Vu que l'uranium et le plutonium sont généralement sous la forme d'oxydes ou de carbures (dans le but d'avoir une stabilité sous un flux de neutrons) il y a toujours une légère modération et qu'il est clair que le caloporteur ne peut pas jouer un rôle de modérateur comme l'eau.

Comme caloporteur le sodium liquide a été choisi pour les avantages suivants:

- > Un bon coefficient de transmission de chaleur, donc un cœur compact
- Un point d'ébullition à atmosphère ambiante de 900 °C
- > Des propriétés hydrauliques comparables à celles de l'eau
- Non corrosif pour la plupart des sortes d'acier si la teneur en oxygène reste faible

Le sodium a quand-même certains désavantages:

- Une grande affinité du sodium pour l'oxygène: tous les changements de combustible doivent se faire sous une atmosphère inerte
- > Le sodium réagit exothermique en contact avec l'eau
- > Le sodium devient très radioactif --> un circuit de refroidissement intermédiaire est nécessaire
- ➢ La section efficace d'absorption de Sodium assez élevée entraîne un coefficient de vide positif

La chaleur produite qui via le deuxième circuit de refroidissement sodium, avec l'aide d'un échangeur transforme l'eau en vapeur, alimente la turbine qui s'occupe de la production d'électricité. Vu les problèmes technologiques qui ont été rencontrés lors de l'exploitation des réacteurs rapides avec refroidissement au sodium, ce type de réacteur n'a pas réussi à remplacer les REP et les REB comme réacteur commercial.

Le contrôle de ces réacteurs se fait par le biais des barres de contrôle contenant de tablettes de carbure de bore ou éventuellement par le moyen d'un élément de combustible avec un prolongateur de vide.

6.2 Futur proche du nucléaire: Génération III

Bien que dans différents pays de la communauté européenne un moratoire sur la construction de nouvelles centrales nucléaires existe, il y a en ce moment une trentaine de nouveaux réacteurs en construction. Le tableau 8 donne un aperçu des différents réacteurs organisés par types et par locations.

La construction de nouveaux réacteurs est principalement concentrée sur le continent asiatique, où le besoin de nouvelles centrales électriques est grand, dû à l'accroissement de la population et au processus d'industrialisation.

Start Operation*	COUNTRY/ORGANISATION	REACTOR	ТҮРЕ	Mwe (net)
2003	China NNC	Qinshan 3	PWR	610
2003	China NNC	Qinshan 5	PHWR	665
2004	Iran	Bushehr 1	PWR	950
2004	Russia	Kalinin 3	PWR	950
2004	Korea RO	Ulchin 5	PWR (KSNP)	950
2004	China NNC	Tianwan 1	PWR	950

Tableau 8: La construction de nouvelles centrales nucléaires dans le monde

2005	Korea RO	Ulchin 6	PWR (KSNP)	950
2005	Japan	Higashidori 1 (Tohoku)	BWR	1067
2005	Japan	Hamaoka 5	ABWR	1325
2005	Taipower	Lungmen 1	ABWR	1350
2005	Russia	Kursk 5	RBMK	925
2005	Ukraine	Khmelnitski 2	PWR	950
2005	China NNC	Tianwan 2	PWR	950
2006	Ukraine	Rovno 4	PWR	950
2006	Japan	Shika 2	ABWR	1315
2006	India	Tarapur 3	PHWR	450
2006	Taipower	Lungmen 2	ABWR	1350
2006	Japan	Fukushima 7	ABWR	1325
2006	India	Kudankulam 1	PWR	950
2007	India	Tarapur 4	PHWR	450
2007	India	Rawatbhata 5	PHWR	202
2007	Romania	Cernavoda 2	PHWR	650
2007	India	Kudankulam 2	PWR	950
2007	India	Kaiga 3	PHWR	202
2007	India	Kaiga 4	PHWR	202
2007	Russia	Volgoodonsk 2	PWR	950
2007	Japan	Fukushima 8	ABWR	1325
2008	India	Rawatbhata 6	PHWR	202
2008	Russia	Balakovo 5	PWR	950
2008	Brazil	Angra 3	PWR	1245
2008	Korea RO	Shin-Kori 1	PWR (KSNP)	950
2008	North Korea (KEDO)	Sinpo 1	PWR (KSNP)	950
2009	Russia	Beloyarsk 4	FBR	750
2010	Russia	Balakovo 6	PWR	950
2010	India	Kalpakkam	FBR	440

* Latest announced year of proposed commercial operation.

Pour le continent européen, la Finlande a décidé la construction d'un EPR. Récemment, la France a aussi décidé de construire une nouvelle centrale EPR à Flamanville. Du tableau 8, il ressort que la plupart des réacteurs en construction sont de type REP. Le japon a choisi pour le type REB.

6.3 Le parc nucléaire à partir de 2025

6.3.1 Nouvelles applications

Les réacteurs nucléaires et en particulier des réacteurs nucléaires de recherche sont, en dehors de la production d'électricité, également utilisés pour une multitude d'autres applications civiles. Dans ce paragraphe nous allons donner un aperçu des principales applications civiles qui sans les réacteurs nucléaires ne seraient pas ou difficilement réalisables.

L'une des premières applications civiles (des radio-isotopes produits par réacteurs nucléaires) était l'emploi de certains radionucléides comme sources d'énergie. Jusqu'à aujourd'hui, dans les programmes spatiaux, des générateurs thermoélectriques à base de radio-isotopes étaient utilisés comme source d'énergie principale. La chaleur spécifique élevée du Pu-238 (0.56 W/g) rend possible ceci comme source d'électricité utilisable dans les générateurs thermoélectriques pour l'aérospatial, les satellites, les balises de navigation. La chaleur du combustible est transformée en électricité via des éléments statiques thermoélectriques (thermocouple solid state) sans pièces mobiles. Les générateurs thermoélectriques sont sures, fiables, et sans entretien et peuvent délivrer chaleur/électricité pendant des décennies dans des conditions difficiles comme par exemple en l'absence d'énergie solaire.

Un autre radio-nuclide, l'américium (Am-241), est utilisé dans les détecteurs de fumées. Les détecteurs de fumée sont basés en effet sur l'ionisation de l'air entre deux électrodes par les particules alphas émises par l'Am-241. Par la tension entre les deux électrodes la charge est collectée sur l'électrode et induit un courant continu. Quand les particules alpha sont absorbées par la fumée le courant continu est interrompu et une alarme est générée. Par le fait que la quantité d'américium présente est très petite dans le détecteur, il n'y a aucun problème en ce qui concerne le risque de radiation et même par incorporation accidentelle étant donné que l'oxyde d'américium n'est pas soluble et donc sera évacué.

Les radio-isotopes sont également utilisés dans l'industrie pour des applications diverses:

- Techniques d'analyse sur base des interactions avec les neutrons, celles-ci font appel à l'utilisation d'une source de neutrons et sont basées sur l'absorption ou la diffusion (pour la détection d'eau); l'analyse par activation neutronique sur base d'un faisceau neutronique très intense
- Techniques d'analyse Gamma et rayonnement X: en se basant sur l'atténuation des gammas par le matériau de Z élevé d'une source radioactive on peut déterminer la présence et la concentration d'éléments lourds.
- > La radiographie gamma pour la détection de matériaux lourds (fer)
- Neutrographie: analogue à la radiographie gamma pour les matériaux légers et absorbeurs de neutrons.
- > Mesure de hauteur de colonne de liquide en analysant l'atténuation du "faisceau" gamma
- La stérilisation gamma de produits médicaux avec du cobalt-60
- > Traceurs avec différents isotopes pour caractériser divers procédés industriels.

Un des domaines d'applications les plus connus se trouve dans la médecine. En médecine beaucoup de radio-isotopes différents sont utilisés pour diagnostiquer et livrer des informations quant à l'état et le fonctionnement des organes d'un patient. Certains radio-isotopes sont également utilisés en radiothérapie pour traiter certaines maladies comme le cancer par l'élimination sélective de certaines cellules par irradiation.

Beaucoup de ces radio-isotopes ne peuvent être produits que dans un réacteur. De là le maintien en fonctionnement de certain type de réacteurs de recherches est très important. En dehors des applications déjà mentionnées, les réacteurs de recherches sont utilisés pour la recherche sur les matériaux et la formation.

La technologie nucléaire fut dans le passé et encore aujourd'hui encore utilisé pour la propulsion de vaisseaux qui doivent rester longtemps en mer sans ravitaillement en carburant ou pour une propulsion

puissante pour les sous-marins. La plupart des vaisseaux entrainés par le nucléaire sont des sousmarins, mais on trouve aussi un certain nombre de brise-glaces et de porte-avions. Le type de réacteur qui est utilisé ici est un REP avec une densité de puissance élevée pour avoir ainsi un petit volume de réacteur. La densité de puissance élevée provient de l'utilisation d'uranium avec un enrichissement élevé. Une longue durée sans rechargement est obtenue par l'ajout d'un poison consommable au combustible hautement enrichi.

La production d'hydrogène à l'aide des centrales nucléaires est potentiellement un nouveau domaine d'application pour le futur. La production d'hydrogène peut devenir un enjeu dans le futur, utilisée comme combustible pour le transport. L'hydrogène gazeux peut être directement brûlé par les moteurs classiques, cependant il sera préférentiellement utilisé dans des piles à combustibles pour délivrer directement de l'électricité. En premier lieu, l'hydrogène sera produit par électrolyse de l'eau par les centrales nucléaires conventionnelles lors des périodes de demande d'électricité basses. Ensuite des réacteurs nucléaires à haute température pourraient être utilisés pour produire directement, avec de la chaleur de haute température (plus de 900°C) de l'hydrogène via une réaction thermochimique.

Une autre application qui attirera plus d'attention dans le futur, c'est la désalinisation de l'eau de mer avec l'énergie nucléaire. En effet la disponibilité de l'eau potable est un besoin et une condition pour le développement de certaines régions. Momentanément on estime qu'un cinquième de la population mondiale n'a pas accès à l'eau potable et cela va encore augmenter avec l'accroissement de la population mondiale. Principalement certaines régions asiatiques et nord-africaines connaissent ce problème. S'il n'y a pas de source d'eau potable disponible, alors la désalinisation de l'eau de mer constitue une solution. Le dessalage est un processus qui demande beaucoup d'énergie pour laquelle une variété de sources électriques ou de chaleur à basse température pourrait être utilisée. Des réacteurs nucléaires de petite ou moyenne taille peuvent être ici préférentiellement utilisés, étant donné que les centrales à combustible fossile sont trop défavorables pour le milieu vu leur émission de gaz contribuant à l'effet de serre. En premier lieu on va cependant passer à l'utilisation des réacteurs qui dans leurs périodes creuses peuvent être utilisés à ces fins.

6.3.2 Nouvelles types de réacteurs nucléaires: Génération IV

Depuis le développement des premiers types de réacteurs et la mise en fonction des réacteurs de type actuel, il y a eu diverses améliorations proposées et mises en œuvre. Tenant compte cependant du fait que le parc de réacteurs va devoir être renouvelé, un groupe de discussion a été mis sur pied qui doit évaluer les différents concepts de réacteurs de la quatrième génération. Ce groupe de discussion est connu sous le nom de "Generation IV International Forum" ou GEN IV. Après deux années de délibération le groupe a proposé six types différents, pour l'énergie nucléaire, qui pourraient voir le jour. Ils ont été sélectionnés sur base dans la mesure où ils peuvent répondre à une demande d'énergie grandissante d'une manière propre, sûre, économique et durable. Le tableau 9 donne une vue d'ensemble des caractéristiques des 6 concepts GEN IV sélectionnés.

	neutron spectrum (fast/ thermal)	coolant	temperature (°C)	pressure*	fuel	fuel cycle	size(s) (MWe)	uses
Gas-cooled fast reactors	Fast	helium	850	High	U-238	closed, on site	288	electricity & hydrogen
Lead-cooled fast reactors	Fast	Pb-Bi	550-800	Low	U-238	closed, regional	50- 150** 300- 400 1200	electricity & hydrogen
Molten salt reactors	epithermal	fluoride salts	700-800	Low	UF in salt	closed	1000	electricity & hydrogen
Sodium-cooled	Fast	sodium	550	Low	U-238 &	closed	150-	electricity

Tableau 9:	Caractéristique	s des 6	concents	GEN IV	sélectionnés
Labicau 7.	Caracteristique	s ues o	concepts	OLIVIY	selectionites

fast reactors					MOX		500 500- 1500	
Supercritical water-cooled reactors	thermal or fast	water	510-550	Very high	UO2	open (thermal) closed (fast)	1500	electricity
Very high temperature gas reactors	thermal	helium	1000	High	UO ₂ prism or pebbles	open	250	hydrogen & electricity

* high = 7-15 Mpa

** 'battery' model with long cassette core life (15-20 yr) or replaceable reactor module.

La plupart des 6 systèmes reposent sur un cycle du combustible fermé pour maximaliser la matière première et minimiser le déchet hautement radioactif qui va être envoyé vers les stockages géologiques. Trois des six sont des réacteurs rapides et seulement deux font usage de neutrons thermiques comme les réacteurs actuels.

Il y a seulement un type qui considère l'eau comme caloporteur, deux autres seront refroidis par de l'hélium gazeux. Les autres types seront refroidis par du plomb (-bismuth) liquide, du sodium ou des sels de fluor. Ces trois derniers fonctionnent à basse pression, ce qui a des avantages significatifs au niveau de la sécurité. La température de fonctionnement se situe entre 510°C et 1000°C, ce qui est sensiblement plus haut que les réacteurs actuels. Quatre de ces types pourraient être utilisés pour la production thermochimique d'hydrogène.

Une des caractéristiques générales des systèmes GEN IV est la sûreté passive accrue par exemple par l'emploi de la gravité utilisée dans les systèmes d'injection d'urgence. La rentabilité économique des réacteurs GEN IV a été augmentée par une température de fonctionnements supérieurs et d'autre part, l'utilisation d'un cycle thermodynamique efficace pour l'entraînement de la turbine. Par le choix de combustible et du cycle du combustible, le risque de prolifération dans ce système a été également réduit.

6.3.3 Les systèmes sous-critiques pilotés par un accélérateur

En dehors des concepts retenus par GEN IV, il faut également mentionner le concept du système souscritique piloté par un accélérateur (ADS: Accelerator Driven System). Un tel système se compose de trois éléments essentiels:

- Un accélérateur qui accélère des particules chargées (généralement des protons) jusqu'à une énergie élevée (de l'ordre de 100 MeV jusqu'à 1 GeV)
- Une cible de spallation qui sert à convertir les protons incidents très énergétiques en neutrons via des réactions de spallation sur le plomb (-bismuth)
- Un milieu multiplicateur sous-critique avec un facteur de multiplication du nombre de neutrons de spallation compris entre 20 et 50

Ces systèmes pilotés par un accélérateur sont fondamentalement différents des autres réacteurs existants ainsi que ceux de GEN IV, étant donné que dans un ADS la réaction en chaîne n'est pas auto entretenue. Cela a pour conséquence que ces systèmes peuvent toujours être arrêtés en coupant le courant de l'accélérateur et sont donc intrinsèquement nettement plus sûrs que les autres concepts de réacteurs. Egalement le contrôle de ce genre de système et en particulier le contrôle de la puissance, ne sera plus exécuté à l'aide des barres de contrôle, mais uniquement à l'aide du courant de l'accélérateur.

De par ces caractéristiques de sûreté uniques, ils peuvent servir pour la transmutation des actinides et des produits de fission à longues demi-vies. Par transmutation ces radionucléides à longue demi-vie seront transformés en radionucléides à courte demi-vie qui après quelques décennies auront décru. De cette manière peut être éventuellement donné une réponse au problème des déchets hautement

radioactifs et ceux contenant des émetteurs alpha, ce qui est un des points de la plus haute importance dans le nucléaire, et pour lequel on est toujours à la recherche d'une solution. Pour y aboutir on doit également mettre au point les techniques de séparations de ces radionucléides spécifiques au combustible irradié

En dehors d'appliquer l'ADS pour la séparation et la transmutation il est aussi possible de développer ce système comme un amplificateur d'énergie pour la production d'énergie et d'électricité. Un des avantages supplémentaires de l'ADS est la possibilité d'utiliser le thorium comme combustible. Le thorium-232 peut en effet par capture neutronique être transformé en U-233 fissile. Etant donné que les réserves en thorium sont trois fois plus importantes que celle de l'uranium, et le thorium extrait est utilisable à 100%, on remarque directement le potentiel de disponibilité en combustible. Puisque le thorium a besoin d'un neutron pour se convertir en U-233 fissile, l'emploi d'un réacteur conventionnel est très difficile et un ADS rend possible l'utilisation cette importante réserve de combustible.

Modélisation et Evaluation de Données

E. Bauge, S. Hilaire

CEA DAM Ile-de-France Département de Physique Théorique et Appliquée Service de Physique Nucléaire Laboratoire de Modélisation et Evaluation de Données BP 12 91680 Bruyères-le-Châtel France

Résumé

Ce cours est consacré au processus d'évaluation des données nucléaires pour les applications, processus au cours du quel la connaissance actuelle (théorique et expérimentale) des réactions nucléaire est condensée et synthétisée dans un fichier informatique (le fichier évalué) utilisé par les codes d'application pour réaliser des simulations.

Après un survol du contenu des fichiers évalués, nous décrivons les différentes méthodes utilisées pour l'évaluation dans la région des données nucléaires. Nous nous concentrons particulièrement sur l'approche basées sur la modélisation que nous utilisons pour évaluer les données dans la région du continu. Ce cours sera illustré d'exemples tirés de la pratique quotidienne de l'évaluation. Finalement, nous aborderons les perspectives les plus probables pour l'amélioration du processus d'évaluation dans les dix prochaines années.

Abstract

This lecture is devoted to the nuclear data evaluation process, during which the current knowledge (experimental or theoretical) of nuclear reactions is condensed and synthesised into a computer file (the evaluated data file) that application codes can process and use for simulation calculations.

After an overview of the content of evaluated nuclear data files, we describe the different methods used for evaluating nuclear data. We specifically focus on the model based approach which we use to evaluate data in the continuum region. A few examples, coming form the day to day practice of data evaluation will illustrate this lecture. Finally, we will discuss the most likely perspectives for improvement of the evaluation process in the next decade.

1. Evaluations ? Pourquoi, Pour qui ?

a. Fichier évalué : contenu

Qu'est ce qu'une évaluation, un fichier évalué ? Un fichier évalué est un fichier qui contient les informations, issues de la physique nucléaire, nécessaires au fonctionnement des codes d'application. Bien sûr, puisque l'utilisation principale de ces informations est d'alimenter les codes en constantes nucléaires, ces fichiers sont écrits sous une forme très codifiée et standardisée : le format ENDF-6 [ENDF]. Ce format, bien que difficile à lire pour un humain, sert de format d'échange entre codes.

6,215100+4	1,496234+2	0	0	0	06210 3	16	350
-5,596445+6-	-5,596445+6	0	0	1	1336210 3	16	351
133	2				6210 3	16	352
5,633849+6	0,000000+0	5,700000+6	1,580180-3	5,800000+6	6.073681-36210 3	16	353
5,900000+6	1.347960-2	6,000000+6	2,690410-2	6,100000+6	4,687551-26210 3	16	354
6,200000+6	7,598900-2	6,300000+6	1,119810-1	6,400000+6	1,518520-16210 3	16	355
6,500000+6	2,016680-1	6,600000+6	2,528690-1	6,700000+6	3,144490-16210 3	16	356
6,800000+6	3.780410-1	6,900000+6	4,433380-1	7,000000+6	5,136740-16210 3	16	357
7,100000+6	5,833550-1	7,200000+6	6,576591-1	7,300000+6	7,306390-16210 3	16	358
7,400000+6	8.033710-1	7,500000+6	8,746620-1	7,600000+6	9,434911-16210 3	16	359
7,700000+6	1,010920+0	7,800000+6	1,078550+0	7,900000+6	1,140340+06210 3	16	360
8,000000+6	1,202710+0	8,100000+6	1,257750+0	8,200000+6	1,313880+06210 3	16	361
8,300000+6	1,367080+0	8,400000+6	1,416210+0	8,500000+6	1,463580+06210 3	16	362
8,600000+6	1,506400+0	8,700000+6	1,546900+0	8,800000+6	1,586770+06210 3	16	363
8,900000+6	1,623670+0	9,000000+6	1,656720+0	9,100000+6	1,687830+06210 3	16	364
9,200000+6	1,717430+0	9,300000+6	1,745200+0	9,400000+6	1,771480+06210 3	16	365
9,500000+6	1,796050+0	9,600000+6	1,817200+0	9,700000+6	1,837390+06210 3	16	366
9,800000+6	1,858090+0	9,900000+6	1,876590+0	1,000000+7	1,893530+06210 3	16	367

Un extrait de fichier au format ENDF-6 (section efficace de la réaction ${}^{151}Eu(n,2n)$ en fonction de l'énergie).

Dans un fichier évalué sont stockés :

- Des informations générales (les noms des auteurs, des commentaires sur la constitution des fichiers)
- Les paramètres de la région des résonances.
- Les sections efficaces pour toutes les voies ouvertes en fonction de l'énergie du projectile sous forme intégrée ($\sigma(E)$), simplement différentielle en énergie ($d\sigma/dE$) ou en angle ($d\sigma/d\Omega$), ou doublement différentielle ($d^2\sigma/d\Omega dE$).
- Les schémas de décroissance (importants pour la gestion de la radioactivité résiduelle des produits de réaction nucléaires).
- Les multiplicités moyennes de neutrons (crucial pour la neutronique).
- Des informations sur les incertitudes associées à toutes les quantités ci-dessus.

b. Utilisation des données évaluées

Les fichiers évalués sont utilisés par les codes d'application, pour remplir « les cases » associées aux constantes nucléaires qui permettent d'effectuer des calculs. Ces calculs peuvent être des calculs de réacteurs traditionnels (réacteurs à eau pressurisée ou REP) ou innovants (Génération IV, ADS, ...), mais aussi des calculs d'astrophysique, de radiothérapie, de contrôle non destructif, de biologie, géologie etc.... Du point de vue de l'utilisateur la première vertu d'un fichier évalué est d'alimenter son code en constantes et ainsi de permettre au code de tourner. La seconde qualité qu'un utilisateur demande à un fichier est lui permettre de restituer par un calcul de simulation une expérience réalisée dans des conditions bien contrôlées : un benchmark. Loin derrière dans la hiérarchie des qualités

demandées aux évaluations par les utilisateurs viennent les qualités physiques de l'évaluation elle-même. C'est l'origine du malentendu qui existe souvent entre physiciens nucléaires et utilisateurs de codes : pour le premier un fichier évalué doit être jugé sur ses qualités physiques, alors que pour le second un fichier évalué est un produit technologique qui doit juste permettre d'obtenir le « bon » résultat à l'issue d'un calcul de simulation, même s'il faut pour cela violer la physique nucléaire. Cette présentation est à peine caricaturale, même si, avec l'avènement d'études sur des systèmes de plus en plus complexes et coûteux (réacteurs de génération IV) dont les conditions de fonctionnement s'écartent fortement des systèmes les mieux connus, et pour lesquels les expériences d'échelle industrielle devront être réduites au minimum, les utilisateurs commencent à réaliser que de solides bases physiques constituent une garantie pour la qualité des données évaluées.

c. Pourquoi des évaluations ?

On pourrait croire que depuis plus de cinquante ans d'utilisation de la technologie nucléaire, toutes les données intéressantes sont expérimentalement connues avec une précision suffisante, il n'en est rien. On peut trouver des quantités de réactions nucléaires pour lesquelles il n'existe aucune donnée, et une quantité encore plus importante de réactions pour lesquelles les données existantes ne couvrent pas toutes les énergies de projectiles utiles aux applications. Enfin il existe beaucoup de cas dans lesquels les données expérimentales disponibles sont contradictoires.



Un exemple de données expérimentales contradictoires.

Si toutes les raisons citées plus haut suffisent déjà à justifier les efforts d'évaluations nouvelles, il existe en plus de nombreux problèmes associés aux évaluations existantes qui eux aussi peuvent rendre une évaluation inutilisable. On peut, par exemple, rencontrer des évaluations qui présentent de mauvais raccordements entre les différents domaines énergétiques. En effet, une évaluation est constituée de plusieurs domaines énergétiques (le domaine des résonances résolues à très basse énergie, puis le domaine des résonances non résolues jusqu'à l'ouverture de la voie inélastique, puis le domaine du continu au-delà.) qui sont chacun évaluées de façon différente, et dont le raccordement peut produire des discontinuités qui ne sont à priori pas physique. Il convient dont, lorsque c'est possible, de limiter ces discontinuités en prêtant plus d'attention au raccordement lors des réévaluations. Il existe aussi des cas où certaines sections efficaces ne sont pas définies à toutes les énergies comme dans l'exemple ci-dessous.



Un exemple d'évaluation incomplète : la section efficace de fission induite par neutrons sur le 242Am de la librairie ENDF/b. n'est définie que jusqu'à 10 keV.

Mais, la raison la plus souvent mentionnée par les utilisateurs pour motiver une réévaluation est « ça ne marche pas dans mon cas », c'est-à-dire que lorsqu'une évaluation est utilisée dans un calcul de simulation d'un système réel, le résultat calculé est hors des barres d'erreur de la mesure. On peut alors penser que les quantités physiques contenues dans l'évaluation ne représentent pas assez fidèlement la réalité (ou bien alors la modélisation du système réel est trop grossière). Ainsi, pour s'assurer de la qualité d'une évaluation, on simule des systèmes complexes, dont la mesure et la modélisation ont été réalisées avec soin ; ce sont les « benchmarks » ou expériences intégrales. Parmi ceux-ci on peut mentionner les benchmarks de criticité sureté [ICSBEP], qui couvrent une large gamme de systèmes, de spectres et de matériaux. Un exemple de benchmark est la boule critique de plutonium JEZEBEL Pu239 (ou ICSBEP PU-MEF-FAST-001), dont la géométrie, la composition, et la criticité keff ont été mesurées avec précision, et dont la restitution par un calcul de simulation permet de qualifier un ensemble de fichiers évalués dans un domaine spectral donné (spectre très rapide pour JEZEBEL).



Photographie de l'expérience JEZEBEL Pu239

d. Les bibliothèques internationales.

Les fichiers évalués sont regroupée en bibliothèques qui sont censées représenter une offre complète et cohérente de donnée nucléaires pour les applications. Les bibliothèques les plus communément utilisées sont JEFF (bibliothèque européenne version 3.1 de 2005), ENDF (bibliothèque américaine version B-VII de 2006), et JENDL (bibliothèque japonaise version 3.3). Outre ces grandes bibliothèques généralistes, il existe des bibliothèques spécialisées, par exemple, dans les données pour les applications de fusion (EFF), d'activation (EAF2005),...

Ces bibliothèques sont distribuées par les « nuclear data center » comme la Nuclear Energy Agency de l'OCDE (NEA, <u>http://www.nea.fr</u>).

2. Comment ?

Pour constituer un fichier de données nucléaires évaluées tel qu'il a été décrit au paragraphe **1.a**, il faut mettre en œuvre un ensemble de techniques qui vont des plus simples (reprise d'évaluations existantes) aux plus complexes (modélisation complète des processus nucléaires qui gouvernent les réactions).

a. Reprise d'évaluations existantes

Le plus simple pour constituer ou compléter une nouvelle évaluation consiste à reprendre tout ou partie d'une évaluation existante. Ainsi, pour compléter une nouvelle évaluation dans le domaine énergétique du continu, on peut lui adjoindre une évaluation du domaine des résonances déjà existante. Il convient cependant de choisir soigneusement cette évaluation existante pour qu'elle soit cohérente avec le reste de l'évaluation. Pour faire ce choix l'évaluateur doit réaliser tout un travail d'expertise sur les données existantes afin de choisir « la meilleure ».

b. Renormalisation d'évaluations existantes

Il est aussi possible de reprendre des évaluations existantes mais en les modifiant pour qu'elles soient plus en accord avec de nouvelles données microscopiques ou intégrales. Ainsi, pour améliorer le résultat du calcul de benchmark d'activation TUD, la section efficace de la réaction ${}^{53}Cr(n,p){}^{53}V$ de la librairie EAF-2003 a été renormalisée par rapport à l'évaluation de EAF-2001. Cette façon de procéder est très commune dans le milieu des applications d'activation pour lesquelles la cohérence entre les différentes sections efficaces du fichier évalué n'est pas déterminante.



Un exemple de renormalisation de données nucléaires évaluées pour améliorer un résultat de benchmark.

c. Interpolations de données expérimentales

La façon qui peut sembler la plus « naturelle » de produire des données évaluées consiste à réaliser les mesures des sections efficaces et à interpoler entre les points de mesure. Cette méthode peut cependant conduire à des résultats indésirables lorsque les différents points expérimentaux sont affectés par une dispersion statistique comme la section efficace ⁵⁸Ni(n,n') dans l'exemple ci-dessous, où l'évaluation reflète la dispersion des points expérimentaux. Ce type de problème est résolu dans l'approche Bayesienne dans laquelle les points expérimentaux et leurs incertitudes sont pris en compte en même temps qu'une distribution de formes fonctionnelles lisses connues a priori (le « prior » souvent obtenues à l'aide d'un modèle), et combinés dans une évaluation qui prend à la fois en compte les données expérimentales et la connaissance issue des modèles.

Cette méthode basée sur la mesure des données est cependant limitée par la capacité des expérimentateurs de tout mesurer (toutes les voies de réaction à toutes les énergies sur tous les isotopes), et n'est réellement applicable que pour les réactions pour lesquelles il existe une motivation forte (applications ou autres) pour réaliser une mesure complète.


Un exemple de données nucléaires évaluées par interpolation de données expérimentales.

d. Modélisation

En fait, la méthode la plus généralement applicable pour fabriquer des données nucléaires consiste à faire appel à la modélisation des processus physiques qui dirigent les réactions nucléaires. La plupart du temps ces modèles physiques dépendent de paramètres dont les valeurs doivent être ajustées afin de reproduire les données expérimentales. Le diagramme ci-dessous illustre le cycle de rétroaction des données expérimentales sur les paramètres des modèles.



Cette dépendance de paramètres ajustables peut être perçue comme un avantage lorsqu'on souhaite reproduire finement les données expérimentales, mais elle peut aussi être vue comme un inconvénient lorsque les données expérimentales sont en quantité insuffisante pour contraindre les paramètres des modèles. On peut alors faire appel à des systématiques de paramètres telles que celles du projet RIPL [RIPL]. La modélisation présente cependant l'avantage de pouvoir calculer des observables même dans les cas où il n'existe pas de données expérimentales, ce qui permet au moins, dans le pire des cas, de fournir les constantes nucléaires nécessaires à un calcul de simulation d'application.

Pour illustrer cette approche, voici l'exemple du modèle de Breit et Wigner utilisé pour décrire les réactions nucléaires dans la zone des résonances résolues. Lorsqu'un neutron de basse énergie (quelques eV) interagit avec un noyau, il est capturé dans un état excité du noyau composé (d'énergie d'excitation égale à Bn, l'énergie de liaison du neutron). Bien entendu, cette capture est d'autant plus facile que l'énergie du neutron correspond à l'énergie d'un état excité du noyau composé. Cet état du noyau composé peut alors se désexciter, soit en réémettant un neutron de même énergie, soit en émettant des gammas, soit, si le noyau est fissile, en fissionnant.



La mise en équations de ce processus s'effectue par un modèle résonant à un niveau, le modèle de Breit et Wigner à un niveau :

$$\sigma_{ab}(E) = (2l+1)\frac{4\pi}{k^2} \frac{\Gamma_a \Gamma_b}{(E-E_0)^2 + \Gamma^2},$$

où l'indice *a* est associé à la voie d'entrée, l'indice *b* à la voie de sortie, *E* est l'énergie du neutron incident, E_0 l'énergie de l'état du noyau composé résonant, et Γ_a , Γ_b et Γ sont respectivement les largeurs de décroissances de la voie d'entrée, de sortie et totale. Ces largeurs de décroissance s'interprètent comme la facilité qu'a le noyau composé à se désexciter dans une voie donnée. Cette modélisation n'est valable que lorsque $\Gamma \ll D_0$, c'est-à-dire lorsque la largeur des résonances est très inférieure à l'espacement moyen des niveaux à l'énergie de liaison du neutron, ou en d'autres termes lorsque les résonances ne se chevauchent pas.



Quand cette condition n'est plus réalisée, il faut utiliser le modèle de la matrice R, qui prend en compte les interférences entre les contributions des différentes résonances pour chacune desquelles devront être définies les quantités E_0 , Γ , Γ_a , et Γ_b . Malheureusement, comme il n'existe aucun modèle capable de prédire ces paramètres avec la précision requise, la modélisation du domaine des résonances nécessite leur ajustement à partir de contraintes issues des données expérimentales. A plus haute énergie, ces résonances sont tellement serrées qu'il n'est plus possible de les décrire séparément (c'est le domaine des résonances non résolues), on les décrit alors de façon statistique par une densité de résonance s ou p (S_0 ou S_1) et des largeurs $<\Gamma>$ moyennées sur un intervalle d'énergie, et un rayon de diffusion potentiel R' qui décrit la voie élastique moyennée. Contrairement aux paramètres du domaine résolu, ces paramètres peuvent être obtenus à l'aide d'autres modèles (le modèle optique, voir paragraphe **3.b**), mais ils sont en général directement ajustés sur les données expérimentales.

3. Méthode « tout modèle » pour le continu

Dans ce chapitre, nous allons décrire de façon plus détaillée la méthode utilisée au CEA DAM pour évaluer les données nucléaires dans le domaine du continu. Cette méthode repose essentiellement sur des modélisations physiques des processus de réaction nucléaire, mais elle comporte aussi une part d'ajustement des paramètres de ces modèles afin de reproduire le plus finement possible les données expérimentales disponibles.

a. Enchaînement des modèles

A plus haute énergie (au dessus du seuil de la voie inélastique), on se trouve dans le domaine dit du « continu ». A ces énergies (E > 1-10 keV), si l'on examine le spectre des neutrons émis on observe que celui-ci présente la structure suivante :



Structure caractéristique d'un spectre de neutrons dans le domaine du continu.

On distingue trois zones :

- A haute énergie d'émission, on peut observer toute une série de pics assez étroits dont le plus énergétique se trouve à l'énergie du neutron incident (le pic élastique). Les structures immédiatement au dessous du pic élastique correspondent aux excitations des états de basse énergie du noyau cible, ce sont les pics inélastiques. Les composantes élastiques et inélastiques sont essentiellement produites par les processus de réactions directes, modélisés par le potentiel optique.

- Dans la zone des basses énergies on peut voir une composante d'allure maxwellienne, qui signe un processus statistique qui est décrit dans le modèle statistique.

- Finalement, l'intervalle qui le situe entre les processus statistiques et direct, est modélisé par un processus intermédiaire : le pré-équilibre.

De même qu'il existe une hiérarchie entre ces modèles du point de vue de l'énergie des particules émises, il existe une hiérarchie des temps de réaction qui est l'inverse de celle des énergies. Cette hiérarchisation des temps de réaction implique l'enchainement des modèles décrit ci-dessous, où les modèles les plus rapides alimentent les conditions initiales des plus lents.



Enchainement des modèles.

Ainsi, le modèle optique, qui correspond aux temps de réaction les plus rapides, et décrit les processus directs, est calculé en premier. Il fournit plusieurs informations aux autres modèles : la section efficace de réaction qui décrit tout ce qui n'est pas de l'élastique direct, et les coefficients de transmission qui décrivent la facilité qu'a le noyau composé à se désexciter en une voie donnée. En plus, le potentiel optique permet de calculer les composantes directes des sections efficaces élastiques, inélastiques ainsi que certaines réactions de transfert ou d'échange de charge directes. Le modèle de pré-équilibre, permet l'émission de particules d'énergie proche de celle du projectile, évacuant ainsi rapidement l'énergie déposée dans le noyau composé, et laisse au modèle suivant un noyau composé moins excité. Finalement, le modèle statistique termine la désexcitation du noyau composé dans toutes les voies possibles. C'est la somme des composantes issues de ces trois modèles qui doit être comparée avec les données expérimentales.

b. Modèle optique et réactions directes

Le modèle optique est un modèle très important dans le processus d'évaluation car c'est lui qui détermine la section efficace de réaction, que les modèles suivants (modèles de pré-équilibre et statistique) vont répartir en différentes voies.

Le modèle optique permet de calculer les sections efficaces de réaction, élastique directe (aussi « shape elastic ») et la section efficace totale somme des sections

efficaces de réaction et shape elastic. On a donc $\sigma_T = \sigma_R + \sigma_{SE}$. De plus, le potentiel optique prédit la distribution angulaire (section efficace simplement différentielle en angle) de la diffusion élastique.



Sections efficaces totale, élastique et de réaction (gauche), et différentielle élastique (droite) calculée à l'aide d'un potentiel réel ou complexe.

Le modèle optique décrit l'interaction directe du projectile avec le noyau cible vu dans son ensemble par l'intermédiaire d'un potentiel à un corps qui est introduit dans la partie énergie potentielle de l'équation de Schrödinger (ou de Dirac).

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2\mu}\nabla^2 + U - E\right)\Psi = 0$$

Cette équation stationnaire qui a pour solution la fonction d'onde Ψ décrit la diffusion du système projectile-cible de façon quantique. Le flux du courant de probabilité à travers un élément de surface à l'infini associé à la fonction d'onde Ψ est proportionnel à la section efficace différentielle élastique (figure ci-dessus à droite), et l'interférence des différentes ondes partielles (associées au moment angulaire ℓ) explique les structures (figures de diffraction) que l'on peut observer sur cette section efficace. Cette description est analogue à la diffusion d'une onde lumineuse par un objet dont la taille est de l'ordre de la longueur d'onde de cette onde, d'où par analogie, le nom de modèle optique. Cette analogie ne s'arrête pas là, puisque comme en optique ondulatoire, le potentiel optique U=V+iW peut être complexe et sa partie imaginaire W correspond alors à un terme source (émission de flux si W>0 et absorption de flux si W<0). Or, on s'est aperçu expérimentalement que, dans le cas de la diffusion d'un nucléon sur un noyau, une partie du flux de nucléons incidents était perdu pour la voie élastique et que pour bien reproduire les données expérimentales de diffusion élastique il faut introduire une partie imaginaire négative dans le potentiel optique. On peut apprécier sur la figure ci-dessus l'effet de la partie imaginaire du potentiel optique sur la section efficace différentielle élastique.

La question suivante à laquelle il faut répondre est « comment construit-on ce potentiel optique ? ». Historiquement, la potentiel optique a tout d'abord été construit en postulant des formes fonctionnelles du potentiel et en ajustant les paramètres de ces fonctions jusqu'à obtenir un bon accord avec les données expérimentales. Cette approche dite phénoménologique est toujours utilisée, et a pour avantage de permettre une restitution très fine des données expérimentales (section efficace totale décrite avec une précision inférieure au pourcent). En revanche cette approche est très dépendante de la disponibilité de données expérimentales sur lesquelles ajuster les paramètres. En toute généralité, les quatre composantes de la partie nucléaire du potentiel optique (centrale réelle, centrale imaginaire, spin-orbite réelle et spin-orbite imaginaire) sont chacune décrites par une superposition linéaire d'un terme de volume (dépendance radiale en fonction de Woods-Saxon analogue à la distribution de matière du noyau cible :

$$f(r,a,R) = -1. /(1 + exp((r-R)/a)))$$

et d'un terme de surface (dépendance radiale en dérivée de Woods-Saxon

$$g(r,a,R) = -d/dr f(r,a,R)$$

Pour chacune des composantes les paramètres de rayon R et de diffusité a du potentiel doivent être ajustées en fonction du noyau cible. De plus, les profondeurs $V_{\nu}(E)$ (volume) et $V_s(E)$ (surface) dépendantes de l'énergie de chaque doivent aussi être ajustées pour chaque noyau.



Dépendance radiale du potentiel optique phénoménologique.



Dépendance énergétique des profondeurs de puits du potentiel optique central.

On peut remarquer sur la figure ci-dessus qu'à basse énergie le potentiel imaginaire (d'absorption) est dominé par le terme de surface, alors qu'à plus haute énergie c'est le terme de volume qui domine. Cela peut s'expliquer par le fait qu'à basse énergie le projectile ne pénètre pas profondément dans le noyau cible et donc que l'absorption ne peut se produire que là où la probabilité de présence du projectile est non négligeable : à la surface de la cible. Au fur et à mesure que l'énergie du projectile augmente, il pénètre plus profondément dans la cible et la composante d'absorption de volume augmente.

Ainsi, pour reproduire la diffusion d'un nucléon sur un noyau donné il faut ajuster jusqu'à une vingtaine de paramètres, ce qui constitue un travail important.

Signalons cependant que des études systématiques de la dépendance de ces paramètres ont été réalisées en fonction de la charge Z, de la masse A et de l'énergie du projectile E [KD], ce qui permet de produire des prédictions de bonne qualité en l'absence de données pour peu que le noyau étudié ne soit pas trop loin d'un noyau mesuré. Il faut aussi signaler qu'il est possible de réduire de façon significative le nombre de paramètres à optimiser en utilisant les relations de dispersion [MR] qui relient la partie réelle du potentiel à sa partie imaginaire.

Outre l'approche phénoménologique du potentiel optique il existe des approches permettant de calculer le potentiel optique sans connaissance préalable des données expérimentales correspondantes : c'est le potentiel optique microscopique. Cette approche a pour avantage de pouvoir prédire des observables même pour des noyaux éloignées de la validité qui n'ont jamais été mesurés tout en bénéficiant des bases théoriques qui sous-tendent le calcul. En revanche, cette approche est généralement moins précise (5-10 % sur la section efficace totale à comparer à 1% pour l'approche phénoménologique). La figure ci-dessous illustre cette différence de qualité.



Comparaison de la qualité de description de la section efficace totale du système $n+^{208}$ Pb parle potentiel optique phénoménologique dispersif (DOMA bleu), et semi-microscopique (JLM rouge). Les données expérimentales sont les symboles roses.

Le potentiel optique microscopique est construit en convoluant une information décrivant la structure nucléaire du noyau cible (densité radiale ou matrice densité) avec une interaction effective indépendante du noyau cible comme illustré cidessous.



Construction d'un modèle optique (semi-)microscopique

Il existe de nombreuses façons de construire un potentiel optique microscopique [JLM,MEL] mais elles reposent toutes sur une description précise de la structure nucléaire de la cible, généralement issue de calculs de modèle en couche, de champ moyen (Hartree-Fock, Hartree-Fock-Bogoliubov [HFB-D1S]) ou au-delà du champ moyen (méthode de la coordonnée génératrice, Random Phase Approximation). Cette description précise de la structure nucléaire assure que les particularités de chaque noyau cible sont prises en compte par le modèle, et permettent d'espérer que les calculs de différeront pas de façon catastrophique des mesures si on les utilise pour extrapoler loin de la vallée de stabilité. Cette prédictivité en l'absence de données expérimentales est illustrée ci-dessous.



Exemple de prédictions d'un modèle optique loin de la vallée de stabilité de la drip-line proton vers la drip-line neutron. Les calculs (courbes) sur le ^{30}S , ^{38}S et ^{40}S ont été réalisés avant la disponibilité des mesures (symboles).

Le choix entre les approches phénoménologique et microscopique du potentiel optique dans le cadre de la modélisation des données nucléaires dépend essentiellement de la disponibilité de données expérimentales de bonne qualité au voisinage des noyaux d'intérêt, si tel est le cas on utilisera plutôt l'approche phénoménologique. Dans le cas contraire, on préférera le potentiel optique microscopique (ou bien on réalisera de nouvelles mesures).

Jusqu'à maintenant nous n'avons considéré que des noyaux sphériques, dont les états excités se trouvent à relativement haute énergie, et qui sont donc difficilement excités. Cependant, une grande quantité de noyaux de la nature sont déformés dans leur état fondamental (énergie du ¹⁸⁴W en fonction de la déformation ci-dessous) et ceux-ci se mettent facilement en rotation, s'excitant alors vers des états collectifs de basse énergie de la bande de rotation construite sur l'état fondamental. Ces états collectifs sont alors fortement couplés au fondamental de sorte que celui-ci ne peut plus être traité seul. On doit donc modéliser la diffusion par un système d'équation de Schrödinger couplées où les termes de couplages sont dépendants de la déformation. La déformation a une forte influence sur l'élément de matrice de couplage entre le fondamental et l'état excité et donc sur la section efficace inélastique qui excite cet état. De plus, comme on peut le voir ci-dessous dans le cas d'un couplage fort, la section efficace élastique est aussi sensible à la déformation de la cible.



Energie du ¹⁸⁴W en fonction de la déformation β^2 présentant un minimum à $\beta^2 \approx 0.25$ (à gauche). Etats de la bande de rotation du fondamental du ¹⁸⁴W (au milieu). Effet de la déformation sur les sections efficaces élastiques et inélastiques du système n+¹⁸⁴W à 14 MeV(à droite).

Il faut signaler que le fondamental peut se coupler aussi à d'autres bandes telles que les bandes de vibration quadrupolaire ou octupolaire, et qu'il est quelquefois nécessaire de prendre en compte ces couplages pour reproduire certaines données expérimentales de façon satisfaisante.

c. Modèles de pré-équilibre

A l'issue du processus de réaction directe, on connaît les sections efficaces totale, élastique directe, quelques inélastiques directes ainsi que la section efficace « de réaction ». Cette section efficace « de réaction » correspond à tous les processus qui n'ont pas été déjà pris en compte et décrit la probabilité qu'a le projectile d'être « capturé » dans le continuum du noyau cible. Le système composite formé alors n'a pas encore perdu la mémoire de la voie d'entrée et va chercher à se désexciter, soit en partageant son énergie avec un nucléon de la cible, créant ainsi une excitation particule-trou, soit en émettant ce projectile. On peut alors décrire le noyau comme un série d'excitation 1 particule 0 trou (état initial : un nucléon capturé dans le continuum, projectile froid, état noté 1p0h), 2p1h (le projectile a cédé de l'énergie pour exciter 1 paire particule trou dans la cible), 3p2h, 4p3h etc... A chaque étape de ce processus de « mélange » de l'énergie entre le projectile et la cible il y a une probabilité de réémettre le projectile avec une énergie dégradée. A la limite d'un nombre d'étapes infini, on aboutit à un état où l'énergie est complètement mélangée entre tous les degrés de liberté du système, qui correspond au noyau composé thermalisé qui a alors perdu la mémoire de sa voie de formation. La figure ci-dessous illustre le processus de thermalisation qui aboutit à la formation du noyau composé.



Compétition entre l'émission de pré-équilibre et la thermalisation du noyau composé.

Comme nous l'avons déjà fait remarquer, les particules émises lors du processus de pré-équilibre ont des énergies (et des moments angulaires) de l'ordre de ceux du projectile, ce qui implique qu'après une émission de pré-équilibre l'énergie d'excitation du noyau résiduel est relativement faible (ainsi que son spin).

Il existe de nombreuses modélisations des processus de pré-équilibre, mais elles ont toutes en commun le fait de décrire la compétition entre l'émission de pré-équilibre qui évacue rapidement l'énergie et la thermalisation qui passe cette énergie au processus suivant : la désexcitation du noyau composé. Le noyau composé « légué » au modèle statistique se trouve alors dans une superposition d'états associés à l'émission de pré-équilibre après 1,2,3,... excitations particules-trous, chacun avec une probabilité proportionnelle à la section efficace d'émission de pré-équilibre à la 1ere, 2eme, 3eme,.. étape.

L'effet du processus d'équilibre sur les sections efficaces est illustré dans la figure ci-dessous. Sans pré-équilibre l'émission multiple de nucléons démarre plus rapidement parce que toute l'énergie est disponible pour l'émission statistique. Au contraire, lorsque le pré-équilibre est pris en compte, une partie de l'énergie du projectile a déjà été émise, et n'est donc plus disponible sous forme d'énergie d'excitation du noyau composé, ce qui provoque l'apparition d'une « queue » pour la section efficace inélastique qui s'étend alors jusqu'à des énergies importantes.

Comme la section efficace de réaction est inchangée, le fait d'augmenter la section efficace à haute énergie se fait au dépend des autres, notamment de la section efficace (n,2n) qui s'abaisse. Le même effet peut être observé entre les sections efficaces (n,2n) et (n,3n). En effet le processus de pré-équilibre augmente la section efficace (n,2n) à haute énergie au dépens de la section efficace (n,3n) dont la montée est, du coup, plus lente avec l'énergie.



Illustration de l'effet du pré-équilibre sur les sections efficaces d'émission de neutrons.

d. Modèle statistique Hauser-Feshbach

Comme nous l'avons vu plus haut, les modèles d'interaction directe (modèle optique) et de pré-équilibre, outre le fait qu'ils participent à l'émission de particules, sont aussi importants car ils définissent les conditions initiales du modèle statistique (N, Z, E*, J^{π}).

En partant de ces conditions initiales, le modèle statistique Hauser-Feshbach fait décroître le noyau composé ainsi défini en mettant en compétition toutes les voies de décroissance possibles (émission de γ , neutron, proton, deuton, triton, ³He, α et fission). Cette façon de faire utilise l'hypothèse de Bohr dans laquelle on peut découpler les processus de formation du noyau composé et sa désexcitation, comme dans la formule suivante (inspirée de la formule de Breit et Wigner moyennée en énergie).

$$\sigma_{ab} = \sum_{J,\pi} \sigma_a^{NC}(E^*, J, \pi) \frac{\left\langle \Gamma_b(E^*, J, \pi) \right\rangle}{\sum_c \left\langle \Gamma_c(E^*, J, \pi) \right\rangle}$$

Dans cette équation, la section efficace σ_{ab} de décroissance dans la voie b (type, énergie, moment angulaire emportés) du noyau composé formé dans la voie a, est décrite comme le produit de la section efficace de formation du noyau composé σ_a^{NC} dans l'état (E*,J, π), par la probabilité de décroissance de ce noyau composé vers la voie b. Cette probabilité est exprimée comme le rapport de la largeur de décroissance dans la voie b sur la somme des largeurs de décroissance dans toutes les voies possibles. On voit ici que la décroissance du noyau composé est bien un processus statistique puisque ce processus est piloté par le rapport entre la mesure

de l'espace des phases associée à la voie de décroissance considérée et la mesure de l'espace des phases total disponible. Cette formulation est valable seulement aux énergies du projectile associées au domaine du continu, c'est à dire dans un domaine où les niveaux des noyaux résiduels possibles sont décrits par des densités de niveaux et ou l'espacement de ces niveaux est plus serré que leurs largeurs naturelles.

La difficulté pour calculer une section efficace de décroissance statistique du noyau composé consiste donc à évaluer, pour toutes les voies, les largeurs de décroissance Γ . L'approximation Hauser-Feshbach simplifie ce calcul en considérant que le rapport des largeurs de décroissance est égal au rapport des pénétrabilités moyennes :

$$\frac{\Gamma_b(E^*,J,\pi)}{\sum_c \Gamma_c(E^*,J,\pi)} = \frac{\left\langle T_b^{J\pi}(E_b) \right\rangle}{\sum_c \left\langle T_c^{J\pi}(E_c) \right\rangle}$$

Les énergies E_x des particules émises dans la voie x et leurs moments angulaires sont bien sûr choisis de manière à assurer les conservations de l'énergie totale et du spin total.

La formulation ci-dessus, qui s'appuie sur l'hypothèse de Bohr, est justifiée à haute énergie où les voies d'entrée et de sortie sont complètement découplées. A plus basse énergie, cette indépendance n'est pas totalement vérifiée et on doit introduire une correction : le facteur de fluctuation de largeur de voies W_{ab} . Ce facteur qui favorise la voie élastique au dépend de toutes les autres vient du fait que en toute rigueur la section efficace σ_{ab} est proportionnelle à $\langle \Gamma_a \ \Gamma_b / \Gamma \rangle$ et non pas à $\langle \Gamma_a \rangle \langle \Gamma \rangle$. Le facteur de correction est donc

$$W_{ab} = \frac{\left\langle \frac{\Gamma_a \Gamma_b}{\Gamma} \right\rangle}{\left\langle \Gamma_a \right\rangle \left\langle \Gamma_b \right\rangle}$$

Ce facteur de fluctuation de largeur de voies peut être calculé avec plusieurs approximations [HIL].

Le calcul des $\langle T_x(E) \rangle$ est différent selon que l'état final du noyau résiduel associé à la voie x correspond à un état discret ou à un état du continu.

Si le noyau résiduel se trouve dans un état discret on a alors $\langle T_x(E) \rangle = T_x(E)$ le coefficient de transmission associé à la voie x. Ce coefficient de transmission est calculé par modèle optique pour l'émission de particules (n, p, d, t, ³He, α), par le modèle de Kopecky-Uhl pour les γ , ou par un modèle de pénétration de barrière (simple, double ou triple) parabolique pour la fission.

Si le noyau résiduel se trouve dans un état du continu d'énergie d'excitation E* (de densité de niveau associée $\rho(E^*)$) après décroissance dans la voie x, l'expression de $\langle T_x(E) \rangle$ (discrétisée sur un intervalle d'énergie d'excitation de largeur $2\Delta E$) devient alors :

$$\langle T_x(E) \rangle = \int_{E^*-\Delta E}^{E^*+\Delta E} T_x(E) \rho(E') dE'.$$

On voit alors apparaître la densité de niveau ρ de l'état final. Si l'on se reporte à l'expression de σ_{ab} , on comprend alors encore mieux l'aspect statistique du modèle Hauser-Feshbach, car on peut voir que le poids d'une voie y est directement proportionnel à la densité de niveaux de l'état final associé.

Jusque là nous n'avons discuté que d'une décroissance unique, mais s'il reste suffisamment d'énergie d'excitation dans le noyau résiduel après décroissance, il suffit de le faire décroître par la même méthode jusqu'à ce que toutes les voies de décroissance possibles soient fermées. La figure ci-dessous illustre la chaine des désexcitations statistiques que suit le noyau composé pour se désexciter et peupler les différentes voies de réaction. Sur ce schéma sont figurés les différents états du noyau composé accessibles au système induit par la réaction neutron+ [Zc,Nc-1] (flèche rouge) qui forme le noyau composé initial [Zc,Nc] dans un état d'excitation et de spin donné. Pour chaque noyau, on peut voir l'état fondamental (traits horizontaux gras), quelques niveaux excités discrets (traits horizontaux fins), et le continu discrétisé (pavés bleus découpées par les pointillés roses). Sont signalées les valeurs de Sn, Sp et S α , respectivement les énergies de aussi séparation neutron, proton et alpha. L'état initial du noyau composé formé, peut alors se désexciter dans toutes les voies ouvertes (γ , n, p, d, t, ³He, α , fission) en fonction la fraction d'espace de phase associée à cet état final. Cette désexcitation qui va dépeupler l'état initial pour peupler, d'autres états (discrets ou de continu discrétisé) jusqu'à ce que toute la population de l'état initial se retrouve dans des états qui ne peuvent plus décroitre. La section efficace de formation du noyau composé est alors répartie au prorata des populations finales.



Illustration de la compétition entre les différentes voies de désexcitation du noyau composé dans un processus de décroissance statistique avec émission multiple.

e. Densités de niveaux.

Comme nous venons de le voir, la description du continu des états du noyau composé intervient de façon importante dans la compétion entre les différentes voies de décroissance du noyau composé. Il est donc important de bien décrire la densité de niveaux qui quantifie, en fonction de l'énergie d'excitation du noyau composé, les états nucléaires accessibles au système. En effet, comme cette densité de niveaux croit de façon exponentielle avec l'énergie d'excitation il est illusoire de vouloir décrire niveau par niveau les densités de niveaux à l'énergie de séparation d'un neutron Sn, qui à cette énergie sont de l'ordre du million de niveaux par MeV. On décrit donc cette densité de niveaux de façon statistique dès que l'on rentre dans le domaine du continu (au-delà du dernier niveau discret).

Les niveaux sont donc décrits de façons différentes en fonction de l'énergie :

- par les niveaux discrets expérimentaux à basse énergie
- par une densité de niveau tirée du modèle du gaz de Fermi à haute énergie.
- Par une loi de température en $\rho(E) = \exp((E E_0)/T)$ qui connecte les niveaux discrets avec la description en gaz de Fermi entre ces deux domaines. Cette dernière formulation est complètement *ad hoc* dans le sens où elle est juste là pour assurer la connexion entre les niveaux discrets expérimentaux dont la mesure est complète est de plus en plus difficile quand l'énergie d'excitation augmente et le modèle du gaz de Fermi dont les hypothèses ne sont pas valables à basse énergie.



Illustration de la croissance exponentielle du nombre de niveaux cumulés avec l'énergie d'excitation (à droite) et du nombre élevé de niveaux à l'énergie de séparation du neutron Sn (à droite).



Différentes descriptions de la densité de niveaux en fonction de l'énergie d'excitation E.

La densité de niveaux du gaz de Fermi en fonction de l'énergie d'excitation U, du spin J et de la parité π du noyau composé est de la forme :

$$\rho(U, J, \pi) = \frac{1}{2} \frac{\sqrt{\pi}}{12} \frac{\exp(\sqrt{2a\widetilde{U}})}{a^{\frac{1}{4}}\widetilde{U}^{\frac{5}{4}}} \frac{2J+1}{2\sqrt{2\pi\sigma^3}} \exp\left[\frac{(J+\frac{1}{2})^2}{2\sigma^2}\right],$$

avec *a* le paramètre dit « de densité de niveau » et le paramètre de spin cut off σ ,

$$\sigma^2 = I \sqrt{\frac{U}{A}} \,,$$

où I est le moment d'inertie du noyau et

$$\widetilde{U} = U - \Delta$$

est l'énergie d'excitation corrigée de l'énergie d'appariement.

Si l'on utilise cette formule telle quelle, on constate que pour reproduire les valeurs expérimentales de D_0 (l'espacement moyen des niveaux à l'énergie de liaison des neutrons B_n) il faut faire varier la valeur du paramètre de densité de niveaux a en fonction du noyau avec des variations fortement corrélées avec celles du terme de correction de couche δW (terme qui décrit la différence entre les masses réelles des noyaux et celles calculées par un formule de masse de type goutte liquide). On introduit alors ces variations de a dans la formule :

$$a(N,Z,\hat{U}) = \widetilde{a}(A) \left[1 + \delta W(N,Z) \frac{1 - \exp(-\gamma \hat{U})}{\widetilde{U}} \right]$$

qui corrèle la valeur de a à la correction de couche δW en prenant en compte l'amortissement des effets de couche avec l'énergie d'excitation avec la constante γ . Dans cette formule \tilde{a} est la valeur asymptotique du paramètre de densité de niveau a. Les paramètres \tilde{a} et σ sont ajustées de manière à pouvoir reproduire les valeurs expérimentales de l'espacement moyen des niveaux à B_n .



Variations corrélées du paramètre de densité de niveaux a (panneau du haut) et du terme de correction de couche (en bas) en fonction du nombre de masse A.

Outre cette description phénoménologique des densités de niveaux, il existe une possibilité de calculer celles-ci à partir des états à une particule issus de calculs de modèles de champ moyen [COMB]. Il faut alors calculer de façon combinatoire le nombre d'états excités que l'on peut construire pour chaque énergie d'excitation à partir d'excitation 1p1h, 2p2h,.... de l'état fondamental du noyau, et aussi prendre

en compte les accroissements de la densité de niveaux dus aux états collectifs (bandes de rotation et de vibration construites sur les états particule-trou) et leurs amortissements en fonction de l'énergie.

f. Fission

Lorsque le noyau composé est fissile, la fission entre en compétition avec les autres voies de désexcitation statistique. On introduit alors dans l'équation de Hauser-Feshbach (paragraphe **3.d**) un coefficient de transmission de fission $T_f(E)$. La difficulté réside dans le calcul de ce coefficient de transmission.

La fission est modélisée par la transition continue du noyau entre une forme compacte et une forme tellement allongée (grande élongation) que le noyau se casse en deux. Lors de cette transition le noyau passe par des états plus ou moins énergétiquement favorisés. Ce paysage définit une surface d'énergie potentielle avec des vallées (puits), des crêtes, des sommets et des cols (barrières) de potentiel qu'il faut traverser pour aller vers la scission du noyau. La figure ci-dessous donne un exemple de surface d'énergie potentielle calculée à deux dimensions. En général, pour les applications d'évaluations de données cette surface est ramenée à une dimension de manière effective.



Exemple de surface d'énergie potentielle bidimensionnelle pour la fission du ²³⁸U.

Avant d'aller plus loin revenons aux définitions des noyaux fissiles et fertiles en neutrons thermiques. Si l'on envoie un neutron thermique (une fraction d'eV) sur un noyau cible, l'énergie d'excitation disponible dans le noyau composé est de l'ordre de B_n (l'énergie de liaison moyenne d'un neutron dans le noyau composé). On a alors deux cas de figure :

- Soit B_n est supérieur au maximum de la barrière, la fission n'est alors que peu affectée par la barrière, la probabilité de fission est alors de l'ordre de 1 : le noyau est fissile aux neutrons thermiques.
- Soit B_n est inférieur à la barrière, la voie de fission est fortement supprimée, le coefficient de transmission $T_f(E)$ est très inférieur à 1 (mais non nul) : le noyau n'est pas fissile aux neutrons thermiques. Il faut alors donner plus d'énergie au noyau composé pour lui permettre de franchir la barrière. On parle alors de fission « à seuil » car la section efficace de fission est très faible jusqu'à ce que

l'énergie du neutron soit suffisante pour que dépasser la barrière. Cependant, le résidu de la capture du neutron conduit souvent à un noyau qui lui est fissile. On parle alors de noyau fertile.

Comme nous l'avons dit plus haut, pour les applications d'évaluation de données nucléaires, la surface d'énergie potentielle est ramenée à une dimension. De plus, le coefficient de pénétration de barrière est calculé en supposant une forme de barrière parabolique de hauteur V et de courbure $\hbar\omega$. Le coefficient de transmission est alors donné pour une barrière par la formule de Hill-Wheeler :

$$T_{hw}(E) = \frac{1}{1 + \exp\left(-2\pi \frac{E - V}{\hbar \omega}\right)}$$

A cause de l'hypothèse de Bohr qui suppose que tous les états de même structure passent à travers la même barrière dont la hauteur est donné par la position énergétique des états construits au sommet de la barrière, la formulation complète du coefficient de transmission de fission à une barrière est de la forme :

$$T_f(E,J,\pi) = \sum_{i=J,\pi} T_{hw}(E-\varepsilon_i) + \int_{E_c}^{E+B_n} \rho(\varepsilon,J,\pi) T_{hw}(E-\varepsilon) d\varepsilon,$$

avec ε la position de chaque état de transition au sommet de la barrière, qu'ils soient discrets, ou comme pour les états du noyau composé à déformation normale dans le continu (qui commence à l'énergie E_c , et qui est caractérisé par une densité de niveau $\rho(\varepsilon, J, \pi)$). En fait on peut imaginer qu'à chaque état du puits du fondamental, on peut associer une surface d'énergie potentielle translatée de ε ., et c'est cette barrière qui doit être traversée.



Modélisation de la fission à une dimension pour une barrière.

Dans beaucoup de cas la surface d'énergie potentielle du noyau fissionnant ne présente pas un mais deux (voire trois) maxima. On parle alors de barrière à deux (ou trois) bosses. La transmission à travers cette double barrière peut être calculée en fonction des coefficients de transmissions des deux barrières élémentaires (A et B) :

$$T_2 = \frac{T_A T_B}{T_A + T_B}$$

expression qui peut aisément être généralisée à trois barrières.

Pour les barrières à plusieurs bosses, il y a une complication supplémentaire : entre les deux barrières il y a une vallée (un puits) de potentiel dans laquelle peuvent être construits des états dits de classe II (ou III pour le troisième puits) ou états superdéformés (ou hyperdéformés pour le troisième puits). La présence de ces états va, par un phénomène de résonance, augmenter la transmission à travers les barrières lorsque l'énergie du système fissionnant est proche de celle de ces états de classe II.



Illustration de la transmission résonante due aux états du second puits de fission.

Cette transmission résonante est la cause des structures observées à basse énergie dans la fission des noyaux fertiles (fission « à seuil ») comme dans la figure cidessous.



Structures de la section efficace de fission de basse énergie dues à la transmission résonante des états de classe II et III.

Si l'on revient un instant en arrière, nous pouvons constater que pour bien modéliser la fission, il faut jouer avec un nombre de paramètres impressionnant : la hauteur V et la courbure $\hbar\omega$ de chaque barrière, l'énergie E, le spin J et la parité π de chaque état de transition discret ou la densité de niveaux de ces états $\rho(\varepsilon, J, \pi)$, et ce au sommet de chaque barrière, auxquels s'ajoutent l'énergie E, le spin J et la parité π de chaque état de classe II (ou III). L'ajustement d'un si grand nombre de paramètres n'est pas chose aisée, surtout lorsqu'on ne considère qu'une observable : la section efficace de fission induite par neutron sur une cible en fonction de l'énergie.

De plus, le problème est encore plus compliqué qu'il n'y parait. En effet, au fur et à mesure que l'énergie du projectile augmente, d'autres voies s'ouvrent. Ainsi, alors qu'à basse énergie le noyau avait le choix entre émettre un neutron (voie (n,n')) ou fissionner (voie (n,f)), quand l'énergie du noyau composé augmente le novau composé peut aussi émettre un neutron et ensuite fissionner (voie (n,nf)), c'est ce que l'on appelle la fission de deuxième chance. Il faut aussi remarquer que, comme dans l'exemple du système $n+^{238}U$ de la figure ci-dessous, pour la fission de première chance c'est le ²³⁹U qui fissionne et dont il faut déterminer les paramètres de barrière, alors que pour la seconde chance c'est le ²³⁸U qui fissionne dont il faut aussi déterminer les paramètres de barrière. Bien sur, lorsque l'énergie augmente encore on peut émettre un deuxième (n,2nf), un troisième (n,3nf), ... neutron, puis un proton (n,pf), un α (n, α f) etc..., et ainsi devoir déterminer les paramètres de barrières d'un nombre grandissant de noyaux fissionnants. C'est cette ouverture successive de voies (ou « chances ») de réactions qui est responsable de la structure « en paliers » de la section efficace de fission en fonction de l'énergie du projectile, comme dans l'exemple ci-dessous.



Illustration des différentes « chances » de fission du système $n+^{238}U$ en fonction de l'énergie incidente.

L'ajustement simultané d'un si grand nombre de paramètres peut paraître impossible, heureusement, comme nous travaillons dans le contexte du modèle statistique (paragraphe **3.d**), qui s'appuie sur l'hypothèse de Bohr qui permet de découpler voies d'entrée et de sortie, nous n'avons pas qu'un jeu de section

efficaces pour nous aider à contraindre les paramètres des nombreuses barrières mises en jeu, mais nous pouvons utiliser toutes les données mesurées où le noyau composé fissionnant est le même. Par exemple, pour la deuxième chance du système $n+^{238}$ U, c'est le noyau composé 238 U^{*} qui fissionne, qui d'après l'hypothèse de Bohr du modèle statistique est le même 238 U^{*} que celui formé par les voies $\gamma+^{238}$ U, et par la première chance de la voie $n+^{237}$ U. On peut donc aussi utiliser leurs sections efficaces expérimentales pour contraindre les paramètres de barrières associées au noyau composé 238 U^{*}. Pour la troisième chance du système $n+^{238}$ U, le noyau composé est 237 U^{*}, qui correspond aussi à la première chance de $n+^{236}$ U. Pour la quatrième chance de $n+^{238}$ U, le noyau composé est 237 U^{*}, qui correspond aussi à la première chance de $n+^{236}$ U, a la première chance de $n+^{236}$ U, et c...

Ainsi, en utilisant l'hypothèse de Bohr, on peut s'assurer de la cohérence des paramètres de barrières de fission de toutes les barrières mises en jeu dans une évaluation, pour peu que les sections efficaces des différentes chances des noyaux voisins aient été mesurées. De plus, comme pour calculer la section efficace de fission à haute énergie de $n+^{238}$ U, il a fallu déterminer les paramètres de barrières des noyaux composés 239 U^{*}, 237 U^{*}, 235 U^{*},... et pour cela utiliser comme contraintes les sections efficaces expérimentales des systèmes $n+^{238}$ U, $\gamma+^{238}$ U, $n+^{237}$ U, $n+^{236}$ U, $n+^{235}$ U,..., on a effectivement réalisé simultanément l'évaluation de tous ces systèmes ! Ceci bien sûr, à condition de s'être assuré que les autres voies ((n, γ), (n,n'), (n,2n), (n,3n), (n,p), (n, α),...) de tous ces systèmes sont elles aussi bien reproduites.

g. TALYS

L'enchainement, le couplage et le contrôle de tous les modèles décrits plus haut, ainsi que leurs paramètres est très difficile à gérer « à la main ». Aussi, il existe des codes de réaction nucléaires dans lesquels tous ces modèles sont implémentés et enchainés. Le code TALYS [TALYS], développé en collaboration entre NRG Petten (Pays Bas) et le CEA Bruyères-le-Châtel, est un code moderne et modulaire qui intègre l'ensemble des modèles utilisés dans l'évaluation des données nucléaires. Comme l'illustre le schéma ci-dessous, un des avantages de TALYS réside en sa capacité à fournir des résultats à partir des informations minimales que sont le projectile, l'énergie (ou les énergies) incidente(s) et la nature de la cible (boite INPUT). Cette possibilité vient bien sûr du fait que les autres informations requises sont stockées dans une base de données ou fournies par des systématiques (boite STRUCTURE). Ces informations sont pour la plupart issues du projet RIPL [RIPL]. Toutes les autres boites décrivent les différents modèles implémentés dans le code, et pour chacun de ces modèles de nombreux raffinements sont possibles. Par exemple, tous les noyaux sont, par défaut, considérés comme étant sphériques, mais il est possible de prendre en compte, si nécessaire, leur déformation. On peut aussi choisir divers modèles de densités de niveaux ou changer les paramètres pris par défaut grâce à un large éventail de mots clefs (plus de 250). Une fois les calculs effectués, on récupère en sortie de nombreuses informations. Bien sûr, on dispose des sections efficaces pour toutes les voies ouvertes, mais aussi des spectres associés. Comme on le voit, dans la boite Sortie, la fabrication d'un fichier évalué au format ENDF est possible mais n'est pas automatique. Il faut utiliser les informations (fichiers) fournis par TALYS pour construire un fichier évalué.



Schéma des modules du code TALYS

h. Multiplicités moyennes de neutrons

Une quantité très importante pour la neutronique et la criticité des applications est la multiplicité moyenne de neutrons de fission prompts $\overline{\nu}$. Pour déterminer cette quantité on utilise le modèle « de Los Alamos » couplé à des données expérimentales. Pour chaque chance de fission la multiplicité des neutrons émis par la décroissance des fragments de fission est calculée (pour la i^{eme} chance de fission) en effectuant le bilan de l'énergie disponible pour l'émission de neutrons :

$$\overline{\nu_i} = \frac{\langle E_i^* \rangle - \langle E_i^{\gamma} \rangle}{\langle S_{ni} \rangle - \langle \varepsilon_i \rangle}$$

avec, $\langle E^* \rangle$ l'énergie d'excitation moyenne des fragments de fission, $\langle E^{\gamma} \rangle$ l'énergie moyenne emportée par les γ de fission prompts, $\langle S_n \rangle$ l'énergie moyenne de séparation d'un neutron pour un fragment de fission, et $\langle \varepsilon \rangle$ l'énergie moyenne emportée par un neutron. Comme ces quantités ne sont pas bien connues expérimentalement, elles sont ajustées de façon à reproduire les $\overline{\nu}$ mesurés. Les multiplicités associées aux différentes chances de fissions sont alors combinées :

$$\overline{\nu} = \sum_{i=1}^{N} \frac{\sigma_{fi}}{\sigma_f} (i - 1 + \overline{\nu}_i)$$

avec σ_{fi} la section efficace de fission de i^{eme} chance.

Il faut aussi souligner le fait que les benchmarks de criticité permettent de contraindre les valeurs de $\overline{\nu}$ avec des précisions de l'ordre de 0.1%, et qu'au final, ce sont des données expérimentales de criticité qui pilotent l'ajustement des paramètres du modèle. Cette précision est illustrée par les échelles de la figure ci-



Multiplicités de neutrons prompts.

i. Incertitudes, matrices de variance-covariance.

Les données évaluées, si elles doivent être utilisées dans des calculs de simulation, doivent être associées à des incertitudes. Ces incertitudes sur les données nucléaires seront propagées dans un calcul de simulation pour produire des incertitudes sur le résultat final de ce calcul afin de définir quelles sont les marges de fonctionnement du système simulé. L'information d'incertitude sur les données nucléaires évaluées est contenue dans la matrice de variance-covariance entre deux variables aléatoires (indicées i et j):

$$\mathbf{v}_{ij} = \left\langle \left(x_i - \left\langle x_i \right\rangle \right) \left(x_j - \left\langle x_j \right\rangle \right) \right\rangle.$$

Celle-ci est définie à partir des distributions des deux variables aléatoires x_i et x_j .



Calcul de la matrice de variance-covariance des données évaluées par la méthode Backward-Forward Monte-Carlo.

Lorsque les données nucléaires évaluées sont issues de la modélisation, on utilise la méthode Backward-Forward forward Monte-Carlo. Cette Méthode contraint les paramètres des modèles par le χ^2 entre données expérimentales et calculs, modélise la distribution de ces paramètres par une fonctionnelle du χ^2 et propage cette distribution de paramètres de modèles par échantillonnage Monte-Carlo pour obtenir la distribution des observables qui est analysée en termes de matrice de variance-covariance.

j. Formatage, validation.

Une fois tous ces calculs réalisés, il reste encore à traduire toutes ces informations au format ENDF pour qu'elles soient utilisables par les codes d'application : c'est l'étape de formatage. Lorsque c'est fait, il faut encore vérifier que les codes d'applications sont en mesure de relire et d'utiliser ces fichiers sans dénaturer leur contenu. Cette étape appelée validation du format permet de vérifier que le contenu du fichier correspond bien aux « intentions de l'auteur ». On utilise pour cela les utilitaires ENDF (CHEKR, LISTEF, FIZCON, PSYCHE, RECONS), et le programmes NJOY, CALENDF et autres qui relisent les fichiers ENDF pour les traduire aux formats directement utilisées par les codes de simulation. Cette étape ne garantit pas la qualité des sections efficaces contenues dans les fichiers mais seulement leur formatage. Pour estimer la qualité du contenu des fichiers il faut les tester en vraie grandeur sur un calcul de simulation d'un système dont la modélisation et la mesure sont parfaitement contrôlées : un benchmark. C'est seulement lorsqu'un fichier est en mesure de restituer une large gamme de benchmarks qu'il peut être considéré comme validé. Il devient alors un candidat naturel pour l'inclusion dans une librairie internationale (c.f. paragraphe 1.d).

4. Quelques exemples réels.

Dans cette section, nous allons donner quelques exemples issus de la pratique de l'évaluation des données nucléaires.

a. Rôle des états couplés.

Pour illustrer l'influence des états qui sont couplés dans le calcul de potentiel optique, la figure ci-dessous montre la corrélation entre les structures du spectre des neutrons émis dans la réaction $n+^{238}U$ et les niveaux couplés. Sur cette figure, on peut clairement reconnaître la contribution des sections efficaces inélastiques directes au spectre des neutrons émis qui est donc très sensible à la modélisation de ces réactions dans le modèle optique.



Influence des niveaux couplés sur la structure du spectre de neutrons pour la réaction n+238U.

b. Influence des coefficients de transmission sur le modèle statistique

Traditionnellement lors de l'émission multiple de neutrons, on considère que le potentiel optique qui détermine les coefficients de transmission est le même pour l'émission du 1^{er}, 2^{eme}, 3^{eme}, … neutron. Avec le code TALYS nous avons pu tester cette hypothèse car celui-ci permet la prise en compte de différents potentiels optiques en fonction du noyau émetteur.



Influence de la déformation des noyaux émetteurs sur les sections efficaces d'émission multiple.

Nous nous sommes placés dans un cas où la structure du noyau émetteur varie beaucoup en fonction du nombre de neutrons : pour la réaction $n+^{15}$ ³Eu. En effet, la déformation des Europiums diminue fortement vers les isotopes légers de cet élément à cause de la proximité de la fermeture de couche N=82. En faisant le calcul avec et sans prendre en compte le changement de structure du noyau émetteur, nous pouvons évaluer l'effet de la structure sur l'émission multiple de neutrons. La figure ci-dessous montre que les calculs réalisés dans ces deux hypothèses ne diffèrent pas sensiblement avant l'ouverture de la voie (n,3n) pour laquelle le calcul qui prend en compte les changements de structure du noyau émetteur (plein), produit une section efficace inférieure au calcul qui néglige cet effet (pointillés). Cette différence est encore plus nette lors de l'ouverture de la voie (n,4n), ce qui laisse à penser que cet effet devrait être pris en compte dés que le nombre de neutrons émis est de l'ordre de 3.

c. Section efficace (n,2n) du ²³⁹Pu

Le premier exemple illustre l'interdépendance entre les données expérimentales (et leur disponibilité) utilisées pour contraindre les paramètres des modèles et les modèles eux-mêmes. Il faut tout d'abord se rendre compte du fait que la section efficace (n,2n) du ²³⁹Pu représente une petite fraction de la section efficace totale comme illustré ci-dessous. Comme les sections efficaces de toutes les voies ouvertes sont obtenues par un même calcul, obtenir une grande précision relative sur une petite section efficace telle que la (n,2n) tout en reproduisant bien les autres voies implique une connaissance extrêmement fine de toute la physique et des paramètres des modèles. De plus, la disponibilité de données expérimentales contraignantes conditionne la connaissance de ces sections efficaces.



Sections efficaces du système $n+^{239}$ Pu, avec en particulier la section efficace (n,2n) (à gauche). Zoom sur les versions successives de cette section efficace (n,2n) avec les données expérimentales associées.

Ainsi, au cours du temps, la section efficace (n,2n) du ²³⁹Pu a d'abord été évaluée (version 0) avec pour contrainte les données de Frehaut, puis les données de Lougheed à 14 MeV sont devenues accessibles, contraignant le comportement de cette section efficace à haute énergie (version 1), tout en restant dans une même

modélisation (mêmes modèles mais paramètres différents). Quand les données de GEANIE sont devenues disponibles, il a été impossible de les reproduire en changeant seulement les paramètres des modèles : il a fallu modéliser plus finement les réactions directes en couplant la bande de rotation du fondamental avec d'autres bandes collectives ce qui augmente la section efficace inélastique et par conséquent abaisse la section efficace de réaction « disponible » pour les autres voies. Cette dernière évaluation (version 2) a été, après validation, retenue pour le fichier évalué européen JEFF3.0.

d. Rôle des densités de niveaux

Dans ce paragraphe nous allons donner une illustration du rôle joué par les densités de niveaux dans la compétition entre plusieurs voies de réaction. Lors de l'évaluation du ²³⁹Pu, plusieurs descriptions de la densité de niveaux du ²³⁹Pu étaient proposées dans la littérature. En testant ces descriptions dans un calcul d'évaluation on obtient des résultats très différents. Ainsi, la densité de niveaux qui est représentée en pointillés dans la figure ci-dessous augmente plus rapidement en fonction de l'énergie que celle représentée en traits pleins. Cette forte croissance de la densité de niveaux du ²³⁹Pu favorise l'émission de neutrons aux dépens de la fission ce qui produit les courbes pointillées qui ne reproduisent pas le comportement des données expérimentales. En revanche, la densité de niveaux marqués en traits pleins, qui augmente moins vite, permet d'obtenir un accord très satisfaisant avec les données.



Illustration du rôle des densités de niveau dans la compétition entre voies de décroissance.

e. Problèmes des sections efficaces expérimentales ²³⁸Pu(n,f)

Quelquefois, dans l'évaluation, le problème ne vient pas des modèles mais des données expérimentales. Ainsi, la section efficace de la réaction ²³⁸Pu(n,f) semble être surévaluée expérimentalement.



Sections efficaces de mesurée (symboles) et calculée (rouge) de la réaction $^{238}Pu(n,f)$, comparées aux sections efficaces de formation de noyau composé par neutron sur le ^{238}Pu et d'autres actinides, ainsi qu'à la limite géométrique(pointillés) de la section efficace de réaction.

En effet, si l'on essaie de calculer cette section efficace, il paraît impossible de restituer la mesure à moins d'utiliser la totalité de la section efficace de formation du noyau composé (ce qui impliquerait que les sections efficace des toutes les autres voies ouvertes ((n,2n), (n,3n),...) soient nulles, ce qui est difficilement concevable. De plus, la section efficace de formation du noyau composé de ce noyau est du même ordre de grandeur que celles des actinides voisins, dont la section efficace de fission ne semble pas présenter d'anomalie. La section efficace de fission du ²³⁸Pu constitue donc un excellent candidat pour une nouvelle campagne de mesures.

f. Validations intégrales.

Dans ce paragraphe, nous allons illustrer l'apport des expériences intégrales (ou benchmarks) à la validation des données évaluées. cet exemple, nous montrons l'influence de l'évaluation d'un isotope sur la restitution des expériences ICSBEP LEU-COMP-THERM-006 (Low Enriched Uranium- COMPosite- THERMique), où la criticité d'une série d'assemblages d'uranium faiblement enrichi immergées dans l'eau est mesurée à 1.0 ± 0.002 . Lorsqu'on simule ces assemblages avec le programme de transport Monte-Carlo MCNP muni de la librairie ENDFB-VIr8, la criticité calculée est fortement sous-évaluée. En substituant le fichier évalué de JEFF 3.1 pour le 238U à celui de ENDFB-VIr8, on obtient un accord tout à fait satisfaisant (cohérent avec les barres d'erreur des mesures). Un désaccord d'une fraction de pourcent (<0.6%) peut paraître insignifiant, mais il faut se rappeler que les coefficients de criticité sont extrêmement bien mesurés, et que de telles différences ont des conséquences très importantes pour les applications.

On peut dire que ces calculs de simulation tendent à valider l'évaluation neutronique de 238U de JEFF 3.1 pour le régime de fonctionnement associé à ces expériences.



Influence de l'évaluation de $n+^{238}U$ sur la criticité des benchmarks LEU-COMP-THERM-006.

g. Retours d'expérience intégrale.

Une vérification pour un domaine de fonctionnement donnée (spectre thermique pour les LEU-COMP-TERM) ne suffit pas à qualifier une évaluation. Pour cela il faut que tous les domaines de fonctionnement soient également bien restitués. Quand ce n'est pas le cas, on peut utiliser les retours d'expériences intégrales comme une contrainte supplémentaire dans le processus d'évaluation. Ainsi, alors qu'avec l'évaluation de n+238U de JEFF3.1 les benchmarks à spectre thermique sont bien reproduits, les k_{eff} des benchmarks à spectre rapide sont fortement sous estimés. En réalisant des études de sensibilité, la section efficace de capture entre 100 keV et 1 MeV a été identifiée comme cause probable de ce désaccord. Or la dispersion des points expérimentaux dans cet intervalle d'énergie étant relativement importante, il existe une certaine incertitude expérimentale sur la valeur de cette section efficace. En revanche, les résultats des calculs de benchmarks peuvent contraindre cette section efficace plus précisément que les mesures différentielles. Ainsi, si l'on réalise ces calculs de benchmarks avec deux évaluations qui décrivent de façon comparable la capture du ²³⁸U entre 100 keV et 1 MeV (l'une passe plutôt par le haut des barres d'erreur, et l'autre plutôt par le bas), un de ces calculs sous-estime les mesures intégrales alors que l'autre calcul donne un accord assez satisfaisant (et ceci sans dégrader de façon significative les résultats en spectre thermique). On a ici une illustration de l'utilité des mesures intégrales et de leur complémentarité avec les mesures différentielles, puisque elles permettent, en fournissant des contraintes supplémentaires, de préciser certaines sections efficaces au delà de la précision des mesures différentielles seules (choix entre le haut et le bas des barres d'erreur).



Résultats de calculs de benchmarks à spectres thermiques et rapides mettant en jeu le ^{238}U réalisés avec deux versions de l'évaluation de la réaction $n+^{238}U$ (à gauche). Sections efficaces de capture pour deux évaluations différentes (à droite).

5. Perspectives d'avenir pour l'évaluation.

Dans les chapitres précédents ont été présentés des exemples correspondants à la pratique actuelle de l'évaluation. On peut dès aujourd'hui entrevoir quels seront certaines des avancées dans le domaine de l'évaluation de données.

a. Nouvelles/meilleures données expérimentales

Comme on a pu le constater tout au long de ce document, et bien que la modélisation prenne une part de plus en plus importante dans l'évaluation, les données expérimentales sont déterminantes pour contraindre les paramètres des modèles et valider leurs prédictions. Il est donc indispensable de poursuivre l'effort de mesures et ce dans deux directions :

- Des mesures précises et ciblées de réactions importantes pour les applications, afin de combler des manques ou de lever des interrogations à propos de noyaux directement utiles comme par exemple ceux de la « High Priority Request List » [HPRL] qui recense un ensemble de mesure souhaitées par la communauté des évaluateurs.
- Des mesures de réactions sur des noyaux éloignés de la vallée de stabilité. Ces mesures permettent de tester et d'améliorer les modèles dans des domaines où, par exemple, des effets d'isospin ou de couplage au continu peuvent commencer à devenir sensibles, et plus généralement, pousser les modèles dans leurs derniers retranchements.

Pour y parvenir, il existe (ou existera) de nombreuses installations auprès desquelles ces mesures pourront être réalisées : nTOF au CERN, GELINA à Geel, LANCSE à Los Alamos, neutron beam facility à Uppsala, et surtout SPIRAL-2 à GANIL après duquel les réactions mettant en jeu les produits de fission instables pourront être étudiées.

De nouvelles méthodes expérimentales comme l'utilisation de réaction de transfert pour peupler des noyaux composés correspondant à des réactions neutroniques sur les cibles instables [JUR] promettent de combler une partie des manques dans la région des actinides instables (Pa pour le cycle du Th, ou Am, Cm pour les actinides mineurs).

b. Potentiels optiques microscopiques

Comme nous l'avons vu, des potentiels semi-microscopiques sont d'ores et déjà utilisés dans le cadre de l'évaluation des données nucléaires. Cependant, il existe des approches plus fondamentales du potentiel optiques dans lesquelles moins d'approximations ont du être réalisées. Dans l'approche microscopique de [MEL], l'échange est explicitement pris en compte ainsi que toutes les informations de structure nucléaire disponible (y compris les corrélations issues de traitements audelà du champ moyen). Ces traitements, bien que donnant des résultats très encourageants, sont très coûteux en temps de calcul et inapplicables à basse énergie. D'autres approches [MCAS] permettent de traiter les basses énergies, y compris la structure résonante des sections efficaces, au prix d'une limitation à des cibles légères et, encore une fois, d'importants temps de calcul. Il reste donc du travail à accomplir dans ce domaine afin de disposer de potentiels optiques complètement microscopiques utilisables pour les applications.



Exemple de calculs de modèle optique complètement microscopique [MEL] sans paramètre ajusté.

c. Pré-équilibre microscopique

Les modèles de pré-équilibre sont ceux pour lesquels il reste le plus de travail à faire car les hypothèses sur lesquelles reposent un grand nombre d'entre eux sont assez brutales. Des travaux récents ont tenté de calculer l'émission de pré-équilibre de façon plus microscopique en calculant de manière détaillée (et non plus en moyenne) les éléments de matrice de transition entre les différents états excités du système et en calculant les interférences entre ces différents chemins de réaction. Ces études ont déjà permis d'évaluer la validité des hypothèses qui sous-tendent une grande partie des modèles de pré-équilibre et produisent des résultats encourageants. Ces modèles sont cependant loin d'être utilisables pour l'évaluation.

d. Densités de niveau microscopiques

Comme nous l'avons déjà signalé plus haut, on peut construire des densités de niveau à partir de la connaissance théorique de la structure en état à une particule des noyaux. En construisant de façon combinatoire [COMB] toutes les excitations à 1p1h, 2p2h etc... possibles on obtient des densités de niveaux qui se comparent

très favorablement aux données expérimentales comme l'illustre la figure cidessous. Cette approche sera incluse comme une option dans la version 1.0 du code TALYS [TALYS].



Densités de niveaux microscopiques combinatoires (traits pleins noirs) comparées aux niveaux cumulés expérimentaux (pointillés rouges).

e. Fonctions de force γ microscopiques

La modélisation des coefficients de transmission pour la désexcitation du noyau composé par l'émission de γ repose sur l'hypothèse que la résonnance dipolaire géante est de forme Lorentzienne. Or, si cette hypothèse est vérifiée dans la vallée de stabilité, elle ne l'est plus loin de la vallée de stabilité où des résonances dipolaires de basse énergie (résonances pygmées) apparaissent. En mettant en œuvre des méthodes de calcul de structure nucléaire au-delà du champ moyen (QRPA), il est possible de prédire de façon assez fidèle la structure de ces résonances et par là les coefficients de transmission γ [GOR].



Force de la résonance dipolaire dans l'approximation Lorenzienne et issue de calculs QRPA (gauche). Calculs de la réaction ¹⁸¹Ta(γ ,n) avec des coefficients de transmission γ issus de l'approximation Lorentzienne et des calculs QRPA.

La figure ci-dessus illustre l'effet que peut avoir l'approximation Lorenzienne sur les calculs de réactions induites par γ .

f. Fission microscopique

Bien que l'on soit encore loin de pouvoir prédire avec une précision suffisante les paramètres des barrières de fission à partir de calculs ab-initio, des progrès ont récemment été réalisés dans cette direction. Ainsi, à partir de surfaces d'énergie potentielles multidimensionnelles calculées par des approches de champ moyen (première figure du paragraphe **3.f**), et moyennant certaines approximations, il est possible d'évaluer la hauteur des barrières de fission [DEL].



Isotopic chains

Comparaison des hauteurs de première barrière de fission calculées par méthodes de champ moyen avec les données expérimentales.

La comparaison des résultats de calculs avec les données expérimentales semblent à priori encourageants car les tendances générales des données expérimentales sont prédites par les calculs. Cependant, la méthode de calcul de hauteur de barrière n'est pas clairement établie, et les différentes méthodes (courbes pleines et pointillées dans la figure ci-dessus) produisent des résultats sensiblement différents. De plus, les différences entre calculs et expériences (symboles dans la figure ci-dessus) sont souvent de l'ordre de plusieurs centaines de keV, ce qui produirait un écart inacceptable entre coefficients de transmission de fission calculés et « expérimentaux ». Bien sûr, la hauteur des barrières n'est pas le seul ingrédient, et il est difficile de comparer les barrières théoriques qui sont de forme quelconque avec les barrières « expérimentales » qui sont paraboliques. Il vaudrait donc mieux comparer les pénétrabilités associées à ces barrières.

Des progrès spectaculaires ont récemment été réalisés dans le calcul de la distribution des fragments de fission. Toujours à partir de surfaces d'énergie potentielle issues de calcul de champ moyen, on peut calculer un Hamiltonien collectif que l'on peut introduire dans l'équation de Schrödinger dépendante du temps qui décrit l'évolution du système fissionnant en fonction des coordonnées collectives. Il « suffit » alors, pour des conditions initiales données, de compter le flux de probabilité associé à la fonction d'onde solution de l'équation pour obtenir la distribution des fragments produits. Dans la figure ci-dessous, la comparaison des distributions de produits de fission mesurées et calculées pour la fission du

²³⁸U sont qualitativement en bon accord ce qui est remarquable pour un modèle sans paramètre (mais probablement pas suffisant pour les applications).



Fragment Mass

Comparaison des prédictions des calculs de fission dynamiques basés sur un Hamiltonien collectif tiré de calculs de champ moyen avec les mesures de rendement de fission pour la fission du 238U.

g. Conclusions

Bien que l'on soit aujourd'hui loin de pouvoir réaliser des évaluations de bonne qualité sans utiliser de données expérimentales pour « caler » les paramètres des modèles (qui comme nous l'avons vu sont nombreux), on ne peut que remarquer les progrès accomplis dans ce domaine les dernières années [PND]. Les modèles microscopiques sont dès aujourd'hui sont en mesure de servir de guide aux évaluateurs, et la qualité de leurs prédictions semble s'améliorer d'année en année.

Références :

[ENDF] ENDF-102 data format and procedures for the evaluated data file ENDF-6, rapport BNL-NCS-44945-01/04Rev, Brookhaven USA.

[ICSBEP] International handbook of evaluated criticality safety benchmark experiments, NEA/NSCDOC(95)03, NEA Paris 2005.

[**RIPL**] RIPL, RIPL-2 Reference Input Parameter Library, IAEA <u>http://www-nds.iaea.org/RIPL-2</u>

[KD] A.J. Koning, J.P. Delaroche, Nucl. Phys. A713, 231 (2003).

[**MR**] B. Morillon, P. Romain, Phys. Rev. C **70**, 014601 (2004).

[JLM] E.Bauge, J.P. Delaroche, M. Girod, Phys. Rev. C 63, 024607 (2001).

[MEL] M. Dupuis, S. Karatagildis, E. Bauge, J.P. Delaroche, D. Gogny, Phys. Rev. C 73, 014605 (2006).

[HFB-D1S] site web <u>http://www-phynu.cea.fr/HFB-Gogny.htm</u>

- [HIL] S. Hilaire, C. Lagrange, A.J. Koning, Ann. Phys.(N.Y.) 306, 209 (2003).
- [COMB] S.Hilaire, S. Goriely, Nucl. Phys. A779, 63 (2006).
- [TALYS] A.J. Koning, M. Duijvestin, S. Hilaire, <u>http://www.talys.eu</u>
- [HPRL] High Priority Request List, <u>http://www.nea.fr/html/dbdata/hprl</u>
- [**JUR**] B. Jurado, voir cours dans cette école.

[MCAS] K. Amos, L. Canton, G. Pisent, J.P. Svene, D. van der Knijff, Nucl. Phys. A728, 65 (2003).

[GOR] S. Goriely, E. Khan, Nucl. Phys. A706, 217 (2002).

[DEL]J.P. Delaroche, M. Girod, H. Goutte, J. Libert, Nucl. Phys. A771, 103 (2006).[PND]Proceedings of the P(ND)^2 (Perspecives on Nuclear Data for the NextDecade) workshop, NEA Paris 2006.

Bibliographie:

Nuclear reactions and nuclear structure, P.E.Hodgson, Clarendon press, Oxford 1971.

Theoretical nuclear physics, J.M.Blatt, V.F. Weisskopf, Wiley, New York, 1952.

Pre-equilibrium nuclear reactions, E. Gadioli, P.E.Hodgson, Clarendon press, Oxford, 1992.

Theory of neutron resonance reactions, J.E.Lynn, Clarendon press, Oxford, 1968.

Direct nuclear reactions, G.R.Satchler, Clarendon press, Oxford, 1983.

Direct nuclear reactions, N.K. Glendenning, Academic press, New York, 1983.

Introduction to the theory and use of the GNASH code, P.G. Young, E.D. Arthur, M.B. Chadwick, LOS ALAMOS report LA-12343-MS, 1992.

TALYS-0.64 A Nuclear reaction code, A.J.Koning, S.Hilaire, M.Duijvestijn, 2004.

Remerciements :

Nous tenons à remercier les personnes suivantes pour leur participation à l'élaboration de ce cours :

O. Bersillon, P. Dos-Santos Uzzaralde, J.P. Delaroche, H. Duarte, E. Dupont, M. Dupuis, M. Girod, H. Goutte, T. Kawano, A.J. Koning, C. Le Luel, M. Lopez Jimenez, B. Morillon, P. Romain, J.C. Sublet, P. Talou.

Mesure de sections efficaces d'intérêt pour l'incinération des actinides mineurs

Beatriz Jurado¹

Centre d'Études Nucléaires de Bordeaux-Gradignan CNRS-IN2P3 et Université de Bordeaux 1 BP 120, 33175 Gradignan Cedex

Résumé

Les actinides mineurs font partie des déchets produits par les réacteurs actuels. Il s'agit de noyaux lourds (Américium, Curium,...) dont la radiotoxicité est élevée. Pour l'instant, il est envisagé de stocker ces déchets. Néanmoins, une autre voie est explorée, celle de leur incinération par fission. Cette option fait actuellement l'objet de nombreuses recherches dont l'objectif est de démontrer sa faisabilité technique. Ces études font appel aux données nucléaires de base comme les sections efficaces neutroniques. Malheureusement, pour ces actinides mineurs, les données existantes présentent encore de nombreuses insuffisances. Le groupe Aval du Cycle et Énergie Nucléaire (ACEN) du CENBG est fortement impliqué dans la mesure des sections efficaces de fission d'actinides mineurs. Ces mesures représentent un véritable défi pour les expérimentateurs à cause de la forte radioactivité de ces noyaux lourds. Pour contourner ces difficultés, le groupe ACEN utilise une technique originale basée sur des réactions de transfert induites par ions légers. Cette technique est expliquée en détail dans ce cours. Des résultats récents ainsi que nos projets futurs sont aussi discutés.

Abstract

Minor actinides are a type of nuclear waste produced in current nuclear reactors. These heavy nuclei (Np, Am and Cm isotopes) are highly radiotoxic. At present, two different strategic approaches are proposed for managing minor actinides: direct disposal without any reprocessing and spent fuel reprocessing with the aim to optimise the extraction of minor actinides and to then incinerate them. Incineration amounts for the transmutation of minor actinides by neutron-induced fission reactions. The reliable design of reactors for incineration requires an accurate knowledge of minor actinides cross sections in a fast neutron flux. However, the available data are rather scarce. The group Aval du Cycle et Énergie Nucléaire (ACEN) of the CENBG is strongly involved in the measurement of minor actinides fission cross sections. These measurements are extremely complicated due to the very short half life of some of these nuclei. To overcome these difficulties our group uses an original technique based on light-ion induced transfer reactions. This technique is explained in detail in this lecture. Recent results and future projects are also discussed.

¹ Ce cours est le résultat du travail de l'équipe ACEN du CENBG auquel j'appartiens, dont les autres membres sont M. Aiche, G. Barreau, S. Czajkowski, D. Dassié, B. Haas, G. Kessedjian et L. Mathieu, en collaboration avec la division de physique nucléaire d'Argonne National Laboratory aux États Unis qui nous a fourni les cibles de ²⁴³Am, et des chercheurs du CEA DAM, CEA Saclay, IPN Orsay et LPSC Grenoble.

1. Motivation

Les réacteurs actuels produisent deux types de déchets dont la gestion et le devenir posent problème. Il s'agit de certains produits de fission dont la durée de vie dépasse souvent le million d'années mais surtout de noyaux lourds, les actinides mineurs. Ce sont des isotopes de Np, Am et Cm. Ils cumulent une radio toxicité élevée (ce sont souvent de forts émetteurs alpha et gamma et parfois même de neutrons) et une durée de vie longue, comme par exemple le ²³⁷Np avec une période de 2,1 millions d'années. Pour l'instant, il est envisagé de stocker ces déchets en site géologique profond. Néanmoins, une autre voie est explorée, c'est celle de l'incinération, c'est à dire, de la transmutation par fission de ces noyaux lourds. Cette option fait l'objet actuellement de nombreuses recherches dont l'objectif est de démontrer la faisabilité technique de l'incinération à partir de réacteurs dont la technologie est maîtrisée (REP ou RNR) et d'évaluer les capacités d'incinération à partir de filières innovantes comme par exemple les ADS.

Ces études font appel à de nombreuses données neutroniques de base. En effet, lorsqu'on place les actinides mineurs au sein d'un réacteur rapide, plusieurs modes de désexcitation sont en compétition avec la fission (n,f). Les principales voies sont la capture radiative (n, γ), où après absorption d'un neutron l'actinide mineur se désexcite par émission gamma, et la diffusion inélastique du neutron (n,n'), où le noyau se désexcite en émettant un neutron d'énergie inférieure et des rayonnements gamma. D'autres processus de désexcitation comme l'émission de deux neutrons (n,2n) entrent en jeu à plus hautes énergies de neutron ($E_n \gtrsim 10$ MeV). Malheureusement, les sections efficaces

correspondantes présentent encore de nombreuses insuffisances et/ou disparités pour parvenir à des données fiables. Ce constat est à l'origine d'un vaste effort international de mesures de sections efficaces auquel contribue le groupe Aval du Cycle et Énergie Nucléaire (ACEN) du CENBG. L'objectif de ces mesures est ici de réactualiser (lorsqu'elles existent) des données nucléaires parfois très anciennes ou de les compléter. La mesure des sections efficaces neutroniques des actinides mineurs constitue très souvent un véritable défi pour les expérimentateurs à cause de leur forte radioactivité alpha, de leur rareté et des difficultés techniques qu'ils soulèvent pour la fabrication de cibles isotopiquement pures.

2. Mesures de sections efficaces neutroniques d'actinides mineurs

La section efficace d'une réaction induite par neutrons est donnée par la relation suivante :

$$\sigma(E_n, reac) = \frac{N_{reac}}{\Phi_n(E_n) \cdot N_{cible} \cdot \Delta t}$$
(1)

où N_{reac} est le nombre total de réactions détectées au cours du temps Δt , N_{cible} est le nombre d'atomes composant la cible et $\Phi_n(E_n)$ est le nombre de neutrons (s⁻¹, cm⁻²)
d'énergie E_n arrivant sur celle-ci. Nous allons voir dans cette section deux méthodes différentes pour déterminer expérimentalement des sections efficaces neutroniques.

La méthode directe et ses limites

La méthode la plus utilisée pour mesurer une section efficace neutronique, et que je vais appeler la méthode directe, consiste à placer une cible sous un flux de neutrons et mesurer les quantités qui composent l'équation (1). Pour mesurer N_{reac} (par exemple le nombre total de fissions) on utilise un détecteur adapté à la réaction qui nous intéresse. En général, celui-ci ne permet pas de détecter le nombre total de réactions. Il est donc important de bien connaître son efficacité pour pouvoir estimer le nombre total de réactions qui ont eu lieu à partir du nombre de réactions mesurées. La détermination du flux de neutrons constitue une des grandes difficultés des mesures neutroniques. À cause de son absence de charge, le neutron n'ionise pas la matière lors de son passage dans un matériau. La méthode la plus couramment appliquée pour le détecter utilise des réactions nucléaires dites de référence. Dans ce cas, le neutron est détecté à partir d'une réaction secondaire accompagnée de l'émission d'une particule chargée ou d'un photon. Dans la plupart des cas, les sections efficaces de fission induites par neutrons sont mesurées en utilisant la section efficace de fission du noyau 235 U (235 U(n,f)) comme référence. La précision de la section efficace de fission se situe au voisinage de 5% dans le domaine des neutrons rapides. Cependant, au CENBG nous utilisons comme réaction de référence la diffusion élastique du neutron sur proton qui est connue avec une précision d'environ 0.5% sur une grande plage d'énergies. Nous avons utilisé cette réaction pour déterminer la section efficace de fission du noyau ²⁴³Am, (voir contribution à cette école, résumé du séminaire de G. Kessedjian).

La méthode directe devient très compliquée quand il s'agit de mesurer des sections efficaces de noyaux de très courte période, comme certains actinides mineurs. Les problèmes rencontrés sont les suivants :

-À cause de la forte radiotoxicité de ces noyaux, il y a très peu d'unités spécialisées capables de fabriquer des cibles. D'ailleurs, la matière avec laquelle les cibles sont fabriquées provient du combustible usé de réacteurs. Une séparation isotopique poussée est donc nécessaire pour éliminer les impuretés.

-L'activité de la cible ne doit pas dépasser la limite en vigueur sur le site expérimental où seront produits les neutrons. Cette contrainte fait que pour certains noyaux de très courte durée de vie, seules des cibles de très faible épaisseur seront utilisables, ce qui se traduit par des temps de mesure extrêmement longs.

-La plupart des actinides mineurs riches en neutrons présentent une très forte activité alpha, et dans certains cas fissionnent spontanément. Cette forte activité génère un bruit de fond qui peut se mélanger avec les signaux d'intérêt.

Méthode indirecte : la méthode « surrogate »

Pour contourner ces difficultés, nous nous sommes orientés vers une approche originale proposée au début des années 1970 par Cramer et Britt [1]. Cette méthode est connue

dans la littérature comme « the surrogate method » en français « la méthode de substitution ». Son principe est présenté schématiquement sur la figure 1.



Figure 1 : Représentation schématique de la « méthode surrogate ». La réaction de substitution est ici une réaction de transfert du type $X(y,w)A^*$. Les voies de désexcitation du noyau A*, par fission et capture, sont aussi représentées.

La partie gauche de la figure 1 illustre une réaction induite par neutrons sur la cible A-1. Suite à l'absorption d'un neutron le noyau A est formé avec une certaine énergie d'excitation E^* . Le noyau A peut se désexciter selon différents canaux: par fission, par émission de rayonnements γ ou de neutrons, etc. Le principe de la méthode surrogate est de produire le noyau A à partir d'une réaction de transfert² (à un ou plusieurs nucléons) entre le projectile y et une cible X. Dans la réaction de transfert, la formation du noyau A est accompagnée d'un éjectile w. Ceci est indiqué dans la partie droite de la figure 1. Puisque la réaction $(y+X\rightarrow A+w)$ est une réaction à deux corps, par conservation de l'énergie et de l'impulsion, nous pouvons déduire l'énergie d'excitation E^* du noyau A en mesurant l'énergie cinétique et l'angle d'émission de l'éjectile w (la valeur de Q correspondant à la réaction de transfert est en général bien connue). La détection en coïncidence d'un des fragments de fission du noyau A* et de l'éjectile w donne accès à la probabilité de fission $\overline{P}_{(t,f)}^{A,exp}$ du noyau A produit dans la réaction de transfert X(y,w)A. Nous pouvons alors remonter à la section efficace de fission σ_f induite par neutron sur le noyau A-1 à l'aide de la relation :

$$\sigma_f^{A-1}(E_n) \simeq \sigma_{NC}^A(E_n) \cdot \overline{P}_{(t,f)}^{A,\exp}(E^*)$$
⁽²⁾

où σ_{NC}^{A} est la section efficace de formation du noyau *A* à partir de l'absorption par le noyau *A*-1, d'un neutron d'énergie *E_n*. Grâce aux progrès récents réalisés dans le cadre du

² Dans ce travail nous allons considérer comme réactions de substitution les réactions de transfert. D'autres travaux basés sur la technique surrogate utilisent des réactions de diffusion inélastique comme réactions de substitution (voir par exemple J.A. Church et al., Nucl. Phys. A 738 (2005) 126c).

modèle optique, σ_{NC} peut être calculé avec une précision d'environ 10%. Dans nos travaux, σ_{NC} provient des calculs du modèle optique microscopique développé par le groupe de physique théorique de Bruyères le Châtel [2]. La relation entre l'énergie du neutron incident E_n et l'énergie d'excitation E^* du noyau fissionnant A s'écrit :

$$E^* = B_n + E_n \cdot \frac{A - 1}{A} \tag{3}$$

où B_n désigne l'énergie de liaison du dernier neutron dans le noyau A.

On peut appliquer la méthode de transfert pour obtenir des sections efficaces autres que la fission. Par exemple, si on s'intéresse à la section efficace neutronique de capture du noyau *A*-1, il faut mesurer la probabilité d'émission gamma $P_{(t,\gamma)}^{A,\exp}$ du noyau *A* produit par transfert. La démarche décrite ci-dessus permet alors d'obtenir la section efficace de la réaction *A*-1(n, γ).

La méthode surrogate est particulièrement intéressante quand la cible X est moins radioactive ou d'accès plus facile que la cible A-1. Par exemple, nous avons utilisé la réaction de transfert (${}^{3}\text{He}+{}^{232}\text{Th} \rightarrow p+{}^{234}\text{Pa}$) pour déterminer les sections efficaces neutroniques de fission [3] et de capture [4] du ${}^{233}\text{Pa}$ dont la période est de seulement 27 jours (activité spécifique de 0.8 Gbq/µg !), alors que la période du noyau ${}^{232}\text{Th}$ est de 1,4·10¹⁰ ans.

La validité de la méthode surrogate

L'équation (2) est le résultat d'une approximation dont la validité va être discutée dans cette section. La probabilité de fission que nous mesurons à partir de la réaction de transfert est donnée par la relation:

$$\overline{P}_{(t,f)} = \sum_{J,\pi} F_t(E^*, J, \pi) \cdot P_f(E^*, J, \pi)$$
(4)

Où $F_t(E^*, J, \pi)$ représente la probabilité de former le noyau composé A avec une énergie d'excitation E^* , un spin J et une parité π à partir d'une réaction de transfert. $P_f(E^*, J, \pi)$ désigne la probabilité de fission du noyau A dans cet état quantique. Dans le cas d'une réaction induite par neutrons la section efficace de fission est :

$$\sigma_{n,f} = \sum_{J,\pi} \sigma_n(E^*, J, \pi) \cdot P_f(E^*, J, \pi)$$
(5)

où $\sigma_n(E^*, J, \pi)$ est la section efficace de formation du noyau composé dans l'état quantique défini par E^* , J et π par absorption d'un neutron. Dans le cadre d'un modèle statistique basé sur le concept du noyau composé, la désexcitation du noyau est indépendante du mécanisme de réaction qui a servi à le produire. Pour cette raison, la probabilité de fission P_f est la même dans les deux équations précédentes. En revanche, les différences entre les deux mécanismes se manifestent au niveau des états J^{π} alimentés par capture de neutron et par réaction de transfert. La distribution d'états J^{π} peuplés par une réaction est le résultat du couplage du moment angulaire transféré *l* avec les moments angulaires de la particule absorbée et de la cible. Les différences entre les deux mécanismes de réaction sont illustrées dans la figure 2 où sont représentés des calculs de distributions du moment angulaire transféré *l* dans divers types de réactions. Pour les réactions induites par neutron, l'exemple présenté concerne la réaction ²³³Pa(n,f). Les distributions ont été calculées pour plusieurs énergies de neutrons (de 1 à 5 MeV) par [5]. Ces distributions sont comparées aux distributions calculées par B. B. Back et al. [6] pour les trois réactions de transfert les plus utilisées dans les études de probabilités de fission. Ces trois distributions ont été calculées pour une énergie d'excitation des systèmes fissionnants de 5.5 MeV. On remarquera que pour des énergies de neutron inférieures à 2 MeV, les moments angulaires transférés *l* par réactions de transfert, sont en général plus grands que ceux transférés par capture de neutron *l_n*. À plus haute énergie

 $(E_n \gtrsim 2 \text{ MeV})$ ces différences s'atténuent et les moments angulaires transférés deviennent comparables.



Figure 2 : Distributions du moment angulaire transféré *l* calculées pour des réactions induites par neutrons à différents énergies (haut-gauche) [5] et par diverses réactions de transfert [6].

Notons cependant que, même quand les moments angulaires transférés sont similaires, le moment angulaire total du noyau *A* produit par transfert peut être différent de celui induit par absorption d'un neutron si les moments angulaires de la cible et de la particule transférée associées à la méthode surrogate et à la méthode directe sont différents. La relation (2) peut donc s'avérer incorrecte car en principe la probabilité de fission du

noyau A, produit par une réaction de transfert $\overline{P}_{t,f}$ diffère de la probabilité de fission du noyau A formé par capture de neutron. En revanche, quand les probabilités de fission P_f sont indépendantes de J^{π} , l'équation (4) devient :

$$\overline{P}_{(t,f)} = P_f(E^*) \cdot \sum_{J,\pi} F_t(E^*, J, \pi) = P_f(E^*)$$
(6)

car $\sum_{J,\pi} F_t(E^*, J, \pi) = 1$. Dans ces conditions, les relations (2) et (5) sont équivalentes.

Nous allons maintenant étudier plus en détail ce cas limite ($P_f(E^*, J, \pi)=P_f(E^*)$). Pour simplifier, nous supposerons que le noyau A^* ne se désexcite que par fission, émission de neutron (diffusion inélastique) ou émission γ . Dans le cadre du modèle statistique, la probabilité de fission $P_f(E^*, J^{\pi})$ est donnée par la relation suivante:

$$P_{f}(E^{*}, J^{\pi}) = \frac{\Gamma_{f}(E^{*}, J^{\pi})}{\Gamma_{n}(E^{*}, J^{\pi}) + \Gamma_{f}(E^{*}, J^{\pi}) + \Gamma_{\gamma}(E^{*}, J^{\pi})}$$
(7)

où Γ_f , Γ_n et Γ_γ désignent respectivement les largeurs partielles de fission, d'émission d'un neutron et d'émission γ de l'état (J^{π}). Les largeurs Γ_n et Γ_γ sont obtenues en sommant tous les niveaux J^{π} des noyaux résiduels A-1 et A énergétiquement accessibles. En général, $\Gamma_{\gamma} << \Gamma_n$ et la probabilité de fission est dominée par le rapport Γ_f/Γ_n . La largeur de fission dépend de la densité des niveaux (J^{π}) aux sommets de la double barrière de fission. Ces niveaux constituent les états de transition par lesquels le noyau franchit cette double barrière de fission. Pour des énergies d'excitation inférieures à l'énergie d'appariement (énergie nécessaire pour briser une paire de nucléons, soit ~1.5MeV) ces états de transition sont discrets. Pour des énergies d'excitation supérieures à l'énergie d'appariement ces nivaux discrets deviennent suffisamment nombreux pour les traiter de façon statistique et les remplacer par une densité continue $\rho(E^*, J^{\pi})$. Cette région est généralement appelée le « continuum ». Dans cette région, la densité de niveaux peut s'écrire :

$$\rho(E^*, J, \pi) = \frac{1}{2} R(J) w(E^*) = \frac{1}{2} \frac{2J+1}{\sqrt{8\pi}\sigma^3} \exp\left[-\frac{\left(J+\frac{1}{2}\right)^2}{2\sigma^2}\right] w(E^*)$$
(8)

où $w(E^*)$ donne la densité d'états dans le continuum. La distribution de spin R(J) est représentée par une gaussienne caractérisée par la variance σ qui est le paramètre de spin « cut off ». Pour des énergies d'excitation supérieures à l'énergie d'appariement, les densités de niveaux aux sommets des barrières de fission et celles du noyau résiduel A-1 ont des distributions de spin R(J) suffisamment proches pour considérer que le rapport Γ_f/Γ_n devient indépendant du moment angulaire J. Dans ces conditions, le rapport Γ_f/Γ_n est dominé par le rapport des densités de niveaux $w(E^*)$ dans les voies de désexcitation fission et neutron, les probabilités de fission $P_f(E^*, J^{\pi})$ ne dépendent alors plus de J^{π} . Cet effet est illustré par la figure 3 pour le noyau composé ²³⁶U étudié récemment par W. Younnes [7]. Les calculs représentent la probabilité de fission pour différentes valeurs de J^{π} en fonction de l'énergie d'excitation du noyau ²³⁶U. On remarquera qu'à partir d'une énergie d'excitation d'environ 9 MeV (E_n~2.5 MeV) les probabilités de fission $P_f(E^*, J^{\pi})$ convergent vers une valeur unique. En revanche, à basse énergie d'excitation, (en dessous de l'énergie d'appariement), la fission du noyau A se produit à travers les états de transition discrets dont la population va dépendre du mécanisme de réaction utilisé pour produire le noyau A. On peut conclure que notre méthode basée sur la relation (2), s'applique à des énergies d'excitation où la désexcitation du noyau A est dominée par des densités de niveaux continus. Pour les réactions de transfert où le noyau fissionnant A est un noyau pair-pair, la sélectivité du mécanisme de réaction vis-à-vis de la population des états J^{π} peut conduire, à basse énergie d'excitation, à des probabilités de fission différentes de celles mesurées par capture de neutrons [7, 8]. Une étude très récente basée sur le modèle statistique [9] montre qu'à haute énergie d'excitation, les probabilités de fission de ²³⁶U peuvent encore dépendre du moment angulaire J si celui-ci est supérieur au paramètre de spin «cut-off» de la distribution de spin R(J), dont la valeur est d'environ 6 à 7ħ pour les actinides.



Figure 3 : Probabilité de fission calculée pour le noyau ²³⁶U pour différents états *J* de parité positive [7]. B_n est l'énergie de liaison du neutron pour ²³⁶U.

En conclusion, la relation (2) ne peut être utilisée que pour des réactions de transfert où le moment angulaire moyen transféré diffère peu de celui des réactions de capture de neutron. En ce qui concerne les réactions de transfert induites par ions légers, les populations de moments angulaires sont encore mal connues (le dernier calcul date de 1974 [6]). Un effort important des théoriciens et des expérimentateurs pour déterminer ces distributions s'avère indispensable.

Le partie gauche de la figure 4 montre la section efficace de fission induite par neutrons du ²³³Pa déduite à partir de la réaction de transfert ³He+²³²Th→p+²³⁴Pa* [3]. Elle est comparée à deux mesures directes [10, 11] qui ont été réalisées après les mesures du CENBG. Le graphique montre qu'au seuil de fission, qui est en principe une des zones critiques où il peut y avoir des différences entre la méthode surrogate et la méthode directe, il y a un très bon accord entre les mesures du CENBG et les mesures directes. Le noyau ²³⁴Pa étant un noyau impair-impair, le bon accord trouvé implique que les moments angulaires du noyau ²³⁴Pa mis en jeu dans la réaction de transfert sont relativement faibles. La section efficace de capture radiative du ²³³Pa est représentée sur

la partie droite de la figure 4 [4]. Elle a été mesurée par le groupe du CENBG en utilisant la même réaction de transfert que dans [3]. La mesure a été comparée avec deux évaluations et un calcul réalisé à partir d'un modèle statistique développé au CENBG [3]. Ce modèle reproduit beaucoup mieux la dépendance des données avec l'énergie que les deux évaluations. Ceci provient du fait que les calculs du CENBG contiennent des paramètres fondamentaux du ²³⁴Pa, comme par exemple les paramètres des barrières de fission ou les gaps d'appariement, qui ont été obtenus à partir de la comparaison de notre modèle avec les sections efficaces expérimentales de fission obtenues en appliquant la méthode surrogate. N'ayant pas d'autres données expérimentales de section efficace de capture autres que celles du CENBG pour le noyau ²³³Pa, la méthode de transfert n'a pas pu être comparée à la méthode directe pour cette voie de desexcitation.



Figure 4 : Section efficace neutronique de fission du ²³³Pa (gauche) [3] en comparaison avec les mesures directes de Geel [10, 11] et des évaluations. Section efficace neutronique de capture du ²³³Pa (droite) [4] en comparaison avec des évaluations et le modèle statistique du CENBG [3].

Mesures des sections efficaces de fission des isotopes de Cm et Am

Nous avons utilisé récemment la technique surrogate pour déterminer les sections efficaces neutroniques de 242,243,244 Cm et de 241 Am, dont les demi-vies sont respectivement 163 jours, 29 ans, 18 ans et 432 ans. Pour cela nous avons utilisé un faisceau de ³He à 30 MeV et une cible de 243 Am qui a une période de 7370 ans. Dans une réaction de transfert il y a différentes combinaisons de nucléons qui peuvent être échangés entre le projectile et la cible. Selon les nucléons échangés, différentes voies de transfert vont être peuplées. La figure 5 montre pour la réaction ³He+²⁴³Am les quatre canaux de transfert que nous avons considérés. Chaque voie de transfert est caractérisée par un éjectile. Si l'on identifie l'éjectile en masse et en charge nous pouvons déduire la charge et la masse du noyau composé formé. Par exemple, le transfert d'un proton du projectile ³He à la cible permet de former le noyau ²⁴⁴Cm, l'éjectile associé étant un deuton (243 Am(³He,d)²⁴⁴Cm). D'après l'équation (2), si l'on mesure la probabilité de fission du ²⁴⁴Cm en fonction de *E** on peut alors remonter à la section efficace

neutronique ²⁴³Cm(n,f) en fonction de E_n . De la même façon, le transfert d'un deuton donne le ²⁴⁵Cm plus un proton (²⁴³Am(³He,p)²⁴⁵Cm), et ainsi de suite. La figure 5 illustre bien un des grands avantages de l'utilisation d'une réaction de transfert qui permet la détermination de plusieurs sections efficaces simultanément, c'est à dire avec une combinaison unique cible-projectile et une seule énergie du projectile. Il faut noter par ailleurs que l'énergie disponible dans la collision (énergie du projectile E_{pr} plus le Q de réaction moins l'énergie du recul du noyau composé E_r) est partagée entre l'énergie d'excitation du noyau composé et l'énergie cinétique de l'éjectile (nous considérons que l'éjectile reste toujours dans l'état fondamental). La probabilité de former le noyau composé avec une énergie d'excitation E^* suit une distribution qui est déterminée par l'espace de phase disponible à chaque E^* . L'énergie restante $E_{pr}+Q-E_r-E^*$ sera l'énergie cinétique de l'éjectile. Par conséquent, il n'y a pas qu'une seule énergie d'excitation possible pour le noyau formé comme c'est le cas pour un noyau composé produit après absorption d'un neutron, mais toute une distribution. Cela signifie qu'avec une énergie du projectile fixe, la méthode surrogate permet de remonter à des sections efficaces neutroniques en fonction de E_n .



Figure 5 : Différentes voies de transfert peuplées dans la réaction ${}^{3}\text{He}+{}^{243}\text{Am}$ et leurs sections efficaces neutroniques associées.

Détermination de la probabilité de fission

Nous avons effectué ces mesures auprès de l'accélérateur Tandem de l'IPN Orsay qui fournit le faisceau de ³He à 30 MeV. La figure 6 montre une vue de dessus du dispositif expérimental. Il est composé d'un détecteur de fission fait à partir de cellules photovoltaïques et de deux télescopes Si situés à 90 et 130 degrés par rapport à l'axe du faisceau. Le détecteur de fission est composé de 15 cellules photovoltaïques réparties en cinq plans disposés sur un cylindre. Ce cylindre est perpendiculaire au plan de réaction défini par le faisceau et les télescopes. La répartition des plans de cellules est choisie pour

mesurer la distribution angulaire des fragments de fission par rapport à l'axe moyen du noyau de recul. Le cinquième plan est placé 180° du premier, il complète la distribution angulaire aux angles arrières. Les télescopes servent à détecter et identifier les éjectiles. Lorsque le noyau composé associé à l'éjectile détecté fissionne, un des fragments de fission est détecté en coïncidence par les cellules photovoltaïques.



Figure 6 : Dispositif expérimental utilisé pour la détermination des probabilités de fission.

Le spectre bidimensionnel situé dans la partie gauche de la figure 7 représente la perte d'énergie des éjectiles en fonction de l'énergie résiduelle mesurée dans un des télescopes. Cette représentation nous permet d'identifier les éjectiles associés aux différentes voies de transfert. Comme déjà expliqué précédemment, la nature de chaque particule légère éjectée signe la formation d'un noyau composé spécifique. Par exemple, la détection d'un triton correspond à un noyau composé ²⁴³Cm. Le télescope permet aussi de déterminer l'énergie cinétique totale et l'angle de l'éjectile. Avec cette information et les valeurs de Q de la réaction de transfert nous pouvons déduire l'énergie d'excitation du noyau composé. Par exemple, en sélectionnant l'hyperbole du spectre bidimensionnel correspondant aux tritons, nous pouvons remonter au nombre total de ²⁴³Cm formés en fonction de leur énergie d'excitation N_{tot}(E*). Ceci est représenté sur la partie droite de la figure 7. Maintenant, si l'on considère les tritons détectés en coïncidence avec les détecteurs de fission on obtient le spectre $N_{coin}(E^*)$ de la figure 7 qui correspond aux noyaux de ²⁴³Cm formés qui ont fissionné. Notre détecteur de fission a une efficacité d'environ 50%. Celle-ci dépend principalement de l'angle solide sous-tendu mais aussi de l'énergie et de l'angle de recul du noyau fissionnant, ainsi que de l'anisotropie de la distribution angulaire des fragments de fission. Cela signifie que l'efficacité de notre détecteur va dépendre de l'énergie d'excitation. Nous avons déterminé la dépendance en énergie d'excitation de l'anisotropie des fragments de fission à l'aide des données expérimentales. Cette anisotropie a été incluse dans une simulation Monte-Carlo prenant en compte la géométrie du détecteur de fission afin de calculer l'efficacité Eff(E*). En faisant le rapport entre le spectre $N_{coin}(E^*)$ et le spectre $N_{tot}(E^*)$ de la figure 7, et en corrigeant ce rapport par l'efficacité de détection de fission $Eff(E^*)$ on obtient la probabilité de fission du noyau ²⁴³Cm en fonction son énergie d'excitation E^* :



$$P_f(E^*) = \frac{N_{coin}(E^*)}{N_{tot}(E^*) \cdot Eff(E^*)}$$
(9)

Figure 7 : À gauche, spectre d'identification des éjectiles représentant la perte d'énergie en fonction de l'énergie résiduelle dans un des télescopes. À droite nombre total de tritons (ou de ²⁴³Cm formés) en fonction de leur énergie d'excitation (N_{tot}) et nombre de tritons détectés (ou de ²⁴³Cm formés) en coïncidence avec la fission (N_{coin}).

Résultats

Malheureusement, jusqu'au présent uniquement les voies triton et alpha ont pu être analysées avec confiance. Ceci est probablement dû à une impureté dans la cible d'²⁴³Am. Nous avons répété la mesure avec une nouvelle cible en novembre 2006. L'analyse de cette nouvelle expérience devrait nous permettre de comprendre l'origine et la nature des problèmes rencontrés pour les voies proton et deuton et d'extraire les sections efficaces de fission associées à ces deux voies de transfert.

Suivant l'équation (2), en multipliant la probabilité de fission par la section efficace de formation du noyau composé calculée à partir du modèle optique microscopique de Bruyères le Châtel [2], nous avons reconstruit les sections efficaces (n,f) des noyaux ²⁴¹Am et ²⁴²Cm en fonction de l'énergie du neutron E_n . L'échelle en E^* a été transformée en E_n à partir de l'équation (3). Les résultats préliminaires sont présentés sur la figure 8. Dans le deux cas nous observons une augmentation de la section efficace au-delà d'environ 6 MeV. Cet accroissement correspond à la fission de deuxième chance : l'énergie d'excitation est suffisante pour que le noyau composé émette un neutron avant fissionner. Cela entraîne que la fission du noyau résiduel (avec A-1) s'ajoute à celle du noyau A. Nos résultats pour la section efficace du ²⁴¹Am sont en bon accord avec les bibliothèques au seuil de fission. Pour le ²⁴²Cm il y a aussi un bon accord avec les

données expérimentales de Vorotnikov [12] au seuil de fission. Nos résultats constituent la première mesure expérimentale qui s'étend jusqu'à la fission de deuxième chance pour le ²⁴²Cm. Pour ce noyau, les bibliothèques présentent des écarts très importants. Celle qui reproduit le mieux nos données est JENDL. Nous envisageons également d'effectuer notre propre évaluation de ces sections efficaces avec le modèle statistique développé au CENBG. Cette étude va nous permettre d'accéder à des paramètres fondamentaux comme la hauteur et la largeur des barrières de fission, les gaps d'appariement et les états de transition. En incluant ces paramètres dans notre code statistique, nous allons pouvoir prédire d'autres sections efficaces neutroniques qui sont difficilement mesurables comme par exemple (n, γ), (n,2n), (n,n'), etc.



Figure 8 : Résultats préliminaires pour les sections efficaces de fission en fonction de l'énergie du neutron en comparaison avec différentes bibliothèques et avec les données expérimentales de Vorotnikov et al. [12].

3. Perspectives

Nous allons poursuivre l'application de la technique de transfert pour déterminer des sections efficaces de fission des noyaux suivants : 238 Pu($T_{1/2}$ =87ans), 240 Am($T_{1/2}$ =2.1 jours) et 242 Am($T_{1/2}$ (gs)=16 heures) dont une mesure directe par neutrons s'avère difficile (238 Pu(n,f)) ou irréalisable (240,242 Am(n,f)).

Une évaluation récente de plusieurs isotopes du Plutonium effectuée à Bruyères le Châtel (voir cours d'E. Bauge dans cette école) a mis en évidence une incohérence de la section efficace de fission du ²³⁸Pu induite par des neutrons d'énergie comprise entre 6 et 20 MeV. Dans cette gamme d'énergie il existe seulement deux mesures et la plus complète propose des sections efficaces de fission (2,8 barns) du même niveau que la section efficace de réaction alors que les voies (n,2n), (n,3n) et de pré-équilibre sont ici en compétition avec la fission. Nous proposons de reprendre ces mesures à partir de la réaction de transfert suivante : ²³⁷Np(³He,p)²³⁹Pu, pour mesurer la probabilité de fission du système ²³⁹Pu. La période du noyau cible ²³⁷Np est de 2,1·10⁶ ans. Même si notre objectif principal est la section efficace du ²³⁸Pu, nous allons pouvoir exploiter les trois autres voies de transfert en même temps que la voie proton et déterminer les sections efficaces (n,f) du ²³⁶Pu(T_{1/2}=2.9 ans) ²³⁷Pu(T_{1/2}=45 jours) et du ²³⁵Np(T_{1/2}=396 jours).

La faisabilité de l'incinération du noyau ²⁴¹Am bute encore sur le manque de fiabilité des données neutroniques concernant les noyaux lourds voisins produits lors de son

incinération. C'est le cas pour les noyaux ²⁴⁰Am et ²⁴²Am dont les données évaluées proviennent de calculs sans validation expérimentale. L'²⁴⁰Am est produit par la réaction ²⁴¹Am(n,2n). Il se désintègre (par capture électronique) vers le ²⁴⁰Pu. L'²⁴²Am est formé par capture de neutron sur l'²⁴¹Am dans son état fondamental (T_{1/2}=16 heures) ou dans un état isomérique dont la durée de vie est plus longue (T_{1/2}=141 ans) que l'état fondamental. La désintégration (β ') de l'état fondamental conduit à la formation du noyau ²⁴²Cm. Ces deux noyaux, d'accès difficile par capture de neutron le sont plus facilement par réaction de transfert. Pour accéder à la section efficace ²⁴⁰Am(n,f) nous allons utiliser la cible d'²⁴³Am et un faisceau de protons, à partir du transfert de deux neutrons de la cible au projectile nous formons l'²⁴¹Am (réaction ²⁴³Am(p,t)²⁴¹Am). L'utilisation d'une cible de ²⁴²Pu devrait nous permettre d'obtenir les sections efficaces (n,f) des noyaux ²⁴¹⁻²⁴³Am et ²⁴³Am et ²⁴⁰Pu. Le noyau ²⁴¹Am est commun à cette mesure et à celle que nous avons réalisée précédemment avec la cible d'²⁴³Am. Ce recouvrement est un élément essentiel de validation de la méthode. L'ensemble des noyaux que nous envisageons d'étudier est représenté dans la carte de noyaux de la figure 9.

7			²⁴¹ Cm	²⁴³ Bk	²⁴⁴ Bk	²⁴⁵ Bk		
∠		²⁴¹ Cm	²⁴¹ Cm	242 Cm	²⁴³ Cm	²⁴⁴ Cm	²⁴⁵ Cm	Cible ²⁴³ Am
	²³⁸ Am	²³⁹ Am	²⁴⁰ Am	241 Am	²⁴² Am	²⁴³ Am	²⁴⁴ Am	Cibles 243 Am 242 Pu
²³⁶ Pu	²³⁷ Pu	²³⁸ Pu	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu	²⁴² Pu	²⁴³ Pu	Cible ²³⁷ Np
²³⁵ Np	²³⁶ Np	²³⁷ Np	²³⁸ Np	²³⁹ Np	²⁴⁰ Np	²⁴¹ Np		- Mesuré

Figure 9 : Extrait du tableau des nuclides où nous avons marqué les noyaux auxquels nous aurons accès à partir d'expériences utilisant les réactions de transfert avec différents cibles ainsi que les noyaux déjà mesurés.

→ N

Comme nous l'avons expliqué plus haut, jusqu'à présent la méthode surrogate appliquée à la capture radiative n'a pas pu être validée. Une telle validation est particulièrement importante, car les mesures de capture se font à plus basse énergie que la fission et les effets de structure, c'est à dire, les différences de distributions de moment angulaire peuplés par l'absorption d'un neutron et par la réaction de transfert, peuvent se manifester de façon plus dramatique que dans la fission. Il est donc nécessaire de trouver des noyaux auxquels on peut accéder par des réactions de transfert comme celles que nous avons utilisées et pour lesquels les sections efficaces de capture radiative sont bien connues. Puisque l'applicabilité de la méthode dépend de la structure nucléaire du noyau composé formé, chaque cas est en principe unique. Par conséquent, pour que la validation soit la plus complète possible, il faudrait considérer différentes réactions de transfert et différents types de noyaux cibles pour former des noyaux composés pair-pair, pair-impair, impair-impair dans différentes régions de masse et avec des distributions de spin/parité différentes. Ceci est un travail très complexe auquel nous voudrions contribuer dans le futur.

Une version plus sophistiquée de notre dispositif va être mise au point au GANIL [13]. C'est un projet dans lequel nous voudrions nous impliquer de façon importante et dont l'objectif est de mesurer pour la première fois les distributions isotopiques complètes des fragments de fission d'un nombre important d'actinides allant de l'²³⁷U jusqu'au ²⁴⁷Cm à des énergies d'excitation allant de 0 à 40 MeV. Les distributions isotopiques des produits de fission jouent un rôle très important dans l'incinération des actinides mineurs car elles ont un fort impact sur le flux de neutrons dans un réacteur. En effet, la proportion de neutrons retardés, le nombre de noyaux neutrophages dans le cœur, ainsi que la chaleur dégagée sont directement connectés aux distributions isotopiques des produits de fission. Ces distributions deviennent alors essentielles quand il s'agit d'incinérer les actinides mineurs, car des quantités importantes de ces déchets seront introduites dans le cœur des réacteurs incinérateurs. Cependant, pour les actinides mineurs les distributions isotopiques des produits de fission sont mal connues. En général seules les distributions en masse ont été mesurées, et cela seulement à des énergies de neutrons thermiques ainsi qu'à 14 MeV. De même, les distributions en charge ont été déterminées seulement pour une partie des fragments de fission, et uniquement pour une gamme limitée d'actinides. Ces mesures sont également d'un intérêt considérable pour la physique nucléaire fondamentale et en particulier pour l'amélioration de nos connaissances sur le processus de fission. Son intérêt est double: d'un côté, les distributions isotopiques et leur évolution avec l'énergie d'excitation vont permettre de répondre à la question encore ouverte sur les effets de couches dans le processus de fission. D'un autre côté, la variation avec l'énergie d'excitation des effets pair-impair de ces distributions est directement liée à la dépendance de la viscosité du noyau avec l'énergie d'excitation. Du point de vue technique, ces mesures sont très difficiles à faire à partir des mesures neutroniques directes à cause de la haute radioactivité des cibles et de la faible vitesse des fragments de fission lourds. L'idée est donc de produire les actinides d'intérêt à partir de réactions de transfert de plusieurs nucléons entre un faisceau d'²³⁸U et une cible de ¹²C. Le couplage de la cinématique inverse avec des réactions de transfert nous permettra d'atteindre un nombre important de novaux fissionnants au delà de ²³⁸U tout en couvrant une grande gamme d'énergie d'excitation. D'ailleurs, les fragments de fission sont émis avec une énergie cinétique suffisante pour rendre possible l'identification isotopique des fragments les plus lourds. Les expériences se dérouleront au GANIL où le spectromètre VAMOS servira à identifier en masse et en charge les fragments de fission.

4. Conclusion

Dans ce cours nous nous sommes concentrés sur la méthode « surrogate ». Le principe de la technique ainsi que sa validité ont été discutés. Cette technique permet de déterminer des sections efficaces neutroniques des noyaux de courtes périodes. Elle est très intéressante dans tous les domaines de physique nucléaire confrontés à cette problématique comme la physique de réacteurs ou l'astrophysique nucléaire [14]. Notre groupe a appliqué la technique surrogate pour déterminer des données nucléaires d'intérêt pour le développement de nouvelles filières basées sur le cycle de thorium et pour l'incinération d'actinides mineurs. Les sections efficaces (n,f) du ²³⁰Th, ^{231,232,233}Pa et la section efficace (n, γ) de ²³³Pa ont été mesurées à partir d'une cible de ²³²Th. Plus récemment nous avons réalisé deux expériences avec deux cibles différentes d'²⁴³Am. Pour l'instant nous avons pu déterminer les sections efficaces (n,f) des noyaux ²⁴¹Am et

²⁴²Cm. La poursuite de l'analyse de données devrait nous permettre de remonter aux sections efficaces (n,f) des ²⁴³Cm et ²⁴⁴Cm. Dans un futur proche, nous allons nous servir d'autres cibles pour accéder à plusieurs isotopes de Pu et d'Am inaccessibles par les méthodes conventionnelles. Des réactions de transfert de plusieurs nucléons entre un faisceau d'²³⁸U et une cible de ¹²C seront par ailleurs utilisées au GANIL pour produire un grand nombre d'actinides allant de l'²³⁷U jusqu'au ²⁴⁷Cm. Le spectromètre VAMOS sera utilisé pour mesurer les rendements isotopiques des fragments de fission de ces actinides en fonction de l'énergie d'excitation.

Bibliographie :

- ¹ J. D. Cramer et H. C. Britt, Nucl. Sci. and Eng. 41 (1970) 177
- ² E. Bauge, communication privée
- ³ M. Petit et al., Nucl. Phys. A 735 (2004) 345
- ⁴ S. Boyer et al., Nucl. Phys. A 775 (2006)175
- ⁵ J. P. Delaroche, communication privée
- ⁶ B. B. Back et al., Phys. Rev. C 9 (1974) 1924
- ⁷ W. Younnes and H.C. Britt, Phys. Rev. C 67 (2003) 024610
- ⁸ W. Younnes and H.C. Britt, Phys. Rev. C 68 (2003) 034610
- ⁹ J. E. Escher et al., Phys. Rev. C 74 (2006) 054601
- ¹⁰ F. Tovesson et al., Phys. Rev. Lett. 88 (2002) 062502
- ¹¹ F. Tovesson et al., Nucl. Phys. A 733 (2004) 3
- ¹² P. E. Vorotnikov et al., Yadernaya Fizika 40 (1984) 1141
- ¹³ F. Rejmund et al., Proc. of the 3rd Int. Workshop on Nuclear Fission, Cadarache, France (2005) 263
- ¹⁴ J. Escher et al., Nucl. Phys. A 758 (2005) 86c

Données et modélisation de la spallation pour les réacteurs hybrides

Alain BOUDARD¹

Service de Physique Nucléaire, DAPNIA CEA Saclay

Résumé

Dans ce cours nous présentons les informations expérimentales sur la spallation dont on a besoin dans la perspective d'une étude d'un réacteur hybride. Nous décrivons les expériences récentes contribuant à l'étude de la spallation en illustrant les principales techniques expérimentales. Nous décrivons ensuite les principaux modèles actuellement disponibles. Enfin nous nous efforçons de conclure en faisant la part entre ce qui est maintenant bien connu et les secteurs où des efforts expérimentaux et théoriques semblent encore nécessaires. Ce cours est relié à celui de A. Billebaud en ce qui concerne la description et les problèmes spécifiques des réacteurs hybrides, et à celui de E. Bauge pour la modélisation et l'évaluation des données de basse énergie (en dessous de ~200 MeV).

Abstract

In these lectures on data and modelization of the spallation for hybrid reactors, we have presented the most recent experiments done mainly in Europe. We have spitted them below and above 200 MeV. We have tried to show the available results but also the various experimental setups and the main technics used for such experiments so that it could be appealing for young physicists. We have described the various theoretical approaches of the spallation and the overlaps with other types of calculations at the limit of applicability of the models. We have taken most of our examples from INCL4 coupled with ABLA. Our main conclusion is that the codes are now predictive with a rather good precision and in a large domain. They have defects which are systematic and known but we have serious ideas to cure them based mainly on recent experimental studies bringing correlations between various particles produced during the spallation process.

Note préalable : Je travaille comme expérimentateur dans le service de physique nucléaire de Saclay. J'ai réalisé des expériences principalement dans le domaine du GeV avec les faisceaux d'ions légers du synchrotron SATURNE, et maintenant avec les faisceaux d'ions lourds du GSI-Darmstadt. Je travaille également en collaboration avec J. Cugnon au développement du code de cascade INCL4. Ma présentation sera donc inévitablement biaisée. Je m'efforcerai toutefois à dégager les caractéristiques générales des simulations actuelles à partir d'exemples utilisant largement le code INCL.

¹ <u>Alain.Boudard@cea.fr</u>

A-DONNEES EXPERIMENTALES

1- Informations sur la spallation d'intérêt pour un réacteur hybride.

1.1- Schéma d'un réacteur hybride

Partons du schéma d'un réacteur hybride (Fig 1). Le faisceau de l'accélérateur (typiquement des protons de 1 GeV avec des intensités de 20 mA à 100 mA) est arrêté par une cible massive de matériaux lourd (Pb-Bi, W ou Hg) et produit par spallation de 25 à 30 neutrons par proton incident. Ces neutrons vont agir sur le réacteur sous critique comme une source externe permettant ainsi d'atteindre la criticité. Il est donc de première importance de caractériser cette source de neutrons pour le réacteur (nombre de neutrons, spectres en énergie et en angle d'émission). Ceci demande une connaissance des sections efficaces doublement différentielles pour les protons à l'énergie du faisceau sur les noyaux utilisés pour la cible, mais aussi pour les réactions secondaires (essentiellement les protons, neutrons et pions produits lors des réactions précédentes, donc à des énergies de plus en plus basses).

Le faisceau de protons traverse inévitablement une fenêtre de séparation entre le vide dans l'accélérateur et le milieu ambiant dans le réacteur. Cette fenêtre est une des difficultés des réacteurs hybrides car elle doit tenir mécaniquement malgré la fragilisation induite par le faisceau intense de protons. Selon le type de concept elle peut être plus ou moins proche du réacteur. Elle peut être alors soumise également au flux des neutrons de la cible de spallation et du réacteur. Elle est même parfois au contact avec la cible de Pb-Bi fondu ce qui ajoute les problèmes de corrosion par le plomb.



Fig 1 : Schéma de principe d'un réacteur hybride.

Les réactions de spallation dues au faisceau sont inévitables et donc à étudier. Les choix technologiques sont des aciers dans lesquels les noyaux principaux sont le fer, le nickel et le chrome. Ces matériaux entreront également dans la. fabrication du conteneur de la cible de spallation (Pb-Bi fondu par exemple). Les neutrons émis par la cible de

spallation peuvent atteindre plusieurs centaines de MeV et induire des réactions de spallation dans le conteneur, dans les matériaux de structure du réacteur (métaux légers comme l'aluminium) et dans la partie combustible (métaux lourds, actinides) induisant de ce fait des fissions de haute énergie.

Une bonne connaissance de la spallation permet de connaître la nature et la quantité des noyaux résiduels produits dans la cible, la fenêtre et les structures. Ceci permet de connaître les quantités et nature d'impuretés chimiques accumulées et l'activation des structures (décroissances radioactives des isotopes produits). Aux effets chimiques s'ajoute la fragilisation des matériaux. Il est possible de mesurer et de calculer l'énergie de recul des

noyaux résiduels de spallation qui contribue fortement à cette fragilisation des structures cristallines et de donner des valeurs réalistes de DPA (nombre de déplacements par atome dans des conditions données).

Enfin la production de gaz en particulier d'hélium non soluble dans les métaux doit être bien connue. La formation de tritium est à prendre en compte pour la radioprotection. Ces gaz peuvent former des bulles dans l'épaisseur des structures et contribuer à leur fragilisation.

1.2- Energies des particules incidentes

Quelle énergie pour les particules incidentes ? Le choix autour de 1 GeV pour le faisceau de protons de l'accélérateur vient de l'optimisation du nombre de neutrons produits. Si on trace le nombre de neutrons produits par proton en fonction de l'énergie des protons ce nombre ne cesse de croitre (Fig 2 haut). Cette courbe s'infléchit cependant en s'écartant de plus en plus d'une croissance linéaire car avec l'énergie, les seuils de production de mésons de plus en plus lourds sont dépassés, et une part croissante de l'énergie du faisceau se perd dans ces réactions. Il est plus réaliste de tracer le nombre de neutrons produits par unité d'énergie (Watt) du faisceau. On voit alors (Fig 2 bas) que l'on obtient le nombre maximum de neutrons par Watt dépensés dans le faisceau entre 0.8 GeV et 1.6 GeV. Ce maximum est assez plat et dépend évidemment un peu de la nature, mais surtout de la géométrie de la cible de production.



P beam on a thick Pb target Fig 2 : Evolution typique de la multiplicité des neutrons par proton incident (haut) ou par unité d'énergie dans le faisceau (bas) en fonction de l'énergie du faisceau de protons sur une cible épaisse de plomb.

> Les arguments économiques ont tendance à tirer la valeur retenue vers les basses énergies. Il semble actuellement douteux que l'on conçoive des systèmes à plus de 1.6 GeV.

> Une étape intermédiaire passe par un d'énergie démonstrateur inférieure. Actuellement le projet MYRRHA (faisceau de 350 MeV qui pourrait être ensuite porté à 600 Belgique MeV) en semble réaliste et prometteur.

> Pour l'application aux réacteurs hybrides, l'étude de la spallation est donc justifiée jusqu'à une énergie de 1.6 GeV environ et à toutes les énergies inférieures pour des protons et des neutrons incidents pour les réactions secondaires dans les cibles épaisses.

En détaillant les caractéristiques de la spallation, il faut ajouter pour les réactions secondaires les

réactions induites par des pions entre ~20 MeV et ~600 MeV et les réactions induites par des ions légers (du deuton aux alphas) jusqu'à 150 MeV environ.

2- Caractéristiques de la spallation

2.1- Définition de la spallation

Nous avons utilisé jusqu'ici le terme de spallation sans le définir. Historiquement il a été introduit par G.T. Seaborg dans son travail de thèse (1937). L'intérêt est alors de produire des neutrons en soumettant une cible de noyaux lourds à un flux de particules accélérées. Ces neutrons de spallation arrachés au noyau cible sont plus nombreux par réaction que les neutrons produits dans une fission. Ils sont contrôlables par le pilotage du faisceau accéléré, mais ils sont répartis dans un large spectre énergétique et sont plus couteux que les neutrons provenant des réactions en chaine dans les réacteurs.

Déjà l'ambigüité s'installe. Les neutrons de spallation au sens strict d'arrachage sont les neutrons ayant une énergie voisine de celle du faisceau et sont au nombre de 3 à 4 par réaction. La même réaction conduit aussi à une excitation du noyau bien au dessus du seuil d'émission de nucléons. Il s'en suit une forte émission de neutrons (une dizaine par réaction) pendant la phase de désexcitation du noyau. L'émission de ces neutrons est décrite par un processus statistique ; l'évaporation du noyau excité. Ils ont des énergies de 20 MeV au plus. Faut-il les appeler aussi neutrons de spallation ? Les avis diffèrent et dépendent du contexte.

Actuellement, on parle des réactions de spallation ou des processus de spallation pour désigner l'ensemble des réactions nucléaires entre une particule légère, proton, neutron, au plus α , et d'une énergie au moins égale à 100 MeV par nucléon et un noyau « lourd », c'est-àdire d'une taille substantiellement plus importante que celle du projectile.

Nous adoptons ici cette dénomination fourre-tout, aux limites vagues, mais commode pour désigner cet ensemble de réactions.

La spallation n'est pas UNE réaction particulière, mais un ensemble de processus nucléaires ou de réactions bien spécifiées. Elle recouvre en particulier l'ensemble des voies finales possible.

Elle peut se définit également comme domaine de validité des modèles de spallation qui s'attachent à décrire globalement les observables dans de grands domaines de variation des variables (énergie, angles, multiplicités etc.) et pour toutes les voies finales possibles.

2.2- Description

Un proton dans le domaine du GeV a une longueur d'onde associée $(p=h/\lambda)$ voisine de la taille d'un nucléon et la distance moyenne d'interaction NN (en tenant compte du blocage du au principe de Pauli dans le noyau) est grande par rapport à la distance entre deux nucléons. Ceci conduit à l'idée d'une description de l'interaction proton-noyau par une série d'interactions indépendantes entre nucléons.

Par une suite de collisions NN successives, le nucléon du faisceau va progressivement perdre sa grande énergie cinétique, extraire du noyau un nombre variable de nucléons d'une énergie comparable à la sienne, et mettre en mouvement par des interactions en cascade un nombre important de nucléons du noyau. Il va en résulter après un temps assez court (30-50 fm/c) un noyau diminué de quelques nucléons et excité : le noyau *remnant*. Lors d'une phase plus longue (150-200 fm/c), ce noyau va se désexciter par différents processus en compétition dépendant de sa nature, de l'importance de l'énergie d'excitation et du moment angulaire qu'il a acquis pendant la phase de cascade. Il peut émettre des particules (protons, deutons, α etc., mais surtout neutrons) par évaporation. Il peut aussi fissionner ou encore se fragmenter en de multiples morceaux (multifragmentation) lorsque l'énergie emmagasinée est très grande. En fin de désexcitation, une émission concurrentielle de photons peut être considérée. Un faisceau de noyaux légers est décrit à ce stade comme un ensemble de nucléons indépendants, éventuellement corrélés dans l'espace. Cette description a été proposée par R. Serber en 1947 dans un papier fondateur des modèles de spallation (Ref 2).



Fig 3 : Représentation schématique d'un processus de spallation au niveau élémentaire (dans le cadre) et avec transport des particules (ou cascade internucléaire) à l'extérieur du cadre.

On perçoit déjà les forces et les faiblesses d'une telle description. L'approche semiclassique autorise une

gestion facile de la géométrie et une approche en Monte-Carlo permettant la génération d'un grand nombre de réactions qui parcourent les différents domaines de variation des variables du problème (paramètre d'impacte, point d'interaction dans le noyau, angle de diffusion NN, choix des voies de désexcitation etc.). Le modèle est un générateur d'événements physiques spécifiant toutes les particules et noyaux produits. Il donne statistiquement toutes les corrélations et toutes les voies finales spécifiques imaginables. Il donne à ce stade toutes les sections efficaces élémentaires n fois différentielles si on le souhaite.

Mais la validité du traitement en collisions indépendantes se dégrade au cours du développement de la cascade. Quel critère faut-il adopter pour passer aux modèles de désexcitation qui supposent une thermalisation du noyau ? Les expériences montrent que des noyaux légers d'une énergie incompatible avec une évaporation sont également émis en nombre non négligeable. Comment décrire leur formation ?

Pour un calcul dans une cible épaisse, il suffit alors de propager les particules produites (p, n, π , d, α etc.) et de recommencer le calcul de spallation en fonction des sections efficaces de réaction, de la nature et de la densité des différents noyaux. En dessous d'une certaine énergie E, les modèles de spallation ne sont plus justifiés et il faut faire appel à des modèles plus appropriés ou directement aux données expérimentales de diffusion élastique et de production de quelques particules légères. La stratégie expérimentale est possible à basse énergie car les voies ouvertes sont peu nombreuses. Elle avait lieu traditionnellement en dessous de 20 MeV pour les neutrons dans le code LAHET-MCNP (Los-Alamos).

Un effort récent et concerté de la communauté en particulier en Europe (projet HINDAS 2000-2005) a permis de monter cette limite à 150 MeV, une valeur plus raisonnable pour la validité des modèles.

La stratégie consiste à mesurer les sections efficaces doublement différentielles des différentes voies ouvertes pour des protons et des neutrons incidents et de les rassembler dans des tables (EXFOR par exemple). Avec des modèles adaptés à ces énergies on peut alors vérifier leur validité, raffiner éventuellement quelques paramètres, repérer les données expérimentales s'écartant d'un comportement raisonnablement doux et régénérer par un lissage et une interpolation basée sur la physique les données manquantes que l'on rassemble alors dans des bases plus complètes telles ENDF, JEFF ou JENDL . C'est le processus

d'évaluation. L'ensemble des modèles développés et rassemblés récemment dans le code TALYS permet ce travail (Voir le cours de E. Bauge dans cette école).

Les codes de transport gèrent la géométrie des systèmes complexes, les différents matériaux, l'appel au modèle d'interaction le plus appropriée ou aux bases de données évaluées. Nous avons cité LAHET-MCNP. Une version plus moderne est maintenant MCNPX. Citons également les codes HERMES (Jülich) et GEANT (CERN).

Une comparaison avec des données expérimentales obtenues à partir de système complexes (expériences dites « intégrales ») permettent un test global de cette longue chaine de calculs.

2.3- Spectres typiques et ordres de grandeur

de ces neutrons en fonction de leur énergie (bas).

Les neutrons d'évaporation ont moins de 20 MeV, une grande section efficace (quelques b/MeV) et une grande multiplicité (10-15 par réaction). Leur distribution angulaire est quasi isotrope. Elle est légèrement perturbée par le mouvement vers l'avant des noyaux remnants. Les neutrons de cascade ont toutes les énergies possibles jusqu'à l'énergie du proton incident (échange de charge). Ils peuvent avoir aussi des énergies très petites (nucléon de recul des interactions NN). Ils sont d'autant plus émis vers l'avant qu'ils sont énergiques.



cascade et d'évaporation (haut) et section efficace Fig 5 : Sections efficaces comparées de production de différents types de particules en fonction de leur énergie en échelle log (haut) ou linéaire (bas).

Le spectre des particules chargées est fortement coupé à basse énergie par la barrière coulombienne (dépend donc du Z du noyau cible). Par contre, en p+Pb les protons dominent sur les neutrons à haute énergie. Les chargés légers entre 10 et 100 MeV contribuent significativement à la section efficace et les pions au dessus de 100 MeV.

Les particules de cascade sont peu nombreuses mais elles véhiculent la majeur partie (~ 85%) de l'énergie apportée par le faisceau. Sur 1 GeV, seulement 140 MeV restent en moyenne en excitation du *remnant*.

type	<e></e>	Fraction dans la
		cascade
n	355 MeV	85 %
р	364 MeV	98 %
π	58 MeV	100 %
lcp	69 MeV	80 %
E*	137 MeV	

Table 1 : Pour un proton de 1 GeV sur cible de Plomb, énergie moyenne emportée par chaque type de particule et fraction de cette énergie emportée pendant la phase de cascade. Les lcp sont ici les d, t 3He et α . La quantité E* est l'énergie moyenne d'excitation du noyau *remnant*.



Fig. 6 : Distribution typique de l'énergie d'excitation du noyau *remnant* (protons de 1 GeV sur cible de Plomb). C'est l'énergie dissipée ensuite dans la désexcitation par évaporation ou par combinaison fission et évaporation des produits de fission.

3- Quelques techniques de mesure

Le but de ce chapitre est d'avoir une vision globale des techniques expérimentales mises en jeu et dont on trouvera des exemples dans la revue des expériences récentes qui suit.

Les faisceaux de particules chargées nécessaires aux mesures dans le domaine de la spallation sont disponibles auprès des accélérateurs ; en Europe, essentiellement Louvain, Groningen, Uppsala, Jülich et PSI (Villigen). Le PS du Cern pourrait également fournir des faisceaux de protons, mais il est difficilement accessible. Pour les expériences en cinématique inverse, les faisceaux d'énergie suffisante ne sont disponibles qu'à GSI.

A basse énergie, les faisceaux de neutrons sont en général produits par réaction p+7Li-> n+X (Q= -1.64 MeV). A haute énergie (autour du GeV), la cassure d'un faisceau de deuton ou de 3He (Ref 3, Ref 4) sur une cible permet d'obtenir des faisceaux de neutrons raisonnablement monochromatiques. Un temps de vol est souvent utilisé pour mieux définir l'énergie du neutron incident.

La détection des particules chargées légères produites dans la cible ne pose pas de difficultés particulières. Aux basses énergies, on utilise des télescopes de jonctions Si-Li. Différentes épaisseurs de jonctions permettent d'assurer une identification des ions par corrélation entre les signaux de perte d'énergie (DE) dans des jonctions minces traversées par l'ion et des signaux proportionnels à l'énergie E de l'ion lorsque celui-ci est arrêté dans la jonction. Cette technique marche bien jusqu'à 100-150 MeV.

A plus haute énergie, on peut utiliser des scintillateurs plastiques (en combinant des mesures E-DE) ou des cristaux inorganiques (en analysant les réponses lentes et rapides). Les chambres à dérive et les « multi-wire proportional chambers » (MWPC) sont également utilisées pour la mesure des trajectoires (donc de l'angle de diffusion) et souvent associées à un dipôle magnétique (pour mesurer aussi le rapport P/Q entre l'impulsion et la charge de la particule). La mesure directe de la vitesse par un temps de vol apporte un complément d'information précieux. Ces techniques sont généralement utilisées lorsque l'ion est peu perturbé par la traversée de quelques mètres d'air.

Le comptage et l'identification des résidus légers et lourds est plus délicate. Deux techniques très différentes sont utilisées. Par irradiation de la cible dans le faisceau, on produit ces résidus dans la masse de la cible, leur énergie de recul ne leur permettant pas en général de s'échapper. Ces noyaux sont en général excités. Ils vont évoluer dans la carte (N,Z) des nucléides par radioactivité α , β et γ . La mesure précise des spectres de γ en fonction du temps et associée ou non à une spectrométrie de masse permet une identification d'un certain nombre de ces noyaux. La production directe n'est pas mesurable, mais le cumul d'une chaine de décroissance sur un noyau identifié peut être comparé aux modèles, les temps de décroissance étant bien connus. Pour un petit nombre de noyaux stables ou presque stables voisins et la production directe peut alors être mesurés.

La seconde technique, beaucoup plus lourde procède par cinématique inverse. Le noyau lourd « cible » doit être accéléré et envoyé sur le noyau léger (hydrogène, deutérium etc.). Les noyaux résiduels sont alors produits avec une grande vitesse voisine de celle du faisceau et peuvent être identifiés et comptés par les techniques de haute énergie évoqués ci-dessus. Les difficultés expérimentales sont liées à la fragilité de ces ions lourds : ionisation plus ou moins complète, évolution et transformation lorsqu'ils traversent de la matière.

La détection des neutrons pose des problèmes particuliers. Comme particule neutre, le neutron est souvent détecté par les particules chargées qu'il met en mouvement. L'efficacité des détecteurs est en général assez faible et fortement dépendante de l'énergie des neutrons. L'étalonnage précis et la mesure de l'efficacité sont donc toujours des points délicats, source de la majeure partie des erreurs. La collimation des neutrons est également délicate et rend parfois difficile la bonne connaissance de l'angle solide de détection. On utilise fréquemment des scintillateurs liquides jusqu'à des énergies de 100 à 200 MeV pour identifier et compter les neutrons. L'analyse des signaux analogiques permet une discrimination indispensable entre les neutrons et les gammas. La mesure d'un temps de vol (entre la cible et le détecteur) permet ensuite la mesure de l'énergie. Avec de très grandes bases de temps de vol, une mesure précise des grandes énergies est possible, mais l'angle solide très faible limite en général les sections efficaces accessibles.

Une technique fréquemment utilisée est l'échange de charge (réaction np->pn) sur un matériau hydrogéné ou dans une cible secondaire d'hydrogène liquide. C'est ensuite le proton que l'on détecte et dont on mesure l'angle d'émission (angle de diffusion de la réaction np) et l'énergie.

Enfin les détecteurs type « boules à neutrons » sont des détecteurs originaux et très utiles.

Un tel détecteur est constitué d'un grand volume de scintillateur liquide qui entoure complètement la cible. Les neutrons ralentis dans le scintillateur finissent au bout de quelques dizaines de micro-secondes par exciter des noyaux de gadolinium présents dans le scintillateur et dont on détectera finalement la désexcitation γ (en fait les électrons Compton) avec des photomultiplicateurs. Ce détecteur fournit la multiplicité des neutrons produits pour chaque réaction, donc finalement des distributions de multiplicités. Mais l'énergie des neutrons est perdue et les corrections d'efficacité sont délicates.

4- Mesures récentes en dessous de 200 MeV.

Pour une revue des expériences antérieures dans le domaine de la spallation, on peut se référer à la thèse de S. Vuillier (Ref 5).

Un très grand nombre d'informations utiles à ce cours et de références aux travaux récents sont disponibles dans le rapport HINDAS-2005 (Ref 6).

Expériences avec le dispositif SCANDAL à Uppsala (TSL) :

Un faisceau de neutrons de 96 MeV (FWHM=1.2 MeV) et basé sur la réaction p+7Li->n +X (Ref 7) a été mis au point dans ce laboratoire.



Fig 7 : Faisceau de neutrons de TSL (Ref 7)

Associé au dispositif de mesure SCANDAL, ce dispositif a permis la mesure délicate de diffusions élastiques de neutrons sur une grande série de noyaux (p, d, C, O, Fe, Yb et Pb) Ref 8. Les auteurs pense que cette technique serait utilisable jusqu'à 200 MeV.

SCANDAL (SCAttered Nucleon Detection AssembLy)



Fig 8 : Dispositif SCANDAL (Ref 8).

Les neutrons diffusés par la cible principale induisent un échange de charge (np->pn) dans le « trigger scintillator 1 ». La trajectoire des protons et leur énergie sont mesurées par les chambres à dérive et le CsI. Ceci permet de remonter à l'angle de diffusion du neutron et à son énergie. Deux bras basés sur le même principe permettent une plus grande efficacité de mesure.



Fig 9: Diffusion élastique de neutrons mesurée sur le plomb et le carbone (Ref 8). La normalisation absolue annoncée est de 3% ce qui est remarquable.

En utilisant le même faisceau de neutrons et avec un dispositif de mesure modifié (Fig 10), une collaboration Uppsala, IN2P3, Louvain (Ref 9) a mesuré les réactions (n,n') et (n,xn) sur le fer et le plomb. Ces résultats sont en cours d'analyse.



Fig 10 : Dispositif utilisé pour l'étude des réactions (n,n') et (n,xn). Entre 10 MeV et 50 MeV, les neutrons sont détectés par un détecteur basé sur scintillateur liquide NE213 de la collaboration DEMON. Entre 40 et 100 MeV, le neutron est détecté dans un bras du dispositif SCANDAL. La cible de conversion (np) a été remplacée par un sandwich de convertisseurs et de chambres MWPC pour une efficacité accrue.

Toujours avec le même faisceau, une autre expérience (collaboration Uppsala, IN2P3, Louvain) s'est attachée à mesurer les particules chargées (p, d, t, 3He et 4He) produites sur des cibles de Fe, Pb et U (Ref 10). Une partie des sections efficaces doublement différentielles est montrée Fig 12.



Fig 11 : Dispositif utilisé (Ref 10) pour la détection des chargés légers et constitué de 8 télescopes dans une chambre à diffusion. Les protons étaient détectés par un bras du dispositif SCANDAL

FIG. 3. MEDLEY detection array.



Fig 12: Sections efficaces doublement différentielles obtenues avec des neutrons de 96 MeV sur des cibles de Fe, Pb et U (Ref 10).

Au cyclotron de Louvain, à plus basse énergie, un faisceau de neutrons (FWHM de 2 MeV pour des neutrons de 63 MeV) à également été mis en place à partir de la réaction p+7Li->n+X. En mesurant le temps de vol du neutron produit, les mesures ont été faites à 10 énergies différentes du neutron incident entre 25 et 63 MeV sur des cibles de Fe, Co, Pb, Bi et U. Les chargés légers (p,d, t et He) ont

été détectés grâce à des télescopes (scintillateurs et CsI) dans une chambre à diffusion (Fig 13). Une seconde chambre à diffusion

permettait une normalisation et un monitorage par la diffusion élastique np. A noter que les 3He peu nombreux ne sont pas séparés des 4He dans cette expérience.

Des expériences similaires ont également été réalisées avec des protons incidents sur C, N, O, Al et Pb (Ref 12), ce qui donne un excellent ensemble d'observables à ces énergies.



Fig 13 : Dispositif expérimental utilisé à Louvain (Ref 11) pour les expériences avec des neutrons incidents (gauche), et exemple d'un bidimensionnel d'identification des chargés légers (ci-dessus).



FIG. 1. General layout of the fast neutron facility at the Louvain-la-Neuve Cyclotron (not at scale).



Fig 14 : Sections efficaces doublement différentielles pour la production de p, d, t et He (de gauche à droite) à 20° à partir de neutrons entre 25 et 63 MeV (énergie indiquée dans chaque figure) sur cible d'uranium. Les points expérimentaux (Ref 11) sont comparés à un calcul TALYS (Ref 13) en continu et GNASH (Ref 14) en pointillé.

Une partie de cet ensemble de données est montré dans la figure 14. La comparaison avec les codes de basse énergie TALYS et GNASH permet d'apprécier ce que l'on peut attendre de ces calculs avant ajustement des paramètres du modèle optique. On voit aussi les progrès réalisés par le code TALYS plus récent que GNASH.

A plus haute énergie (135 MeV), des expériences ont été réalisées à partir du faisceau de protons du synchrocyclotron de Groningen (KVI). Les productions de particules chargées légères ont été mesurées sur cible de Fe, Pb et U (table 2) ainsi que des distributions en énergie des protons émis intégrées sur les angles (Ref 6).

Cible	p<131 MeV	d<121MeV	t<127MeV	3He<109MeV	4He<119MeV
56Fe	914	93	14	10	31
208Pb	1175	169	59	10.5	84
natU	970	139	51	9.1	60

Table 2 : Sections efficaces (mb) de production de p, d, t ,3He et 4He d'énergie inférieure à la valeur indiquée dans la première ligne pour des protons de 135 MeV sur les cibles mentionnées dans la première colonne.



Une détection de large couverture angulaire a été utilisée dans ce laboratoire pour la mesure des protons vers l'avant et vers l'arrière à partir de protons de 190 MeV sur Fe, Pb et U.

Fig 15 : Dispositif expérimental utilisé (Ref 15) pour la détection des protons à KVI. La boule de plastic est constituée de détecteurs

CaF2 (signal DE) et de scintillateurs (signal E) pour la détection entre 91° et 160°. Le détecteur SALAD (DE et E par plastiques scintillants) identifie les protons entre 5° et 30°.



Fig 16 : Distribution angulaire des protons (Ref 15) mesurée à l'aide du dispositif décrit dans la figure 15.

distribution angulaire La des protons est comparée (Fig 16) à un calcul de cascade intra nucléaire (INCL) en trait noir continu. On voit clairement que cette approche donne seulement l'ordre de grandeur de la section efficace et de la variation avec l'angle. Il est intéressant de noter que la diffusion élastique (recul cohérent du noyau cible) n'est pas contenue dans ce type de modèle. Il faut

donc le compléter à petit angle par un calcul spécifique basé sur le modèle optique (courbe pointillée bleue).

En conclusion de cette partie, on voit qu'il y a une bonne production de données expérimentales cohérentes et systématiques dans la région 30-200 MeV grâce aux efforts combinés des laboratoires européens et à l'action concertée HINDAS. Ces données ne sont pas toutes analysées et quelques expériences complémentaires devraient encore exploiter pleinement les potentialités offertes par des postes expérimentaux originaux et ingénieux. Ces données vont permettre de tester les modèles de basse énergie, de construire les tables évaluées dont les codes de transport ont besoin, et de préciser les limites de validité des codes de spallation basés sur la diffusion NN libre et sommée de façon incohérente.

5- Mesures récentes au dessus de 200 MeV.

L'effort expérimental récent dans ce domaine se répartit grossièrement sur quatre catégories.

A Saclay (LNS) une campagne de mesure des sections efficaces doublement différentielles de production de neutrons avec des protons de 0.8, 1.2 et 1.6 GeV sur Al, Fe, Zr, W, Pb et Th. Ces mesures ont été réalisées sur cibles minces et sur des cibles épaisses (ces dernières n'étant hélas toujours pas publiées quoique jugées parfaitement contrôlées par les auteurs).

A Jülich (COSY), les mesures réalisées avec la boule à neutrons NESSI complétée par la boule de détecteurs silicium BSiB et quelques télescopes de jonctions à permis une étude détaillée de la partie basse énergie des spectres (multiplicité des neutrons, sections efficaces doublement différentielles des protons et des chargés légers pour des protons de 1.2 et 2.4 GeV sur une variété de cibles minces et épaisses).

A Darmstadt (GSI) en cinématique inverse, des mesures directes et complètes des sections efficaces de production des différents isotopes résiduels produits dans l'interaction de protons et de deutons avec des noyaux U, Pb, Fe et Xe principalement à 1 GeV, mais aussi à 500 MeV et entre 300 MeV et 1.5 GeV pour Fe et Xe.

Enfin les expériences d'irradiation conduites depuis des années auprès de nombreux accélérateurs permettent de connaitre précisément l'évolution des sections efficaces de production de noyaux résiduels dans une large gamme d'énergie (10 MeV-2.6 GeV) du proton incident. Ces expériences sont conduites en Europe par le professeur Michel et son équipe et en Russie par l'équipe de Yu. Titarenko (Ref 16).

Citons au Japon quelques expériences récentes utiles pour ce domaine :

En π (0.87, 2.1 GeV)+ Fe, Pb, la mesure de d2 σ /d Ω dE pour les neutrons (Ref 17) et en p (300, 392 MeV) + C, Al, Nb, la mesure de d2 σ /d Ω dE pour les protons (Ref 18).

Nous allons illustrer maintenant quelques unes de ces expériences les plus significatives en insistant sur le coté expérimental. D'autres résultats seront comparés aux modèles plus loin dans ce cours.

L'appareillage utilisé à COSY par la collaboration NESSI est illustré Fig 17.



Fig 17 : Dispositif NESSI. Il comprend une sphère contenant le scintillateur liquide (BNB), une sphère interne de Si de 500 µm d'épaisseur et 6 télescopes constitués de 3 jonction Si et d' un cristal de CsI.

Fig 18 : Principe de fonctionnement de la boule à neutrons (BNB).



Le principe de fonctionnement de la boule à neutrons est illustré dans la figure 18. Ces figures sont extraites des publications de la collaboration (Ref 19 et 20).

Un tel dispositif permet une étude détaillée de la partie de basse énergie des spectres des particules légères produites dans la spallation. La boule à neutrons donne la distribution de multiplicité des neutrons émis pendant l'évaporation. La boule de Si complétée par une mesure de temps de vol permet la mesure de la multiplicité des particules chargées légères de basse énergie. Ces observables sont évidemment fortement corrélée avec l'énergie d'excitation du noyau *remnant*. Les télescopes permettent l'identification des ions légers jusqu'au Be-B et jusqu'à des énergies de 150-200 MeV.

Ce dispositif permet d'étudier la transition entre la cascade intranucléaire et l'évaporation ou désexcitation du noyau *remnant* (voir Fig 4 et 5). On appelle également cette région zone de pré-équilibre. Elle est particulièrement délicate et intéressante puisqu'elle se situe à la limite

de validité des modèles de cascade (énergie très basse des nucléons), mais avant que le noyau ne soit réellement thermalisé pour pouvoir que l'approche statistique soit totalement justifiée. Quelques résultats (Ref 21) sont illustrés dans les figures suivantes : des distributions de multiplicité de neutrons mesurées en proton de 1.2 GeV incidents sur différentes cibles (Fig 19) ainsi que la section efficace de production d'hélium (Fig 20A) et de particules chargées légères (Fig 20B).



Fig 20 (A gauche, B droite) : A gauche, section efficace de production d'hélium sur différentes cibles (Zt) pour des protons de 1.2 GeV (Ref 21 « this paper ») comparée à différents modèles de spallation. A droite multiplicité moyenne des chargés légers pour lesquels on a extrait la composante évaporative et présenté le reste comme « pré-équilibre ».

On peut noter sur ces expériences l'excellent pouvoir prédictif du couplage de calculs INCL2+GEMINI. Cependant INCL2 traite les noyaux comme des sphères à bord dur. La

version INCL4.2 utilise des densités nucléaires réalistes en Wood-Saxon. Nous verrons que ceci est indispensable pour reproduire les productions de résidus lourds mesurés à GSI, mais dégrade la production d'hélium présentée ici (Fig 20A) ou la production de protons de basse énergie.

La production globale (multiplicité moyenne) de neutrons a pu être mesurée sur des cibles épaisses (Fig 21A et B).



Fig 21 (A gauche, B droite) : Mesure par la collaboration NESSI de la multiplicité moyenne des neutrons produits par proton incident de 1.2 et 2.5 GeV en fonction de l'épaisseur de la cible de Hg, Pb ou W (à gauche). Multiplicité moyenne des neutrons par proton et par GeV dans le faisceau en fonction de l'énergie du faisceau sur un cylindre de Pb de 15cm de diamètre et de 35 cm d'épaisseur à droite. Cette figure présente aussi des données prises au CERN (PS208) et avec une autre boule à neutrons (ORION).

On peut noter la bonne prise en compte de la géométrie de ces cibles épaisses et donc du transport des particules avec le code HERMES. Les lignes pointillées (Fig 21A) prennent en compte les coupures du détecteur. A droite, la courbe en traits pleins est calculée avec la géométrie de la cible (15cm ;35cm) utilisée dans l'expérience. La géométrie de l'expérience ne permettait pas de loger des cibles plus épaisses, et donc ce résultat ne donne pas l'optimum de production des neutrons. La courbe en tirets (Fig 21B) est un calcul prédictif avec un diamètre de 20 cm et une longueur de 60 cm. On peut aussi se reporter à la discussion de la figure 2.

La mesure précise du spectre d'émission des neutrons en fonction de l'angle d'observation et de l'énergie des neutrons a été conduite au LNS pour des protons incidents de 800 MeV, 1.2GeV et 1.6 GeV sur des cylindres de Fe, W and Pb de différentes dimensions. Les neutrons passant à travers 10 collimateurs épais répartis en angle autour de la cible étaient détectés dans des scintillateurs liquides (NE213) et leur énergie mesurée par temps de vol (voir ref 4 et 22 pour les détails expérimentaux). Les zones de la cible vues à ces différents angles sont indiquées sur la figure 22 en différenciant la zone de plein angle solide et la zone de pénombre et associées à quelques résultats expérimentaux. On peut voir que le code de transport LAHET+MCNP faisant appel au modèle de physique INCL4 couplé avec ABLA donne de très bons résultats dans toutes les zones du calcul. Précisons que la géométrie de l'expérience est évidemment prise en compte, mais qu'il n'y a pas de normalisation artificielle du calcul.



Fig 22 : Mesure réalisée au LNS (Ref 6) des neutrons produits par des cibles épaisses de différentes géométries et calcul de ces spectres (INCL4+ABLA et transport de LAHET+MCNP).

La technique expérimentale utilisée à GSI mérite d'être un peu détaillée. Le synchrotron délivre des faisceaux d'ions lourds (Pb de 1 GeV par nucléon par exemple). Sur une cible d'hydrogène liquide ceci est équivalent dans le centre de masse à des protons de 1 GeV sur cible fixe de plomb. Par-contre, toutes les particules de désexcitation (et en particulier les noyaux résiduels qui restent habituellement dans la cible) se trouvent groupés dans l'espace autour de la grande vitesse du faisceau. On les collecte (intégralement pour la partie évaporation et partiellement pour la partie fission) dans un spectromètre magnétique (le FRS fig 23) qui permet de mesurer leur P/Q. En ajoutant une grande base de temps de vol (36 mètres entre l'image intermédiaire et l'image finale) et des chambres à ionisation, on peut identifier sans ambigüité leur charge, leur masse en leur énergie. La grande résolution du spectromètre permet de transformer les vitesses des résidus dans le système du faisceau au repos et de distinguer les noyaux produits par évaporation (de très petite vitesse dans ce système) des produits de fission (groupés autour d'une vitesse de 1.5 cm/ns à cause de la répulsion coulombienne). Voir la figure 24.



Fig 23 : Dispositif FRS utilisé à GSI pour les mesures de résidus en cinématique inverse.

A part les noyaux produits exactement à la même valeur P/Q que le faisceau, la totalité des noyaux résiduels est accessible à la mesure au dessus d'une section efficace minimale (Fig 25). Les noyaux étant détectés \sim 250 ns après leur formation, seules les décroissances radioactives de durée de vie compatibles avec ces temps peuvent les affecter.

La bonne mesure de la vitesse donne aussi accès aux énergies de recul des noyaux résiduels dans les cibles génératrices de DPA (dommages aux matériaux). Enfin un calcul d'évolution (décroissances) permet de connaitre expérimentalement l'accumulation d'espèces chimiques dans les cibles irradiées.



Fig 24 : Vitesses des résidus reconstruites dans le système du faisceau (ici 238U à 1 GeV par nucléon sur proton ref 23). Les courbes de niveau sont des comptages. On voit très bien la transition entre des produits de fission purs (les manganèses) et des résidus d'évaporation (rhénium, mercure).

Fig 25 : Sections efficaces isotopiques des noyaux résiduels produits par du 208Pb (1 GeV par nucléon) sur hydrogène (ref 24). Les niveaux représentent des valeurs de sections

200

A



Fig 27 : Sections efficaces de production de chaque isotope en 208Pb (1A GeV)+p, à gauche pour les noyaux résiduels les plus lourds, à droite pour un échantillonnage de produits de fission (Ref 24). Les courbes sont des calculs couplant INCL4 et ABLA. Les noyaux lourds sont bien reproduits par la cascade dans laquelle une valeur réaliste des densités nucléaires était essentielle. L'énergie d'excitation correcte en fin de cascade et le traitement détaillé de la fission d'ABLA donne une très bonne valeur des sections efficaces des produits de fission.

Les expériences d'irradiation réalisées à de nombreuses énergies permettent un test détaillé des modèles concernant leur dépendance en énergie. Le code INCL4+ABLA (cumulé en suivant les chaines de décroissance) suit raisonnablement les fonctions d'excitation d'un échantillonnage de noyaux aux comportements très différents (Fig 28). Il est à noter (Fig 29) que les mêmes produits de fission produits sur des cibles « légères » comme Ta et W sont sous estimées d'un facteur 2 à 3 alors qu'ils sont bien calculés sur des cibles lourdes (Bi et Pb).

Pour terminer cette revue, nous mentionnerons l'expérience originale de mesure de la production de résidus dans la masse d'une cible massive (Ref 27). Cette mesure faite à Dubna avec un faisceau de protons de 660 MeV est réalisée en analysant des échantillons irradiés dans un massif de plomb de 16 cm de diamètre et 31 cm de long. Le taux de production de Bi en fonction de la distance entre la face d'entrée du faisceau et la position de l'irradiation peut être ainsi obtenu permettant un test global des flux de particules (énergie et nature) dans la cible (Fig 30).



p+Bi p+Pb P+Wp+Ta 10 ₃₀Zn 65 ₃₀Zn 65 ₃₀Zn 65 ₃₀Zn 65 Section (mb) 10 Cross ? 33<mark>As 74</mark> ₃₃As 74 "As 74 ₃₃As 74 1 10 10 10 ₃₄Se 75 uSe 75 _{з4}Se 75 ₃₄Se 75 1 10 10 10³ 10² 10⁵ Proton energy (MeV) 10² 10³ 10³ 10² 10²

Fig 28 : Section efficace de production de différents isotopes en fonction de l'énergie des protons irradiant une cible de plomb (Ref 26). La courbe rouge est un calcul INCL4+ABLA.

Fig 29 : Section efficace de production d'isotopes de fission (Ref 26) en fonction de l'énergie des protons sur Bi, Pb, W et Ta. La courbe rouge est un calcul INCL4+ABLA, la courbe bleue un calcul Bertini+Dresner(Atchison).



Fig 30 : Production de ²⁰⁷Bi (exprimée en Becquerels par grammes) en fonction de la profondeur dans un massif de plomb irradié par un faisceau de protons de 660 MeV (Ref 27). Les points expérimentaux sont comparés à divers calculs.

B- Modélisation de la spallation



Fig 31 : Quelques pistes pour le classement des modèles de spallation (au sens large d'interaction particule légère-noyau).

Dans la figure 31, nous avons essayé de donner quelques pistes de classement pour les différents modèles liés à la spallation.

Selon une échelle en énergie du faisceau de protons, au dessus de 100-150 MeV, l'image de la réaction procédant par une suite de collisions indépendantes est justifiée. Pour cela la longueur d'onde associée au projectile (λ =h/p) doit être plus faible (ou de l'ordre) de la longueur d'interaction (Λ =1/p. σ .f). Dans cette formule, p est la densité nucléaire, σ la section efficace de réaction nucléon-nucléon et f un facteur plus petit que 1 et qui tient compte du blocage de Pauli. En effet, les états nucléaires étant occupés, il en résulte que dans le noyau, la longueur d'interaction est plus grande qu'à l'état libre. Ces conditions expliquent la possibilité (et le succès) d'approches type Monte-Carlo dans lesquelles on calcule de façon classique une suite de collisions NN dans le noyau gouvernées par le section efficace libre NN en tenant compte de la densité nucléaire (le noyau est un milieu sans niveaux d'énergie) et du blocage de Pauli qui reste l'ingrédient indispensable provenant de la mécanique quantique. La présence d'un potentiel moyen est également indispensable pour tenir compte de l'énergie de liaison des nucléons à l'intérieur d'un espace réaliste.

Au dessus de 150-200 MeV, la voie inélastique de production d'un pion s'ouvre et prend de l'importance en montant en énergie. Elle doit être prise en compte ce qui peut se faire sans

trop de difficulté. Une nouvelle particule le pion se propage. Son interaction est également prise en compte (interactions indépendante avec un nucléon passant en général par une résonance $\Delta 33$ (1232 MeV)). Se pose alors la question du potentiel vu par les pions. Avec quelques précautions, cette image tient jusqu'à 2 ou 3 GeV. On peut imaginer continuer ce jeu en affinant l'interaction pi-nucléon (passage par toute une série de résonances baryoniques) et en introduisant les voies à deux pions (mésons ρ et σ) dans les voies inélastiques NN. Ou s'arrête cette image ? Probablement vers une dizaine de GeV, lorsque la structure interne des hadrons devient importante.

En partant de quelques dizaines de MeV pour le faisceau, on a au contraire une grande importance de la voie élastique (faisceau-noyau) et des niveaux excités du noyau de recul donc de la structure du noyau. Une partie de la section efficace passe par un noyau composé qui cède la place aux réactions directes au fur et à mesure que l'énergie est plus importante et que les voies de réactions (p,xn), (p,xp), production de chargés légers s'ouvrent. Les techniques de calcul passent par le modèle optique, les voies couplées, les ondes distordues (DWBA) et sont explicitées dans le cour de E. Bauge.

Entre ces deux approches, ce que l'on appelle le pré-équilibre prend place et est ajouté en complément soit des calculs de basse énergie, soit des calculs statistiques de spallation.

L'idée est de prendre en compte statistiquement l'existence d'un grand nombre de niveaux discrets susceptibles de décrire une grande variété de configurations particules-trous. Ceci conduit aussi à des émissions de particules un peu anisotropes.

Les limites entre ces différentes approches sont floues. Il y a de large zones de recouvrement qui peuvent de plus dépendre de l'observable considérée.

1- Prééquilibre

On pourra se reporter à l'article historique de Griffin (Ref 28) ou aux approches plus modernes de Kalbach (Ref 29). Un schéma (fig 32) emprunté à C. Kalbach illustre ces





calculs.

Fig 32 : Schéma d'un calcul de pré-équilibre (d'après C. Kalbach).

Au début de l'excitation il n'y a que le nucléon énergique comme « particule » (p) au dessus du niveau de Fermi. Le noyau est dans son fondamental avec zéro « trous » (h). Des transitions permettent de passer à des configurations plus complexes 2p1h, 3p2h etc. On parte de configurations à un, deux excitons etc. L'évolution du système se fait en général en négligeant le retour en arrière (on évolue vers plus de complexité, c'est le « never come back ». Les ingrédients du calcul sont des transitions entre configuration (en général phénoménologiques), une densité de

niveaux (souvent description statistique réaliste de type Gilbert-Cameron), une probabilité d'émission à chaque étape (Weisskopf-Ewing par exemple) et une distribution angulaire de l'émission basée sur une phénoménologie bien assise sur les expériences (Ref 30). Cette distribution angulaire dite de Kalbach mélange une composante directe en $Exp(a.cos(\theta))$ et une composante symétrique autour de 90° :
$\alpha(\text{Exp}(a.\cos(\theta)) + \text{Exp}(-a.\cos(\theta))).$

Il existe de nombreuses variantes. Les approches les plus modernes différentient neutrons et protons (modèles dits à 2 composantes) et prennent en compte l'appariement et les effets de couche.

Certains modèles de spallation (CEM de S. Maschnik notamment ou Bertini dit AVEC prééquilibre dans LAHET) branchent un tel modèle entre la cascade pure et la désexcitation du noyau thermalisé. Formellement, nous verrons que ces configurations sont naturellement traitées dans une cascade intranucléaire (à l'exception des niveaux discrets d'énergie), mais en fin de cascade, à des énergies de particules violant les hypothèses de diffusions NN indépendantes. De l'autre coté, pour brancher le pré-équilibre, il faut décider du nombre d'excitons ou de la configuration excitée de départ, et cette partie fortement phénoménologique apparait comme une possibilité d'ajustement (peut-être incontournable) des calculs de spallation.

2- Cascades intra-nucléaires

Les bases des calculs de cascade ont déjà été décrites (voir :caractéristiques de la spallation et modélisation de la spallation au début de ce chapitre). Les ingrédients de ces calculs (fig 33 et fig 34) sont le tir au hasard d'un paramètre d'impact, l'entrée de la particule dans le potentiel du noyau (avec ou sans réfraction ou distorsion coulombienne pour les chargés), une probabilité d'interaction basée sur NN libre et un milieu nucléaire assez réaliste (densité nucléaire dans l'espace géométrique et l'espace des impulsions). Ce milieu nucléaire ne prend jamais en compte la structure en couches du noyau. Le noyau est également non déformé. L'interaction nucléaire est paramétrisée en fonction de l'énergie. Elle différencie protons et neutrons. La distribution angulaire est également réaliste, paramétrisée sur les expériences NN. La production d'un pion passe en général par la formation d'une résonance $\Delta 33$ qui décroit ensuite en π -N. Les particules se propagent et peuvent soit être réfléchies à la surface soit sortir du noyau selon leur énergie. La barrière coulombienne et un coefficient de transmission sont pris en compte ainsi qu'une réfraction éventuelle avec plus ou moins de réalisme selon les modèles.



Fig 33 : Représentation schématique dans l'espace géométrique d'un calcul de cascade.

Avec la représentation en énergie (fig 34), le processus microscopique d'absorption d'une partie de l'énergie cinétique du projectile est clair. Les collisions NN successives excitent des nucléons du noyau hors de la mer de Fermi produisant des configurations particules-trous très

semblables formellement à celles des modèles de pré-équilibre. La différence essentielle est ici la non discrétisation de l'énergie (pas de niveaux).



Fig 34 : Représentation schématique du déroulement de la cascade en énergie. Le proton entrant perd son énergie en excitant des nucléons au dessus du niveau de Fermi (Ef) et en laissant des trous en dessous de ce niveau. Les particules chargées doivent passer une barrière coulombienne pour s'échapper.

Une bonne prise en compte du principe d'exclusion de Fermi est importante mais délicate et sujette à des variations entre les modèles. Au début du processus, la cible dans son état fondamental occupe tous ses états possibles en dessous du niveau de Fermi et la première interaction doit éjecter le nucléon de la cible au

dessus de ce niveau. Le modèle en couches nous apprend cependant qu'il existe des mélanges de configurations laissant la place pour quelques trous probables au voisinage du niveau de Fermi produits par quelques nucléons présents sur des niveaux légèrement plus élevés. Il est clair qu'au cours de la cascade des trous de plus en plus nombreux sont créés. La façon de les prendre en compte diffère entre les modèles. Aux extrêmes, on peut les traiter statistiquement de façon globale (la probabilité d'accepter un nucléon augmente avec le nombre de trous) ou de façon locale (on tient compte de l'emplacement des trous dans l'espace r).

Les caractéristiques essentielles de quelques modèles de cascade sont présentées dans la figure 35 due à J. Cugnon. Le milieu nucléaire peut être continu (le proton arrache un nucléon en fonction de son parcours et d'une loi de probabilité gouvernée par un libre parcours moyen mfp). Il peut aussi décrire explicitement tous les nucléons, l'interaction se faisant alors en fonction d'une distance minimale d'approche. La plus part des modèles traitent explicitement le déroulement dans le temps, mais le modèle de Bertini (ref 31) ne traitait que des lois de probabilité d'interaction.

Le critère d'arrêt peut être basé sur l'énergie encore disponible ou le temps ou déterminé de façon self consistante par le modèle lui-même (INCL4 ref 34). Le noyau final ou noyau *remnant* à la fin de la cascade est caractérisé au moins par sa nature (A et Z) et son énergie d'excitation (E*). Il peut aussi avoir une impulsion de recul et un moment angulaire intrinsèque.

Les modèles Bertini (ref 31), Isabel (Ref 32), INCL4 (ref 33 et 34) sont disponibles dans le code de transport LAHET-MCNP et le modèle PEANUTS (ref 35) dans KLUKA-GEANT. Le code INCL4 est en cours d'implantation dans GEANT4.

Nous citerons encore le code CEM2k de S. Maschnik également disponible dans LAHET. Il fait une large place à un modèle intermédiaire de pré-équilibre. Nous citerons également le modèle BRICK développé par H. Duarte à Bruyères-le-Châtel dont l'originalité est un traitement des équations du mouvement permettant des trajectoires plus réalistes des nucléons entre les interactions et un traitement naturel de la réfraction à la surface du noyau.

	BERTINI	ISABEL	INCL4	PEANUT
Scattering	continuous	continuous	collection of	collection of
medium			nucleons	nucleons
Density	3 concentric	15 concentric	Saxon-Woods	16 concentric
profile	spheres	spheres + depletion		
Collision	mfp^{a}	mfp^{α}	minimum distance	proximity
criterion			of approach	
Time structure	no	time steps	single time step	time steps
			between collisions	
Pauli	strict	strict	statistical	strict
blocking		(local)	(local in phase space)	
π production	through Δ	through Δ	through Δ	through Δ
	forward only ^b			and other resonances
π absorption	mfp^{c}	through Δ	through Δ	through Δ
behaviour	reflexion	reflexion	reflexion	?
at the surface	refraction	refraction	no refraction	
Stopping	maximum energy ^d	maximum energy ^d	self-	maximum
criterion			determined	$energy^d$
Residue	E^{\star}, J	E^{\star}, J, E_{rec}	E^{\star}, J, E_{rec}	E^{\star}

Fig 35 : Caractéristiques de différents modèles de cascade intra-nucléaire d'après J. Cugnon.

3- La désexcitation (évaporation)

Dans le cadre de la spallation telle que nous l'avons définie, la voie principale de désexcitation du noyau thermalisé est l'évaporation. Lorsque le noyau est suffisamment gros, elle est en compétition avec la fission. Même dans ce cas l'évaporation est présente, soit avant la fission, soit après fission pour évacuer l'énergie d'excitation des fragments de fission.

L'évaporation suppose que le noyau a une énergie d'excitation suffisamment répartie sur ses différents nucléons pour qu'un traitement statistique soit justifié. Seule va compter la densité des niveaux d'énergie, mais pas leur nature exacte. Il faut pour cela que l'énergie d'excitation soit notablement supérieure au seuil d'émission de particules. A noter qu'en fin d'évaporation on tombe cependant inéluctablement dans ce domaine. A l'autre extrême, il ne faut pas que l'énergie d'excitation soit trop grande. Les collisions d'ions lourds qui permettent d'explorer des excitations bien supérieures à celles mises en jeu ici, ont montré qu'au-delà de 3 MeV par nucléon l'émission séquentielle de nucléons (ou de particules légères) fait place à une fragmentation du noyau en une seule étape, ce que l'on a appelé « multi-fragmentation ».

Il faut remarquer que pour une même énergie de faisceau l'énergie d'excitation par nucléon d'un noyau A sera en gros proportionnelle à $A^{-2/3}$ (rapport entre une perte d'énergie proportionnelle au diamètre par le volume nucléaire proportionnel à A). Cette fonction décroit avec A, et donc pour une même énergie de faisceau, le régime de multi-fragmentation sera plus vite atteint dans les petits noyaux.

Le traitement de l'évaporation part du principe de la balance détaillée (elle-même basée sur l'invariance par renversement du temps de l'interaction forte). Elle stipule que la probabilité d'émission d'une particule a par un noyau de A nucléon (P_{Aa}) est reliée à la probabilité d'absorption de a par le noyau à (A-a) nucléons ($P_{(A-a)a}$) par l'équation suivante : $\rho_A P_{Aa} = \rho_{(A-a)} P_{(A-a)a}$ dans laquelle ρ_A et $\rho_{(A-a)}$ sont les densités d'états nucléaires de chaque noyau.

Weisskopf et Ewing (ref 36) en ont tiré la forme explicite et calculable pour le taux d'émission par évaporation d'une particule a avec l'énergie ε : $Pa(\varepsilon) = \rho_{(A-a)}(Ef^*)/\rho_A(Ei^*)$ (2s+1) (4 $\pi p^2/h^3$) $\sigma c(\varepsilon)$

On reconnait les densités d'états qu'il faut prendre à l'énergie d'excitation initiale Ei* pour le noyau émetteur, et à Ef*=Ei*- ε -Q pour le noyau final (ou fils) en tenant compte de la conservation de l'énergie (Q est le Q de la réaction dans lequel entrent les masses réelles des objets). Le facteur (2s+1) (4 π p²/h³) est un facteur de comptage et d'espace de phase. Le terme σ c(ε) est la section efficace de capture de a par A-a.

Hauser et Feshbach (ref 37) amélioré cette approche en introduisant explicitement le moment angulaire de la particule a émise. Il faut pour cela calculer des coefficients de transmission $Tl(\varepsilon)$ à l'aide d'un modèle optique par exemple et sommer sur tous les moments angulaire l possibles.

On voit que les ingrédients sont ici les sections efficaces de capture et les densités de niveaux (qui dépendent évidemment du noyau et de l'énergie). La conservation de l'énergie est ici scrupuleusement assurée en tenant compte de la masse réelle des noyaux successifs de la chaine d'évaporation.

Les densités de niveaux sont traitées de façon statistique. Il faut tenir compte un peu de la structure nucléaire (on s'attend à des variations par exemple pour les noyaux autour des fermetures de couches) ainsi que de l'évolution avec l'énergie d'excitation du noyau. La forme la plus élémentaire est dérivée d'un gaz de Fermi :

$$\rho(E^*,A) = \frac{\sqrt{\pi}}{12} \frac{e^{2\sqrt{aE^*}}}{a^{1/4}(E^*)^{5/4}}$$

Le paramètre de densité de niveaux «a » relie l'énergie d'excitation au carré de la température du système :

 $E^* = aT^2$

C'est dans la dépendance de ce paramètre avec A et E* que se trouvent les effets de fermeture de couche et d'appariement ainsi que l'évolution avec E*. Il existe toute une littérature sur cette densité de niveaux. A grande énergie d'excitation, « a » tend vers une valeur entre A/8 et A/13 selon les auteurs. La paramétrisation la plus évoluée et la plus souvent utilisée est celle dite GCCI d'après le nom des différents contributeurs (Gilbert-Cameron-Cook-Ignatyuk), mais il existe aussi d'autres approches.

Les sections efficaces inverses proviennent soit d'un modèle géométrique, soit d'un ajustement empirique, soit de calculs plus évolués. L'information directement expérimentale n'est pas évidente puisqu'il faudrait connaitre des captures sur des noyaux souvent instables et de plus assez fortement excités.

4- La désexcitation (fission)

Les premiers modèles de fission utilisables dans un calcul de spallation sont dus à Atchison (Code RAL disponible de base dans LAHET pour Z>70). Pour une charge Z>90, une alternative (code ORNL) existe également dans LAHET. Ces calculs font une large place à l'empirisme et sont ajustés sur la fission de basse énergie des actinides. En fonction de Z^2/A ,

la distribution de masse des produits de fission est purement symétrique (en dessous de 35) et mélangée symétrique-asymétrique au dessus.

Plus récemment le groupe de GSI (ref 38) s'est attaché à mieux décrire la compétition entre la fission et l'évaporation. Ce point est tout à fait important ici puisque le noyau sort de l'étape de cascade avec une forte excitation (voir fig 6) et un moment angulaire (de l'ordre de 15 hbar) pouvant influencer la probabilité de fission. Les évaporations de neutrons et de protons au cours du temps vont modifier le paramètre de fissilité (Z^2/A) et donc modifier le rapport de probabilité entre les deux voies de façon dynamique.

L'évolution en temps de la fission avait été étudiée par Grangé (ref 39), résultant dans une réduction de la largeur de la voie de fission établie par Bohr et Wheeler (ref 40):

$$\Gamma_f^{BW} = \frac{1}{2\pi\rho_c(E)} T_{sad} \rho_{sad} (E - B_f) \qquad \qquad \Gamma_f^K = K(\beta) \Gamma_f^{BW}$$

Dans l'expression de la largeur de fission de Bohr et Wheeler, on reconnait le rapport entre la densité d'états au point selle (ρ_{sad}) calculée au dessus de la barrière (Bf) et la densité d'états du noyau fissionnant (ρ_c). La quantité T_{sad} est la température au point selle. Le facteur dit de Kramer, K(β) fonction d'un paramètre de viscosité vient réduire cette fission pour tenir compte de l'évolution lente (ou dissipative) vers la fission.

B. Jurado et coauteurs (ref 38) ont pris explicitement en compte cette dépendance avec le temps en introduisant une fonction de transition avec un temps caractéristique de $1.7 \ 10^{-21}$ s et ajustée sur les travaux théorique de Grangé. Ces améliorations (compétition évaporation fission plus réaliste) seront disponibles dans la nouvelle version du code ABLA publique en 2007-2008.

Ce code a également une très bonne distribution des produits de fission (ref 41) basée sur une barrière à trois composante et conduisant à une distribution symétrique (goutte liquide) et deux distributions asymétriques autour de 82 et 90 neutrons ajustées sur les expériences.



Fig 36 : Distribution des produits de fission du code ABLA-PROFI (ref 41) comparée à différentes expériences (figure prise de ref 6).

5- La désexcitation aux extrêmes

Pour les petits noyaux, la densité des états nucléaires reste faible et l'énergie d'excitation devient comparable à l'énergie de liaison. L'émission séquentielle et statistique des nucléons n'est plus justifiée. On introduit alors une cassure en une seule étape en introduisant toutes les partitions possibles du noyau pondérées par l'espace des phases. C'est le « Fermi breakup ».

$$W = \frac{c}{A_1!...A_n!} \left(\frac{Vol}{h^3}\right)^{n-1} \int d\vec{p}_i \delta(\Sigma \vec{p}_i) \delta(E^* - S - \sum t_i)$$
$$A = \sum_{i=1}^n A_i$$

Le noyau A est partitionné en n composantes Ai de poids W dans lequel les fonction $\delta()$ assurent la conservation de l'énergie et de l'impulsion. La plus part des codes de désexcitation (ou de transport) font appel au « Fermi breakup » pour des noyaux de A inférieur à 15-20 et avec des énergies d'excitation pas trop grandes (50 MeV).

Pour de grandes énergies d'excitation (E*/A > 3 MeV) nous avons déjà vu que le noyau « explose » là encore en une étape. La multifragmentation (ref 42) est en général décrite par une expansion violente conduisant à une densité nucléaire plus faible (1/3 à 1/6 de la densité nucléaire normale) lorsque le noyau a atteint le volume dit de « freeze out ». Le poids des configurations est alors donné par une loi de Boltzmann prenant en compte la température élevée du système. Le code SMM (ref 43) fait typiquement appel à la multifragmentation pour des énergies d'excitation suffisantes.

$$W = \frac{c}{A_1!...A_n!} \prod_{1}^{n} e^{-\frac{E_i}{T}} g_i \frac{Vol(2\pi m_i T)^{\frac{3}{2}}}{h^3}$$

Le modèle de l'état transitoire (transition state model ref 44) est plutôt une alternative à l'évaporation étendue à l'émission d'ions légers. L'évaporation est ici vue comme une fission asymétrique extrême. La section efficace de capture disparait au profit d'une barrière. Le code GEMINI (ref 45) fait appel à ce type de désexcitation. Cette approche alternative à une évaporation étendue aux noyaux légers comme dans le code GEM (ref 46) sera à tester pour des noyaux résiduels de masse 10-20.

6- Résumé des codes de désexcitation

Dresner (dans LAHET et MCNPX) : Evaporation de type Weisskopf jusqu'à 4He et fission d'Atchison. C'est le plus ancien. On lui reproche parfois des barrières coulombiennes trop élevées.

GEM (S. Furihata et al) C'est une version modernisée du code de Dresner-Atchison. Il permet une évaporation à la Weisskopf étendue jusqu'à A=24. Les masses, les énergies de pairing, les paramétrisations de la fission, des sections efficaces de capture et les barrières coulombiennes ont été revues.

ABLA (K.H. Schmidt et al.) traite l'évaporation à la Weisskopf pour p,n et 4He seulement. La fission est par contre très élaborée. Ce code bénéficie actuellement de travaux d'amélioration important (évaporation étendue, multifragmentation, fission dynamique) et une nouvelle version devrait être très prochainement publique.

GEMINI (R. Charity) Evaporation Hausser-Feshbach pour Z<2-4 et "transition state model" au dessus. La valeur de transition est à choisir.

SMM (A. Botvina) Evaporation Weisskopf pour A<18 et multifragmentation (si l'énergie d'excitation est suffisante.

C- Quelle précision attendre des codes ?

Dans la suite, nous présentons des calculs avec INCL4 (ref 34) couplé à ABLA dans sa version actuellement publique (ref 47). Précisons que les codes utilisés sont strictement identiques dans tous les cas. Aucun paramètre n'est ajusté pour une expérience particulière. Même la normalisation (section efficace de réaction) est fixée par le code de cascade.



Fig 37 : Section efficace doublement différentielle de production de neutrons. Le calcul INCL4+ABLA est l'histogramme comparé aux points expérimentaux mesurés au LNS (ref 22)



Fig 38 : Production de neutrons sur cible de Pb à 113MeV, 256 MeV et 597 MeV (ref 48). Le calcul INCL4+ABLA est l'histogramme.



Fig 39 : Production de neutrons sur cible de Pb avec des protons de 3 GeV (ref 49)

On peut constater que le détail des sections efficaces doublement différentielles pour la production de neutrons est bien reproduit dans le domaine de validité des cascades (fig 37). Le détail du pic quasi élastique (échange de charge) est généralement trop étroit. Le défaut augmente à basse énergie. En particulier à 113 MeV (fig 38), la précision de ces calculs atteint ses limites. De façon peut-être un peu surprenante, le calcul reste bon à 3 GeV (fig 39) alors que les voies à 2 pions ne sont pas prises en compte dans les voies inélastiques de NN. Ce que nous jugeons bon peut cependant s'écarter des données de 20%. Beaucoup d'autres données existent dans cette région (cibles en particulier) et la qualité globale du calcul reste la même.



Fig 40 : Section efficace doublement différentielle pour les protons produits à 800 MeV sur Pb et Zr (ref 50) et pour les π + à 730 MeV (ref 51)

Le pic quasi élastique proton (fig 40) est nettement mieux reproduit que l'échange de charge. Mais de façon générale, l'ensemble du spectre est bien reproduit. Les pions (ici π + fig 40, mais c'est aussi valable pour les π -) sont surestimés par INCL4. L'introduction d'un potentiel pour les pions (ref 52) a grandement amélioré ce point (histogramme rose et pointillé fig 40). Cette amélioration sera disponible dans la future version d'INCL.

La production d'ions légers apparait naturellement dans le formalisme de la désexcitation. Dans la cascade, l'émission de clusters est évidemment une extension phénoménologique au modèle qui repose sur une série d'interactions indépendantes avec les nucléons du noyau.

Cependant ces clusters existent et sont probablement émis pendant la phase de pré-équilibre, là ou les hypothèses de la cascade sont moins justifiées. En suivant l'idée de Letourneau (ref 21), nous avons introduit dans INCL4 une formation d'agrégats en surface du noyau (ref 53). Nous avons introduit pour cela deux paramètres (une distance au rayon moyen du noyau fixée à R0+1. 75 fm et un espace de phase $\Delta r^* \Delta p < 387$ fm*MeV/c) pour trouver les voisins éventuels d'un nucléon qui s'échappe. Le critère d'espace de phase donne des densités réalistes pour les clusters sélectionnés (d,t,³He et ⁴He). Ces deux paramètres ajustés sont constants par la suite.



Fig 41 : Sections efficaces doublement différentielles de production de p, d, t, 3He et 4He à 30°, 75°, 105° et 150° (de haut en bas) avec des protons de 2.5 GeV sur cible d'Au. Le calcul INCL4+ABLA est l'histogramme comparé aux mesures (ref 21 Letourneau et al.). Sur le spectre des protons, l'histogramme en tirets est le calcul sans production de clusters dans la cascade.



Fig 42 : Production de p, d et t à partir de neutrons de 542 MeV sur Bi et Cu (ref 54). Le calcul INCL4+ABLA est l'histogramme.

En p de 2.5 GeV sur Au (fig 41), le niveau de production des clusters et la répartition en angle et en énergie est assez réaliste. Il manque néanmoins presque un facteur 2 pour les α de cascade au dessus de 40 MeV. Cette production se fait néanmoins au détriment des protons (et aussi des neutrons non montrés ici) entre 20 et 100 MeV. Il faut remarquer que ABLA ne produisant pas les d, t et 3He, c'est la raison pour laquelle la partie basse de ces spectres n'est pas reproduite. Un couplage avec GEM donne un résultat correct sur l'ensemble du spectre (ref 53). Des résultats qualitativement comparables sont obtenus avec des neutrons d'énergie bien moindre (542 MeV) et sur une cible bien plus légère (fig 42). On peut aussi noter que dans ce cas le spectre des protons reste très correct.



Fig 43 : Sections efficaces de production de noyaux résiduels mesurées en cinématique inverse, à gauche Pb(1A Gev) (ref 24), au milieu Au (0.8A GeV) (ref 54), à droite Pb(0.5A GeV) (ref 55) sur hydrogène. Les figures du haut somment les sections efficaces à A constant. Les figures du bas sont les distributions isotopiques pour les espèces chimiques les plus près du faisceau. Les sections efficaces expérimentales de fission Pb(500 MeV) ont été divisées par 2, un doute planant sur leur normalisation. Le calcul INCL4+ABLA est l'histogramme. Seul le vert correspondant à la somme sur les sections efficaces mesurées est à considérer lorsque deux histogrammes existent.

Le calcul des résidus est globalement très correct (fig 43) et en particulier pour les résidus lourds qui sont le plus directement dépendants de la cascade (peu d'énergie d'excitation du *remnant*). Si la systématique est bonne, les précisions n'excèdent cependant pas 20% à 30%. Pour les résidus de la fission (voir fig 27), la systématique est très bonne donnée par la désexcitation ABLA.

Les résidus les plus légers produits par l'évaporation (masses 130-160) sont systématiquement sous évalués par le modèle à 1 GeV. La descente du pic d'évaporation est par contre très correcte à 500 MeV. Ces conclusions sont les mêmes avec un autre code d'évaporation (GEM) contenant une physique similaire. On peut en déduire que l'évaporation seule est insuffisante pour de grandes énergies d'excitation mises en jeu autour du GeV.

Ces difficultés se confirment avec un noyau plus léger (Fe) pour lequel les résidus ont été mesurés à plusieurs énergies (de 1.5A GeV à 0.3A GeV, ref 25). Pour reproduire les sections efficaces des noyaux légers (fig 44), il faut ajouter à l'évaporation soit une part de multifragmentation soit une contribution d'état transitoire (quasi-fission), ce dernier calcul étant le plus convaincant.



Fig 44 : Sections efficaces de production de résidus (sommées à A constant) par des ions Fe entre 1.5A GeV et 0.3A GeV sur hydrogène (ref 25). A gauche, l'histogramme pointillé est un calcul INCL4+GEM. L'histogramme plein est un calcul INCL4+GEMINI. A droite l'expérience à 1A GeV est comparée à un calcul INCL4+SMM (histogramme plein). La partie multifragmentation est en pointillés



résidus et chargés légers. Land donne la multiplicité des neutrons d'évaporation

Le dispositif SPALADIN plus récemment mis en œuvre à GSI permet de détecter pour chaque réaction l'ensemble des particules chargées (provenant de la désexcitation) ainsi que la multiplicité des neutrons d'évaporation. Ce dispositif permet donc la mesure de plusieurs voies de désexcitation ce qui est bien plus contraignant pour les modèles.

La figure 46 présente les résultats obtenus en Fe (1A GeV) sur hydrogène (ref 56). Les sections efficaces de production de résidus en fonction de leur charge sont décomposées en différentes voies. L'IMF étant défini ici comme un noyau de charge strictement supérieure à 2, les différentes voies mesurées sont : un IMF, un He et un IMF, un He et au moins deux IMF, deux IMF seulement, trois IMF ou plus. La confrontation avec les différents codes de désexcitation (tous couplés à INCL4) confirme que l'évaporation étendue jusqu'à A=24 de GEM ne peut reproduire les noyaux légers. Le code GEMINI donne le mieux les différentes composantes mesurées.



Fig 46 : Sections efficaces des ions produits par Fe(1A GeV)+p décomposées sur différents canaux de sortie. Les données expérimentales (SPALADIN) sont les histogrammes noirs, les calculs correspondant les histogrammes colorés obtenus par couplage de INCL4 avec différents modèles de désexcitation (ref 56).

En ce qui concerne la qualité des codes de spallation à basse énergie, nous avons déjà vu que la production de noyaux résiduels mesurés par irradiation assez est





Fig 47 : A gauche, section efficace totale de réaction nucléon-noyau calculée par INCL4 en fonction de l'énergie du faisceau. Le trait continu est le calcul tenant compte de la distorsion coulombienne (et le pointillé sans distorsion). A droite distribution en énergie des p, d, t et 4He produits par des neutrons de 96 MeV sur du Pb. Le calcul INCL4+GEM (histogramme) est comparé aux données (ref 10). Pour les protons le calcul sans production de clusters est également tracé (histo vert). Pour les autres particules la contribution purement évaporative est tracée séparément.

A condition de prendre en compte la forte remontée de la section efficace NN à basse énergie et la déviation des trajectoires du faisceau par le champ coulombien, la section efficace totale de réaction (Pb et Fe) calculée par INCL4 est correcte jusqu'à ~10 MeV, une énergie pourtant totalement non justifiée pour les hypothèses de la cascade (fig 47G). Le code achoppe cependant sur un noyau très léger (Be) au dessous de 100 MeV ce qui est moins surprenant.

La distribution en énergie des ions légers à 96 MeV est au moins qualitativement reproduite, la production des clusters se faisant néanmoins au détriment des protons (fig 47D). On peut voir aussi une probabilité de formation des clusters de basse énergie beaucoup trop forte dans la cascade (particulièrement visible sur les deutons) indicative de pistes pour l'amélioration de leur mécanisme de formation.



Tous les codes de spallation ne sont pas équivalents. L'ensemble Bertini-Dresner-Atchison avec pré-équilibre souvent utilisé dans LAHET donne des défauts systématiques importants (fig 48). L'énergie d'excitation du remnant beaucoup trop grande conduit à une sous estimation des résidus lourds et à une légers surestimation des résidus d'évaporation. La répartition des produits de fission n'a qu'un lointain rapport avec l'expérience et les sections efficaces par isotopes peuvent être fausses par des ordres de grandeur.

Fig 48 : Calculs INCL4+ABLA et Bertini-Dresner-Atchison (avec pré-équilibre) comparés aux mesures de résidus de Pb(1A GeV)+p (ref 24).

L'ambiguité vient du fait que sur des calculs très intégrés (sur des cibles épaisses par exemple) les différences s'estompent par cumul de sections efficaces élémentaires sur ou sous estimées et que les ordres de grandeur sont assez corrects. Il convient donc d'être vigilent sur la prédictivité d'un tel code en fonction de l'observable calculée. La figure 49 montre par exemple la production des isotopes du Xe à partir d'une cible épaisse Pb-Bi bombardée par des protons de 1.4 GeV. Le calcul Bertini surestime fortement cette production alors que INCL4-ABLA et Fluka donnent des valeurs très correctes. D'un point de vue pratique, le 127Xe (β +, 36 jours) peut poser des difficultés pour la manipulation de la cible.



Fig 49 : Production des isotopes du Xe à partir de protons de 1.4 GeV sur une cible de Pb-Bi massive (ref 57). Les données (carrés) sont comparées à des calculs Bertini-Dresner, INCL4-ABLA (dans MCNPX) et FLUKA (GEANT).

L'hélium est un autre gaz dont le taux de production est important dans une exploitation de la spallation car non soluble dans les métaux, il s'agrège en bulles conduisant à des gonflements mécaniquement problématiques. Les

mesures ne sont pas faciles. Sur une cible de fer, la mesure récente de NESSI (fig 50) se rapproche de celles de R. Michel. La mesure récente (et préliminaire) de SPALADIN est également compatible dans la région du GeV. Le calcul avec INCL4-Gemini (qui donnait les meilleurs résultats sur les noyaux légers et les corrélations mesurées à SPALADIN) donne le bon ordre de grandeur à condition d'inclure la production d'hélium dans la cascade.



Fig 50 : Sections efficaces de production d'Hélium à différentes énergies des protons sur une cible de fer. Les mesures (points) proviennent de différentes expériences, les lignes sont les calculs. La ligne pointillée verte est le calcul complet INCL4+GEMINI (comprenant la production d'ions légers dans la cascade).

Pour terminer, nous mentionnerons qu'un code tel que INCL4+ABLA donne très correctement les vitesses de recul des résidus pour une cible

lourde (le plomb, ref 34). Il surestime par contre les vitesses de recul des résidus légers pour une cible légère (Fe, ref 25) d'un facteur presque 2. Le code ISABEL donne des résultats très similaires et ce problème lié à la production des noyaux légers sur des cibles légère reste en suspend.

D- Conclusions

Un gros effort expérimental dans la gamme 20-200MeV a été entrepris par un effort concerté entre différents laboratoires sous l'égide de l'Europe. Des résultats expérimentaux systématiques de qualité ont été obtenus. Certains résultats sont encore à venir. Il faut espérer que les postes expérimentaux mis au point seront pleinement exploités, mais on a déjà de quoi tester en détail les modèles de spallation dans le secteur de basse énergie pour voir en

particulier le recoupement avec les outils théoriques mieux fondés en dessous de 150 MeV (TALYS). La question de savoir si les données sont suffisantes pour permettre la construction de tables de sections efficaces évaluées nécessite l'avis des évaluateurs (voir cours E. Bauge).

Au dessus de 200 MeV, nous disposons également de pas mal de données expérimentales précises, particulièrement autour du GeV. Curieusement, les expériences entre 300 et 500 MeV sont assez peu nombreuses alors que le démonstrateur de réacteur hybride se situera dans ce secteur. Les mesures systématiques production de pions inclusifs sont également peu nombreuses. La production de noyaux légers (de l'hélium au carbone) est expérimentalement délicate. L'expérience PISA à Jülich devrait prochainement apporter des confirmations expérimentales pour la production de ces noyaux. Il est dommage de ne pas disposer pour la production de protons de sections efficaces doublement différentielles sur l'ensemble de leur gamme en énergie et en angle comme c'est le cas pour les neutrons.

Nous sommes entrés dans des expériences de coïncidence permettant de spécifier différentes voies de sortie ou exploitant les corrélations (expérience NESSI ou SPALADIN). Ces expériences sont tournées vers une étude plus contraignante des mécanismes de la spallation, en particulier le passage entre la cascade intranucléaire et la désexcitation ainsi que la désexcitation elle-même.

Des expériences « intégrales » sur des cibles épaisses existent ou sont en cours. En particulier l'irradiation d'une cible liquide de Pb-Bi par un faisceau de 1.4 mA de protons de 575 MeV est un test prometteur pour la vérification de l'ensemble des prédictions des modèles dans un cas réaliste. Ce type d'expérience doit se poursuivre au GSI dans le cadre du futur complexe d'accélérateurs FAIR.

Des outils de modélisation de la spallation sont maintenant au point et permettent l'étude paramétrique de systèmes. En particulier, la production de neutrons sur cibles minces et épaisses semble maitrisée au niveau de 15%-20%. Il faut néanmoins choisir le bon modèle (INCL4 ou ISABEL, éviter Bertini) dans LAHET ou MCNPX. Nous n'avons pas discuté (ni testé) le code CEM2k de S. Maschnik, mais les résultats qu'il montre sont également très corrects.

Par éléments, les noyaux résiduels lourds sont bien reproduits, mais pour des valeurs par isotope, il faut utiliser ABLA ou GEM, les écarts pouvant atteindre facilement l'ordre de grandeur sur des isotopes en bord de distributions. Les produits de fission sont également très bien prédits par ABLA (couplé à INCL4 ou ISABEL) pour les cibles lourdes (Au-Pb-U). Il reste un doute à explorer pour la fission induite sur des cibles plus légères (Ta-W), mais qui devrait avoir des implications pratiques faibles, la section efficace de fission étant de toute façon petite pour ces noyaux. Par contre, le code Dresner-Atchison ne donne pas de distribution correcte des produits de fission dans ce secteur.

Les résidus légers d'évaporation posent un problème (sous évaluation des modèles) dont on aperçoit peut être la solution avec une meilleure prise en compte des grandes énergies d'excitation dans la désexcitation (multifragmentation ou modèle de l'état transitoire).

Enfin les énergies de recul des résidus (quantité clé pour l'estimation des dommages aux matériaux) n'est pas bien donnée par les codes pour une cible légère telle que le fer alors que pour des cibles lourdes ces quantités sont très bien comprises. Ce défaut pourrait être relié à la mauvaise prise en compte des grandes énergies d'excitation évoquée ci-dessus.

A l'heure actuelle, le calcul prédictif est possible. Les défauts des codes sont systématiques et connus. Pour des calculs pratiques, il faut sans doute encore un examen critique des résultats entre spécialistes des codes et « désigneurs » de prototypes.

Pour le futur des codes, les différents ingrédients d'un modèle idéal sont connus. Ils sont en cours d'assemblage dans la future version de cascade INCL5 et la future désexcitation ABLA117. Ces nouveaux outils devraient être publics en 2007-2008.

Remerciements

Un grand merci à Sylvie Leray, Joseph Cugnon, Yair Yariv et Jean-Christophe David à qui j'ai beaucoup pris (matériel, temps et savoir) pour l'élaboration de ce cours.

Merci aux organisateurs de cette école pour m'avoir invité, et à Marie-Geneviève Porquet pour son animation scientifique et sa patience à mon égard.

Références :

- Ref 1 : MYRRHA : <u>http://www.sckcen.be/myrrha/</u>
- Ref 2 : R. Serber, Phys. Rev. 72 (1947) 1114.
- Ref 3 : G. Bizard e t al., Nucl. Inst. and Meth. 111 (1973) 451
- Ref 4: E. Martinez et al., Nucl. Inst. and Meth. A 385 (1997) 345
- Ref 5: S. Vuillier, Simulations pour la transmutation des déchets par réacteurs hybrides,
- CEA/DAPNIA/SPhN-98-02T et Thèse Univ. Paris VII (avril 98).
- Ref 6 : Detailed final report HINDAS (2005), J.P. Meulders, A. Koning and S. Leray editors.
- Ref 7: J. Klug et al. NIM A489 (2002) 282
- Ref 8 : J. Klug et al, Phys. Rev. C67 (2003) 31601
- Ref 9 : H.Conde et al., NIM A292 (90) 121
- Ref 10 : V. Blideanu et al. Phys. Rev. C70 (2004) 014607
- Ref 11 : N. Nica et al., J. Phys. G: Nucl. Part. Phys. 28 (2002) 2823 E. Raeymackers et al., Nucl. Phys. A726 (2003) 210 E. Raeymackers et al., Phys. Rev. C68 (2003) 24604
- Ref 12 : F.E. Bertrand, R. W. Peelle et al. Phys. Rev. C8 (73) 1045
- Ref 13 : A.J. Koning, S. Hilaire, M. Duijvestijn et al. (documentation à rechercher sur le WEB)
- Ref 14 : P. Young, E. Arthur, M. Chadwick, Los-Alamos report LA-12343-MS (1999)
- Ref 15: B. Mukherjee et al., Europ. Phys. Journ. 21(2004) 273)
- Ref 16 : Yu.E; Titarenko et al. Phys. Rev. C65 (2002) 64610
- Ref 17 : Y. Iwamoto et al, Phys. Rev. C65 (2002) 64610
- Ref 18 : T. Kin et al, Phys. Rev. C72 (2005) 14606
- Ref 19 : C.M. Herbach et al, NIM A508, (2003), 315
- Ref 20 : U. Jahnke et al, NIM A508, (2003), 295
- Ref 21 : C. Herbach et al, Nucl. Phys. A 765 (2006) 426 A. Letourneau et al, Nucl. Phys. A 712 (2002) 133
- Ref 22 : S. Leray et al., Phys. Rev. C65 (2002) 044621
- Ref 23 : M. Bernas et al, Nucl. Phys. A 725 (2003) 213
- Ref 24 : T. Enqvist et al, Nucl. Phys. A 686 (2001) 482
- Ref 25 : C. Villagrasa et al., Phys. Rev C (2007) accepté pour publication. P. Napolitani et al. Phys. Rev. C70 (2004) 054607
- Ref 26 : M. Gloris et al, NIM A463 (2001) 593 ; Michel et al, Nucl. Sci. Tech. Supp 2 (2002) 242
- Ref 27 : W. Pohorecki et al, NIM A 562(2006) 750
- Ref 27 . W. Follorecki et al, NIM A 502(2000) 750 Daf 28 : I. Griffin Dhug, Day, Latt. 17 (1066) 478
- Ref 28 : J. Griffin, Phys. Rev. Lett. 17 (1966) 478

- Ref 29 : C. Kalbach, Phys. Rev. C33 (1986) 818
- Ref 30: C. Kalbach, Phys. Rev C37 (1988) 2350
- Ref 31: H.W. Bertini et al. Phys. Rev 131 (1963) 1801
- Ref 32 : Y. Yariv et Z. Fraenkel Phys. Rev. C 24 (1981) 488
- Ref 33 : J. Cugnon et al. Nucl. Phys. A620 (1997) 475
- Ref 34 : A. Boudard et al. Phys. Rev. C66 (2002) 44615
- Ref 35 : A. Fasso, A. Ferrari et al Monte-Carlo Conf 2000 edited by A. Kling et al (Springer-Verlag, Berlin)
- Ref 36 : V. Weisskopf, H. Ewing, Phys. Rev. 57 (1940) 472
- Ref 37 : V. Hauser, H. Feshbach Phys. Rev. 87 (1952) 366
- Ref 38 : B. Jurado, K.H. Schmidt and J. Benlliure, Phys. lett. B 553 (2003) 186 B. Jurado et al. Nucl. Phys. A747 (2005) 14
- Ref 39 : P. Grangé et al. Phys. Rev. C27 (1983) 2063
- Ref 40 : N. Bohr et J.A. Wheeler, Phys. Rev. 56 (1939) 426
- Ref 41 : J. Benlliure et al, Nucl. Phys. A628 (1998) 458
- Ref 42 : L. Moretto et G. Wozniak, Ann. Rev. of Nuc. Part. Sc. 43 (1993) 379
- Ref 43 : J. Bondorf et al., Phys. Rep. 257 (1995) 133 A. Botvina et al., Nucl. Phys. 457 (1987) 633
- Ref 44 : L. Moretto, Nucl. Phys. A247 (1975) 211
- Ref 45 : R. Charity et al. Nucl. Phys. A483 (1988) 371
- Ref 46: S. Furihata et al. NIM B171 (2000) 251
- Ref 47 : J.J. Gaimard et K.H. Schmidt, Nucl. Phys. A531 (1991) 709 A.R. Junghans et al. Nucl. Phys. A629 (1998) 635
- Ref 48 : W. Amian et al, Nucl. Sci. Eng 115 (1993) 1 S. Stamer et al, Phys. Rev. C47 (1993) 1647 W. Amian et al, Nucl. Sci. Eng 102 (1989) 310
- Ref 49 : S. Meigo et al. (KEK)
- Ref 50 : R. Chrien et al, Phys. Rev. C21 (1980) 1014 J. McGill et al Phys. Rev. C29 (1984) 204
- Ref 51 : D. Cochran et al, Phys. Rev. D6 (1972) 3085
- Ref 52 : Th. Aoust et al, NIM A562 (2006) 810
- Ref 53 : A. Boudard et al, Nucl. Phys. A740 (2004) 195
- Ref 54 : F. Rejmund et al. Nucl. Phys. A683 (2001) 540
- Ref 55 : B. Fernandez et al., Nucl. Phys. A747(2005) 227 L. Audouin et al., Nucl. Phys. A768 (2006) 1
- Ref 56 : E. LeGentil, thèse Evry (2006)
- Ref 57 : L. Zanini et al., Int Conf Nucl Data for Science and Technology (2005)

Déchets nucléaires : état des lieux

Isabelle Billard¹

IPHC, UMR 7178, DRS/Chimie Nucléaire, Bât. 35, B.P. 28, 67037 Strasbourg Cedex 2

Résumé

Les déchets nucléaires posent des problèmes de gestion à tous les pays qui possèdent une industrie nucléaire civile. Que ces pays aient ou non choisi de retraiter les déchets, ils doivent régler aussi la question de leur tri, de leur entreposage et de leur stockage. Dans ce cours, après avoir défini ce qu'est un déchet (éventuellement) radioactif, puis les diverses classes de déchets, (volumes, tonnages, types etc) on présentera les divers modes de gestion qui ont cours dans le monde, en s'attardant plus spécialement sur le cas de le France qui retraite, entrepose et stocke ses propres déchets. Cette partie du cours sera illustrée de nombreuses photos. Les différents sites de stockage français seront également présentés. Des comparaisons seront faites avec d'autres pays ayant choisi des solutions différentes (pas de retraitement, par exemple). Les évolutions prévisibles selon les choix qui seront faits pour la génération IV des futurs réacteurs nucléaires civils seront ensuite abordées. Le cas des déchets nucléaires militaires ne sera pas abordé.

Summary

Nuclear wastes are a major concern for all countries dealing with civil nuclear energy, whatever these countries have decided yet about reprocessing/storage options. In this chapter, a (exact) definition of a (radioactive) waste is given, together with definitions of waste classes and their characteristics (volumes, types etc). The various options that are currently experienced in the world will be presented but focus will be put on the French case. Envision evolutions will be briefly presented.

¹ isabelle.billard@ires.in2p3.fr

Avertissement.

Ce texte accompagne le cours donné lors de l'Ecole Internationale Joliot-Curie de 2006 et doit se comprendre comme un support et un complément. Le sujet étant vaste et, comme on le comprendra, fortement dépendant de toutes les questions (non abordées dans ce chapitre) de la gestion globale du combustible nucléaire, il est bien entendu que ces quelques pages ne présentent qu'un résumé de la situation, qui pourra parfois être jugé réducteur.

En dehors les questions scientifiques, que j'ai tenté de présenter d'une façon concise et si possible, impartiale, les tenants et les aboutissants politiques inévitables dès que l'on parle des déchets nucléaires m'ont, à certains endroits de ce texte, poussée à exprimer des opinions, qui, bien entendu, n'engagent que moi.

Sources

Les informations contenues dans ce texte sont la synthèse de mes connaissances personnelles, de nombreuses discussions que j'ai eu la chance et l'honneur d'avoir avec différentes personnalités du domaine ainsi que de notes prises au cours de très nombreuses conférences. Certaines de ces informations proviennent de lectures et de documents divers (rapports internes, publications spécialisées, sites WEB...), voire de la presse ou des média. Dans la mesure du possible, les crédits sont insérés dans le texte.

Note :

Les chiffres et les faits mentionnés dans ce cours sont sujet à évolution. Ils ont été insérés en fonction des données qui m'étaient disponibles. Le lecteur trouvera donc souvent des indications datées entre parenthèse, qui lui permettront, tout comme à l'enseignant, de situer temporellement les informations.

<u>Bibliographie sommaire</u> conseillée du fait de sa qualité (grand public mais fort bien faite).

le site web de l'ANDRA.

les rapports de l'Assemblée Nationale (rapports « Bataille »).

la revue « Revue Générale du nucléaire », 6 numéros par an.

En librairie relativement spécialisée, on trouvera également :

« Le cycle du combustible nucléaire », éditions de Physique, 2002, coordinateur L. Patarin.

« Les déchets nucléaires, un dossier scientifique », les éditions de Physique, 997, éditeur R. Turlay.

« Electronucléaire : une présentation par des physiciens », publication du cercle d'étude sur l'énergie nucléaire,

Bourgeois, M., Techniques de l'Ingénieur, « Génie Nucléaire », BN 3-650.

I. INTRODUCTION

Il m'a paru essentiel de m'attarder d'abord un peu, bien que ce ne soit pas le corps même du sujet, sur certaines des questions relatives au **retraitement des déchets nucléaires.** En effet, on ne peut pas parler des déchets nucléaires sans aborder conjointement la question de leur éventuel retraitement préliminaire, tant les deux sujets sont liés. Rappelons que bien que de nombreux pays aient décidé, pour l'heure, de ne pas retraiter leurs combustibles irradiés arrivés en fin de vie, certains retraitent tout ou partie de leurs combustibles. L'industrie du retraitement des matériaux nucléaires est diversifiée et dynamique. Les aspects économiques du retraitement/stockage des déchets nucléaires sont si prégnants qu'il est impossible de dissocier politique, économie et science.

II. LE RETRAITEMENT DES COMBUSTIBLES

II. 1. Aspects politiques français, européens et mondiaux

La France est un des principaux acteurs du nucléaire mondial, grâce notamment à la société Areva, qui intervient à tous les niveaux économiques du cycle du combustible nucléaire et, en particulier, dans les opérations industrielles du retraitement des déchets nucléaires civils de nombreux pays. De ce fait, les contraintes politiques sont fortes.

Notons tout d'abord que les lois internationales obligent les pays producteurs d'énergie nucléaire à stocker sur leur sol les <u>matériaux nucléaires</u> leur appartenant, quand bien même un retraitement aurait été effectué dans un pays tiers, moyennant une rétribution financière. La totalité des volumes générés par les opérations de retraitement doit donc être rendue aux pays (ou opérateurs économiques) propriétaires. En France, on assiste régulièrement à des « psycho-drames » organisés par les organisations écologistes lorsque des convois traversent notre pays dans un sens ou dans l'autre. Afin de relativiser les choses, rappelons qu'il y a eu au total 9 transports de déchets vitrifiés entre la Hague et le Japon entre 1995 et 2004, le dernier transport concernant 132 containers.

D'un point de vue politico-économique, certains pays étrangers tarderaient à récupèrer le Pu issu du retraitement effectué en France de leurs déchets. La loi du 30/12/1991 spécifie pourtant que l'entreposage 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. Malgré tout, en 1996, la France recensait 65,4 t de Pu « sur étagères » (cad : séparé, non irradié), dont 30 t appartenaient à des sociétés étrangères (source : rapport Bataille).

Aux niveaux européen et mondial, de grandes sociétés se sont également lancées dans l'industrie du retraitement des déchets nucléaires, avec des bonheurs divers, ce qui fait que l'offre de retraitement industriel est assez diversifiée, comme le démontre le tableau ci-dessous. Toutefois, jusqu'à très récemment, la question du retraitement n'a été considérée que sous l'angle purement économique, et non pas comme une question globale internationale, impliquant tous les pays, qu'ils possèdent des centrales ou non. En février 2006, la publication par la DOE du « Global Nuclear Partnership », document spécifiant les idées américaines concernant la gestion des déchets nucléaires a véritablement initié une vision mondiale et globale du problème, ce qui, *a priori*, est une bonne chose. Dans ce document, les USA s'engagent un peu plus que précédemment en faveur d'un recyclage de leurs combustibles irradiés mais présentent également leur point de vue global sur le sujet.

Pays	opérateur	site	Capacité (t /an)
-			(nominale/effective)
France	AREVA	La Hague	1700/1100
Royaume Uni	BNFL/THORP	Sellafield	1200/900
Japon	?	Rokkasho-Mura*	800/800
Russie	MINATOM	Tcheliabinsk	400/150 (a)
		Krasnoïarsk**	1500

T1 :Capacité de retraitement des déchets nucléaires dans le monde.

(*) démarrage prévu mi-2007.

(**) inachevée (en 2000). Le chiffre est celui de la capacité théorique finale.

(a). L'usine de retraitement de Mayak est destinée essentiellement au retraitement du combustible russe et n'est pas adaptée aux combustibles REP/REB occidentaux.

Ce projet, qui doit être précisé par l'administration américaine, nécessitera l'accord des grandes nations nucléaires et peut être résumé de la façon suivante : Le monde est constitué des nations dites « fuel cycle states » (France, US, Grande Bretagne, Russie, Chine, Japon, bref les pays disposant à l'heure actuelle d'une puissance nucléaire civile) et des nations dites « reactor states » (les autres nations). Les premières fourniraient aux secondes des centrales « clefs en main », ainsi que les combustibles associés. Elle reprendraient également les combustibles usés, qu'elles bruleraient dans des centrales dédiées (notons au passage qu'il n'est pas très clair si cela produirait de l'énergie au réseau) avant, sans doute, de rendre les éventuels déchets ultimes pour entreposage à leurs propriétaires (la technologie pour bruler les combustibles usés n'étant pas au point, il est difficile de se prononcer sur l'existence de tels déchets). Ceci assurerait, dans l'idée américaine, une sécurité mondiale accrue contre la prolifération et le terrorisme nucléaire. Notons toutefois que depuis 20 ans (au moins, en 2006) que le credo américain s'articule autour de la lutte contre la prolifération nucléaire, rien n'a pu empêcher l'Inde, le Pakistan et sans doute bientôt l'Iran de se doter d'armes nucléaires et de missiles associés. On peut donc douter de l'efficacité du dispositif proposé. De plus, cette répartition des tâches peut être jugée discutable : l'énergie nucléaire serait de facto aux mains de certaines puissances occidentales disposant des compétences technologiques permettant de concevoir des centrales et les autres pays seraient excessivement dépendants du bon vouloir de ces quelques nations. S'il y a bien là, d'un point de vue occidental, un renversement favorable de la dépendance énergétique actuelle vis à vis du pétrole et des pays de l'OPEP, on peut aussi regretter la vision du monde qu'elle sous-tend.

II. 2. Aspects économiques du retraitement

II.2.1. Capacité de retraitement en France

Autrefois, la France disposait de deux usines de retraitement: La Hague (début du retraitement en 1966 pour les UNGG et en 1976 pour les REP) et Marcoule (qui avait aussi pour mission de produire le Pu militaire). Cette dernière usine est en démantèlement depuis le 1^{er} janvier 1998. Elle aura fonctionné environ 40 ans. Actuellement (2002), il y a deux unités opérationnelles de retraitement à La

Hague (nommées UP2 et UP3 ; UP1 est en démantèlement depuis 1997). Une unité UP4 est prévue pour être mise en service en 2040. Chacune de ces deux unités a une capacité de 1000 t/an mais l'autorisation globale est de 1700 t/an (2002). La capacité totale de retraitement du combustible en France (1700 t/an) n'a pas varié significativement depuis 1996 au moins. La « production » française de combustible potentiellement passible de retraitement est de 1150 t/an (2003), donc inférieure à la capacité totale. Actuellement (2002), la France retraite 850 t/an de son propre combustible et, si on ajoute l'ensemble des retraitements de combustibles étrangers effectués en France, on arrive à environ 1100 t/an de travail à effectuer. On est donc en dessous de la capacité maximale de retraitement. En 2002, La Hague entreposait en piscine environ 7000 t de combustibles usés, en attente de retraitement, ce qui représente environ 6 ans de travail (à raison de 1100 t/an).

II. 2. 2. Contrats français pour le retraitement de combustibles étrangers

La France a signé des contrats industriels avec d'autres pays pour le retraitement de leurs déchets nucléaires, d'où la nécessité d'une surcapacité par rapport à la seule production française (même en supposant que la France retraite tout son combustible, ce qui n'est plus vrai depuis 2002 au moins). Parmi les pays faisant effectuer le retraitement en France, citons: La Belgique (403 t), la Suisse (285 t), l'Allemagne (2700 t), le Japon (1080 t) et les Pays-bas (160 t)². La France a également passé un contrat avec l'Australie pour le combustible d'un réacteur de recherche. Au total, 27 compagnies étrangères font retraiter à la Hague les combustibles usés qu'elles produisent et, en 2002, AREVA représentait 47% des parts du marché du retraitement mondial. Cette activité a généré un chiffre d'affaires de 14 milliards de FF en 1997 et de 1650 millions d'euros en 2002 (Pour AREVA/COGEMA). Le résultat net en 1998 pour Cogema est de 180 M€ (après impôts).

Certains contrats signés dans les années 1970-1980 sont arrivés à échéance et n'ont pas tous été renouvelés, ce qui explique la chute importante des tonnages retraités en France depuis 1997 (voir courbe fournie). De plus, certains pays, comme le Japon, sont en train de construire leur propre usine de retraitement (en collaboration étroite avec AREVA, l'usine étant une usine « soeur » de celle de La Hague et les opérateurs japonais étant formés en France) ; d'autres, comme l'Allemagne, ayant décidé de « sortir du nucléaire », auraient tendance à diminuer leur volume de commande, même si un contrat a été passé jusqu'en 2009 (sur 36 réacteurs présents sur le territoire allemand en 2003, 16 étaient arrêtés à cette date. On notera un léger infléchissement de la politique allemande en faveur du nucléaire à partir de mars 2005 – gouvernement Merkel).

En octobre 2004, a débuté le retraitement du Pu militaire américain prévu pour le démantèlement. Ce Pu doit finir dans un réacteur moxé américain et c'est la France qui a emporté le contrat de ce premier essai. Ainsi, 150 kg de Pu sont arrivés par bateau à la Hague.

II.2. 3. Transport

Le transport vers l'usine de retraitement se fait en général par voie routière ou par rail mais des transports aéronautiques sont au point ou étudiés par la société spécialisée (Transnucléaire, Paris). Des transports aériens sont effectifs entre la

² Les chiffres entre parenthèses représentent le tonnage total cumulé en 1995 retraité à la Hague

Russie et l'Arménie (pour du combustible neuf) depuis 2004. Enfin, les pays étrangers (Japon, notamment) acheminent leurs déchets par voie maritime.

Un container de transport contient 6 t de combustible (constitués de 12 assemblages de combustibles extraits du coeur d'un réacteur) et pèse au total 100 t. Ces containers sont prévus pour résister à l'écrasement du fait de leur poids mais aussi s'ils se trouvaient sous plusieurs autres containers de même type (éventualité d'un accident). Enfin, des normes très précises réglementent la radioactivité au contact et à 1 m.

II. 3. Procédé PUREX : résultat et performances

II. 3. 1. Généralités

Ce procédé a été utilisé pour la première fois en 1954 aux USA. Il est utilisé massivement par tous les pays disposant d'une industrie nucléaire produisant du Pu. Il signifie : Plutonium, Uranium Refining by EXtraction. Il s'agit, d'une part, de récupérer l'uranium et le plutonium contenus dans le combustible irradié en vue de les réinjecter dans le cycle du combustible, et, d'autre part, de mettre de coté en prévision de leur stockage les autres éléments du combustible irradié. Ces opérations de tri génèrent donc deux flux de matières radioactives : les matières « nobles » (U et Pu) qui sont recyclées et les autres, qui sont considérées comme des <u>déchets inutilisables</u>. Comme toutes les activités humaines, ces opérations industrielles génèrent leurs propres déchets, qui viennent s'ajouter à ceux déjà contenus dans le combustible. Par ailleurs, il existe des autorisations légales de rejet, qui permettent l'évacuation de certains gaz et liquides radioactifs dans l'environnement.

II. 3. 2. Performances

Grosso modo, le rendement est supérieur à 99,5% (récupération du Pu à 99,88 %). Les facteurs de séparation d'avec les Produits de Fission (PF) sont de l'ordre de 10^6 à 10^8 (c'est-à-dire que dans les PF, il reste moins de 1 µg l⁻¹ de Pu). Le résultat de ces étapes de retraitement est résumé ci-dessous : [Les chiffres donnés sont des valeurs moyennes].

Départ (1 tonne de combustible irradié) : U : 955 kg (dont ²³⁵U : 0,9 %) ; Pu : 9,7 kg PF : 35 kg (26 PBq) etc. $\beta\gamma$: 7 10⁵ Ci α = 7 10³ Ci Arrivée : U purifié : 950 kg (autres éléments : $\beta\gamma$ < 0,5 Ci ; α < 6,8 10⁻³ Ci) Pu : 9,66 kg ($\beta\gamma$ < 4 10⁻² Ci ; impuretés < 60 g)

II. 3. 3. Problèmes et améliorations envisagées

Les obligations de sécurité et de performances sont régulièrement revues à la hausse, ce qui oblige l'industriel à améliorer constamment le procédé. En particulier, l'iode, dont les rejets actuels sont inférieurs aux limites légales, possède un impact sociologique important qui nécessite que son devenir soit maintenant très surveillé. Cela pourrait, dans le futur, être le cas du tritium. Enfin, le technétium, dont la

présence conduit à l'accumulation de Pu en des endroits non désirés de la chaîne de retraitement, pose problème.

Dans les procédés à l'étude, aucune amélioration concernant le T n'est envisagée et T restera vraisemblablement, dans un avenir proche, rejeté dans sa totalité sous forme d'eau tritiée, liquide ou gazeuse. Rappelons que la période radioactive de T est 12,3 ans (décroissance vers H et D, tous les deux stables), pour une période biologique de 14 jours et que cet élément s'accumule peu dans le corps humain ou dans la matière vivante (à part certains cactus...). En revanche, il est maintenant possible de forcer l'iode à dégazer pour le pièger ensuite, ce qui permet de le récupérer à 99%. Dans le cas de Tc, dont la fraction soluble est récupérée actuellement à 90%, il semble qu'il soit possible d'atteindre 95%³.

II. 4. Mais au fait, pourquoi retraite-t-on?

II. 4. 1. Le retraitement est-il justifié ?

Dans le monde, ce sont environ 340 GWé d'énergie électrique d'origine nucléaire qui sont produits annuellement, avec approximativement une répartition 50/50 entre les options de retraitement et de stockage direct. On voit donc que le choix n'est pas évident. Il ne faut pas se cacher que les préoccupations écologiques actuelles sont relativement récentes. Au départ, PUREX a été conçu pour récupérer le Pu à des fins militaires uniquement. Parmi les raisons souvent invoquées pour justifier le retraitement, on peut citer :

1) Le combustible en fin de vie contient encore du ²³⁵U non consommé. Le combustible « usé » contient en effet 0,9% de ²³⁵U, ce qui en fait *ipso facto* un minerai enrichi, qu'il serait regrettable de jeter à la poubelle.

2) Il faut extraire le Pu au maximum parce que :

a) <u>C'est un élément particulièrement toxique</u> pour être est mis dans une "poubelle", même sophistiquée. Cet argument est tendancieux parce que l'extraire ne permet que de le contrôler, au mieux, pas d'éliminer sa radiotoxicité.

b) <u>Son retour dans la filière civile évite l'utilisation à des fins militaires</u>. En France, la filière militaire et la filière civile du Pu sont nettement distinctes (en particulier, les usines civiles ne sont pas autorisées à fabriquer du Pu militaire, qui doit être fabriqué à part). Insistons sur le fait que les qualités isotopiques du Pu militaire et civil sont très différentes, ce qui fait que fabriquer une bombe à partir de combustible civil n'est pas chose aisée.

Inversement, le retraitement de Pu militaire est délicat et ce matériau très particulier nécessite de profondes modifications pour être exploitable sans danger dans une filière civile. Actuellement, à travers les accords SALT, seuls les USA et la Russie ont prévu de décommissionner une partie de leur Pu militaire (34 tonnes chacun). Le retraitement de ce combustible sera effectué en France, une fois que les pays producteurs auront (secret défense oblige) « harmonisé » le pourcentage isotopique de la poudre de PuO₂ qu'ils fourniront à l'opérateur Cogéma. Les accords passés avec les USA ont mené à un premier test et le premier assemblage de MOX fabriqué à partir de Pu militaire a été livré à l'exploitant US en 2005. Si tout se passe selon les prévisions, 4 PWR devraient être moxés en 2009 aux USA avec du Pu d'origine militaire. Les accords avec la Russie sont nettement moins avancés (2004). Inversement,

³ la fraction non soluble de Tc est gérée à part depuis longtemps ; notons que l'on maîtrise mal la quantité de Tc sous forme insoluble d'un combustible à un autre.

c) <u>Pu fournit de l'énergie supplémentaire</u>. Il y a effectivement un effet prolongateur du Pu, matériau fissile. Il reste toutefois à faire la balance économique entre l'énergie dépensée pour récupérer Pu et l'énergie qu'il apporte. D'aprés le CEA, le gain serait faible ou nul (mais il reste à savoir comment tout ceci est calculé).

d) <u>La pénurie prévisible de l'uranium</u>, l'extension de la filière RNR (Réacteur à Neutrons Rapides), le manque de Pu qui sera la conséquence du développement de cette filière dans le monde entier imposent le retraitement. Tous ces arguments tombent à l'eau si l'on abandonne la filière RNR, comme c'est maintenant le cas en France mais il est probable que les RNR reviendront à la mode, du fait des contraintes énergétiques qui s'accumulent.

3) On réduit considérablement le volume des déchets.

Bien entendu, cette réduction dépend du type de retraitement. En 1980, on avait en moyenne 3 m³ de déchets prévus en stockage profond par tonne de combustible irradié, en 1995 on était à 1 m³ par tonne et on est à moins de 0,5 m³ en 2003. Si on ne retraite pas, il semblerait que l'on atteigne 2 m³ par tonne.

4) Le retraitement diminue la radioactivité

C'est pour le moins une assertion hasardeuse. Le retraitement ne diminue en aucune façon la radioactivité <u>globale</u>. Il est clair que les comptes des "pro retraitement" ont tendance à « oublier » le Pu, puisque le retraitement le déplace de la case "déchets" à la case "combustible", ou "matériau noble", ce qui fait du même coup, disparaître sa radioactivité. Ceci peut très bien être considéré comme un tour de passe passe comptable.

Notons qu'un argument supplémentaire se fait jour depuis peu dans la littérature spécialisée : le retraitement serait également un moyen de récupérer les métaux précieux tels que Pd, Rh, Ru et Ag présents dans le combustible. La validité et l'intérêt économique de cet argument restent à démontrer.

II. 4. 2. A-t-on le choix de retraiter ou non ?

A priori, nous avons le choix puisque certains pays ne retraitent pas leurs déchets (Suède, USA, par exemple en 2004). Parmi les pays qui retraitent (au moins partiellement) leurs combustibles, citons (en 2002), le Japon, la Suisse, l'Australie, l'Allemagne, la Russie et la France. D'autres pays font de l'entreposage à sec des barres de combustibles, en attendant de prendre une décision.

Le cas américain est exemplaire à ce sujet. Nous avons déjà évoqué plus haut les questions politico-philosophiques du projet de retraitement présenté par la DOE début 2006, et nous survolerons ici les problèmes techniques qu'il soulève. Le radical changement d'optique contenu dans ce plan est à la fois une impressionnante démonstration de la volonté d'une nation puissante de changer de cap et la preuve que toute vérité politique est éphémère.

En 1992, le « Nuclear Act » confirmait le cycle ouvert (sans retraitement) annoncé dès 1973 (lors de la présidence de J. Carter). Ce choix d'un stockage direct était la conclusion logique de plusieurs tendances lourdes de l'administration et de la société américaines : pas de problème d'approvisionnement considéré, peur d'une prolifération de Pu à visées militaires en cas de retraitement. Le Nuclear Act de 1992 stipulait également qu'un site de stockage serait construit pour 1998 dans les Yucca Mountains (Nevada, à quelques 100 miles de Los Angeles, dans un désert inhabité) et on notera le délai très court imparti pour la construction d'un tel ouvrage. Un second site de stockage était prévu, « quelque part à l'est du Missipi » (donc dans la région peuplée des USA). La DOE devait, de plus, commencer à retirer le combustible usé des piscines des exploitants dès 1998 en vue du stockage et une

taxe sur les MW vendus a été effectivement prélevée pour financer le tout. En 2006, force est de reconnaitre que les délais imposés n'ont pas été respectés, ce qui conduit à un embroglio juridique.

A l'heure actuelle (2006) le combustible déchargé annuellement aux USA est de l'ordre de 2500 t/an. Le site des Yucca Mountains dont la construction n'a toujours pas démarré en 2006, se trouve donc, de fait, déjà plein avant d'avoir été ouvert, la masse totale des combustibles usés en attente étant de l'ordre de 70 000 t, soit la capacité maximale prévue pour le site ! Pour ne rien arranger, les spécifications de sécurité pour le site des Yucca Mountains ayant évolué avec le temps, le site n'est déjà plus aux normes avant d'être construit, ce qui fait qu'il n'y a plus aucun planning de construction publié. Un réflexe typiquement américain fait qu'en 2006, 61 actions en justice ont été déposées par des électriciens exploitants contre la DOE, qui ne tient pas son engagement de retirer le combustible usé des centrales. Le premier cas a été jugé (2006) et la DOE condanmée à verser 31 MUSD, ce qui n'est sans doute qu'un début. Certains états (Californie, Minessota) ont pris la relève, en votant des lois interdisant la prolongation du fonctionnement des centrales nucléaires sur leur sol si la gestion des déchets n'est pas effective. On se dirige probablement vers un nouveau black-out dans certains états, comme à New-York ou en Californie. Bref, début 2006, l'impasse était totale.

Tout ceci (et bien d'autres considérations géopolitiques dans le détail desquelles nous n'entrerons pas) a mené les USA à proposer en février 2006 le « Global Nuclear Energy Patnership », qui représente, de fait, un changement radical de la politique menée jusqu'à présent vis-à-vis des déchets nucléaires américains. Par ailleurs, il est prévu de construire le plus vite possible un laboratoire de recherche pouvant traiter jusqu'à 25 t de combustible par an (les américains ne disposent pas encore -2006- de ce type d'installation sur leur sol puisqu'ils ne retraitaient pas jusqu'à présent ; ce serait équivalent à l'installation française Atalante, sur le site de Marcoule), un démonstrateur pilote pour le recyclage groupé des Actinides Mineurs (AM) pour 2011 et un RNR au Na, combustible de type UPuZr pour 2014, avec un retraitement par pyrochimie. Encore une fois, ces délais très courts paraissent un peu difficiles à tenir.

En ce qui concerne la France, les piscines de stockage d'attente commencent à déborder (capacités de stockage en piscine saturées vers 2010) et il va bien falloir faire quelque chose de ces combustibles en fin de vie, qu'on les retraite ou qu'on les stocke en l'état. Cependant, cette dernière hypothèse est délicate à mettre en oeuvre en France. Le mot d'ordre a tellement été le tout retraitement que l'on a fort peu étudié les modalités d'un stockage sans retraitement de barres de combustibles et que cela ne s'improvise pas.

II. 4. 3. Qui décide ?

C'est une grave question car les éléments de décision ne sont pas tous scientifiques, bien au contraire. Bien qu'une loi ait été votée en 1991 par une Assemblée responsable et fort bien informée par une commission de haute qualité scientifique, les choix faits à l'époque ont été partiellement remis en cause par des changements de la politique d'EDF. Il y avait trop de Pu dans le monde pour le parc PWR fonctionnant avec du MOX et Super Phenix n'a pas eu le succès escompté. En conséquence, depuis 1994, EDF ne retraite plus que 850 t sur les 1200 t extraites par an et entrepose le reste, à la Hague (les autorisations d'entreposage sont données pour 30 ans et d'après AREVA, il serait possible de prolonger de 20 ans). Ce retraitement partiel conduit à environ 120 t de MOX, capacité compatible avec le

chargement en MOX des centrales françaises. EDF a signé en 2002 un engagement vis à vis d'AREVA pour du retraitement jusqu'en 2007, et une option (« engagement consenti ») est prise jusqu'en 2015. Sans vouloir présager de la décision du Parlement français (2006), l'opérateur EDF a déjà prévu deux scénarios possibles : retraitement différé ou stockage direct du combustible mais on pourrait également se diriger vers une relance spectaculaire du nucléaire civil (avec retraitement).

II. 5. Retraitement poussé

II. 5. 1. Introduction

La loi française de 1991 (dite loi Bataille) donne mission au CEA, au CNRS et aux autres organismes de recherches d'étudier la question du devenir ultime des déchets nucléaires selon les trois axes suivants :

1) séparation et transmutation des éléments à vie longue

2) stockage dans les formations géologiques profondes

3) conditionnement de longue durée en surface et/ou subsurface

Ces trois axes de recherches ont été définis après un examen sérieux et attentif de la situation qui prévalait en 1991 et il est prévu par la loi que les deux assemblées représentatives soient de nouveau consultées en 2006. Des rapports d'étapes réguliers sont fournis aux représentants élus.

En dehors de la France, seul le Japon s'est doté d'une loi sur ce sujet. Un bilan a été présenté au parlement japonais en 1999 et la décision de construire un site de stockage a été prise en 2000. A l'heure actuelle (2002), l'étude de plusieurs sites possible est entamée (géologie, hydrologie etc).

II. 5. 2. Retraitement poussé : pourquoi, comment, dans quelles conditions ?

Bien que les trois axes de la loi soient fortement tournés vers l'aspect stockage et conditionnement, l'axe 1 impose de lancer des recherches sur les éléments à vie longue et notamment les AM, en vue de leur transmutation. La transmutation (qui sera détaillée lors de l'Ecole mais dépasse de très loin le cadre de ce cours) nécessite une profonde refonte des opérations industrielles actuelles du retraitement et des modifications très importantes de l'ensemble du cycle électronucléaire. Elle passe par le « retraitement poussé », qui permettrait de séparer (éventuellement isotopiquement) les éléments prévus pour la transmutation. On se trouve donc immédiatement confronté à l'évolution de la définition du déchet radioactif ultime, puisque si les AM sont brulés dans des centrales qui restent à concevoir, ils disparaissent de la case « déchets prévus en stockage profond ». Outre les AM, d'autres éléments sont apparus comme nécessitant une étude approfondie, afin de décider s'il faudrait les transmuter ou les stocker dans des matrices spécifiques : ¹²⁹I, ³⁶CI, ⁹⁹Tc, Cs (tous isotopes confondus) et ⁷⁸Se. Cette dernière liste d'éléments a évolué au cours des 15 années de la loi Bataille, le Se apparaissant relativement tard dans cette période.

Il est donc très important d'insister sur le fait que le retraitement poussé, dans sa forme actuelle, n'est qu'une étape. Rappelons certaines des conclusions de la CNE (Commission Nationale d'Evaluation française) en juin 2005 :

1) « Séparation poussée et transmutation forment un tout indissociable ».

2) « Un long chemin reste à parcourir pour la démonstration technique de la transmutation »

3) « On ne dispose pas d'un RNR-sodium dont la faisabilité technique en situation de transmutation soit démontrée ».

En conclusion : « la transmutation est un espoir qui repose sur des filières qui ne sont qu'à l'état de concept à ce jour » (tiré de la présentation de B. Tissot, juin 2005, président de la CNE).

Quoiqu'il en soit, l'augmentation régulière, du fait du déchargement, des quantités de combustible usé rend de plus en plus délicates les modalités actuelles, en particulier le transport d'un coté sur l'autre des combustibles usés et retraités à travers le continent européen. Les objectifs (annoncés en 2004) de l'opérateur français du secteur sont de diviser par 3 le prix du retraitement, en optimisant les procédés hydrométallurgiques (un seul cycle d'extraction, usines compactes etc). Au Japon et aux USA, la priorité est également à la réduction du volume des déchets ultimes, ce qui passe par un cycle fermé pour les AM et des RNR. En Russie, l'accent est mis sur le traitement des déchets antérieurs accumulés.

II. 5. 3. En guise de conclusion

On n'échappera pas au stockage, quels que soient les progrès du retraitement. C'est la nature et la durée de vie des éléments stockés qui seront modifiées par l'option choisie.

Note :

En ce qui concerne le démantèlement des usines, fin 2004, 3 réacteurs étaient soit totalement démantelés en France soit en cours : Chinon (2 tranches UNGG) et Brennilis, (tranche à D_2O en cours). Au total, dans le monde, 19 réacteurs sont démantelés ou en passe de l'être fin 2005, de types variés : PWR, UNGG, AGR, D_2O etc.

III. Y A T-IL DES DECHETS DANS LE NUCLEAIRE ?

III. 1. Les déchets ? Quels déchets ?

Tout d'abord, voyons la définition du déchet radioactif selon l'Agence Internationale de l'Energie Atomique : "Toute matière pour laquelle aucune utilisation n'est prévue et qui contient des radionucléides en concentration supérieure aux valeurs que les autorités compétentes considèrent comme admissibles dans des matériaux propres à une utilisation sans contrôle". Cette définition a souvent été reprise par les Assemblées Nationales.

Le classement « administratif » des déchets n'est pas simple, compte tenu de leur diversité d'état (solide, liquide ou gazeux) et de leurs caractéristiques « annexes » (déchets cellulosique ou métallique etc). C'est probablement une des raisons pour lesquelles il est si difficile d'obtenir des chiffres clairs et cohérents quant au volume de ces déchets. On répartit les déchets selon deux caractéristiques majeures : leur activité totale et la présence ou l'absence de produits radioactifs de longue période (i.e. supérieure à 30 ans)⁴.

- déchets de Très Faible Activité (TFA): entre autres, les déchets miniers mais aussi les barres de graphite issues du démantèlement des UNGG françaises, qui contiennent du ¹⁴C. On y retrouve aussi tous les objets contenant du radium (montres, appareils de mesures anciens etc...)

- déchets de Faible Activité (FA), à vie courte ou à vie longue : activité comprise entre 10² et 10⁵ Bqg⁻¹. Ce sont en général des déchets technologiques, composés pour une bonne part de cellulose (gants, chiffons, blouses etc) mais aussi tous les outils contaminés, les palettes de transport ...

- déchets de Moyenne Activité (MA), à vie courte ou à vie longue: activité aux alentours de 10⁵ Bq g⁻¹. Ce sont des résines de réacteurs, des boues de retraitement, des fragments de métaux...

- déchets de Haute Activité (HA) : Fortement radioactifs, contenant des PF, émettant beaucoup de chaleur. Activité aux alentours de 10⁹ Bqg⁻¹. Ils doivent être refroidis en piscine au moins 30 ans avant un éventuel stockage en site géologique profond. Ils proviennent du retraitement ou sont constitués du combustible irradié non retraité et laissé en l'état.

Notons que l'industrie civile du nucléaire n'est pas la seule à générer des déchets radioactifs. Les centres de recherches et les hopitaux produisent aussi de ces déchets, en quantité faible (petits producteurs, selon la terminologie ANDRA) mais de composition variée.

III. 2. Quels tonnages ?

Pour appréhender cette question, il faut toujours considérer les aspects de volumes et de radiotoxicité. L'argument des écologistes sur la dangerosité des déchets nucléaires est biaisé : ils oublient un peu trop vite que les volumes générés sont faibles (rappel : les soutes de l'Erika, un des trop nombreux pétroliers à avoir coulé, recelaient encore fin 2003 13 000 tonnes de brut qui devrait être pompé soit un volume approximatif de : 10 000 m³ si d = 0,8 m³). On comparera ce chiffre à celui des déchets HA, cf tableau T3.

⁴ Une ancienne classification faisait état de déchets de classe A, B et C. Elle doit être abandonnée

En 1998, en France, la production de déchets (par an et par habitant) s'élevait à 2500 kg de déchets domestiques auxquels s'ajoutent 2900 kg de déchets industriels. De ces derniers, il faut considérer 70 kg de déchets toxiques, dont 1 kg de déchets radioactifs, qui se subdivisent en : 930 g de faible activité, 66,6 g de moyenne activité et 3,3 g de haute activité (source : centenaire de la radioactivité).

Les déchets FA, quoiqu'importants en volume, ne représentent que quelques % de l'activité totale, tandis que les déchets HA représentent une très grande part de l'activité totale.

T3 : déchets radioactifs produits en France. Volume cumulé sur la période 1998-2020 (estimation ; source : rapports Bataille et Rivasi de l'Assemblée Nationale).

type	volume cumulé	activité (TBq)	
	(m ³)	α	β, γ
TFA	250 000	3	
FA et MA (vie courte)	330 000	220	2,5x10 ⁴
MA (vie longue)	80 000	5x10⁵	1,7x10 ⁷
HA	6 000	5x10 ⁶	10 ⁹

III. 3. Quels rejets ?

En ce qui concerne les rejets (qui ne sont pas à proprement parler des déchets dont le devenir serait strictement controlé), il faut distinguer les rejets des centrales de ceux de l'usine de la Hague. Dans ce cadre, signalons que la dissolution du combustible génère de nombreux composés gazeux, dont les gaz rares ⁸⁵Kr, Xe ainsi que I₂, ¹⁰⁶Ru (gazeux sous forme RuO₄). Seul est récupéré Ru, les autres étant évacués par les cheminées. L'iode est rejetée à la mer. L'affaire du tuyau de la Hague (1997) traduit le cas des rejets liquides, évacués vers la mer. Les déchets solides, du fait de leur faible encombrement, sont intégralement stockés. L'usine de Sellafield, en Angleterre, a rejeté en mer d'Irlande (entre 1950 et 1992) 1,1 MCi de ¹³⁷Cs, 16,2 kCi de Pu (239 et 240) et 14,6 kCi de ²⁴¹Am. Sur le site de La Hague, en dix ans, les rejets ont diminué d'environ 90% alors que les limites légales n'ont pas varié et que les quantités traitées (au moins jusqu'en 1996) ont fortement augmenté. A l'heure actuelle (2002), la part radioactive des rejets de La Hague en Atlantique et mer du Nord est inférieure à celle des industries « classiques » (phosphates + pétrole + gaz : les phosphates contiennent toujours des guantités non négligeables d'uranium) et ne représente que 1% des autorisations radioactives légales. Signalons que les déchets rejetés en mer par l'usine de La Hague contiennent beaucoup de nitrates, ce qui peut aussi poser un problème écologique de nature non radioactive.

Rejets moyens par réacteur et par an (réacteur de 1300 MW, année 2003, source : RGN n°1, 2005). Attention aux unités. * : estimé

rejets liquides		rejets ga	rejets gazeux	
I (GBq)	0,008	gaz rares (TBq)	2,2	
¹⁴ C (GBq)*	16,2	¹⁴ C* (TBq)	0,22	
T (TBq)	24,1	T (TBq)	1,18	
autres (GBq)	0,6	I (GBq)	0,04	

T18 : Rejets légaux gazeux et liquides pour la Hague et Marcoule au début des années 1990. Les chiffres entre parenthèses correspondent aux activités totales traitées par an.

	La Hague (Ci/an)	Marcoule (Ci/an)
liquides		
émetteurs β, γ	45000 (1,2 10 ⁹)	5000 (5 10 ⁸)
³ H	5,3 10 ⁵ (1,1 10 ⁶)	non fourni
α	90 (1,6 10 ⁸)	2 (10 ⁸)
gazeux		
⁸⁵ Kr	10 ⁷ (1,7 10 ⁷)	1,5 10 ⁶ (non fourni)
³ H	5 10 ⁴ (1,1 10 ⁵)	non fourni
¹²⁹	2 (61)	0,6 (4,4)
Autres PF	10 (10 ⁹)	2 (5 10 ⁸)

III. 4. Traitement des effluents et des déchets solides

III. 4. 1. Catégories et origine des effluents et des solides

On appelle effluents d'un procédé chimique tous les fluides qui sont issus de ce procédé et qui sont considérés comme des déchets non recyclables.

Les problèmes chimiques inhérents à chaque catégorie de déchets obligent à distinguer :

1) les effluents aqueux de Haute Activité (HA), qui sont vitrifiés.

3) les solutions organiques, qui sont recyclées au maximum.

Les effluents HA proviennent du premier cycle de séparation du combustible. Ils contiennent l'essentiel des PF. Les déchets MA et FA proviennent de la dissolution partielle de la gaine, des résines des piscines de stockage, des laboratoires d'analyses, de la décontamination des appareils...

De plus, les opérations du retraitement permettent de récupérer des déchets solides : fines de dissolution incomplète, coques et embout contaminés, résines échangeuses d'ions, chiffons, objets contaminés etc.

III. 4. 2. Vitrification des HA

Il faut concentrer (objectif de réduction des volumes), vitrifier et entreposer en attendant un lieu de stockage définitif (loi de 1991). Les solutions sont acides. Elles contiennent des traces d'U, de Pu et des transuraniens, du fait du rendement de séparation n'atteignant pas 100%. Pour limiter l'attaque acide des appareillages lors de la concentration (par évaporation), on détruit conjointement l'acide nitrique (HNO₃). Les gaz dégagés sont récupérés pour reformer une partie de HNO₃. Le taux

de concentration final dépend beaucoup des éléments présents car la solution doit pouvoir évacuer la chaleur émise. Les précipités qui se forment inévitablement au cours de l'opération sont un gros inconvénient. En se déposant dans le fond des cuves, ils peuvent provoquer un échauffement local. La chaleur dégagée par la solution nécessite un refroidissement constant des cuves et les dégâts radiolytiques occasionnés par la très forte activité se traduisent par un fort dégagement de H₂ et O₂, d'où un risque d'explosion. Pour finir, la « soupe chimique » constituée comprend des donneurs et des accepteurs d'électrons, ce qui augmente les risques de réactions, c'est-à-dire d'explosion (une usine de retraitement du combustible a d'ailleurs explosé au Japon en 1997). En conséquence, les cuves sont, en permanence, ventilées, brassées, refroidies. Une fois l'évaporation à sec achevée, on utilise les résidus solides (poudre de déchets) comme agents constitutifs de verres, dits verres nucléaires, coulés dans des conteneurs en acier. On traite de l'ordre de 60 litres à l'heure ; un container en verre pèse environ 400 kg pour un volume de 180 litres. La quantité de déchets radioactifs inclus dans le verre est limitée par la chaleur dégagée et la qualité finale de ce verre dopé. Les fûts sont alors entreposés dans des puits ventilés. Les volumes produits sont de l'ordre de 15 l par tonne pour le combustible UNGG. Ils sont de 110 litres par tonne pour les réacteurs à eau légère (2003). En 1985, Marcoule avait produit 417 tonnes de verres, contenant 1,7 10⁸ Ci.

III. 4. 3. Dégradation et traitement des solutions organiques

Nous ne détaillerons pas les processus radiolytiques menant à la détérioration des solvants et de l'extractant. Du fait de l'irradiation intense et prolongée que subissent les solutions, le TBP (molécule extractante utilisé pour la séparation de U et Pu) est détruit et des dérivés se retrouvent en solution. Aucun de ces composés n'a évidemment la même affinité pour U et Pu que le produit de départ et certains sont solubles dans la phase aqueuse. Leur présence diminue les rendements d'extraction et perturbe le retraitement. De plus, le TBP est attaqué par l'acide nitrique. Globalement, le nombre de composés formés est très grand et leurs fonctions chimiques sont très diverses, de sorte que le traitement des solvants n'a d'autre but que d'éliminer ces produits de dégradation. Les produits de dégradation éliminés du solvant sont concentrés par distillation puis stockés (vitrification avec les HA). Même si le TBP est purifié par ces méthodes, le solvant, qui est recyclé, se dégrade lui aussi. On emploie par exemple l'incinération, ce qui nécessite des installations complexes pour éliminer les radionucléides avant la dispersion dans l'atmosphère.

III. 4. 4. Déchets solides

Les « coques », c'est-à-dire les morceaux de la gaine entourant le combustible, qui sont contaminées et activées sont bétonnées. Par ailleurs, il existe de nombreux déchets métalliques de formes diverses qui sont, depuis 2002, compactés avant d'être stockés. Ces opérations de compactage ont notablement contribué à la diminution des volumes de déchets partant au stockage pour une tonne de combustible retraité. L'usine de compactage a une production nominale de 2000 colis par an (2002), qui sont destinés soit au stockage sur le territoire français soit au retour vers leur pays d'origine.

IV. LE STOCKAGE "DEFINITIF" DES DECHETS

Le vocabulaire est important : dans l'ensemble de ce texte, le mot « entreposage » désigne une gestion non définitive, même si elle peut être de longue durée, tandis que le mot « stockage » concerne une solution définitive.

IV. 1. Les sites de stockage : quoi, où et quand ?

IV. 1. 1. En France

En France, l'ANDRA (Agence Nationale pour le traitement des Déchets Radioactifs, créée en 1991) gère les déchets, les sites de stockage et finance des études sur le devenir de ces déchets⁵. Les missions de l'ANDRA sont constituées d'un devoir de surveillance/gestion, de recherche et d'information du public. Dans le cadre de la loi de 1991, l'ANDRA doit stocker les déchets TFA ainsi que les déchets FA et MA. Les déchets HA sont passibles de la loi de 1991, c'est-à-dire qu'ils ne sont pour l'instant <u>stockés</u> nulle part : ils attendent (<u>entreposage</u>, essentiellement en piscine) que les recherches lancées par la loi de 1991 leur trouvent un lieu et un mode de stockage.

Il existe trois sites de stockage en France pour les déchets autorisés au stockage. Le centre de la Manche (i. e. La Hague), ouvert en 1969, est plein et a été fermé à l'exploitation depuis la mi-1994. Depuis 2003, ce site est en phase de latence (300 ans, soit 10 périodes). Auparavant, il était en phase de « surveillance active ». Il sera rendu au public après la période de latence. Le centre de l'Aube (près de Troyes) a été ouvert pour continuer le stockage (et devrait être plein vers 2050). Enfin, un site de stockage pour les déchets TFA a été ouvert en 2003 (30 ans d'exploitation prévus).

	La Hague	Aube	TFA
ouverture	1969	1992	2003
fermeture	1994	≈ 2060	≈ 2033
capacité (m ³)	527 000	1 000 000	650 000
surface stockage (ha)	10	30	28,5
remplissage	plein (1994)	151 132 m ³ (depuis 1992)	1869 t (fin 2003)

(source du tableau : ANDRA).

⁵ Le site de l'ANDRA est fort bien fait.

En ce qui concerne les déchets en entreposage d'attente, la décision de L. Jospin (10/12/1998) était de retenir deux sites de laboratoires de profondeur : Bure (Meuse, argile) et un site granitique à définir ultérieurement (pas Marcoule), à fins de comparaisons, plus un laboratoire de subsurface. Le forage du laboratoire souterrain d'étude de la Meuse a démarré en 2003 et est maintenant opérationnel (2006) pour toutes les études (géologie, hydrologie etc.) Notons que le stockage et l'entreposage de déchets y sont interdits, alors que l'utilisation de sources radioactives pour les recherches est autorisée. C'est un laboratoire d'études, pas un site de stockage.

IV. 1. 2. Ailleurs dans le monde

Tous les pays producteurs d'électricité par voie nucléaire sont maintenant confrontés à la gestion de ces déchets dont les volumes ne peuvent plus être négligés. Simultanément, tous ces pays étudient des solutions de stockages souterrains profonds et géologiquement stables afin d'entreposer les déchets HA pour des millénaires. Le Japon a déjà arrété un choix parlementaire en 2000 sur le principe du stockage (choix du site : possible jusqu'en 2020 ; construction jusqu'en 2030 ; stockage à partir de 2030) mais, en règle générale, on en est encore à étudier les avantages et inconvénients probables de différents sites, les dates de mises en service du stockage profond allant de 2008 (Allemagne, Suède) à 2050 (Belgique). Les sites retenus lors d'une première sélection, qui sera affinée ultérieurement, répondent tous aux mêmes critères : stabilité géologique prouvée, absence d'eau d'écoulement à proximité. On trouve entre autre:

- des couches ou dômes sel (Nouveau-Mexique, USA et Gorleben, Allemagne).

- des couches d'argile (Boom, Belgique)

- des granites (Canada, Finlande, Angleterre)

A cet égard, le cas des USA est particulièrement instructif et a déjà été évoqué plus haut dans ce cours. Ajoutons que tous les problèmes rencontrés ont logiquement relancé les études américaines sur l'intérêt du retraitement et, en parallèle, la recherche d'un second site de stockage profond. Parmi les solutions de bon sens qui se mettront peut-être en place, il est envisagé de normaliser les containers de stockage !

IV. 2. Le stockage : principes de base

IV. 2. 1. Le principe des multibarrières

Afin de limiter au maximum la dispersion des produits radioactifs, la France et d'autres pays ont adopté le principe des multibarrières : il s'agit d'interposer entre le déchets et " l'extérieur " plusieurs barrières de nature différente. C'est pour cela que l'on trouve un fût métallique associé à du béton ou à un bitume, par exemple et, pour finir les barrières géologiques naturelles. Les techniques évoluent et on se dirige vers un abandon du béton et des bitumes, remplacés par des céramiques et des verres. Toutefois, il n'est pas réellement prévu de reprendre les déchets emballés par ces vieilles techniques pour les remettre dans des emballages plus récents.

Les barrières technologiques sont choisies pour leur très faible lixiviation (dissolution par contact avec une eau courante), leur bonne tenue à l'irradiation mais aussi leur stabilité mécanique sur de longues périodes et leur compatibilité avec les déchets qu'on y inclut. De ce fait, on comprend bien qu'un retraitement poussé, conduisant à une séparation affinée des déchets, devrait faciliter la tenue des emballages par un choix spécifique plus pointu. Cependant, il ne faut pas oublier que tous les déchets radioactifs se transforment et qu'il faut donc tenir compte de l'évolution élémentaire dans le choix de la matrice d'enrobage.

IV. 2. 2. Etude du site de Bure

Fin 2006, il est intéressant de faire un petit bilan des études menées par l'ANDRA. Le site retenu, qui appartient au bassin de Paris, est stable géologiquement depuis 20 Mans (depuis la fin de la poussée des Alpes). La couche sédimentaire est très bien connue (phénomènal travail de sismologie, paléontologie, géologie etc. initié par la loi Bataille). La couche est très homogène, très peu perméable, elle évacuera bien la chaleur des colis et elle contient beaucoup d'argiles (qui gonflent et font bouchon à l'arrivée d'eau). Son épaisseur au site est de 150 m environ, située vers 500 m de profondeur. Il est envisagé d'y implanter, si les études valident le site, les déchets HAVL et MAVL sur un seul niveau de façon séparée. Le stockage sera modulaire, avec une structure en arête de poisson : branchées sur une galerie centrale, des galeries perpendiculaires accueilleront les déchets. La modélisation indique que les éléments les plus mobiles (I, CI, Se) devraient arriver en bordure de la couche dans 250 000 ans environ. les autres, moins mobiles, vers 1 Mans après la fermeture. A cette date, il est plus que probable que le milieu subira des modifications géologiques profondes (évolution des directions générales d'écoulement des eaux, notamment). En conclusion, actuellement « une faisabilité de principe est acquise au vu des connaissances réunies et des analyses effectuées » (source : P. Landais, mars 2006, directeur de l'ANDRA).

Pour l'après 2006, le programme de l'ANDRA devrait se focaliser sur les questions de thermique (évacuation de la chaleur). Technologiquement, un repérage affiné devrait permettre de choisir définitivement le site de stockage, de tester les réponses aux contraintes des matériaux prévus pour l'ouvrage d'art. Une galerie de démonstration pour les HA est prévue vers 2008-2010.

IV. 2. 3. Devoir de mémoire

Vaut-il mieux laisser tomber dans l'oubli les lieux de stockage ou préserver une mémoire indispensable à une gestion raisonnée des sites ? Que pouvons-nous deviner de l'état administrativo-politique de notre pays dans 300 ans ? Il a été décidé de transmettre au mieux toutes les informations sur les sites et leur contenu. Bien que chaque colis de déchets soit nanti d'un code barre, il n'est pas certain que nous soyons effectivement capables de transmettre l'information sur leur contenu sur des périodes longues. A ce sujet, on philosophera sur trois exemples historiques : 1) les chênes que Colbert ordonna de planter, notamment à Saint-Germain-en-Laye, en vue de la construction de navires de guerre et qui ne seront probablement pas abattus pour cette raison, 2) les platanes plantés sous Napoléon premier dans le sud de la France pour protéger ses armées de la chaleur et qu'on abat, en cette fin de 20ème siècle, parce que, soi disant, ils sont un danger pour des automobilistes irresponsables 3) les données enregistrées sur les disquettes des années 1980 et dont le format n'a plus cours à peine 20 ans plus tard.

Le choix d'un « papier permanent » pour regrouper les informations a donc été fait. Les données (localisation des sites, contenu et historique) seront également distribuées dans les régions concernées en espèrant qu'une partie au moins survivra jusqu'à ce que l'on en ait besoin...
IV. 2. 4. Le stockage est-il définitif ?

D'aprés la définition donnée plus haut, la réponse est « oui ». Toutefois, les incertitudes liées au retraitement, à l'évolution des techniques, des connaissances et des choix politiques imposent sans doute que le stockage soit réversible. La loi de 1991 demandait à ce que cette éventualité soit étudiée sérieusement. Faut-il s'assurer que nos descendants ne puissent pas faire de bêtises avec nos déchets ou faut-il leur laisser la possibilité de gérer différemment de nous ?

IV. 3. Autres possibilités de stockage

IV. 3. 1. Envoyer les déchets dans l'espace ?

Malgré son aspect séduisant, c'est le prototype même de la fausse bonne idée, quoique très répandue. Vu les développements récents des expéditions extraterrestres, il apparaît peu souhaitable de déposer nos déchets sur la Lune ou sur Mars. Par ailleurs, le congrès international de la Terre à Tokyo (1997) a bien établi que les déchets ne devaient pas être abandonnés à la dérive dans l'espace. Ces déchets ne peuvent pas être entreposés en orbite autour de la terre, zone déjà très encombrée et n'assurant pas un stockage définitif (tous les satellites de l'orbite géostationnaire finissent par retomber). Il ne reste plus qu'à envoyer les déchets sur le soleil, qui assurerait a priori une destruction totale des éléments. Cependant, un petit calcul montre l'inanité d'une telle proposition. La fusée Ariane 4, prouesse technique et exceptionnelle réussite commerciale, ne met pas plus de 10 t en orbite par lancement (Ariane 5 : 10 t, 1999). Une fusée propulsant les déchets vers le soleil devrait être conçue en conséquence, ce qui n'est pas si simple. Comme la France génère 1200 t de déchets par an, cela impose 120 décollages de fusée par an, soit 1 tous les trois jours avec, évidemment, un taux de réussite de 100% garanti à vie. C'est tout à fait irréaliste.

IV. 3. 2. Le stockage dans les sédiments marins profonds

pays	période	nbre de	masse (t)	activité (TBq)	lieux
		colis			
Belgique	1960-1982	55324	23100	2120	Atlantique et Manche
Angleterre	1948-1982	?	>74000	35101	Atlantique, Manche,
					mer d'Irlande,
					Madère
Suisse	1969-1982	7420	5321	4420	Atlantique
Hollande	1967-1982	28428	19162	336	Atlantique
France	1967 et 1969	46396	14200	8(α)+ 345 (β,γ)	Atlantique

Décharge en mer de déchets radioactifs (source : IAEA)

Sur les aspects scientifiques de cette question, cf article de « Pour la Science », n° 245(1998)46. On notera cependant, point éludé dans l'article, que les conventions internationales (Convention de Londres, confirmée à Tokyo et à Rio) s'opposent formellement à cette solution.

Cette interdiction par accord international est récente. Jusque dans les années 1980 environ, les pays européens (surtout la Grande-Bretagne) ont déchargé une partie de leurs déchets radioactifs en Atlantique Nord (cf tableau ci dessus, source IAEA). On notera que ces décharges ont été effectuées hors des eaux territoriales des pays impliqués, car elles ne présentent pas les profondeurs d'eau jugées indispensables à une faible contamination.

L'AEN a également utilisé l'Atlantique de 1971 à 1982 pour 123000 colis, représentant 30684 TBq, dont 428 TBq en émetteurs α . Enfin, toujours d'après l'IAEA, l'Angleterre a repris des immersions dans la période 1991-1996 pour 10,5 TBq, en Atlantique. Enfin, l'ex-URSS a également abondamment utilisé la décharge en mer.

IV. 3. 3. La proposition russe

En 1999, le gouvernement et le parlement russes ont évoqué la possibilité d'un stockage des déchets radioactifs d'autres pays, moyennant finances, dans la plaine russe, déjà fortement contaminée par les différents accidents nucléaires (Tchernobyl etc.). Pour l'instant (fin 1999), devant le tollé que cette idée avait déclenché, le parlement s'est rétracté. Cependant, que penser de cette proposition lorsque l'on sait que le gouvernement japonais se voit dans l'obligation de stocker sur son sol ses déchets finaux alors que la sismicité de l'archipel ne permet pas de trouver un lieu de stockage sûr ? En 2005, cette proposition a reçu un regain d'intérêt dans la presse.

IV. 3. 4. Autres idées

L'AEN (Agence pour l'Energie Nucléaire, organisme européen) avait lancé un groupe de travail international sur la question du stockage de 1977 à 1988 (France, Allemagne, Australie, Belgique, Canada, USA, Grande-Bretagne, Italie, Japon et Suisse). Parmi les solutions examinées, on notera l'intérêt pour les zones d'accumulation de sédiments en mer, où l'intervention humaine est nulle et les courants inexistants. Il s'agissait de creuser un puits puis d'y laisser tomber un colis de déchets en forme de torpille, qui se serait enfoncé sous son propre poids. Une autre solution par enfouissement sous les calottes glacières avait été étudiée.

IV. 4. Un site de stockage est-il fiable et sécurisé ?

IV. 4. 1. De quoi parle-t-on ?

Rappelons que les déchets radioactifs finiront par devenir non radioactifs, ce qui ne laissera plus qu'un éventuel danger chimique. Cependant, ceci peut prendre du temps et dépend, encore une fois, de la nature des éléments stockés. De ce point de vue, insistons sur le fait qu'une barre de combustible stockée en l'état pose un problème qualitativement de même nature qu'un colis de déchets issu du retraitement, le plutonium et l'uranium en plus. Compte tenu des lois de décroissance radioactive, la part de chaque type de déchets dans le total de la radioactivité est variable avec le temps. Les documents fournis montrent que l'on doit se préoccuper de la radioactivité sur des millénaires mais ceci n'est qu'une facette du problème. Il existe plusieurs types de risques sur un site de stockage de déchets radioactifs et les réponses qui doivent y être apportées ne sont pas de même nature:

- 1) Des individus, sans intention de nuire, s'introduisent sur le site. Ils peuvent être mis en danger et provoquer des dégats par ignorance ou inadvertance.
- 2) Des terroristes (terme générique) subtilisent des colis de déchets dans le but d'en disséminer la radioactivité.
- 3) Les colis de déchets se dégradent avec le temps et se mettent progressivement à fuir, induisant une dissémination de la radioactivité vers la géosphère.

4) Les modifications géologiques à long terme (faille, sismicité, détournement de cours d'eau etc) perturbent le site, qui se met à répandre sa radioactivité.

Le premier type de risque relève essentiellement du maintien de l'ordre public et d'une information/protection (panneaux, barrières etc) des passants. Le second risque, quoique très médiatisable, doit être relativisé. Même s'il est sans doute impossible d'empêcher un groupe paramilitaire déterminé d'entrer quelque part, il n'y a pas de risque sérieux de prolifération nucléaire par vol de colis de déchets. Rappellons qu'en France les colis ont été retraités et ne contiennent donc plus qu'une infime proportion de ²³⁵U ou de Pu, qui se trouvent de toute façon dans une matrice d'où il est très difficile de les extraire. Cependant, le risque d'une bombe sale demeure. Signalons qu'en 1982, un groupe terroriste lié à Carlos et dont le principal instigateur est devenu depuis député en Suisse, a lancé une attaque à la roquette contre le bâtiment de Superphenix (qui était alors en construction). Pas de mort et plusieurs missiles écrasés contre le mur d'enceinte.

Les deux derniers types de risques relèvent de la gestion scientifique des colis et du site, ainsi que de la quantification de ce risque : la mesure du danger passe par l'estimation de la dose reçue et transmise à travers l'ensemble de la biosphère. Autant dire que cette tâche est encore plus complexe (et hasardeuse) que la prévision météorologique. Enfin, les dangers réels sont différents à court et à long terme.

<u>Sur le court terme</u>, les colis ont préservé leur intégrité physique, le seul risque est celui d'une ingestion ou d'un contact accidentels (égarement d'un colis ou type de danger 1). Ceci est en général évalué par la quantité de Sv (Sievert, dose biologique) due à l'ingestion par une population de 1 tonne de déchets, scénario discutable, évidemment. Dans cette vision chiffrée des choses, les éléments les plus nocifs sont les PA et les PF (radioactivité, quantité présente).

<u>Sur le long terme</u>, et <u>avec le même critère de radiotoxicité</u>, ce sont essentiellement les actinides mineurs qui deviennent le centre des préoccupations (les PA et PF ayant décru), si tant est qu'ils ne soient pas transmutés, auquel cas, ils disparaitraient purement et simplement de l'inventaire de déchets à stocker. On retrouve là, comme à toutes les autres étapes du cycle du combustible, la diversité de solutions et d'options qui demande un choix politique cohérent s'appuyant sur une expertise scientifique. Par exemple, le site des Yucca Mountains est un site volcanique de cendres consolidées (milieu oxydant), tandis que le site de Bure est constitué d'argiles (milieu réducteur). cette différence de géologie a des conséquences considérables sur la chimie des éléments et donc leur disémination potentielle, ce qui doit être modulé par les choix technologiques, notamment la décision de transmuter ou non les actinides mineurs.

De façon générale, les éléments très labiles dans l'environnement sont potentiellement dangereux. C'est là que se situe toute la difficilté. Les actinides mineurs sont fortement toxiques par ingestion mais sont très peu labiles tandis que les PF, nettement moins toxiques que les AM sont, pour certains d'entre eux au moins, très labiles. Selon que l'on quantifie le risque d'un site de stockage par l'exposition des populations par ingestion ou par potentiel de dissémination (ou tout autre critère chiffré raisonnable), on aura en ligne de mire l'une ou l'autre de ces catégories d'éléments. Partout dans le monde, la notion de danger par ingestion a été retenue. Les éléments « dangereux » sont donc principalement les actinides mineurs ainsi que certains PF, dont la liste type a évolué au cours des 15 ans de la loi Bataille, du fait de l'amélioration des connaissances sur les propriétés physicochimiques du site de stockage retenu et des éléments devant y être stockés. Ainsi, en France, on est passé d'une liste I, Cs, Tc à une liste I, Cl, Se. Ceci a une implication déterminante dans le cas de Gen. IV et de l'option de transmutation, qui sera détaillée dans les chapitres correspondants de cette Ecole.

IV. 4. 2. Quelle échelle de temps ?

Globalement (tout type de stockage confondu), les simulations indiquent qu'un site de stockage ne retrouve la dangerosité initiale (radioactivité moyenne de la croûte terrestre ou de la mine d'où est extrait l'uranium de départ) qu'au bout d'un million d'années (même si les calculs sont compliqués et diffèrent donc d'un auteur à un autre ; cf documents joints). Par ailleurs, toutes les études semblent montrer qu'un colis type sera fiable sur environ 10 000 ans (rappelons que les « bétons » romains sont encore très bien conservés après plus de 2000 ans, malgré une exposition aux conditions atmosphériques). Après cela, le colis relarguera au moins en partie la radioactivité qu'il contiendra à cette époque. Au delà du million d'années, il n'est pas possible d'être affirmatif en ce qui concerne le devenir géologique du site de stockage choisi, chose contre laquelle on ne peut rien (mouvements géologiques à l'échelle de la plaque continentale) mais ceci ne devrait pas poser de problème puisque le site ne sera plus radioactif. Même si l'échelle peut paraitre disproportionnée comparée à l'espérance de vie de l'espèce humaine, il faut donc se préoccuper des temps compris entre 10^4 et 10^6 ans.

Pour réduire le temps pendant lequel le site est radioactif, une seule solution : « éliminer » des éléments de l'inventaire. Ceci peut se faire en retirant le plutonium par recyclage mais ce n'est qu'une solution transitoire : le plutonium (du moins pour le MOX) devra retourner en stockage, avec une balance isotopique modifiée. Une option envisageable est donc celle de la transmutation, qui sera détaillée dans le cadre de cette Ecole par un autre intervenant. Les calculs sont délicats à mener et dépendent beaucoup des options retenues mais, grosso modo, les simulations indiquent que le stockage après retraitement et transmutation (option recyclage de 99,9% du Pu et transmutation de 99% de Np+Am+Cm), permettrait à un site de retrouver le niveau de la radioactivité naturelle en 10 000 ans, période à laquelle les futs commenceront à lâcher. C'est donc une des justifications des recherches menées sur la transmutation.

IV. 5. Bioprocessus et stockage nucléaire

IV. 5. 1. Etat physico-chimique prévisible d'un lieu de stockage profond

La température est de 50°C environ et la pression de 50 atm (stockage à 500 m sous terre). Le pH est très basique (=alcalin), de l'ordre de 12. Par choix du site, l'eau d'infiltration est peu présente. A cet environnement hostile, dû au site lui-même, il convient d'ajouter les rayonnements des fûts (de 1 à 10 Gy h⁻¹, voire bcp plus). Les colis de bitume sont en fait constitués de 60% de bitume et de 40% de sels (boues de coprécipitation et radioéléments) notamment des sulfates et des nitrates, l'ensemble étant coulé dans des fûts métalliques. Les fûts contiennent environ 2% d'eau.

IV. 5. 2. Faut-il s'inquiéter des bactéries ?

Malgré l'aspect hostile du lieu, il est tout à fait possible que des bactéries s'y développent. En effet, les sulfates, les nitrates et l'eau constituent la base de la nourriture des bactéries, qui ne sont nullement génées (pour certaines espèces) par

le pH, la chaleur ou la pression (on a trouvé des colonies bactériennes florissantes dans les grandes profondeurs, près de jets de soufre, où la température de l'eau atteint 100°C sous pression). La dose de rayonnements estimée est très inférieure aux limites supportables pour les bactéries, qui tiennent jusqu'à quelques dizaines de Gy par heure. De plus, l'adaptabilité des bactéries est stupéfiante : des souches parfaitement calibrées évoluent en l'espace de 6 mois pour s'adapter à un environnement nourricier quelconque (ou à peu près) fourni en laboratoire. On a observé de telles variations pour des colonies bactériennes présentes dans les mines de Bohème et le phénomène est bien connu pour les sites pétroliers. La partie la plus stable du génome est peu modifiée mais la bactérie évolue pour se nourrir des éléments radioactifs présents, en lieu et place du fer, habituel élément indispensable. Si l'on supprime les éléments radioactifs, les colonies évoluent, tout aussi rapidement, pour se réhabituer à leur nouvel environnement. A l'extrême limite, la notion d'espèce est donc floue en ces circonstances. (Note : la résistance des bactéries aux antibiotiques est souvent parallèle à leur acceptance aux métaux lourds...).

IV. 5. 3. Rôle des bactéries dans la dégradation des colis

Des expériences et des simulations ont permis d'établir les faits suivants :

Une partie des bactéries est déjà présente sur le site et donc parfaitement adaptée à lui depuis longtemps. Les autres seront apportées par les eaux d'infiltration environ 200 à 250 ans après l'installation du site. Les bactéries dégraderont progressivement les fûts, ce qui générera des gaz variés (CO₂, N₂, H₂S...) et le développement des colonies devrait se solder par 230 g de bactéries créées par fût de 200 kg (1 g de bactéries $\cong 10^{12}$ cellules). Tant que la dégradation bactérienne sera effective, les bactéries seront fixées aux fûts et limiteront donc la dissémination des éléments radioactifs. Cependant, du fait de la quantité limitée d'eau, la dégradation devrait être réduite (estimée : 0,28 % en masse du fût). Si les possibilités de développement s'épuisent, les bactéries se mettront en dormance et s'échapperont dans les eaux de lixiviation, emportant alors les éléments qu'elles auront fixé sur leur paroi cellulaire. Ceci devrait avoir lieu sur des temps tels que le danger radioactif devrait être acceptable.

Sources : Marie-Françoise Liebert, Conférence PRACTIS (1998) et communication privée.

IV. 6. Et si on ne retraitait pas ?

Tout d'abord, ce n'est pas parce que l'on ne retraite pas que les déchets disparaissent du bilan comptable ! Les barres de combustible devraient alors être stockées en l'état, sous forme de déchets HA. Par ailleurs, il y aura toujours des déchets technologiques FA et MA (résines échangeuses d'ions et tout ce qui provient de la surveillance des centrales ou des piscines de refroidissement), ainsi que des déchets miniers. En France, un programme d'étude sur le stockage/entreposage à sec a montré les limites de cette pratique : plus on attend, plus les barres se dégradent, ce qui rendra leur manipulation de plus en plus difficile. Dans les pays qui ne retraitent pas, les barres, après refroidissement, devraient être mises (entières ou sectionnées) dans des conteneurs adaptés. Tous les pays concernés se sont penché sur la question (Suède, USA) jusqu'au niveau du pilote industriel au mieux mais il n'y a encore aucune réalisation industrielle (2004).

DOCUMENTS



Fig. 1 - Rejets liquides de l'usine de La Hague en fonction des quantités traitées

Source : « Cycle du combustible nucléaire » EDP France, Le Ulis 2002, L. Patarin éds.

COMMUNIQUE DE PRESSE DU GROUPE AREVA, 8 février 2006

combustibles usés

.

A l'occasion de la présentation de son budget fédéral, le Département de l'Energie (DOE) a pris lundi 6 février une initiative majeure en faveur d'une croissance énergétique durable, intitulée « Partenariat Global pour l'Energie Nucléaire ».

Le "Global Nuclear Energy Partnership" (GNEP) vise à instaurer un système de services industriels et de garanties de fourniture permettant une expansion pleinement maîtrisée de l'énergie nucléaire à travers le monde, dans le respect des exigences de non-prolifération. Les deux principaux axes de ce partenariat sont :

Instauration d'un système international permettant d'accroître les garanties de, fourniture de services liés au combustible destiné aux pays souhaitant recourir au nucléaire, mais ne disposant pas d'industrie du cycle;

▶ le recours au recyclage des combustibles usés, qui permet la valorisation de leur contenu énergétique et la minimisation des déchets ultimes.

AREVA est prêt à contribuer à l'élaboration et à la mise en oeuvre d'un système de garantie de fourniture. Le groupe se réjouit également de l'engagement des Etats-Unis en faveur du recyclage des combustibles usés, qui favorise une gestion durable de l'aval du cycle nucléaire. Le recyclage permettra notamment d'optimiser, en termes de capacité et de sûreté, le site de stockage profond de Yucca Mountain (Nevada).

Le groupe a développé depuis 30 ans un savoir-faire unique en matière de traitement et de recyclage. « En France comme aux Etats-Unis, où AREVA emploie plus de 5 000 personnes, tous les collaborateurs du groupe sont prêts à apporter au gouvernement, aux organismes de recherche et aux industriels américains leur expérience pour l'élaboration de ce « Partenariat Global pour l'Energie Nucléaire », a déclaré Mike McMurphy, Président d'AREVA Inc.

Contacts AREVA

 Service de Presse : Charles Hufnagel / Patrick Germain Tél : 01 44 83 71 17 - Fax : 01 44 83 25 52 E-mail : press@areva.com 						
Relations Investisseurs : Vincent Benoit : Tél : 01 44 83 71 79 - Fa E-mail : <u>vincent.benoit@areva.com</u> Frédéric Potelle : Tél : 01 44 83 72 49 - F mail : <u>frederic.potelle@areva.com</u> Tous les communiqués ACCES DIRECT Enolish version	x : 01 44 83 25 07 ax : 01 44 83 25 07					
Comprendre						
Rendre Compte						
Dialoguer						
Devenir membre						
S'abonner à la new sletter						
Recevoir les communiqués						
Commander une publication						
FAQ						
Dan du site						
Recharche						

<u>Accueil</u> > <u>Actualités</u> > Presse > Communiqués



Allure générale de l'évolution temporelle de la radiotoxicité des différents composants majeurs des déchets. Unité des ordonnées : SV par tonne de métal lourd initial. Source : CLEF CEA

Processus et faisabilité de la transmutation des déchets nucléaires à vie longue

Frédéric Varaine¹

Département d'Etude des Réacteurs Service de Physique des Réacteurs et du Cycle CEA Cadarache

Résumé

La faisabilité scientifique de la transmutation des déchets à vie longue a été étudiée depuis de nombreuses années par la communauté scientifique. Ce cours n'est pas seulement un état de l'art des études menées dans le cadre de la loi de 91, mais tente de donner des conclusions sur la faisabilité scientifique et technique.

Les études ont été conduites dans le but d'évaluer de façon approfondie les possibilités d'un recyclage en réacteur nucléaire de ces éléments et de déterminer les domaines d'énergie des neutrons les plus appropriés pour la transmutation des actinides mineurs (américium, curium et neptunium) et de certains produits de fission (technétium, iode et césium).

Pour la faisabilité scientifique, l'efficacité de transmutation dépend initialement de deux paramètres clés : les sections efficaces et le niveau de flux neutronique. Un premier examen basé sur l'analyse des seules sections efficaces des actinides montre qu'indépendamment de la technologie du réacteur (critique, sous critique, type de caloporteur, ..) le spectre rapide est le plus favorable et minimise les réactions de capture tout en favorisant celles de fission et ceci pour l'ensemble des actinides.

Les modèles et données nucléaires utilisés pour la simulation demanderont à être validé de façon détaillée pour une réalisation effective d'un système de transmutation. Cependant le niveau actuel de connaissance permet la réalisation des calculs préliminaires donnant des résultats et des tendances crédibles pour réaliser les études de scénarios.

Pour la mise en œuvre de la transmutation, correspondant à sa faisabilité technique, les études ont porté sur l'utilisation des filières de réacteurs existants (réacteurs à eau sous pression du parc actuel ou réacteurs à neutrons rapides à caloporteur sodium) et de réacteurs de technologie innovante comme les réacteurs à neutrons rapides à caloporteur gaz. Les systèmes hybrides (réacteur sous critique couplé à un accélérateur) ont aussi été étudiés. Le mode de recyclage des radionucléides, qui peuvent être dilués dans le combustible nucléaire (recyclage homogène) ou concentrés dans des cibles spécifiques (recyclage hétérogène), a constitué l'un des paramètres d'étude.

Enfin l'évaluation d'une solution de gestion des déchets ne peut se faire qu'avec une vue globale du cycle (combustibles, réacteurs, usines du cycle) avec une analyse complète sur l'ensemble du cycle nucléaire à travers des études de scénario.

¹ frederic.varaine@cea.fr

Abstract

The scientific feasibility of long-lived waste transmutation was studied since several years by the scientific community. This review summarizes not only "a state of the art" after studies carried out during fifteen years in the framework of the law voted in 1991, but also try to give conclusions on the scientific and technical feasibilities.

The studies aimed to determine the most adapted field of neutrons energy for the transmutation of minor actinides (americium, curium and neptunium) and long lived fission products (iodine, cesium, technetium), in order to deeply evaluate the capabilities and possibilities of recycling those elements in nuclear reactor.

For the scientific feasibility point of view, the efficiency of the waste transmutation depends initially on two key parameters: cross sections and neutronic flux level. The elementary analysis carried out on the cross sections of actinides shows, that independently of the type of reactor considered (critical, sub critical, type of coolant,...) the fast neutrons spectrum makes it possible to minimize the reactions of neutron capture and favours the reactions of fission for the whole actinides. Measurements and evaluations of the nuclear data carried out specifically for long-lived waste subject, which represents an essential component with respect to the quality and to the relevance of the transmutation studies, are presented.

The nuclear models and data used for calculations will require more detailed validation in order to guarantee the reliability of an engineering project. However, these models and data make it possible today to perform preliminary calculations, whose results and tendencies are relevant and credible for scenarios studies.

For the implementation of transmutation, relating to its technical feasibility, the studies looked at using existing reactors (current fleet pressurized water reactors and sodium-cooled fast neutron reactors) and innovative technology reactors, such as the gas-cooled fast neutron reactors. The hybrid systems (accelerator-driven subcritical reactor) were also studied. The way in which radionuclides are recycled, either diluted in nuclear fuel (homogeneous recycling) or concentrated in specific targets (heterogeneous recycling), was one of the study's parameters.

Lastly, the evaluation of a new concept for waste management must be evaluated in the global electronuclear approach (fuel, reactor, process) with an analysis of the impact on the fuel cycle by scenarios studies.

Sommaire

1	Les	bases physiques de la transmutation	
	1.1	L'utilisation de photons : un rendement trop faible	
	1.2	Une solution : protons et spallation	
	1.3	Le meilleur choix : les neutrons	254
2	Car	actéristiques neutroniques des actinides	
3	Fff	icacité globale de transmutation en réacteurs	260
J 1	Ljji	ntucieuro de comer	
4		onysique au cœur.	
	4.1	Limitations sur le chargement d'actinides mineurs en RNR.	
	4.1. 4.1 1	L effet Donnler	
	4.1.2	La proportion de neutrons retardés (ou bêta effectif)	
	4.1.4	La chute de réactivité.	
	4.1.5	5 L'antiréactivité des barres de commande	
	4.2	Limitations sur le chargement d'actinides mineurs en REP	
	4.2.1	Impact sur la physique du cœur des réacteurs à eau pressurisée.	
	4.2.2	2 Les coefficients de température	
	4.2.3	3 L'effet de vidange du caloporteur.	
5	Inc	idence du mode de recyclage des actinides	
6	Cor	nséquences sur les grandeurs physiques du cycle du combustible	273
Ŭ	6.1.1	Fabrication.	
	6.1.2	2 Retraitement	
7	Les	produits de fission à vie longue	
8	Sim	nulation : démarche et motivation	
Q	Ins	méthodes de calcul	278
1	Les		
	9.1	Caractéristiques de la méthode de Monte Carlo	
	9.1.	Definition de la methode	
	9.1.2		
	9.2	Méthodes déterministes.	
	9.3	Les codes de calcul déterministes	
1	0 L	es données nucléaires pour la transmutation	
	10.1	La problématique	
	10.2	Les types de données nécessaires	283
	10.2	1 Les actinides.	
	10.2	.2 Les produits de fission à vie longue.	
	10.2	.3 La cible de spallation	
	10.2	.4 Les matériaux de structure	
	10.2	.5 Les autres matériaux.	
	10.2	.b Les donnees d'activation, de DPA, de production de gaz	
	10.3	Synthèse des données mesurées.	
	10.4	La modélisation	
	10.5	Les évaluations	
	10.5	.1 Exemple de validation des données nucléaires	

10.6	Expérience PROFIL	
11 Fa	uisabilité technique de la transmutation	
11.1	Modes de transmutation	
11.2	Incidence de la gestion du plutonium	
11.3	Transmutation des actinides mineurs en réacteurs à eau sous pression	
11.4	Transmutation des actinides mineurs en réacteurs à neutrons rapides	
11.4.	Capacités de transmutation en mode homogène et multirecyclage	
11.4.2	2 Capacités de transmutation en mode hétérogène et multirecyclage	
11.4.	Capacités de transmutation en mode hétérogène et monorecyclage	295
11.5	Les scénarios étudiés et les conclusions associées	
11.5.	Scénario RNR en mode hétérogène en un seul passage	
11.5.2	2 Scénario REP en mode homogène et multirecyclage	
11.5.	3 Scénario RNR en mode homogène et multirecyclage	
11.5.4	4 Scénario REP en mode homogène et recyclage de l'Américium seul	
11.5.:	5 Scénario RNR Génération IV en mode homogène et recyclage des actinides mine 298	eurs des REP
11.5.	5 Scénario ADS en double strate recyclant les actinides mineurs des REP	299
Remercie	ments	

Le principe de la transmutation consiste à éliminer les radionucléides à vie longue, en transformant leurs noyaux en noyaux non radioactifs ou à vie plus courte.

Cette transformation est réalisable en bombardant les matières à transmuter par des particules élémentaires comme les photons, les protons ou les neutrons. L'utilisation de photons n'est pas retenue compte tenu du rendement très faible de l'interaction photon-noyau. La transmutation par interaction directe de protons est handicapée par le fait qu'elle nécessite des protons de haute énergie pour vaincre la force de répulsion (entre deux charges électriques du même signe) qui s'oppose à leur rapprochement du noyau. Neutre électriquement, le neutron possède des propriétés plus favorables pour la transmutation. Il est d'autre part présent et disponible en grande quantité dans les réacteurs nucléaires ; il est à ce titre remarquable de constater que la meilleure voie de recyclage des radionucléides est de les réinjecter dans une installation du même type que celle qui les a créés.

La possibilité de cette transmutation nucléaire à l'aide de neutrons était acquise dès avant la loi de 1991. Les études ont été conduites dans le but de déterminer les domaines d'énergie des neutrons les plus appropriés pour la transmutation des actinides mineurs (américium, curium et neptunium) et des produits de fission (iode, césium, technétium) et d'évaluer de façon approfondie les possibilités d'un recyclage en réacteur nucléaire de ces éléments.

Sur la base de l'analyse des sections efficaces, les performances de transmutation des déchets à vie longue en fonction du spectre neutronique, indépendamment du type de système transmuteur, sont évaluées.

Pour évaluer par simulation les capacités de transmutation des réacteurs nucléaires, sont utilisés des logiciels de calcul reproduisant les phénomènes physiques se déroulant dans le cœur. Ces logiciels de calcul neutronique font appel à trois grands sous-ensembles dont la qualité conditionne le niveau d'incertitude à affecter aux résultats des calculs :

- des « bibliothèques de données », constituées à partir de grands fichiers internationaux de données nucléaires incluant les sections efficaces,
- des programmes ou codes de calcul intégrant divers modèles physiques et numériques,
- des expériences de qualification.

A partir des outils de calcul existants, développés et qualifiés pour les applications aux réacteurs classiques, des développements et extensions ont été réalisés sur chacun de ces sousensembles pour couvrir les spécificités des réacteurs transmuteurs de déchets.

Les nombreuses mesures nucléaires intéressant la transmutation réalisées au cours de ces dernières années, la plupart dans le cadre de collaborations impliquant le CEA, le CNRS, des universitaires, ou dans le cadre de projets internationaux, sont présentées.

Enfin, les différents programmes de qualification réalisés, de l'approche analytique jusqu'au niveau global, sont précisés.

1 Les bases physiques de la transmutation.

Le principe de la transmutation appliquée au traitement des déchets nucléaires consiste à modifier les noyaux des éléments à vie longue afin de transformer les isotopes concernés en des corps stables ou à durée de vie nettement plus courte ou présentant une radiotoxicité moindre.

Pour ce faire, il est nécessaire de bombarder les noyaux considérés par des particules élémentaires. Plusieurs voies ont été explorées, utilisant respectivement les photons, les protons et les neutrons.

1.1 L'utilisation de photons : un rendement trop faible.

En bombardant une cible avec un faisceau d'électrons fournis par un accélérateur, il est possible d'obtenir par effet *Bremsstrahlung* des photons qui peuvent donner lieu à des réactions (γ , χ n), c'est-à-dire que sous l'effet du rayonnement gamma incident χ neutrons sont éjectés du noyau. Appliquées à des corps trop riches en neutrons et de ce fait instables comme certains produits de fission (strontium 90, césium 137...), ces réactions aboutissent en général à des corps stables. Néanmoins, compte tenu de leur rendement très faible et du très haut niveau de courant d'électrons nécessaire, qui reste aujourd'hui hors d'atteinte, cette voie n'est pas retenue.

1.2 Une solution : protons et spallation.

L'interaction proton-noyau induit une réaction complexe, appelée spallation qui conduit à la fragmentation du noyau et à la libération d'un certain nombre de particules, dont des neutrons de haute énergie. La transmutation par interaction directe des protons n'est pas rentable, car elle nécessite pour surmonter la barrière coulombienne des protons de très haute énergie (1 à 2 GeV) pour lesquels l'énergie dépensée pour leur production est supérieure à celle qui est récupérée lors du processus qui a conduit à la génération du déchet... En revanche, la transmutation indirecte, en utilisant les neutrons de haute énergie produits lors de la spallation (au nombre d'une trentaine environ, suivant la nature de la cible et l'énergie du proton incident) permet d'améliorer très sensiblement les performances. C'est cette voie qui est à la base des concepts des réacteurs dits hybrides couplant un cœur sous-critique et un accélérateur de protons de haute intensité.

1.3 Le meilleur choix : les neutrons.

De par l'absence de charge électrique, le neutron est de loin la particule qui satisfait au mieux les critères recherchés. Il est d'autre part "naturellement" présent et disponible en grande quantité dans les réacteurs nucléaires où ils sont produits et assurent le maintien de la réaction en chaîne et produisent ainsi de l'énergie.

L'interaction neutron-noyau conduit principalement à deux types de réactions, la réaction de capture du neutron par le noyau cible et la réaction de fission du noyau. Pour les produits de fission, la capture permet en général de générer, après transformations successives, un corps stable. L'exemple typique est celui du technétium 99 (210000 ans de période) qui par capture neutronique se transforme en technétium 100 de période radioactive très courte (15,8 secondes) aboutissant par désintégration β^{-} au ruthénium 100 stable (voir figure 1).



Figure 1 : Principe de la transmutation du technétium 99

Pour les actinides mineurs, cette réaction de capture est à éviter car elle conduit à générer d'autres actinides et donc ne fait que déplacer le problème.

A titre d'exemple, l'Américium 241, de période radioactive 433 ans, se transforme majoritairement, sous irradiation par capture neutronique, en Am 242, qui lui-même devient très rapidement et en majorité, par désintégration β^2 , du Cm 242. Ce Cm 242 a une période radioactive de 163 jours.

On pourrait donc penser en première analyse que ce processus de transformation d'un élément à vie longue, l'Am 241, en un élément à vie courte, le Cm 242 est une « bonne » opération.

En fait le Cm 242, se transforme naturellement par désintégration alpha en Pu 238, de période radioactive plus élevée (T = 88 ans) et ainsi de suite jusqu'au plomb, comme l'indique la chaîne d'évolution naturelle présentée en annexe.

La comparaison des évolutions de la radiotoxicité en fonction du temps de l'Am 241 et du Cm 242 présentées dans les figures ci-dessous montre que l'opération n'est pas du tout, au contraire, bénéficiaire



Figure n° 2.A : Evolution de la radiotoxicité



Figure n° 2.B : Evolution de la radiotoxicité d'1 kg d'Am241d'1 kg de Cm242

Par contre avec la fission (seulement pour les noyaux lourds), le noyau se scinde, généralement, sous l'action du neutron incident en deux fragments, les produits de fission, qui pour la plupart ont une période radioactive courte les amenant à des corps stables.

En moyenne, les noyaux provenant d'une fission subissent quatre décroissances radioactives, de période n'excédant pas généralement quelques années, avant de devenir stables. Leur activité et leur radiotoxicité associées ont pratiquement totalement disparu au bout de 200 ans. C'est bien évidemment cette voie qu'il faut favoriser pour la destruction des actinides, car d'une part la fission conduit donc à des résidus à vie courte puis stables, moins radiotoxiques à long terme que l'actinide détruit, et d'autre part la fission produit des neutrons supplémentaires utilisables pour détruire d'autres déchets ou participer au maintien de la réaction en chaîne tout en produisant de l'énergie.

2 Caractéristiques neutroniques des actinides.

La capacité à obtenir un processus de transmutation efficace des actinides dépend donc de la compétition entre les deux réactions de fission et de capture neutronique. La probabilité d'occurrence de chaque réaction est caractérisée par la section efficace de l'isotope considéré. L'analyse de l'allure des sections efficaces correspondantes en fonction de l'énergie du neutron incident est à ce titre essentielle. Ces données, pour les principaux actinides mineurs, extraites de la bibliothèque européenne de données nucléaires JEFF3.0, sont présentées dans la figure 3 suivante :















Figure n° 3 : Section efficace de différents actinides

- Dans la zone thermique (énergie inférieure à 0,1 eV)
 - Les isotopes 241 et 243 de l'Américium sont très peu fissiles. Les probabilités de capture neutronique sont 100 à 1000 fois supérieures à celles de fission. Il en est de même pour le Np 237. L'isotope pair du Curium, le Cm244, présente également le même comportement, le rapport capture/fission étant plus faible (facteur 10 environ). Ces isotopes sont dits capturant.

A titre de comparaison, les sections efficaces de l'U238 sont présentées sur la même figure. Elles se révèlent être sensiblement inférieures en valeurs absolues à celles des actinides mineurs. Le remplacement de l'Uranium par ces actinides mineurs tendra donc à augmenter le taux d'absorption en zone thermique et donc réduire le niveau de flux neutronique dans cette zone.

- Les isotopes impairs du Curium présentent des niveaux de capture et de fission plus proches. Les probabilités de fission sont 5 à 10 fois supérieures à celles de capture. Les allures des courbes sont très voisines, en forme à celles de l'U235. Les valeurs absolues de la section de fission se révèlent légèrement supérieures à celles du Pu 239. Ces isotopes sont dits fissiles.
- Dans la zone épithermique (énergie au-delà de 1 eV) on constate un comportement globalement similaire, si ce n'est une réduction des rapports capture/fission.
- En spectre rapide, dans la zone des résonances et au-delà, la différenciation pour les isotopes capturant entre les probabilités de capture et de fission reste marquée jusqu'au seuil de fission à des énergies de l'ordre du MeV, mais globalement le ratio capture/fission s'en trouve nettement diminué.

Ces constatations se retrouvent quantifiées dans le tableau 1 où sont indiquées les valeurs de sections efficaces moyennes intégrées sur les spectres de neutrons représentatifs définis comme la répartition en énergie de la population neutronique présente dans le réacteur : un spectre « thermique » REP avec un combustible U02, un spectre « épithermique » REP avec un combustible MOX et un spectre de réacteur à neutrons rapides. Ces différents spectres sont présentés dans la figure 4 ci-dessous :



Figure 4 :spectres comparés REP et RNR

Isotope	Réacte	ur à neutro (REP)	ons lents	Réad é (cteur à neu pithermique REP - MOX	itrons es X)	Réacteur	s à neutror (RNR)	ns rapides
	σ_{f}	σ_{c}	$\alpha = \sigma_c / \sigma_f$	σ_{f}	σ_{c}	$\alpha = \sigma_c / \sigma_f$	σ_{f}	σ _c	$\alpha = \sigma_c / \sigma_f$
²³⁵ U	38,8	8,7	0,22	12.6	4.2	0,3	1,98	0,57	0,29
²³⁸ U	0,103	0,86	8,3	0.124	0.8	6,5	0,04	0,30	7,5
²³⁸ Pu	2,4	27,7	12	1.9	8	4,2	1,1	0,58	0,53
²³⁹ Pu	102	58,7	0,6	21.7	12.2	0,6	1,86	0,56	0,3
²⁴⁰ Pu	0,53	210,2	396,6	0.7	24.6	35,1	0,36	0,57	1,6
²⁴¹ Pu	102,2	40,9	0,40	28.5	9	0,3	2,49	0,47	0,19
²⁴² Pu	0,44	28,8	65,5	0.5	12.3	24,6	0,24	0,44	1,8
²³⁷ Np	<u>0,52</u>	<u>33</u>	63	<u>0.6</u>	<u>18</u>	30	<u>0,32</u>	<u>1,7</u>	\$ 5,3
²³⁸ Np	134	13,6	0,1	38.5	4	0,1	3,6	0,2	0,05
²⁴¹ Am	<u>1,1</u>	<u>110</u>	100	<u>0.8</u>	<u>35.6</u>	44,5	<u>0,27</u>	<u>2,0</u>	7,4
²⁴² Am	159	301	1,9				3,2	0,6	0,19
^{242m} Am	595	137	0,23	126.0	27.5	0,2	3,3	0,6	0,18
²⁴³ Am	<u>0,44</u>	<u>49</u>		<u>0.5</u>	<u>31.7</u>	63,4	<u>0,21</u>	<u>1,8</u>	8,6
²⁴² Cm	1,14	4,5	3,9	0.96	3.45	3,6	0,58	1,0	1,7
²⁴³ Cm	88	14	0,16	43.1	7.32	0,2	7,2	1,0	0,14
²⁴⁴ Cm	1,0	16	16	1	13.1	13,1	0,42	0,6	1,4
²⁴⁵ Cm	116	17	0,15	33.9	5.4	0,2	5,1	0,9	0,18

Tableau 1 : Sections efficaces des actinides et rapport $\sigma c / \sigma f$

De cette analyse élémentaire, il ressort les points suivants :

- Pour les actinides Np, Am et Cm244 :
 - en REP, où la zone neutronique thermique est privilégiée, ces isotopes se comportent comme des poisons neutroniques. Ils pénalisent le bilan neutronique et se transmutent essentiellement en un autre actinide.
 - en RNR, le rapport capture/fission est réduit d'un facteur 5 à 10 quand on passe d'un spectre REP (thermique ou épithermique) à celui d'un RNR. Ces derniers sont donc plus efficaces pour transmuter les actinides mineurs par fission directe.
- Pour les isotopes Cm243 et 245, les ratios capture/fission sont similaires en REP et en RNR. Ils se transmutent majoritairement en produits de fission à vie courte.

En conclusion :

- le spectre rapide permet de minimiser les réactions de capture "parasites" et favorise les réactions de fission pour l'ensemble des actinides, ce qui lui confère son caractère "d'omnivore".
- en spectre thermique, les actinides mineurs subissent essentiellement la capture neutronique mis à part le Curium 243 et 245.
- Cette analyse reste élémentaire dans la mesure où elle repose sur uniquement l'impact de la première interaction neutronique. Cependant elle met en évidence l'avantage intrinsèque du spectre à neutrons rapides. Il est nécessaire d'examiner l'influence des

réactions successives au cours de l'irradiation en réacteurs, pour avoir une réelle évaluation de l'efficacité globale de la transmutation.

3 Efficacité globale de transmutation en réacteurs.

Pour une durée d'irradiation standard en réacteurs, de type REP et RNR, les taux de disparition des éléments considérés, exprimés en pour cent de la masse présente initialement, sont indiqués dans le tableau 2 suivant. Les taux de fission, intégrés sur la durée d'irradiation, sont également indiqués. Ces taux de fission intègrent les contributions à la fission, non seulement de l'isotope père présent initialement, mais également celles des isotopes fils produits au cours de l'irradiation.

	REP MOX	60 GWj/t	RNR EFR 140 GWj/t		
	Flux = 2.5 1	$10^{14} \text{ n/cm}^2/\text{s}$	$Flux = 3.4 \ 10^{15} \ n/cm^2/s$		
	Durée irradiation = 1500 JEPN		Durée irradiation = 1700 JEPN		
	Taux de	Taux	Taux de	Taux	
	disparition	de fission	disparition	de fission	
	(%)	(%)	(%)	(%)	
Np237	46	4	63	24	
Am241	70	10	69	24	
Am243	65	6	63	15	
Cm244	44	16	50	27	

Tableau 2 : taux de disparition et de fission pour des irradiations élémentaires.

De l'analyse de ces résultats, il ressort les points principaux :

- dans les conditions standards d'irradiation en réacteurs, il n'est pas possible d'atteindre une disparition complète des éléments considérés en une seule passe d'irradiation. Il est nécessaire de procéder à un multi-recyclage.
- de par les contributions des isotopes fissiles produits au cours de l'irradiation, les rapports intégrés sur la durée d'irradiation des taux de fission sur les taux de disparition, sont augmentés, comparés aux mêmes rapports relatifs au seul isotope initial.
- les taux de fission obtenus en RNR sont supérieurs, dans un rapport 2 à 6 à ceux obtenus en REP.
- en REP, la transmutation des éléments considérés se faisant essentiellement par captures successives, la production d'éléments supérieurs va en être très nettement accentuée.

Les principales voies d'évolution sous irradiation des transuraniens hors fission, sont indiquées dans le schéma suivant :



Pour une disparition par fission de l'isotope initial (ou d'un de ses descendants), il est intéressant de quantifier le taux de production des autres isotopes créés selon la chaîne d'évolution indiquée ci-dessus.

Ces taux, définis comme le rapport entre la quantité des isotopes produits divisée par le nombre de fission, obtenus pour les durées d'irradiation standard en REP et RNR, sont précisés dans le tableau suivant. Ainsi à titre d'exemple, pour la disparition par fission d'un isotope de Np237, il est produit plus de 9 isotopes de Pu238 en spectre thermique.

	REP MOX 60 GWj/t	RNR EFR 140 GWj/t
Noyau père	$Flux = 2.5 \ 10^{14} \ n/cm^2/s$	$Flux = 3.4 \ 10^{15} \ n/cm^2/s$
	Durée irradiation = 1500 JEPN	Durée irradiation = 1700 JEPN
	Taux de production	Taux de production
Np237	9,2 Pu238	1,4 Pu238
	0,9 Pu239	0,2 Pu239
Am241	4,3 Pu238	1,2 Pu238
	0,8 Pu242	0,3 Pu242
Am243	7,6 Cm244	2,6 Cm244
	1,4 Cm245	0,3 Cm245
	0,6 Pu240	0,3 Pu240
Cm244	1,1 Cm245	0,4 Cm245
	0,5 Pu240	0,4 Pu240

Tableau 3 : Taux de production pour 1 disparition par fission (cumulée sur le noyau père et ses descendants)

Le Np237 se transforme préférentiellement en Pu238, de par la décroissance très rapide du Np238 produit par capture neutronique.

L'Am241 suit un schéma similaire qui conduit principalement à la production de Cm242 et de Pu242, après décroissance de l'Am242 produit par capture neutronique. Le Cm242 ainsi produit génère à son tour du Pu238.

L'Am243 se transforme essentiellement en Cm244 qui génère du Cm245 par capture neutronique et du Pu240 par décroissance alpha (pour respectivement 2/3 - 1/3 en spectre thermique et pour moitié-moitié en spectre rapide).

La production de Cm245 à partir de la transmutation de l'Am243 et du Cm244 se révèle donc entre trois et cinq fois plus importante en spectre thermique qu'en rapide.

Un autre indicateur de la comparaison de l'efficacité de la transmutation selon le spectre est le rapport des masses de ²⁴⁸Cm produites par l'évolution de l'américium en spectres neutroniques REP et à neutrons rapides qui met en évidence l'accumulation d'isotopes de nombre de masse élevé dans les conditions de spectre thermique ou épi-thermique des REP. Ce constat se transpose aux éléments de nombre de masse plus élevé comme le berkélium ou le californium formés au cours de la transmutation des actinides mineurs (Am, Cm).



Figure 5 : Rapport des masses (spectre thermique/rapide) des actinides principaux issus de la transmutation du 241Am ou 243Am.

A partir des isotopes supérieurs du Curium, sont générés du Berkélium et du Californium, selon la chaîne d'évolution indiquée ci-dessous :



Les figures ci-dessous illustrent l'évolution des inventaires en Californium 252. L'évolution de l'inventaire en Cm248 est analogue. Les inventaires cumulés présentent un écart de plus de 3 décades entre le recyclage en REP et en RNR (x2000 à dix recyclages).



Figure 6 : Evolution des masses de Cf 252 dans le coeur

Ces isotopes, en particulier le Cf 252 sont de très forts émetteurs de neutrons et conditionnent par conséquent les dispositions de radioprotection, et l'adaptation des procédés pour le traitement des combustibles usés et la refabrication du combustible à recycler. A titre d'illustration le tableau 4 suivant indique en relatif par rapport au combustible MOX standard, l'incidence d'un recyclage global des actinides, y compris Bk et Cf, dans un système à neutrons rapides et dans un REP 100 % MOX.

	Neutrons rapides	REP 100 % MOX
Activité	1.2	0.4
Puissance α	1.9	3.0
Puissance β	1.5	0.5
Puissance γ	-	3.4
Source neutronique	3.7	7920

Tableau 4 : incidence du recyclage global des actinides (Pu et actinides mineurs) sur les principaux paramètres dimensionnants pour le cycle du combustible : augmentation en relatif à un combustible MOX standard

Référence REP : combustible MOX à 12% Pu Référence RNR : combustible EFR MOX (20% Pu)

Ces caractéristiques physiques permettent d'envisager la transmutation des actinides mineurs dans les systèmes à neutrons rapides avec un recyclage intégral des actinides sans accumulation d'isotopes supérieurs, leur concentration tendant vers un équilibre. Ce mode de transmutation n'est pas transposable aux réacteurs à eau pour lesquels il est indispensable de séparer et de ne pas recycler le curium pour éviter l'accumulation constante d'isotopes supérieurs et les incidences sur les opérations du cycle du combustible.

Ainsi, les performances de transmutation dans les conditions standard d'irradiation en réacteurs mettent en relief :

- La nécessité de procéder à un multirecyclage des actinides, de par les performances limitées en terme de taux de fission au cours d'une seule passe d'irradiation
- La production d'isotopes supérieurs (Cm et au-delà), en spectre thermique, particulièrement pénalisants pour les opérations du cycle du combustible

4 La physique du cœur.

La principale limitation à l'introduction d'actinides mineurs en réacteur de type REP ou RNR est liée à leur impact direct et à l'impact de leurs descendants par transmutation sur les coefficients de réactivité et cinétiques du cœur.

4.1 Limitations sur le chargement d'actinides mineurs en RNR.

Les études neutroniques conduisent à situer comme suit les teneurs maximales en actinides mineurs admissibles en systèmes à neutrons rapides à caloporteur sodium pour garder des valeurs acceptables (Cf. figure 7) des effets de réactivité liés à la vidange sodium, à l'effet Doppler (température du combustible), et aux paramètres de cinétique (fraction de neutrons retardés) :

De l'ordre de 3 % des noyaux lourds du combustible pour les cœurs de grande taille du type de Super Phénix ou EFR ;

De l'ordre de 5 % des noyaux lourds du combustible pour les cœurs de petite taille du type PRISM ou Phénix.





L'impact du neptunium et de l'américium étant comparables, et celui du curium inférieur, les effets de réactivité indiqués ci-dessus sont aussi représentatifs d'un recyclage global de tous les actinides.

4.1.1 L'effet de vidange du sodium.

L'effet en réactivité lié à la disparition du caloporteur sodium est le résultat de deux composantes antagonistes.

La disparition du sodium, qui a un pouvoir modérateur, induit de ce fait un durcissement du spectre neutronique (augmentation de l'énergie moyenne des neutrons) et facilite la fuite des neutrons vers l'extérieur du cœur.

Le durcissement du spectre se traduit en général par un effet en réactivité positif qui est la résultante des différentes variations des sections efficaces de capture, fission et de diffusion en fonction de la variation du spectre. Cette composante est appelée centrale ou de spectre.

L'augmentation de l'effet de fuites se traduit, elle, par un effet en réactivité négatif.

Les sections de capture du Np et de l'Am se révèlent nettement plus importantes d'un facteur 6 à 7 à celle de l'U238 (Cf. chapitre 3). La présence dans le cœur du réacteur de quantités d'actinides de type Np ou Am en lieu et place de l'Uranium va donc conduire, lors de la vidange du sodium, à une réduction plus marquée des captures neutroniques.

Les autres contributions à la composante centrale restant, au premier ordre, identiques, de même que la composante de fuites qui est peu modifiée, la résultante est un effet en réactivité positif amplifié en présence de Np, Am dans le cœur comme il est indiqué sur la figure précédente.

Pour les systèmes à neutrons rapides, le passage d'un caloporteur métallique liquide (Na) à un caloporteur gaz (Gas Fast Reactor (GFR)) permet d'éliminer la contrainte sur la teneur en actinides mineurs liée à l'effet de vidange, et de s'en tenir aux limites propres des paramètres de cinétique et de l'effet Doppler. Dans ce cas, cette teneur pourrait être portée à 5%, cette limite étant alors liée principalement à la conception du combustible et au relâchement d'hélium induit par la radioactivité α des constituants du combustible.

Teneur en A.M. dans le	Cas SFR (EFR)	Cas GFR
Combustible (recyclage homogène)	Caloporteur sodium	Caloporteur hélium
0 % A.M.	1.8/2.7 %	0.2/0.24 %
2.5 % A.M.	2.2 / 2.9 %	0.24 / 0.26 %
5 % A.M.	2.4 / 3 %	0.27 / 0.28 %

Tableau 5 : Effet de vidange caloporteur (début de Vie/Fin de Vie) en % de réactivité.

4.1.2 L'effet Doppler.

Un certain nombre d'effets de température interviennent dans les réacteurs : les variations de réactivité associées aux variations de températures créent des contre-réactions et modifient la cinétique. L'un de ces effets, sans doute le plus important en terme de stabilité du système et donc de sûreté est relatif à la variation de l'absorption résonnante du combustible. Comme il est lié à un problème de vitesse relative entre les neutrons et les noyaux résonnants qui présentent une agitation thermique d'autant plus forte que la température du combustible est élevée, cet effet est appelé « effet Doppler ».

Si l'on tient compte, lors de l'interaction neutron-noyau, de la (faible) vitesse du noyau-cible au moment de l'impact, on modifie – très légèrement – la vitesse relative du neutron par rapport au noyau, c'est-à-dire la vitesse dans le centre de masse. La section efficace qui est fonction de la vitesse relative est donc modifiée. Si la section efficace varie lentement, cette modification est minime et sans aucun doute négligeable ; mais, si l'on se trouve au voisinage d'un pic de résonance, cette faible modification de la vitesse relative peut conduire à une modification très appréciable de la section efficace. La figure suivante, montre l'incidence de l'effet Doppler pour la première et la principale résonance de l'uranium 238.



Figure 8 : Elargissement par effet Doppler de la grande résonance de l'uranium 238.

On notera deux caractéristiques essentielles : la résonance s'élargit ; le pic s'abaisse. On peut démontrer que cela se fait à intégrale de résonance (aire sous la courbe) constante.

Cela pourrait laisser penser que ces deux modifications à intégrale constante ne causeraient guère d'effet neutronique : mais cela est faux : à cause de l'élargissement de la résonance, et même à intégrale constante, l'intervalle en énergie sur lequel la probabilité de capture excède notablement celle de transfert par diffusion à plus basse énergie (hors de la résonance), ce qui se traduit par une absorption accrue des neutrons dont l'énergie se situe dans cet intervalle élargi.

Ainsi, l'effet Doppler conduit à une augmentation de l'absorption résonnante ; en particulier, à une augmentation de la capture résonnante par l'uranium 238 (capture sans fission) donc à une diminution du facteur de multiplication : c'est la raison pour laquelle le coefficient de l'effet Doppler est en pratique négatif.

En RNR, compte tenu de la distribution des neutrons en fonction de l'énergie (Cf figure n° 4) la contribution à l'effet Doppler se fait essentiellement dans la zone de 100 eV à 10 000 eV avec un pic autour de 1 keV.

En comparant l'allure des sections efficaces de capture du Np et de l'Am à celle de l'U238, (Cf. figure 3), on constate deux choses :

- le domaine des résonances de l'U238 est très large de 10eV à 10 000 eV, ceux du Np et Am sont beaucoup plus limités de 1 à 100 eV. Ainsi la contribution du Np ou de l'Am à l'effet Doppler est très faible car la zone de leurs résonances est trop basse en énergie là où la densité neutronique en RNR est quasi-nulle.
- l'amplitude des sections d'absorption du Np et Am est plus importante sur ce domaine énergétique que celle de l'U238.

En conséquence, le remplacement d'U238 par du Np ou de l'Am va réduire la densité neutronique dans la zone d'énergie d'intérêt et donc de facto réduire l'effet Doppler de l'U238.

Au total, le cumul des deux effets conduit à réduire la valeur de l'effet Doppler.

4.1.3 La proportion de neutrons retardés (ou bêta effectif).

Outre les neutrons prompts, quelques neutrons sont émis de façon retardée par rapport à la fission. Ils jouent un rôle fondamental dans la cinétique des réacteurs. En effet, leur émission peut être décalée par rapport à la fission d'un laps de temps d'ordre de grandeur compris entre la seconde et la minute, c'est-à-dire très long devant la durée de vie des neutrons prompts qui, elle, est de l'ordre de la microseconde.

Il existe une centaine de processus d'émission de neutrons retardés, tous similaires : une décroissance bêta-moins d'un fragment de fission suivie d'une émission neutronique (possible si le noyau obtenu après la décroissance bêta a une énergie d'excitation supérieure à l'énergie de séparation d'un neutron). Le délai entre la fission et l'émission du neutron est dû à la décroissance bêta car l'émission neutronique, si elle se produit ensuite (la désexcitation peut aussi se faire par émission gamma), est quasiment instantanée. Exemples :

 $\label{eq:Br} \begin{array}{l} ^{87}\text{Br} \ \Rightarrow \ ^{87}\text{Kr} \ \Rightarrow \ ^{86}\text{Kr} + \ ^{1}\text{n} \ (\text{période bêta}: 54,5 \ \text{s}), \\ ^{137}\text{I} \ \Rightarrow \ ^{137}\text{Xe} \ \Rightarrow \ ^{136}\text{Xe} + \ ^{1}\text{n} \ (\text{période bêta}: 21,8 \ \text{s}). \end{array}$

Les neutrons retardés sont émis à une énergie un peu plus faible (0,2 à 0,6 MeV) que les neutrons prompts (2 MeV en moyenne).

Les deux voies conduisant aux retards les plus longs correspondent aux deux exemples précédents. Les autres, une centaine de processus similaires, sont, en pratique, regroupées en quatre autres « pseudo-chaînes » (soit, au total, six groupes de neutrons retardés) dont les caractéristiques sont ajustées à partir de résultats de mesures.

Pour un noyau fissile donné, chaque groupe i de neutrons retardés est caractérisé par la proportion β i, des neutrons retardés de ce groupe parmi l'ensemble des neutrons émis par fission (prompts et retardés), exprimée, en pratique, en pcm.

La proportion totale de neutrons retardés, appelée bêta effectif, est la somme des ßi pondérée par l'importance des neutrons.

Pour un spectre à neutrons rapides, les valeurs de ce β_{eff} pour les différents isotopes d'intérêt sont indiqués dans le tableau ci-après.

Isotopes	β effectif en pcm
²³⁵ U	670
²³⁸ U	1680
²³⁹ Pu	220
²⁴⁰ Pu	270
²⁴¹ Pu	490
²⁴² Pu	640
²³⁷ Np	440
²⁴¹ Am	110
²⁴³ Am	250
²⁴⁴ Cm	100
²⁴⁵ Cm	130

Tableau 6 : Valeurs des β effectif par isotope pour un spectre neutronique de RNR

Le remplacement d'U238 par du Np ou de l'Am va donc réduire le β_{eff} global du cœur qui est le résultat de la pondération des β_{eff} par la contribution à la fission de l'isotope considéré.

Cette diminution déjà sensible pour des teneurs limitée en actinides mineurs, va être notablement amplifiée pour les cœurs chargés massivement en actinides mineurs, qui peuvent atteindre des valeurs extrêmement basses de l'ordre de 150 à 200 pcm.

L'intérêt des systèmes sous-critiques alimentés par une source externe de neutrons produits par un accélérateur de protons (ADS) réside principalement sur cet aspect.

La réduction conjointe du Doppler et du Bêta effectif associée à une augmentation de l'effet de vidange limite à quelques % la teneur maximale admissible d'actinides mineurs dans le cœur des réacteurs critiques. La marge de sous-criticité offerte par les ADS permet de s'accommoder de pénalités plus importantes sur ces coefficients de réactivité et donc d'accepter des chargements en actinides mineurs plus importants (plusieurs dizaines de %).

4.1.4 La chute de réactivité.

L'évolution de la composition isotopique du combustible au cours de l'irradiation en réacteur se traduit par une variation de la réactivité qui se décompose en deux termes :

- L'un dû uniquement aux variations de la composition isotopique en noyaux lourds du combustible,
- L'autre dû uniquement aux produits de fission

Le premier peut être positif ou négatif, il dépend du gain de régénération du combustible, traduisant la capacité du cœur à produire plus ou moins d'isotopes fissiles que ceux consommés.

Le second est toujours négatif, de par le caractère uniquement capturant des produits de fission.

Le remplacement de l'uranium 238 par du Np ou de l'Am, tend à augmenter le gain de régénération interne (associé au cœur) et donc réduit la perte ou la chute de réactivité au cours de l'irradiation, ce qui est un effet favorable.

4.1.5 L'antiréactivité des barres de commande.

Les barres de commande assurent le contrôle de la réactivité du cœur. Ces barres assurent une triple fonction :

- de sûreté : assurer une situation sûre à l'arrêt
- de pilotage : pour optimiser la distribution de puissance dans le cœur
- de compensation : vis-à-vis de la perte de réactivité due à l'évolution isotopique au cours de l'irradiation et aux variations de réactivité liées à la montée en température et en puissance.

Elles sont constituées de matières très absorbantes, typiquement du carbure de bore (B_4C) , qui capture les neutrons essentiellement à basse énergie.

L'introduction d'actinides mineurs en lieu et place d'Uranium 238 va avoir tendance, comme on l'a vu, à durcir le spectre neutronique, en augmentant la valeur moyenne de l'énergie des neutrons, d'où une réduction de l'éfficacité des barres.

4.2 Limitations sur le chargement d'actinides mineurs en REP.

Les études neutroniques conduisent à situer comme suit les teneurs maximales en actinides mineurs admissibles en REP pour garder des valeurs acceptables aux coefficients de réactivité (température et densité du modérateur, température du combustible, efficacité du bore soluble) :

- Moins de 1 % pour les rapports de modération inférieurs à 2 ;
- De l'ordre de 1 % pour les rapports de modération de 2, et de 2 % à 3,5 % pour les rapports de modération de 3 à 4, avec un combustible MOX (cf. figure ci-dessous).

D'autre part, l'introduction des actinides nécessite une augmentation de l'enrichissement en 235 U ou de la teneur en Pu pour maintenir la même gestion que celle du combustible de référence UO₂. Ces valeurs d'enrichissement ou de teneur dépendent, au deuxième ordre, de la composition isotopique des différents actinides.



Figure 9 : Variation relative (en %) des coefficients de réactivité (température modérateur et combustible, effet du bore) en fonction de la fraction (en %) en Actinides Mineurs dans le combustible.

* RM : Rapport de modération Vm/Vf : standard = 2 et RMA = 3.

T Comb : coefficient de réactivité lié à l'effet de température du combustible.

T Mod : coefficient de réactivité lié à l'effet de température et de densité du modérateur.

Bore : coefficient de réactivité lié à l'efficacité du bore soluble.

Une réduction en amplitude des coefficients de température ou de l'efficacité du bore indique une baisse des effets de contre-réaction. L'effet de vidange en réactivité doit rester négatif, imposant une teneur maximale en actinides mineurs de l'ordre de 0,8 % dans un combustible MOX pour un rapport de modération de 2 ou de 1,9 % pour un rapport de modération de 3.

Globalement, l'introduction des actinides mineurs en REP a pour principal effet la diminution de l'effet de contre-réaction lié à la vidange du caloporteur et la baisse de l'efficacité du bore (moyen de contrôle).

4.2.1 Impact sur la physique du cœur des réacteurs à eau pressurisée.

Le caractère particulièrement absorbant des actinides mineurs entraîne des conséquences sur les caractéristiques physiques du cœur des réacteurs à eau pressurisée dû à leur introduction. De manière générale, on observe :

- une réduction de la perte de réactivité sur le cycle,
- une dégradation des coefficients de température et de l'efficacité du bore,
- une augmentation de l'effet en réactivité lié à la vidange du caloporteur.

Dans un spectre de réacteur REP, plusieurs actinides mineurs se comportent comme des « poisons » consommateurs de neutrons. C'est le cas des Np²³⁷, Am²⁴¹, Am²⁴³. Leur introduction dans un cœur REP va nécessiter de surenrichir le combustible pour maintenir une longueur de cycle constante, ce qui est particulièrement pénalisant économiquement dans le cas d'un combustible UO₂. Par contre, l'ajout de Curium n'a pas cette conséquence négative sur l'enrichissement du combustible grâce à l'isotope Cm²⁴⁵ fissile dans le domaine thermique ($\sigma_{f therm} = 2132$ barns).

4.2.2 Les coefficients de température.

La présence d'actinides mineurs conduit à un léger impact sur le coefficient de température du combustible. Ce coefficient est lié à l'effet Doppler qui traduit l'augmentation de la largeur des résonances des noyaux lourds entraînant une capture plus importante des neutrons lors de l'élévation de la température du combustible. C'est l'effet le plus immédiat suite à une perturbation des conditions de fonctionnement. Il est dû principalement à la présence d'U²³⁸ dans le combustible UO₂.

Le coefficient de température modérateur tient compte de la présence accrue du bore en début de cycle et de son absence en fin de cycle. La variation de la température du modérateur entraîne la variation de sa densité et c'est principalement le changement de densité donc d'atomes de modérateur qui conduit la variation de réactivité. La variation de la densité du modérateur modifie les captures dans le modérateur, les captures dans le bore soluble, les probabilités de fuite des neutrons et le ralentissement des neutrons hors du combustible. Pour satisfaire la sûreté de l'installation, le coefficient de température modérateur, tout comme les autres coefficients de réactivité, doit être négatif.

Le Np²³⁷ possède de nombreuses résonances (0.6eV, 1.5eV, 4eV, 6eV) pour des énergies inférieures à la première résonances de l'U²³⁸ (soit 6.7eV). Ainsi, dans le cas de la transmutation en REP du Np²³⁷, la variation de réactivité associée au durcissement du spectre lors du changement de température et de densité du modérateur sera plus importante que pour le cas de référence car les captures dans les résonances thermiques sont plus sensibles au durcissement du spectre.

Les nombreuses résonances de l'Am²⁴¹ et Am²⁴³ vont également modifier le coefficient de température modérateur en cas de recyclage de l'Américium. Celui-ci va même être encore plus faible, en valeur absolue, que pour le cas Neptunium car les résonances dans le domaine des énergies thermiques sont plus importantes avec l'Américium qu'avec le Neptunium. Ainsi les captures dans les résonances diminuent lorsque le spectre se durcit de façon plus sensible avec l'Américium.

4.2.3 L'effet de vidange du caloporteur.

Pour les options de recyclage du plutonium et des actinides mineurs, la physique du cœur impose donc certaines limites. L'une des principales est celle liée à l'effet de vidange. Au cours de la vidange, le spectre se durcit. Dans les domaines d'énergies thermiques et des résonances résolues, le flux est quasi nul et se concentre dans un domaine de 10keV à 1MeV. Ainsi, disparaissent toutes les contributions de captures dans les résonances thermiques et épithermiques des isotopes pairs du Plutonium, ceci explique par exemple, les contributions positives des Pu²⁴⁰ et Pu²⁴². Pour l'U²³⁸, la contribution est négative en terme de capture car cet isotope présente une section de capture relativement constante en moyenne quel que soit le domaine d'énergie pour des situations vidangées ou non vidangées. Ainsi, en relatif dans le bilan neutronique, ses captures continuent à jouer un rôle important pour les situations vidangées.

Pour le Pu²³⁹, les termes de production et d'absorption diminuent de par le déplacement du spectre lors de la vidange. Cette compétition de deux effets opposés explique le comportement particulier de cet isotope lors de ce type de situation. La diminution du terme d'absorption l'emporte pour des vidanges totales avec une teneur en Pu supérieure à 10%.

Pour le Pu²⁴⁰, l'effet est positif à la fois pour le terme d'absorption et de production. Cet isotope est très sensible au changement de spectre, son rapport σ_c/σ_f variant de 250 pour un REP UO₂ à 40 pour un REP MOX et à 1.6 pour un RNR. La contribution d'un tel isotope ne peut qu'être positive.

Pour le Pu²⁴¹, le comportement est similaire à celui du Pu²³⁹ de par une diminution du terme de production et d'absorption. Toutefois, même pour de fortes vidanges, sa contribution reste négative.

Pour le Pu²⁴², son comportement est similaire à celui du Pu²⁴⁰. Ainsi lors du durcissement du



spectre, le rapport σ_c/σ_f varie de 60 en REP UO₂ à 23 en REP MOX et à 3 en RNR.

Figure 10 : Spectre neutronique régnant dans un assemblage REP en situation normale et vidangée (30 % H₂0 nominale).

La présence d'Américium dans l'assemblage a un effet déstabilisant sur l'effet en réactivité que pourrait avoir une vidange totale du modérateur. L'origine de cet effet est que la capture de l'Am est importante et a lieu essentiellement dans une gamme d'énergie allant d'environ 0.1eV à quelques eV. Lorsque le modérateur disparaît, il n'y a presque plus de neutrons dans cette gamme d'énergie et ainsi la capture de l'Am diminue de façon très importante. C'est un effet similaire à celui caractéristique du Pu²⁴⁰ et de sa résonance à 1eV.

5 Incidence du mode de recyclage des actinides.

Si les actinides sont recyclés en *mode homogène* (répartis dans tout le combustible), le chargement initial dans le cœur est limité par les critères sur les coefficients de cinétique et de réactivité :

- en REP, principalement l'efficacité du bore soluble et le coefficient de vidange, et
- en système à neutrons rapides, l'effet Doppler et le coefficient de vidange.

Ces contraintes limitent les performances de transmutation.

Si les actinides sont recyclés en *mode hétérogène*, sous la forme de cibles introduites dans le cœur, les neutrons sont alors fournis par le combustible standard environnant. Les performances de transmutation sont alors limitées par le nombre de cibles acceptables en réacteur, ce qui conduit à des limites assez proches des masses d'actinides mineurs admissibles en mode homogène, ou à des limites inférieures en cas de recyclage sous forme d'assemblages modérés.

6 Conséquences sur les grandeurs physiques du cycle du combustible.

Il ne s'agit pas ici de considérer l'ensemble du cycle du combustible mais seulement de déterminer les grandeurs (activité, sources, puissance à l'entrée et à la sortie du réacteur) qui peuvent avoir une influence sur les possibilités et les modalités de fabrication, de manutention et de retraitement des assemblages combustibles ou des cibles contenant les éléments à transmuter. Ceci conditionne le mode de recyclage, voire la possibilité de recycler certains éléments. Le tableau suivant présente les valeurs de puissance résiduelle d'activité, de débit de dose γ à 1 m de la source ainsi que la source neutronique pour différents combustibles « théoriques » de RNR chargés d'une même masse d'actinides mineurs. Ces valeurs sont présentées en relatif par rapport au combustible oxyde d'un cœur d'EFR, *European Fast Reactor*.

	Teneur en actinides	2,5 % Np	2,5 % Am	2,5 % Cm
	6.1.1 Fabrication			
	Puissance	X 1	X 4	X 12
Variation relative par rapport au combustible MOX	Dose γ	X 4	X 80	X 500
	Source neutron	X 1	X 2	X 1700
	.1.2 Retraitement			
de référence EFR	Puissance	X 2	X 3	X 6
	Dose γ	X 1	X 1	X 1
	Source neutron	X 1	X 4	X 8

Tableau 7 : Conséquences sur les grandeurs physiques du cycle du combustible.

On constate que les variations les plus importantes apparaissent à l'étape de la fabrication. En effet, après irradiation, la contribution des isotopes lourds est masquée par la contribution prépondérante des produits de fission. On observe des variations significatives uniquement pour la puissance résiduelle qui est augmentée de près d'un facteur 2 dans le cas d'un combustible avec 2,5 % de neptunium et d'un facteur 3 ou 6 pour un combustible à base

d'américium ou de curium. De même la source de neutrons est augmentée d'un facteur 4 à 8 pour les cas des combustibles chargés en américium et en curium.

En ce qui concerne le combustible neuf, l'ajout de neptunium à concurrence de 2,5 % de la masse des isotopes lourds ne modifie pas les niveaux de puissance, d'activité ou de source. Seuls le débit de dose γ est majoré d'un facteur 4 environ à cause de la présence du protactinium 233 (en équilibre avec le neptunium 237) émetteur d'un rayon γ dur d'environ 300 keV.

Pour le combustible chargé en américium, la forte augmentation de la source γ et du débit de dose associé (facteur 80) est due principalement à la contribution du neptunium 239 en équilibre avec son père l'américium 243.

Avec l'introduction de curium, les conséquences sont nettement plus accentuées, le débit de source est augmenté de près d'un facteur 500 à cause des contributions du curium 243 et du curium 244 forts émetteurs de rayons γ durs. L'augmentation de la source neutronique est encore plus conséquente (facteur 1700) principalement à cause de la fission spontanée du curium 244.

Ainsi, si le recyclage en mode homogène du neptunium apparaît tout à fait envisageable, les conséquences sur les sources γ et principalement neutron dues à l'introduction de curium rendent son recyclage en réacteur extrêmement difficile.

Pour l'américium, la situation est intermédiaire. Son recyclage en mode homogène nécessiterait un développement important des technologies actuelles et en particulier nécessiterait une chaîne de fabrication blindée. La voie hétérogène permettrait d'éviter de dégrader les caractéristiques du combustible standard en concentrant les problèmes sur un flux de matière réduit.

7 Les produits de fission à vie longue.

La destruction en réacteur des produits de fission à vie longue sélectionnés (Technétium 99, iode 129 et césium 135) pose de nombreux problèmes :

- ce sont de purs consommateurs de neutrons,
- leurs sections efficaces de capture (et donc les vitesses de transmutation) sont faibles en spectre rapide (<0.5 barns) et en spectre thermique (quelques barns au plus),
- ils sont minoritaires (mis à part le 99 Tc) par rapport aux isotopes stables ou à vie moyenne de l'élément produit en réacteur, comme l'indique le tableau suivant,
- La forme chimique pouvant être introduite en réacteur n'est pas forcément l'élément pur (spécialement pour les corps facilement fusibles ou volatils, comme l'iode et le césium).

Les problèmes cités sont susceptibles de diverses solutions.

Pour le premier point, les réacteurs hybrides sont plus adaptés à la transmutation des PFVL, grâce à leur source externe de neutrons mais ce gain est limité par l'intensité maximale acceptable du faisceau. Dans un réacteur critique, la destruction des PFVL ne peut qu'utiliser les surplus de neutrons dégagés par la fission des actinides. Le tableau suivant donne une idée du nombre de neutrons par fission nécessaires pour équilibrer production et consommation (pour un niveau de flux standard).

		Production	n (kg/Twhe)
Isotope	Période (ans)	Isotope	Elément
99 Tc	2.1 10 ⁵	3.2	3.2
129 I	$1.6 \ 10^7$	0.66	0.8
135 Cs	$2.3 \ 10^6$	1.4	14.0

Tableau 8 : Productions typiques de PFVL (REP UOX 33 GWj/t)

	Consommation neutrons/transmutation	Production noyaux/fission	Equilibre neutrons/fission
⁹⁹ Tc	1.01	0.055	0.056
¹²⁹ I	1.008	0.009	0.009
Ι	1.01	0.011	0.011
¹³⁵ Cs	1.002	0.017	0.017
Cs	0.58	0.13	0.075

Tableau 9 :Nombre de neutrons par fission à consacrer à la transmutation des PFVLpour équilibrer production et consommation

Ainsi, il faudrait environ 0.082 neutrons par fission pour transmuter $^{99}\text{Tc} + ^{129}\text{I} + ^{135}\text{Cs}$ seuls, mais environ 0.14 pour les transmuter à partir des éléments correspondants. La disponibilité idéale en neutrons, en supposant un parc de réacteurs en spectre rapide recyclant Pu + Am et en comptant environ 0.3 neutron par fission perdu en captures parasites et en fuites, est d'environ 0.6. A la vue de ces valeurs, il faudrait consacrer environ 15 % des réacteurs du parc à la transmutation de $^{99}\text{Tc} + ^{129}\text{I} + ^{135}\text{Cs}$ seuls, et environ 25 % du parc à leur transmutation à partir des éléments correspondants.

La discussion théorique qui précède ne prend pas en compte le fait que les vitesses de transmutation en réacteur doivent être à l'échelle humaine, et de toute façon bien plus rapides que la décroissance radioactive naturelle des produits à transmuter. Un classement a été

effectué, portant sur la « période de transmutation » $T_t = \frac{\ln 2}{\sigma \phi}$, qui doit être très inférieure à la

période de décroissance naturelle $T_{1/2}$, mais aussi à l'échelle humaine (si T_t , est de l'ordre de 1000 ans, par exemple, vaut-il vraiment la peine d'engager la transmutation ?). T_t , a été estimée en utilisant des valeurs standard de sections efficaces et de flux pour des REP et des RNR. Le résultat de l'étude est que ⁹⁹Tc, ¹²⁹I, ¹³⁵Cs sont clairement transmutables.

Dans un REP, la transmutation de PFVL demande un surplus de neutrons qui doit être obtenu par un enrichissement plus élevé en ²³⁵U pour maintenir la longueur du cycle. Par exemple si l'on dispose 2 % de ⁹⁹Tc en mode homogène dans un REP, l'enrichissement passe de 3.5 à 5.0 %, la quantité transmutée est de l'ordre de 10 kg/Twhe et la proportion de REP chargés en technétium dans le parc de l'ordre de 30 % ; en mode hétérogène, à raison de 8 aiguilles par assemblage, l'enrichissement est de 4.5 %, la masse transmutée 5 kg/Twhe, et la fraction du parc d'environ 50 %. Pour l'iode en mode hétérogène (même modalités), on aurait un

enrichissement de 3.9 %, une masse transmutée de 2 kg/Twhe et une fraction du parc de 30 %.

En RNR, on peut ici aussi disposer les PFVL à transmuter dans des assemblages modérés, placés dans le cœur ou à sa périphérie : on bénéficie à la fois d'une source neutronique importante et de sections efficaces plus élevées. Les calculs ont été faits explicitement pour le technétium, l'iode et le césium. Cependant, il faut voir qu'ici la motivation pour la modération n'est pas de pouvoir arriver à un mono recyclage, les produits de transmutation de la plupart des PFVL étant stables et donc infiniment moins gênants que le curium, mais simplement a augmenter la capacité massique de transmutation pour un endommagement donné des structures (pris là aussi à 200 dpa NRT Fe). Un optimum entre pertes et taux de transmutation peut être trouvé de ce point de vue pour des taux de transmutation variant entre 40 et 60 % selon le noyau à transmuter. Cela permet aussi d'avoir un niveau cumulé de pertes au retraitement limité. Ces considérations ont été appliquées à quelques scénarios et permettent effectivement d'équilibrer productions et consommations de ⁹⁹Tc et ¹²⁹I sur le parc.

Le problème lié à la présence d'autres isotopes du même élément que le PFVL à transmuter (spécialement pour le césium, les captures sur le ¹³³Cs et le ¹³⁴Cs étant susceptibles de régénérer au moins en partie le ¹³⁵Cs à vie longue) pourrait être réglé en ayant recours à une (coûteuse ?) séparation isotopique en milieu actif, ou en acceptant une augmentation importante du nombre de neutrons (et du temps d'irradiation) requis pour une performance de transmutation fixée du noyau à vie longue. A titre d'exemple, le cas du césium a été étudié en cibles modérées dans une RNR : sans séparation isotopique, on recrée au moins autant de ¹³⁵Cs qu'on en détruit, et il faut atteindre une proportion ¹³⁵Cs/Cs de l'ordre de 70 % pour aboutir à des capacités massiques de transmutations raisonnables.

Le dernier point (forme chimique) introduisant encore des captures parasites, sa discussion va dans le même sens : augmentation importante du nombre de neutrons et du temps d'irradiation requis.

En résumé, la destruction des PFVL en REP ou RNR apparaît réalisable pour le technétium et l'iode. Le cas du césium, obligerait à recours à une séparation isotopique poussée.
8 Simulation : démarche et motivation.

De manière générale, les études neutroniques des cœurs incinérateurs de déchets ou de systèmes hybrides s'appuient sur des logiciels développés et qualifiés pour les réacteurs nucléaires classiques, auxquels il a été nécessaire d'apporter un certain nombre de compléments ou extensions, notamment en termes de données nucléaires, méthodes ou procédures de calcul, et validation-qualification. Des développements spécifiques ont notamment été nécessaires pour tenir compte de la présence dans ces systèmes innovants de certains noyaux en fortes concentrations (alors que ces mêmes noyaux n'interviennent que minoritairement dans les systèmes classiques), des interactions neutron-noyau ou proton-noyau à des énergies supérieures comprises entre 20 et 200 MeV, de présence de « cibles » de spallation ou de dispositifs spéciaux de transmutation, etc.

De nombreuses mesures nucléaires intéressant la transmutation ont été réalisées au cours de ces dernières années, la plupart dans le cadre de collaborations impliquant le CEA, le CNRS/IN2P3, des universitaires, ou dans le cadre de projets internationaux (HINDAS, n_TOF_ADS, groupes de travail de l'OCDE). Certaines de ces mesures ont été converties en fichiers évalués qui sont proposés pour intégration dans le fichier européen JEFF-3.1 en 2005. D'autres mesures seront réalisées dans le cadre des programmes européens en cours (FP6 – EUROTRANS/NUDATRA) ou internationaux (JEFF-3.1).

S'agissant des codes de calcul, des extensions ont été réalisées à partir des logiciels existants. En particulier, de nouveaux modèles théoriques permettant de décrire le processus de cascade intranucléaire dans les cibles de spallation ou de produire des évaluations au-delà du domaine des résonances ont été développés et mis en œuvre. En ce qui concerne les codes de transport des neutrons, des développements ont également été nécessaires pour calculer des grandeurs spécifiques telles que l'efficacité relative de la source de neutrons de spallation. De nouvelles procédures de calcul de sensibilité, spécifiques aux systèmes sous-critiques, ont été mises au point. Des validations numériques ont été effectués sur des benchmarks, en collaboration avec d'autres groupes internationaux.

En complément à ces développements, des expériences intégrales de qualification en réacteur ont été effectuées ou sont en cours afin de valider le comportement d'ensemble des codes de calcul associés aux bibliothèques de données nucléaires. Il s'agit en particulier des irradiations d'échantillons d'isotopes purs PROFIL-R et PROFIL-M dans PHENIX, du programme COSMO en soutien au concept de cibles à spectre modéré et des mesures de fission d'actinides dans les cœurs MUSE de l'installation MASURCA (maquette critique en spectre rapide, située à Cadarache), et des futures oscillations d'actinides du programme OSMOSE dans le réacteur MINERVE (situé à Cadarache). Conformément à la démarche de validation-qualification mise en œuvre depuis une quinzaine d'années au CEA, on s'est efforcé, chaque fois que c'était possible, de décomposer systèmes et calculs globaux en sous-ensembles dans lesquels les phénomènes physiques peuvent être analysés séparément, avec évaluation des différentes sources d'erreur.

Les expériences MUSE dans MASURCA ont notamment permis d'étudier les questions physiques suivantes :

- effets de la source de neutrons par rapport aux neutrons de fission,
- distribution en énergie et en espace des neutrons, variations près de la source, hétérogénéités, pic de puissance, streaming,

• évaluation et contrôle de la réactivité, niveau de sous-criticité.

Les chapitres suivants abordent plus en détail ces différents aspects.

9 Les méthodes de calcul.

Le principal objectif des logiciels de neutronique est de pouvoir calculer le cheminement dans l'espace, l'énergie et le temps des neutrons présents dans le réacteur et les réactions du système face à la variation de cette population.

L'équation de base, dite de Boltzmann, d'écrivant l'évolution de cette population neutronique et plus précisément le flux neutronique est une équation de conservation, établissant le bilan de la variation du nombre de neutrons dans l'intervalle élémentaire de chacune des variables.

Pour les cas stationnaires, une expression de l'équation de Boltzmann est la suivante :

 $\Omega \text{ grad } \phi(\mathsf{E},\mathsf{r},\Omega) + \sigma_{\mathsf{t}}(\mathsf{E},\mathsf{r}) \ \phi(\mathsf{E},\mathsf{r},\Omega) = \int \sigma_{\mathsf{s}}(E' \to E, \Omega' \to \Omega, r) \phi(E',\Omega',r) \, \mathsf{d} \ \mathsf{E}' \, \mathsf{d} \ \Omega' + \mathsf{S}(\mathsf{E},\mathsf{r},\Omega)$

avec $\phi(E,r,\Omega) =$ flux neutronique dépendant de l'énergie (E) de l'espace (r) et de la direction (Ω) du neutron.

Le premier terme représente la composante de fuite, c'est à dire tous les neutrons qui sortent de l'élément de volume considéré.

Le deuxième terme représente la composante de disparition. Les neutrons peuvent disparaître par absorption (principalement par capture + fission) ou par choc qui modifie leur énergie et leur direction.

La somme de ces probabilités se retrouve dans le terme σ_t (section efficace totale).

Le troisième terme est relatif au nombre de neutrons, initialement d'énergie (E') et de direction (Ω ') arrivant dans l'intervalle (E, Ω) après un choc élastique ou inélastique. Cette probabilité de choc est caractérisée par une section de diffusion (ou scattering d'où σ_s).

Enfin, le quatrième terme représente le terme de source qui cumule la production par réaction de fission et par réaction spontanée (plus la source externe dans le cas des systèmes hybrides).

Cette équation de Boltzmann n'a pas de solutions analytiques sauf pour des cas académiques.

Deux classes de solutions numériques sont envisageables :

- Monte Carlo (méthode stochastique de référence)
- Méthode déterministes avec discrétisation des variables (ces méthodes sont les plus utilisées pour les calculs de projets).

9.1 Caractéristiques de la méthode de Monte Carlo.

Dans la résolution de problèmes numériques, adopter une approche de type Monte Carlo a en général plusieurs avantages. D'abord il s'agit d'une méthode qui se prête très bien à l'intuition. Cela signifie qu'elle est généralement simple à comprendre (e.g. proche de l'intuition physique dans le cas d'une simulation) et donc aussi à mettre en œuvre. D'autre part, c'est une méthode certes d'application générale mais applicable en particulier à des problèmes de géométrie complexe. Un autre aspect rend le Monte Carlo attrayant : la

possibilité de s'affranchir d'approximation résultant de discrétisations spatiale ou énergétique (par rapport aux méthodes déterministes).

Les techniques d'intégrations numériques se caractérisent par l'approximation de l'intégrale recherchée par une somme pondérée (poids A_i) des valeurs de la fonction considérée en un nombre de points (nœuds x_i) donné (formule de quadrature), ce qui donne pour une fonction f dans un espace de dimension d:

$$\int_{R} \mathrm{d} f(x) dx = \sum_{i=1}^{n} \mathrm{Ai} f(x_{i}) + \mathrm{E} \big[f \big]$$

Où E[f] représente l'erreur associée à la quadrature choisie. L'effort de calcul est proportionnel au nombre de nœuds n utilisés, correspondant à une subdivision par coordonnée d'un facteur n¹/^d. On en déduit que $E[f] \alpha$ n^{-η/d}, où η est un paramètre dont la valeur dépend de la quadrature retenue (e.g. pour une règle du trapèze, $\eta = 2$). Ainsi lorsque la dimension augmente, l'effort de calcul pour faire diminuer l'erreur doit être de plus en plus important. Pour une intégration Monte Carlo, on aurait $E[f] \alpha$ n^{-1/2} et donc indépendance de l'évolution de l'erreur par rapport à la dimension. Le Monte Carlo se révèle ainsi avantageux (en terme de vitesse de convergence) dès que d $\geq 2\eta$. Il faut noter que la convergence en n^{-1/2}, typique des méthodes Monte Carlo, est particulièrement lente en pratique. Néanmoins, les techniques de réduction de variance et la puissance des ordinateurs actuels en liaison avec une parallélisation des algorithmes naturelle, atténuent très notablement ce problème. Un autre aspect rend le Monte Carlo attrayant : la possibilité de s'affranchir de discrétisations spatiale ou énergétique (par rapport aux méthodes déterministes) et, de plus, de pouvoir traiter, sans que cela soit beaucoup plus complexe, des géométries tridimensionnelles.

9.1.1 Définition de la méthode

La méthode de Monte Carlo peut se décomposer en différentes étapes :

- construire un processus statistique que l'on appelle jeu
- attribuer une valeur numérique score à une certaine réalisation du jeu
- calculer une moyenne de ces scores et une dispersion statistique (écart-type) permettant

d'estimer la précision obtenue sur la moyenne.



Figure 11 : Un exemple d'application de la méthode

Sur la figure ci-dessus, le jeu consiste en la réalisation de trajectoires de particules et le score est de 1 à chaque fois qu'une particule traverse la surface. On peut alors calculer la moyenne du nombre de particules détectées (ayant traversé la surface).

Dans le cadre du transport de particules, l'utilisation d'une méthode de Monte Carlo pour estimer des quantités physiques telles que flux, taux de réaction ou facteur de multiplication repose sur la simulation d'histoires de particules dans la matière. Une histoire commence par la naissance de la particule (émission à partir d'une source) et se termine par sa mort (absorption, fuite).

9.1.2 Les codes de calcul.

Les codes de calcul, mettant en œuvre la méthode de Monte Carlo, pour la résolution des problèmes en physique des réacteurs sont principalement les logiciels MCNP et TRIPOLI.

9.2 Méthodes déterministes.

L'équation de Boltzmann est résolue numériquement en appliquant la discrétisation des variables :

$$\begin{array}{c} \mathsf{E}, \ \mathsf{r}, \ \Omega \to \mathsf{E}_i, \ \mathsf{r}_j, \ \Omega_k \\ i = 1 \ \dots \ \mathsf{I} \\ j = 1 \ \dots \ \mathsf{J} \\ k = 1 \ \dots \ \mathsf{K} \end{array} \right\} \hspace{1cm} \mathsf{I} \ x \ \mathsf{J} \ x \ \mathsf{K} \ \mathsf{Variables}$$

La fonction Φ (E,<u>r</u>,<u> Ω </u>) devient un vecteur <u> Φ </u> (Φ_{ijk}), où la composante Φ_{ijk} est la valeur moyenne du flux dans l'élément ${}^{\Delta}\mathsf{E}_{i} {}^{\Delta}\mathsf{r}_{i} {}^{\Delta}\Omega_{k}$

L'équation de Boltzmann peut se réécrire donc de façon discrétisée (en forme matricielle) :

$$A \Phi = F \Phi$$

 $f = F \Phi$
 $f = Opération de « disparition » $f = Opération de « production »$$

Formellement on cherche une solution du type (vecteur propre) :

$$\underline{\Phi} = A^{-1} F \underline{\Phi}$$

Différentes approximations sont utilisées dans l'opération de discrétisation en angle et espace :

- Méthodes aux Ordonnées discrètes.
- Méthodes Nodales
- Etc.

Ces approximations conduisent à des systèmes d'équations, résolus par des méthodes itératives, avec techniques d'accélération adaptées au type de matrice obtenu pour A et F.

Un problème majeur est représenté par la variation en énergie des sections efficaces σ (E). Dans les matrices A et F, il faut introduire des valeurs moyennes ou « effectives » sur des « groupes » d'énergie $\Delta E_{i:}$

$$\sigma_{\text{eff}}^{i} = \frac{\int \Delta Ei}{\int \Delta Ei} \frac{\sigma(E) \Phi(E) dE}{\Phi(E) dE}$$

Cette opération nécessite une évaluation préalable et approchée de $\Phi(E)$.

Cette opération est accomplie dans les codes dits de « cellule », où on résout l'équation de Boltzmann dans sa forme intégrale.

Avec Φ et σ , on peut construire des taux de réaction (de transmutation) instantanés avec des densités nucléaires N_j à un instant $t = t_0$. Puisque, les densités nucléaires sous irradiation évoluent dans le temps, les valeurs $N_j(t)$ sont solutions du système d'équations.

$$\frac{dN_j(t)}{dt} = N_j(t)(-\sigma_{aj}\Phi - \lambda_j) + \sum_{K \neq J} (\sigma_{pk}^j + \lambda_k^j)N_k(t)$$

j = 1...Nombre total de nucléides en jeu

9.3 Les codes de calcul déterministes.

A partir des méthodes indiquées succinctement au paragraphe précédent, on construit des codes, ou, mieux, des « systèmes » de codes, utilisés dans les calculs des études de transmutation, et à partir desquels on a obtenu les valeurs numériques données dans les chapitres précédents. Ici on mentionnera seulement à titre d'exemple le système de codes de neutroniques pour les RNR, ERANOS/ECCO, le système de code REP, CRONOS/APOLLO et le système de codes pour le cycle (toutes filières), DARWIN.

En pratique, les calculs sont faits en deux étapes :

- 1) Calcul de l'assemblage.
- 2) Calcul de cœur.

En ce qui concerne 1), il est fait avec une résolution numérique aussi exacte que possible de l'équation de Boltzmann. Ce calcul sert à simplifier le problème (homogénéisation, etc...).

En ce qui concerne 2), il est fait avec le modèle ainsi simplifié.

L'étape 1) est réalisée avec les codes APOLLO ou ECCO.

L'étape 2) est réalisée avec les codes CRONOS ou ERANOS.

10 Les données nucléaires pour la transmutation.

10.1 La problématique.

Les études de faisabilité, de conception ou de sûreté des systèmes de transmutation s'appuient sur des résultats de calculs obtenus à l'aide de logiciels de simulation numérique (Cf. chapitre précédent). Ces derniers font appel à des bibliothèques de données nucléaires, des modèles physiques et numériques, et des expériences de qualification intégrale. La qualité de chacun de ces trois sous-ensembles conditionne la précision et le niveau d'incertitude associé aux diverses études. L'ensemble est appelé « Formulaire de calcul ». Le cheminement entre les différentes étapes du processus de validation des données est schématisé ci dessous :



Ce chapitre traite des bibliothèques de données. Celles-ci sont construites à partir de grands fichiers internationaux de données nucléaires évaluées tels que JEFF pour l'Europe, ENDF/B pour les USA ou JENDL pour le Japon. Ces grands fichiers couvrent un large spectre en énergie pour un grand nombre de réactions et de noyaux afin de répondre aux besoins d'applications diverses, dont la neutronique. Les données nucléaires sont obtenues en combinant mesures microscopiques et modèles de physique nucléaire. Ce travail de modélisation, réalisé par des physiciens spécialisés, permet d'aboutir à des fichiers de données évaluées dans un format standard tels que ceux de JEFF-3.0.

Tant que la transmutation des déchets nucléaires à vie longue n'était pas l'objectif essentiel de la conception des cœurs, les codes de calcul neutronique disposaient de bibliothèques et de chaînes d'évolution ne couvrant qu'un nombre relativement limité de noyaux et de réactions. A partir des outils de calcul existants, développés et qualifiés pour les applications aux réacteurs classiques, des extensions ont été réalisées pour couvrir les spécificités des systèmes transmuteurs de déchets telles que :

- la forte concentration en actinides mineurs et en produits de fission à vie longue,
- les interactions neutron-noyau ou proton-noyau à des énergies inhabituelles (20 à 200 MeV),
- la présence d'une cible de spallation au plomb-bismuth ou de dispositifs spéciaux de transmutation.

Dans certains cas, lorsque les données nucléaires étaient disponibles par ailleurs, un travail de mise à jour a été effectué pour inclure les données manquantes dans les bibliothèques et dans les chaînes d'évolution.

Dans la plupart des cas, la méconnaissance des propriétés neutroniques de certains noyaux, voire de toutes les données dans certaines zones d'énergie, a nécessité des travaux de R&D en amont.

Dans ce but, de nombreuses mesures nucléaires intéressant la transmutation ont été réalisées au cours de ces dernières années, la plupart dans le cadre de collaborations impliquant le CEA, l'IN2P3 (CNRS et Universités), ou dans le cadre de projets internationaux (HINDAS, n_TOF_ADS, groupes de travail de l'OCDE). Outre l'aspect expérimental, certaines collaborations incluaient des développements de modèles de réaction nucléaire et de codes permettant la modélisation des données et leur mise au format standard pour les applications.

Dans la suite, seuls les projets relatifs à l'étude des réactions induites par des nucléons d'énergie inférieure à 20 MeV sont mentionnés. Les travaux relatifs aux énergies supérieures à 20 MeV sont décrits par ailleurs.

10.2 Les types de données nécessaires.

10.2.1 Les actinides.

Dans le cadre de combustibles classiques basés sur le cycle de l'uranium, ce sont les données pour les actinides mineurs (neptunium, américium, curium) qui sont bien entendu les moins connues.

Dans le cas de combustible basés sur le cycle du thorium, il faut ajouter le protactinium (Pa-231, Pa-233), le thorium (Th-230, Th-232) et certains isotopes de l'uranium (U-232, U-233, U-234, U-236).

Les données les plus importantes à considérer dans le cadre de l'incinération en réacteur des actinides sont les sections efficaces de fission et de capture, ainsi que le nombre de neutrons produits par fission. Dans le cas des ADS, les sections d'activation à haute énergie sont également importantes, mais il ne faut pas négliger celles dont le seuil est inférieur à 20 MeV et qui peuvent aussi conduire à la formation de produits d'activation à vie longue.

10.2.2 Les produits de fission à vie longue.

Dans le cadre de la transmutation des produits de fission à vie longue tels que l'iode, le technétium ou le césium, des mesures complémentaires étaient nécessaires pour mieux connaître leur section efficace de capture.

10.2.3 La cible de spallation.

Dans le cadre de la gestion des déchets par des options nouvelles, leur incinérationtransmutation dans des systèmes dédiés sous-critiques couplés à des accélérateurs a été étudiée. Dans ce cas une source de neutron additionnelle est constituée par une cible de spallation bombardée par des protons de plusieurs centaines de MeV. Cette cible de spallation est constituée d'un matériau lourd, mélange de plomb et de bismuth. Ces deux métaux ne sont pas couramment utilisés dans les filières de réacteur classique. Les sections efficaces totale, de capture (n, γ) et de production (n,xn) doivent donc être améliorées.

10.2.4 Les matériaux de structure.

Les matériaux de structure (fer, chrome, nickel) pour les concepts de transmutation sont similaires à ceux employés dans les réacteurs de fission ou de fusion. En dessous de 20 MeV, des mesures complémentaires peuvent être nécessaires. De plus pour les réflecteurs, de nouveaux types de matériaux sont envisagés, des mesures spécifiques sont à réaliser.

10.2.5 Les autres matériaux.

L'étude de certains concepts de transmutation en mode hétérogène a conduit à de nouveaux besoins en données nucléaires. En effet, le concept de cible (mode hétérogène) nécessite l'emploi de matrices de type MgO ou MgAl₂O₃, mais également constituées de matériaux modérateurs (B₄C, ZrH₂, CaH₂) pour augmenter les taux de transmutation. Dans ce cas de nouvelles données de diffusion thermique sont nécessaires.

10.2.6 Les données d'activation, de DPA, de production de gaz.

En dessous de 20 MeV, les besoins en données sont généralement couverts par la R&D menée pour les réacteurs de fission et fusion. Des mesures complémentaires peuvent néanmoins être nécessaires, en particulier pour des matériaux spécifiques aux ADS.

10.3 Synthèse des données mesurées.

La normalisation des mesures de fission et de capture s'effectue généralement sur des sections "standards" qui sont souvent celles de U-235, U-238, Pu-239 pour la fission et Au-197 par exemple pour la capture. Par ailleurs des mesures complémentaires sur des échantillons de carbone et/ou de plomb sont souvent nécessaires pour caractériser le(s) bruit(s) de fond neutron et/ou gamma dans le cas d'une mesure de capture. Toutes ces mesures, indispensables, ne sont pas recensées dans les paragraphes suivants.

Après publication, les données mesurées sont compilées dans une base internationale gérée par l'AIEA : la base EXFOR. Les paragraphes suivants permettent d'avoir une vue d'ensemble des mesures réalisées ces dernières années.

Mesure et analyse des transmissions (section efficace totale)

L'IRMM dispose d'installations très performantes, uniques en Europe, pour la mesure des sections efficaces totales par la méthode de transmission. *Isotopes* : ⁹⁹Tc, ¹²⁹I, ²⁰⁶Pb, ²³²Th, ²³⁷Np, ²⁴⁰Pu, ²⁴²Pu *Energie min* : de quelques dixièmes d'eV à quelques eV

Energie max : de quelques keV à quelques centaines de keV

Mesure et analyse des sections efficaces de capture

Les sections efficaces de capture ont été mesurées dans une gamme d'énergie assez large, incluant le point thermique dans certains cas. L'ensemble des projets/installations cités précédemment a contribué à la mesure de cette section efficace. Les résultats de la collaboration n_TOF ont été particulièrement nombreux et toutes les données ne sont pas encore analysées.

Isotopes : ^{24,25,26}Mg, ⁵⁶Fe, ^{90,91,92,93,94,96}Zr, ⁹⁹Tc, ¹²⁹I, ¹³⁹La, ¹⁵¹Sm, ^{204,206,207,208}Pb, ²⁰⁹Bi, ²³²Th, ²³³Pa, ^{233,234,236}U, ²³⁷Np, ²⁴⁰Pu, ²⁴³Am,

Energie min : de quelques dixièmes d'eV à quelques eV *Energie max* : de quelques centaines de keV à quelques MeV *Isotopes* : ⁹⁹Tc, ¹²⁹I, ²⁰⁹Bi, ²³²Th, ²³³Pa, ^{237,238}Np, ^{238,242}Pu, ^{241,242gs,243}Am *Energie* : point thermique (0.025 eV)

Mesure et analyse des sections efficaces de fission

Les sections efficaces de fission ont été mesurées dans une gamme d'énergie assez large, incluant le point thermique dans certains cas. L'ensemble des projets/installations cités précédemment a contribué à la mesure de cette section efficace. Les résultats de la collaboration n_TOF ont été particulièrement nombreux et toutes les données ne sont pas encore analysées.

Isotopes : ²⁰⁹ Bi, ²³²Th, ^{231,233}Pa, ^{233,234,236}U, ²³⁷Np, ^{241,243}Am, ²⁴⁵Cm *Energie min* : quelques eV *Energie max* : de quelques MeV à quelques centaines de MeV *Isotopes* : ^{234,236}U, ²³⁸Np, ²³⁸Pu *Energie* : point thermique (0.025 eV)

Mesure et analyse des sections efficaces de diffusion inélastique

L'IRMM dispose d'un spectromètre unique en Europe pour la mesure de la section efficace de diffusion inélastique.

Isotopes : ^{206,207,208}Pb, ²⁰⁹Bi *Energie min* : énergie seuil (quelques centaines de keV) *Energie max* : de quelques MeV à 10-20 MeV

Mesure et analyse des sections efficaces de production (n,xn)

Ces mesures ont été réalisées à l'Institut des Matériaux et Mesures de Références (IRMM) et à l'Université Catholique de Louvain (UCL) en collaboration avec l'IRES (CNRS, Strasbourg). *Isotopes :* ¹²⁹I, ^{204,206,207,}Pb, *Energie min :* énergie seuil (quelques MeV) *Energie max :* quelques dizaines de MeV

Mesure et analyse des rendements de fission

Ces données ont été mesurées à l'ILL avec le séparateur de masse LOHENGRIN et à Studsvik en utilisant le spectromètre OSIRIS.

Isotopes : ²³³U (fission rapide), ²³⁸Np, ^{242m}Am, ^{243,245}Cm (fission thermique)

Mesure et analyse des données de diffusion thermique

La mesure du spectre de vibration d'un réseau cristallin permet de calculer la section efficace de diffusion à l'énergie thermique. De telles mesures ont été réalisées à l'ILL pour l'hydrure de Calcium (CaH₂).

Mesure et analyse des sections de production de particules chargées et/ou d'activation

Les mesures par activation permettent de remonter aux sections efficaces de production de particules chargées. De nombreuses mesures ont été réalisées à l'IRMM jusqu'à 10-20 MeV pour les matériaux de structures, le plomb, le bismuth et les matériaux des matrices inertes. Plus généralement, le sous-groupe 19 du comité pour la mesure et l'évaluation des données de l'OCDE a également contribué à la mesure de nombreuses sections d'activation en dessous de 20 MeV.

10.4 La modélisation

Le projet HINDAS du 5^{ème} PCRD européen concernait plus particulièrement la mesure et la modélisation des données nucléaires au-delà de 20 MeV. Néanmoins, la limite entre les modèles de réaction nucléaire n'est pas si abrupte et certains modèles ou codes développés dans ce projet sont parfaitement valides en dessous de 20 MeV. C'est particulièrement le cas des modèles co-développés par les équipes du Service de Physique Nucléaire de la DAM – Ile de France et de NRG/Petten, et implémentés dans le code TALYS. Ce code est dorénavant utilisé pour produire des fichiers évalués utilisables pour les applications.

A plus basse énergie dans le domaine des résonances, les fonctionnalités des codes de matrice-R SAMMY et REFIT ont été étendues pour mieux décrire les fonctions de résolution des installations expérimentales de l'IRMM et du CERN. Ces améliorations permettront une meilleure analyse des données mesurées. Les paramètres de résonance ainsi obtenus seront finalement inclus dans des fichiers évalués, dans un format utilisable par les applications.

Dans le cadre de la mesure des données du domaine non-résolu (de quelques keV à quelques MeV), un nouveau formalisme a été développé par l'IRMM (Geel, Belgique) en collaboration avec l'INRNE (Sofia, Bulgarie) pour représenter de manière rigoureuse les sections expérimentales moyennes.

La méconnaissance de ces noyaux (actinides mineurs, produits de fission à vie longue) a relancé le débat sur la modélisation des incertitudes et la prise en compte des erreurs systématiques. Des travaux de R&D ont débuté pour fournir, à terme, des matrices de covariance dans les fichiers évalués.

10.5 Les évaluations

Les données mesurées « brutes » sont inutilisables par les codes de simulation. Ces derniers ont besoin de données complètes (en fonction de la réaction, de l'énergie incidente, de l'angle de la particule émise, etc.) et cohérentes. Les mesures ne sont donc qu'une pièce du puzzle que l'évaluateur doit reconstituer avant d'envisager la création de bibliothèques de données.

Certaines de ces mesures (Fe-54, Fe-57, Fe-58, Tc-99, I-129, Pb-204, Pb-206, Pb-207, Pb-208, Bi-209, U-238) ont été modélisées et complétées, le cas échéant, à l'aide de modèles de réaction nucléaire. Les évaluations ainsi produites ont été proposées pour intégration dans le fichier européen JEFF-3.1. D'autres travaux d'évaluation sont en cours (n_TOF) ou seront réalisés dans le cadre de programmes européens à venir (FP6 – EUROTRANS/NUDATRA) ou internationaux (JEFF), en particulier pour les actinides mineurs.

10.5.1 Exemple de validation des données nucléaires

Comme on l'a vu dans le chapitre précédent les données nucléaires les plus récentes sont rassemblées dans les banques de données évaluées, dont la base de données JEFF, développée par les pays européens de l'OCDE, est un exemple particulièrement complet et performant.

Cependant, la définition de la qualité des données, et les incertitudes à associer pour connaître leur impact sur les calculs et les études de transmutation, passe par une validation

expérimentale systématique. Certaines expériences intégrales sont disponibles qui permettent la validation des données nucléaires d'intérêt pour la transmutation.

Il s'agit en particulier des expériences d'irradiation en réacteur de combustibles et d'échantillons d'isotopes séparés. Une expérience typique est l'expérience Profil effectuée à Phénix.

10.6 Expérience PROFIL

Des échantillons d'isotopes purs sont placés dans des containeurs. Ces containeurs, au nombre d'une cinquantaine, sont empilés dans une ou plusieurs aiguilles qui sont elles-mêmes placées au sein d'un assemblage standard. Une aiguille de référence est également caractérisée avant et après irradiation pour servir de comparaison.



Figure 12 :Caractéristiques de l'expérience PROFIL

L'analyse après irradiation de ces échantillons d'isotopes purs tels que ²⁴¹Am, ²³⁷Np, ²³⁸Pu, ²⁴³Am, permet d'avoir accès aux sections efficaces de capture ou aux sections efficaces (n,2n) à l'aide des concentrations observées des isotopes de masse A + 1 ou A – 1. Un exemple des comparaisons calcul/expérience sur les sections de capture est donnée dans le tableau ci-après.

Rapport calcul/expérience (%) avec les données issues de :	JEF-2	JEFF 3
σ_{c} (²³⁸ Pu)	0,97	1,03
$\sigma_{c} (^{237}Np)$	0,94	0,95
σ_{c} (²⁴¹ Am)	1,05	1,06
σ_{c} (²⁴³ Am)	0,97	1,00
σ^{c} (²⁴⁴ Cm)	/	0,97

Tableau 10 : sections efficaces : valeurs obtenues au cours de l'expérience Profil dans Phénix.

11 Faisabilité technique de la transmutation

L'évaluation de la "faisabilité scientifique de la transmutation", qui se focalise sur la partie neutronique et physique, a permis de dégager les voies d'intérêt pour la transmutation des déchets à vie longue. L'objectif est ici d'évaluer dans différents types de réacteur et cycles associés la "faisabilité technique de la transmutation des déchets à vie longue". Cette faisabilité se module suivant le type de déchet et le type de réacteur hôte, comme on le verra par la suite. Elle se réalise à travers les études de scénarios qui permettent d'évaluer l'ensemble des postes du cycle nucléaire (réacteur, fabrication, entreposage, traitement) et qui incluent les études détaillées des modifications du dessin et de la gestion des cœurs apportées par la transmutation, l'impact sur les usines du cycle et sur les procédés de retraitement et de fabrication.

Les études de scénarios permettent d'avoir une vue d'ensemble du parc électronucléaire à un instant donné et au cours de son évolution dans le temps. Elles comportent trois phases :

- l'évaluation de concept à travers des études neutroniques conceptuelles permettant de caractériser les performances de transmutation et de faisabilité au sens du respect de critères de sûreté du réacteur,
- l'étude des phases de transition entre : la situation actuelle et les situations d'équilibre avec la prise en compte d'une chronologie d'introduction, dans le temps, de différents types de concepts de combustibles, de réacteurs et de procédés mis en oeuvre dans les installations du cycle depuis la mine jusqu'au site de stockage des déchets ;
- o l'étude détaillée des scénarios visant à :
 - o démontrer la faisabilité technique des principales composantes du parc : fabrication, réacteur, retraitement, conditionnement et stockage des déchets,
 - évaluer l'impact environnemental à court et long terme des solutions mises en oeuvre dans le parc,
 - évaluer l'impact des nouvelles technologies sur les coûts.(non traité ici)

Nous nous bornerons ici à rappeler les principales réalisations et grandes conclusions des rapports sur la loi de 1991 sans détailler trop avant l'ensemble des études réalisées. (Cf. Les déchets radioactifs à haute activité et à vie longue - recherches et résultats – Axe 1 « Séparation et transmutation des radionucléides à vie longue »)

11.1 Modes de transmutation

L'ajout d'actinides mineurs et de produits de fission à vie longue dans le cœur d'un réacteur modifie son comportement neutronique et peut de ce fait nécessiter de nouveaux dessins d'assemblages. Deux modes de transmutations sont distingués :

- le mode homogène où les radionucléides à transmuter sont mélangés au combustible du réacteur et sont de fait présents dans l'ensemble des installations du cycle ;
- le mode hétérogène pour lequel les radionucléides à transmuter sont séparés physiquement du combustible proprement dit, ce qui permet de les concentrer sur un nombre limité de dispositifs (cibles).

Le choix entre ces deux modes dépend, d'une part, du comportement de chaque élément dans le réacteur et, d'autre part, de son influence sur le cycle du combustible. Ainsi en mode homogène, on limite les teneurs initiales en actinides mineurs pour minimiser les conséquences de leur présence sur la neutronique du cœur. Cette voie a aussi l'inconvénient d'aligner la durée d'irradiation des radionucléides à vie longue sur celle de l'irradiation du combustible (qui peut être insuffisante si le rendement de transmutation est faible) et d'introduire ces radionucléides dans toutes les installations du cycle.

Dans le cas d'un recyclage hétérogène, les impacts sont localisés sur les installations associées à la gestion des cibles. Plusieurs variantes peuvent être considérées : soit tous les assemblages comportent quelques crayons contenant les radionucléides à transmuter, soit tous les crayons de quelques assemblages contiennent ces radionucléides, soit enfin ils peuvent être confinés dans des dispositifs spécifiques gérés de façon indépendante des assemblages standards. Ainsi, les actinides mineurs sont concentrés dans des zones spécifiques du cœur avec des teneurs beaucoup plus élevées que celles du recyclage homogène. On peut jouer sur le nombre, la teneur et la position des cibles pour minimiser leur impact sur la neutronique du cœur (effet sur le coefficient de réactivité, la distribution de puissance) sans toutefois réduire entièrement les perturbations apportées.

Une autre possibilité de gestion des actinides mineurs est de les concentrer dans des réacteurs spécifiques, dits "réacteurs dédiés" à la transmutation. Les systèmes hybrides (réacteur souscritique couplé à un accélérateur et à une cible de spallation qui lui fournit des neutrons) rendent théoriquement possible la gestion de cœurs très chargés en actinides mineurs, à des teneurs (voisines de 50 % en masse) bien supérieures aux possibilités des cœurs de réacteur classique. Ces systèmes dédiés à la transmutation sont associés au parc de réacteurs électrogènes REP ou RNR et constituent ainsi "une seconde strate".

De plus, on peut envisager soit le monorecyclage (appelé aussi "once-through") soit le multirecyclage des radionucléides à vie longue).

Le monorecyclage consiste à transmuter en un seul passage en réacteur les radionucléides à vie longue. Dans ce cas, on cherchera à transformer la plus grande partie (au moins 90 %) des radionucléides, puisque la part non transmutée est destinée aux déchets. La réduction de la radiotoxicité découle alors des performances de transmutation du réacteur indépendamment des pertes provenant du traitement des combustibles usés.

Le multirecyclage consiste à transmuter en plusieurs passages en réacteur les radionucléides à vie longue. Il aboutit évidemment à une réduction plus importante des quantités de radionucléides rejoignant les déchets, qui ne sont alors plus constitués que des seules pertes provenant du traitement des combustibles usés. Les quantités de radionucléides présents dans le cycle sont dans ce cas beaucoup plus importantes.



Figure 13 : principe de la transmutation des actinides en monorecyclage dans des cibles (à gauche) et en multirecyclage dans les combustibles (à droite).

11.2 Incidence de la gestion du plutonium

La prépondérance du plutonium dans l'inventaire radiotoxique des combustibles REP usés rend inutile d'envisager la transmutation des actinides mineurs et des produits de fission à vie

longue, tant que l'on n'a pas au préalable décidé d'une gestion complète, forcément à moyen ou long terme, de l'inventaire en plutonium. La régénération du plutonium dans les RNR permet de multiplier les ressources énergétiques, en tirant de l'uranium près de deux cents fois plus d'énergie que ne le permettent les REP actuels, ce qui préserve les ressources naturelles. L'inventaire en plutonium doit être adapté aux besoins associés au déploiement, dans un avenir plus ou moins proche, des réacteurs à neutrons rapides de 4^e génération.

Dans le cas d'un déploiement retardé de ces réacteurs futurs, des études ont donc porté sur une stabilisation de l'inventaire en plutonium à travers un multirecyclage de celui-ci. Différents concepts d'assemblages combustibles (assemblages courants MOX UE, MIX et Corail, crayons spécifiques placés dans des assemblages APA de conception nouvelle) ont été étudiés pour maîtriser l'inventaire en plutonium, dans un parc de réacteurs à eau pressurisée. Le multirecyclage du plutonium a pour effet de diminuer la "qualité isotopique" du plutonium c'est-à-dire le pourcentage d'isotopes impairs fissiles (²³⁹Pu et ²⁴¹Pu) du plutonium. Cette baisse de la matière fissile contenue dans le combustible doit être compensée par un apport supplémentaire en uranium enrichi. Les quantités de plutonium et d'actinides mineurs produites (valeurs positives) ou consommées (valeurs négatives) par ces concepts ainsi que par un assemblage UOX sont reportées dans le tableau 11 Les valeurs sont données après quelques recyclages, les performances variant peu d'un cycle à son suivant.

Le recyclage du plutonium amène un accroissement de la production d'actinides mineurs en relation avec une plus grande consommation du plutonium. Par exemple, par rapport à un parc de réacteurs utilisant des assemblages UOX (producteur de 26 kg de Pu par TWhe), la production d'actinides mineurs est multipliée par 2,9 pour le concept Corail (producteur de seulement 1,3 kg de Pu par TWhe) et par 7 pour le concept MOX UE (consommateur de 59 kg de Pu par TWhe). Dès le premier recyclage, le combustible MOX usé contient plus d'actinides mineurs (de l'ordre de sept fois plus d'américium et de curium) que le combustible UOX usé.

Concept	Enrichissement en ²³⁵ U (%)	Bilan en Pu et actinides mineurs (kg/TWhe)			
		Pu	Np	Am	Cm
MOX UE	3.2 3.7	- 59 - 69	1,1	17,5 11,5	3,9 5.0
CORAIL	5.2 4.5	1.3	1.6 1.7	6.1 4.5	1.7 2,2
vox	4,75	26	1,8	1,11	0,30

Tableau 11 : performances de différents concepts d'assemblage en REP pour la gestion du plutonium.

11.3 Transmutation des actinides mineurs en réacteurs à eau sous pression

La principale limitation à l'introduction d'actinides mineurs en réacteur de type REP est liée à leur impact direct et à celui de leurs descendants par transmutation sur les coefficients de réactivité et cinétiques du cœur. Ceci se traduit par :

- une dégradation des coefficients de température (effet Doppler) ;
- une réduction moindre de la réactivité liée à la vidange du caloporteur ;
- une diminution plus faible de la réactivité au cours du cycle en réacteur ;
- une dégradation de l'efficacité du bore soluble.

Les études ont été menées pour quantifier ces évolutions des coefficients de sûreté dans la version standard des REP ou dans des versions avec un rapport de modération accru (RMA), permettant justement d'adapter le spectre neutronique à des valeurs acceptables des coefficients de sûreté en présence d'actinides dans le cœur. On obtient ce rapport de modération accru dans un REP soit en enlevant quelques crayons dans l'assemblage (ce qui augmente le volume d'eau modératrice), soit en repensant son dessin. Les études les plus

récentes ont porté sur le réacteur EPR qui, par conception, donne des marges supplémentaires sur certains paramètres de sûreté du cœur par rapport aux REP actuels. Les concepts d'assemblage étudiés pour la transmutation dérivent de ceux définis pour la gestion du plutonium et la plupart sont adaptés à la gestion conjointe du plutonium et des actinides mineurs. Ils permettent le multirecyclage en mode homogène dans des assemblages courants (MOX UE, MIX et Corail) et en mode hétérogène dans des assemblages courants (MOX UE) ou avec des crayons spécifiques placés dans des assemblages de conception nouvelle (APA). Le tableau 12 présente l'ensemble des concepts étudiés. Le multirecyclage en mode homogène a été le plus étudié, car il perturbe moins le réacteur. En effet, dans le cas des réacteurs REP, toute hétérogénéité importante de la géométrie du cœur génère des perturbations neutroniques qui peuvent engendrer des puissances et des températures locales rédhibitoires.

Concept	Matrice	Rapport de modération	Nombre de crayons d'actinides mineurs par assemblage	Enrichissement en ²²⁵ U* (%)	Teneur en plutonium (%)	Teneur en actinides mineurs** [%]
MOX UE Homogène	UO2	Accru	264	3,97	8	1,13
MOX UE Hétérogène	U02	Accru	16	4,61	8	1,62
APA CORAIL MIX	Inerte UO ₂ UO ₂	Accru Standard Standard	36 84 264	4.1 5 4.7	12 10,3 2,8	2,9 2,1 0,9

Valeur donnée pour les premiers recyclages, la teneur en ²⁵U augmentant rapidement pour les recyclages ultérieurs.
 Valeur donnée pour les premiers recyclages, la teneur en actinides mineurs pouvant ensuite baisser alin de respecter les critères de sûreté pour un nombre important de recyclages.

Tableau 12 : principaux concepts d'assemblage REP pour la transmutation.

Le tableau suivant récapitule les performances de transmutation des actinides mineurs pour les concepts présentés en regard d'une gestion optimisée du plutonium. La transmutation des actinides mineurs nécessite une augmentation importante de l'enrichissement en ²³⁵U par rapport au recyclage du plutonium seul. Le multirecyclage du plutonium générant une quantité croissante d'actinides mineurs, la transmutation de ces actinides mineurs se fait donc au détriment du recyclage du plutonium. Le recyclage homogène des actinides mineurs apparaît tout à fait réalisable au sens neutronique dans les concepts présentés, tout du moins pour les premiers recyclages, car sur des temps plus longs, la "qualité isotopique" du plutonium diminuant, les teneurs admissibles en actinides mineurs doivent être réduites pour respecter les critères de sûreté.

Concept	Réacteur Taux de combustion Actin (GWj/t) mine		Actinides mineurs recyclés	Performances (kg/TWhe)			
				Pu	Np	Am	Cm
MOX UE	EPR	60	Am	- 35	1,3	-5,7	5,3
APA	EPR	45	Am, Cm	- 53	0.9	0,1	0,3
CORAIL	REP 1300	45	Np, Am, Cm	5	0,1	0,7	0,6
MIX	REP 1300	60	Np. Am. Cm	0.5	0	0.1	0.6

Tableau 13 : performances de différents concepts d'assemblage en REP pour la transmutation desactinides mineurs.

Les études neutroniques préliminaires d'impact sur le cœur ne laissent pas présager de problèmes particuliers pour le contrôle des cœurs : les teneurs admissibles par assemblage sont suffisamment faibles pour ne pas dégrader la sûreté des réacteurs. Parmi les différents concepts étudiés, le concept MOX-UE apparaît comme le plus facile à déployer au niveau d'un réacteur de troisième génération tel qu'EPR, car il minimise les impacts sur le cœur et il

n'implique qu'un nombre limité de réacteurs dans le parc. Il a également été vérifié que la présence de lanthanides, radionucléides susceptibles d'être présents sous forme d'impuretés avec les actinides mineurs à l'issue de la séparation poussée, est tolérable à des teneurs accessibles par les procédés spécifiques de séparation en cours de développement, en termes de performance de transmutation.

En mode hétérogène, le multirecyclage des actinides mineurs dans des cibles (au nombre de 16) placées dans des assemblages UOX a été également évalué. Dans le cas de l'américium, les performances de transmutation sont pratiquement équivalentes au mode homogène. L'avantage de cette solution est de permettre l'introduction d'américium dans des REP UOX tout en dissociant la gestion du plutonium de celle des actinides mineurs. Toutefois, la fabrication d'assemblages UOX comportant des cibles américiées est un inconvénient majeur. Lors de recyclage en REP impliquant le curium, les captures neutroniques successives amènent à la formation de radionucléides supérieurs qui s'accumulent, s'ils ne sont pas séparés au cours des recyclages. Un des isotopes du californium, le 252Cf est un émetteur intense de neutrons qui, bien que produit en faible quantité, augmente l'émission neutronique des matières manipulées d'un facteur cent à l'étape de traitement et d'un facteur environ huit mille à l'étape de refabrication par rapport à un combustible MOX. Ceci nécessite de renforcer les postes du cycle par des protections radiologiques supplémentaires et d'évaluer les risques de criticité associés. Ce problème n'apparaît pas dans le cas des réacteurs à neutrons rapides où les isotopes amenant au californium fissionnent davantage et où ainsi la quantité de 252Cf se stabilise à des niveaux beaucoup plus bas, sans conséquence sur les installations du cycle.

Des études ont été réalisées au CEA, sur des concepts de cible hétérogène en monorecyclage (Andiamo, Tigre). Les résultats indiquent que les temps nécessaires pour atteindre des taux de fission suffisamment élevés (90 % environ) sont particulièrement longs, de l'ordre de vingtcinq à quarante ans.

11.4 Transmutation des actinides mineurs en réacteurs à neutrons rapides

Pour les réacteurs à neutrons rapides, les études ont principalement utilisé, comme réacteur de principe, le projet européen EFR (*European Fast Reactor*), réacteur refroidi au sodium de 1 400 MWe permettant une évaluation exhaustive des impacts de la transmutation sur l'ensemble des paramètres du cœur nucléaire. L'ensemble des voies de transmutation et leur mode associé de gestion ont été étudiés. De nombreuses études ont montré la possibilité de transmuter, ensemble ou séparément, les actinides. Dans ces réacteurs peuvent être aussi placés des assemblages de cibles modérés : le modérateur envisagé est hydrogéné (hydrure de calcium ou de zirconium).

Les études s'orientent maintenant sur les systèmes de quatrième génération qui doivent autorecycler leurs propres actinides. Parmi les systèmes étudiés, figurent les réacteurs à neutrons rapides et à caloporteur gaz.

11.4.1 Capacités de transmutation en mode homogène et multirecyclage

Le mode homogène en réacteur à neutrons rapides apparaît comme la solution la plus favorable pour la transmutation du fait des avantages suivants :

- la distribution homogène dans le cœur ne perturbe pas les distributions de puissance ;
- le haut niveau de flux et le surplus de neutrons accommodent facilement la présence d'actinides mineurs ;
- l'équilibre global du réacteur qui fonctionne initialement au plutonium se trouve peu perturbé.

Pour chaque actinide mineur considéré individuellement, les capacités de transmutation dans le cas d'un multirecyclage en mode homogène ont été évaluées en considérant une teneur massique limite maximale de 2,5 %. Le tableau suivant récapitule les performances du réacteur EFR et, à titre d'illustration, indique pour chaque actinide mineur la consommation potentielle qu'elle compare au nombre n de REP produisant cette quantité.

Ce tableau montre comment, dans le cas où on chercherait à absorber un stock résiduel d'actinides mineurs provenant de réacteurs REP, on a tout intérêt à éviter tout recyclage du plutonium (pour l'américium, un EFR ne permet "d'absorber" que la production venant de 0,5 REP MOX-UE alors qu'il "accommode" la production de 6 REP UOX).

Le réacteur EFR génère 3,8 kg d'actinides mineurs par TWhe. En cas de recyclage en mode homogène des actinides mineurs dans le cœur, la consommation parvient à équilibrer la production avec une teneur massique de 1,3 % d'actinides mineurs dans le combustible (bien inférieure à la teneur massique limite de 2,5 % déterminée plus haut). Du fait d'une répartition homogène dans le combustible, leur présence n'a pas d'impact sur les distributions de puissance dans le cœur. La teneur massique en plutonium doit cependant être augmentée de 19,9 à 21,1 %, à cause de la présence des actinides mineurs moins fissiles que le plutonium. Ceci montre qu'un réacteur à neutrons rapides est tout à fait apte à recycler ses propres déchets en mode homogène sans perturbation notoire.

Cependant, on peut vouloir minimiser le nombre d'assemblages chargés d'actinides mineurs en cœur, des études ont donc été menées pour évaluer les capacités maximales de transmutation en mode hétérogène.

Np	Am*	Cm	
10	9	6	
-6	~6	~20	
~25	~0,6	~2	
-9	~0,5	~1,5	
	Np 10 ~6 ~25 ~9	Np Am* 10 9 ~6 ~6 ~25 ~0,6 ~9 ~0,5	

Sans prise en compte de la production de ¹⁴¹Am par décroissance du ¹⁴¹Pu.

Tableau 14 : performances de transmutation d'un EFR en recyclage homogène.

11.4.2 Capacités de transmutation en mode hétérogène et multirecyclage

Dans un réacteur à neutrons rapides, un flux important de neutrons s'échappe du cœur et peut être utilisé pour :

- créer du plutonium en plaçant de l'uranium appauvri dans les zones périphériques appelées couvertures (c'est la surgénération) ;
- consommer des actinides mineurs en positionnant des cibles dans les zones périphériques du cœur ou en couverture, l'avantage de cette disposition étant de très peu modifier les coefficients de sûreté.

Le dessin des cibles pour la transmutation des actinides mineurs est similaire à celui des couvertures utilisées pour l'uranium appauvri. Ces cibles peuvent être sur matrice inerte ou sur support uranium.

Leur comportement en cours d'irradiation est également assez proche de celui d'une couverture en uranium appauvri. L'augmentation de la puissance libérée en cours d'irradiation, liée à l'apparition d'isotopes fissiles, est toutefois plus rapide en présence d'actinides mineurs, ce qui limite leur teneur admissible dans les aiguilles, la puissance produite dans les zones périphériques devant rester faible devant celle du cœur. Une teneur de l'ordre de 20 à 40 % en volume dans les cibles satisfait à ce critère. Les taux de transmutation massique sont d'environ de 14 kg/TWhe pour l'américium (à une teneur de 40 %),

12 kg/TWhe pour le neptunium (à une teneur de 20 %. Le recyclage du curium seul n'a pas été évalué, car de par ses propriétés physiques (émetteur de neutrons et de particules alpha à haute énergie) et de sa faible proportion par rapport aux autres actinides mineurs, son recyclage ne se conçoit qu'associé à un autre actinide mineur (en l'occurrence l'américium). Pour les cibles positionnées en couverture, les performances de transmutation ont été calculées pour des teneurs d'actinides mineurs comprises entre 40 et 80 % en volume

Dans tous les cas, les consommations sont largement supérieures à la production propre des réacteurs à neutrons rapides et dépassent légèrement les performances obtenues avec le multirecyclage en mode homogène.

11.4.3 Capacités de transmutation en mode hétérogène et monorecyclage

Pour atteindre des performances de transmutation suffisantes en un seul passage en réacteur, il faut soit laisser les cibles en cœur durant des temps très longs, souvent incompatibles avec les durées de vie des assemblages, soit modifier localement le spectre des neutrons pour augmenter le taux de transmutation afin d'accélérer le processus. Cette dernière option a été prise en compte dans la définition de cibles modérées en réacteur à neutrons rapides (dont les démonstrateurs sont les expériences Ecrix dans le réacteur Phénix). Cette approche permet, en modérant localement le spectre d'énergie des neutrons, d'augmenter les sections efficaces, tout en profitant du haut niveau de flux des RNR.

Pour le réacteur EFR, un assemblage particulier *(figure ci-dessous)* a été calculé, constitué de cibles d'oxydes d'actinides $(Am + Cm)O_2$ sur une matrice inerte et d'aiguilles modératrices formées de pastilles d'hydrure d'yttrium (assemblage-cible).



Figure 14 : section d'un assemblage cible pour la gestion en monorecyclage de l'américium et du curium dans EFR (en bleu, les aiguilles de modérateur, en rouge, les aiguilles cibles).

Chaque assemblage-cible contient environ 9 kg d'actinides mineurs (Am + Cm); la capacité de transmutation d'un tel cœur chargé de ces assemblages-cibles est de l'ordre de 7,4 kg/TWhe. L'introduction des assemblages-cibles ne remet pas en cause les critères globaux de sûreté du cœur des réacteurs EFR. Un tel assemblage modéré permet d'atteindre des taux de fission de l'ordre de 90 % (il ne reste donc après neuf ans d'irradiation de l'assemblage en cœur que 10 % de la masse initiale des noyaux lourds). Par rapport aux cas de multirecyclage, l'avantage très clair de cette solution est de minimiser les flux d'actinides mineurs dans le cycle nucléaire.

11.5 Les scénarios étudiés et les conclusions associées

Pour la partie scénario, plusieurs études ont été réalisées, couvrant l'ensemble des diverses options envisageables ou envisagées.

Une première famille dite « scénarios CNE » a été étudiée :

- Un scénario de mono recyclage de l'américium et du curium dans des cibles spécifiques (transmutation en mode hétérogène) générant des cinétiques de fission importantes en un seul passage en réacteur à neutrons rapides, permettant de minimiser les inventaires de ces actinides dans le parc nucléaire, mais engendrant de fortes contraintes sur les réacteurs et sur l'usine de fabrication des cibles.
- Deux scénarios de recyclage multiple des actinides mineurs en dilution maximale dans le combustible (transmutation en mode homogène), soit dans des réacteurs à eau pressurisée à spectre thermique (REP), soit dans des réacteurs à spectre rapide (RNR). Les contraintes portent alors sur les flux importants de matières dans le cycle nucléaire.

11.5.1 Scénario RNR en mode hétérogène en un seul passage

Pour le scénario de mono recvclage de l'américium et curium dans des cibles en un seul passage en réacteur à neutrons rapides l'usine de traitement des combustibles usés comporte deux chaînes séparées en tête d'usine, l'une pour les combustibles REP et l'autre, pour les combustibles MOX-RNR. Ensuite, l'enchaînement des procédés PUREX, éprouvé à La Hague, DIAMEX et SANEX, développés dans les installations d'ATALANTE, devrait permettre de récupérer les flux d'U et Pu+Np d'une part et les flux d'Am+Cm d'autre part avec des performances de récupération de 99.9%. Pour le procédé de fabrication, la solution de nitrate d'américium et de curium issue de l'étape de retraitement est convertie, après deux étapes de concentration, en oxyde mixte AmCmO2 avec un procédé sol-gel déjà mis en œuvre (à l'échelle du laboratoire) pour la synthèse de micro sphères d'oxyde d'uranium et de plutonium. Techniquement, ce procédé peut être extrapolé pour la fabrication d'AmO2 ; mais la présence du Cm avec un fort dégagement thermique nécessitera certainement un saut technologique. La fabrication des pastilles cible (Am+Cm) sur support MgO se fait en cellules blindées avec un procédé similaire à celui mis en œuvre à MELOX pour fabriquer les combustibles MOX. La présence du Cm, fort émetteur neutrons et alpha, conduit à concevoir des ateliers de fabrication se rapprochant de ceux mis en œuvre à La Hague pour la vitrification (R7, T7) mais il reste à en démontrer la faisabilité technique Après le passage en réacteur, les cibles irradiées ne contiennent plus que 10 % d'actinides (Pu+Am+Cm) et les assemblages peuvent être démantelés comme les assemblages standards des RNR avant traitement.

Dans un scénario de transmutation en un seul passage en réacteur à neutrons rapides, la faisabilité technique est acquise pour les aspects réacteurs et traitement (sous réserve de qualification d'ensemble), mais que pour les aspects fabrication des cibles la présence importante de curium nécessite un saut technologique.

L'étape de qualification pour l'américium seul en cible est en cours avec les irradiations ECRIX-H et CAMIX COCHIX dans le réacteur PHENIX.

11.5.2 Scénario REP en mode homogène et multirecyclage

Pour le scénario de recyclage multiple des actinides mineurs en dilution maximale dans le combustible dans des réacteurs à eau pressurisée à spectre thermique (REP), les teneurs totales Pu et AM sont de l'ordre de 3% et 1% respectivement. De fait leur introduction en

mode homogène dans le cœur des réacteurs REP n'a qu'un très faible impact sur les paramètres de sûreté. Il serait toutefois nécessaire d'utiliser des poisons consommables ou du bore soluble enrichi pour augmenter les marges aux arrêts. L'accumulation au cours des recyclages successifs du curium et surtout du californium 252 source intense de neutrons, pose à la fois des problèmes de criticité et de radioprotection dans les usines du cycle qui nécessiteront la mise en place d'aménagements spécifiques. Les inventaires en curium présent dans le cycle sont ici très importants (~50 tonnes) comparés à ceux du scénario de recyclage dans un RNR (~2 tonnes).

Dans un scénario de recyclage complet des actinides mineurs en REP, la faisabilité technique globale est démontrée pour les aspects réacteurs et traitement (sous réserve de qualification d'ensemble). Pour les aspects fabrication les procédés actuels ne sont pas adaptés. De plus, l'accumulation au cours des recyclages successifs du curium et surtout du californium 252 source intense de neutrons, pose des problèmes sévères de criticité et de radioprotection dans les usines du cycle, ce qui condamnent pratiquement le recyclage du curium en REP.

11.5.3 Scénario RNR en mode homogène et multirecyclage

Pour le scénario de recyclage multiple des actinides mineurs en dilution dans le combustible des réacteurs à neutrons rapides la teneur en actinides mineurs doit être limitée, de l'ordre de 1.3 at% de telle façon qu'elle n'ait qu'un très faible impact sur les paramètres de sûreté. Les impacts sur des usines du cycle (contenant initialement des quantités significatives de plutonium) restent acceptables.

Dans un scénario de recyclage complet des actinides en réacteur à neutrons rapides, la faisabilité technique est établie pour l'ensemble des postes du cycle (sous réserve de qualification globale). Pour les aspects fabrication, les procédés devront être légèrement aménagés. Du fait de leurs caractéristiques neutroniques favorables à la fission, les systèmes à neutrons rapides sont les mieux adaptés au recyclage multiple des actinides mineurs.

Faisant suite à cette première partie d'études et dans la perspective d'une vision dynamique du déploiement de systèmes de troisième et quatrième génération, des études de scénarios ont été réalisées, prenant en compte les enseignements des études précédentes et basées sur l'hypothèse commune de la mise en place de la séparation des actinides mineurs à partir de 2015 :

- Un scénario de poursuite de la filière des réacteurs à eau pressurisée à spectre thermique avec des réacteurs de troisième génération (EPR) à partir de 2015 et recyclant le plutonium et l'américium en mode homogène basé sur le concept d'assemblage MOX UE Am à partir de 2020. Dans un premier temps, les usines actuelles du cycle sont utilisées, les actinides mineurs non recyclés sont entreposés.
- Un scénario de déploiement des systèmes de quatrième génération à spectre de neutrons rapides à partir de 2035 recyclant leurs propres actinides et résorbant ceux déjà entreposés.
- Un scénario dans lequel les actinides mineurs seraient recyclés dans un cycle spécifique utilisant à des systèmes sous-critiques pilotés par accélérateur (ADS).

11.5.4 Scénario REP en mode homogène et recyclage de l'Américium seul

Pour le scénario avec des réacteurs de troisième génération (EPR) recyclant le plutonium et l'américium en mode homogène en MOX Ue Am, la teneur est fixée à \sim 1% d'américium et

entre 7 et 8% en plutonium. Ces teneurs permettent d'équilibrer la production et la consommation de plutonium et d'américium produits par l'ensemble du parc tout en respectant les critères de sûreté en réacteur. A l'échelle laboratoire, le procédé de fabrication a été validé pour des teneurs allant jusqu'à 5% massique en américium. A l'échelle industrielle, des aménagements spécifiques sont à prévoir tant pour le procédé de fabrication que pour assurer la radioprotection. L'usine MELOX n'a pas été dimensionnée à la fois pour des isotopies Pu aussi dégradées que celles issues du multirecyclage et des teneurs finales en Am aussi élevées. De plus la présence de curium est rédhibitoire (quelques ppm admissibles) dans cette installation et nécessite d'avoir un facteur de décontamination du curium dans l'américium très élevé. Aussi, la possibilité de réaliser des pastilles Pu+Am dans MELOX semble exclue. La faisabilité neutronique du concept et son acceptation en cœur (en regard du respect des critères de sûreté du réacteur) est démontrée pour les teneurs envisagées. Sous irradiation ce combustible génère des quantités importantes d'hélium, ce qui nécessite de modifier le dessin du crayon combustible. Une R&D spécifique associée à un programme de qualification est probablement nécessaire sur ce point. Pour l'entreposage intermédiaire des actinides mineurs séparés, les études ont été menées pour le cas le plus difficile du curium, dimensionnant du point de vue thermique. En termes de radiotoxicité, ce scénario permet la stabilisation des flux américium et plutonium en 30 ans alors que la quantité de curium entreposée croit de façon linéaire à partir de 2050 à raison d'une tonne par an (à comparer à 0.6t/an dans le cas d'un recyclage du plutonium seul).

Dans un scénario de recyclage conjoint du plutonium et de l'américium en REP,

- la quantité d'américium doit rester limitée (1 % en masse environ),
- un sur-enrichissement pénalisant en 235U est nécessaire,
- le crayon doit être en partie redimensionné,
- la fabrication du combustible MOX UE-Am ne peut pas être réalisée dans l'usine MELOX actuelle.

Pour une mise en place de la séparation poussée en 2015 et une introduction à la vitesse de 1,5 GWe/an de REP recyclant l'américium à partir de 2020, la stabilisation des flux américium et plutonium se réalise en 30 ans mais la quantité de curium entreposée croît à partir de 2020 à raison d'une tonne par an en moyenne (à comparer à 0.6t/an dans le cas d'un recyclage du plutonium seul).

11.5.5 Scénario RNR Génération IV en mode homogène et recyclage des actinides mineurs des REP

Pour le scénario de déploiement des systèmes de quatrième génération à spectre de neutrons rapides à partir de 2035 recyclant leurs propres actinides et résorbant ceux déjà entreposés, les résultats préliminaires montrent que :

Le déploiement de ces systèmes de 4ème génération est conditionné par la disponibilité en plutonium. Ce scénario permet de déployer les systèmes à neutrons rapides d'ici la fin du 21ème siècle, en considérant constante la puissance électronucléaire installée dans le parc (60 GWe).

Les inventaires en actinides mineurs (AM) séparés et entreposés en provenance des REP et liés à la mise en œuvre préliminaire de la séparation peuvent être recyclés dans les systèmes de 4ème génération. La durée de reprise de ces inventaires est d'environ 15 ans, ce qui correspond à la période de déploiement de ces nouveaux systèmes dans le parc.

Le scénario de déploiement des systèmes de quatrième génération permet de résorber l'ensemble des actinides mineurs entreposés à partir de 2015. La durée de reprise de ces

inventaires est d'environ 15 ans pour une introduction à partir de 2035, ce qui correspond à la période de déploiement de ces nouveaux systèmes dans le parc. Dans le cas d'un déploiement retardé des systèmes de quatrième génération qui n'interviendrait qu'à partir de 2080, au rythme de 2 Gwe/an jusqu'à 100% du parc, la résorption des actinides mineurs entreposés issus du traitement des combustibles UOX des REP, se ferait sur 30 ans. Dans tous les cas, les systèmes de quatrième génération peuvent absorber les actinides mineurs entreposés à partir de 2020 et ceci durant leur période de déploiement.

11.5.6 Scénario ADS en double strate recyclant les actinides mineurs des REP

Un scénario, dans lequel le plutonium est recyclé dans les REP et les actinides mineurs dans un cycle spécifique associé à des systèmes sous-critique en double strate, amène aux conclusions suivantes :

La possibilité réelle de transmuter les actinides mineurs générés par le parc actuel de REP par des ADS (Accelerator Driven System) est confirmée.

Les études de conception se sont appuyées sur l'état de l'art actuel (études combustibles, de tenue mécanique, neutroniques et thermiques) et ont permis de dimensionner une première image d'un cœur de réacteur ADS de 400MWth dédié à la transmutation.

Le traitement potentiel du combustible de réacteurs incinérateurs d'actinides mineurs est basé sur une voie pyrochimique. Un effort important de R&D est encore nécessaire pour arriver à un procédé abouti.

Le déploiement d'une trentaine d'ADS de 400 MWth (un rendement de 40%) correspondant à une puissance électrique installée d'environ 9% de celle du parc électrogène de la première strate est nécessaire pour équilibrer les flux de matières. Dans ce scénario, la gestion du plutonium par recyclage dans les REP entraîne une production importante d'actinides mineurs. Un tel parc REP (constitué de REP UOX et MOX UE) produit environ 9 kg/TWhe d'actinides mineurs. Dans le cas d'un parc sans recyclage du plutonium (qui serait entreposé) la production d'actinides mineurs est de l'ordre de 4 kg/TWhe ce qui ramènerait la part des ADS à environ 4% de la puissance totale installée (soit environ 13 ADS de 400 MWth).

Le scénario, dans lequel le plutonium serait recyclé dans les REP et les actinides mineurs dans un cycle spécifique utilisant des ADS (Accelerator Driven System), aboutit à mettre en place une puissance électrique du parc ADS égale à 10 % de celle du parc REP. Cette puissance est réduite à 5 % si le plutonium n'est pas recyclé.

Des verrous technologiques sont encore à lever pour démontrer la faisabilité technique de la transmutation en ADS et du cycle associé et vont nécessiter d'importants programmes de R&D, notamment dans le cadre de collaborations européennes et internationales.

Remerciements

L'ensemble de ce cours est une synthèse des études réalisées principalement au CEA et qui est le fruit des travaux de recherche de nombreuses équipes. Je tiens à remercier plus particulièrement Alain Zaetta pour les aspects portant sur la faisabilité scientifique, Jean Tommasi pour l'ensemble de son travail sur la transmutation, Jean-Paul Grouiller pour les aspects scénarios et enfin Dominique Warin qui a coordonné les synthèses au sein du CEA.

Réacteurs hybrides : avancées récentes pour un démonstrateur

Annick BILLEBAUD¹

Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie IN2P3-CNRS/UJF/INPG 53 av. des Martyrs, 38026 Grenoble Cedex, France

RESUME

Les réacteurs sous-critiques pilotés par accélérateur font l'objet de nombreux programmes de recherche depuis plus d'une dizaine d'années, avec l'objectif de tester leur faisabilité tant sur le plan du concept que sur celui d'outils dédiés à la transmutation. De nombreux points clés comme l'accélérateur, la cible de spallation, ou la neutronique du milieu sous-critique ont été activement investigués ce qui permet déjà d'effectuer des choix technologiques et de concevoir dans un premier temps un prototype de faible puissance (quelques dizaines de MWth) à l'échelle européenne. Les programmes dédiés au pilotage des systèmes sous-critiques ont proposé une procédure pour suivre en ligne la réactivité du système qui sera validée dans les années qui viennent. Les travaux sur les accélérateurs permettent d'établir déjà le schéma d'une machine pour un tel système et les travaux sur leur fiabilité se poursuivent. Une cible de spallation avec fenêtre a été mise en œuvre au PSI et le design d'une cible sans fenêtre est en cours. Tous ces travaux convergent vers le design d'un ADS de démonstration européen l'ETD/XT-ADS qui pourrait être le projet belge MYRRHA.

ABSTRACT

Accelerator driven sub-critical reactors are subject of many research programmes since more than ten years, with the aim of testing the feasibility of the concept as well as their efficiency as a transmutation tool. Several key points like the accelerator, the spallation target, or neutronics in a subcritical medium were investigated extensively these last years, allowing for technological choices and the design of a low power European demonstration ADS (a few tens of MWth). Programmes dedicated to subcritical reactor piloting proposed a monitoring procedure to be validated in forthcoming experiments. Accelerator R&D provided the design of a LINAC for an ADS and research work on accelerator reliability is going on. A spallation target was operated at PSI and the design of a windowless target is in progress. All this research work converges to the design of a European demonstration ADS, the ETD/XT-ADS, which could be the Belgian MYRRHA project.

¹ billebaud@lpsc.in2p3.fr

Sommaire

Résu	ımé-A	Abstract	301
Som	maire)	302
Liste	des	notations	303
Intro	ducti	on	305
1.	Princ	cipe et intérêt des réacteurs hybrides ou « ADS »	305
	1.1.	Milieu multiplicateur sous-critique	305
	1.2.	Principe d'un système hybride	305
	1.3.	Importance des neutrons source	306
	1.4.	Gains neutronique et énergétique	308
	1.5.	Intérêts d'un réacteur hybride : bilan neutronique	308
2.	Le pi	ilotage et le contrôle des ADS	309
	2.1.	Relation courant/puissance	309
	2.2.	Pilotage et sûreté d'un système sous-critique	309
	2.3.	Mesure et contrôle de la réactivité	310
		2.3.1. Méthode « de référence »	310
		2.3.1.1. Méthode par chute de barre ou « rod-drop »	310
		2.3.1.2. Méthode par Multiplication de Source Approchée (MSA)	311
		2.3.1.3. Méthode par Multiplication de Source Modifiée (MSM)	311
		2.3.2. Méthodes « de source pulsée » (PNS methods)	312
		2.3.2.1. Méthode des aires (area method)	312
		2.3.2.2. Méthodes d'aiustement (fitting methods)	313
		2.3.3. Méthodes de « retrait de source » (source jerk or prompt jump techniques)	315
		2.3.4. Méthodes « de fluctuation de bruit » (noise techniques)	316
		2.3.4.1. La méthode Rossi-alpha	317
		2.3.4.2. La méthode Fevnman-alpha	317
		2.3.4.3. La méthode CPSD	317
		2.3.5. Procédure de contrôle de la réactivité d'un ADS	317
3.	Vers	un démonstrateur	319
	3.1.	Synthèse des avancées récentes	319
		3.1.1. L'accélérateur	319
		3.1.2. La cible de spallation	321
		3.1.2.1. Les matériaux	321
		3.1.2.2. Le design d'une cible avec fenêtre	322
		3.1.2.3. Le design d'une cible sans fenêtre	323
		3.1.3. Le combustible	323
		3.1.4. Les données nucléaires	3324
	3.2.	Projets européens de démonstration pour un ADS industriel	3325
		3.2.1. XADS refroidi au Pb-Bi liquide	3325
		3.2.2. XADS refroidi au gaz	3326
		3.2.3. Des conclusions de PDS-XADS vers les proiets actuels	3326
	3.3.	Le projet MYRRHA	3327
		3.3.1. Description générale	3327
		3.3.2. Le design de l'accélérateur	3328
		3.3.3. Le design de la cible de spallation sans fenêtre	3329
		3.3.4. Le design du cœur sous-critique	3331
4.	Conc	lusion	3332
Rem	ercie	ments	3332
Réfé	rence	IS.	3333

Liste des notations

$\begin{bmatrix} = & \dots \end{bmatrix} \\ k \\ k_s \\ k_{eff} \\ k_p \\ \sigma_{f}, & \sigma_c \end{bmatrix}$	notation équivalente dans le cours de P. Baeten (ibid.) facteur de multiplication neutronique d'un réacteur, rapport du nombre de neutrons à la génération $i+1$ au nombre de neutrons de la génération i facteur de multiplication moyen en présence d'une source facteur de multiplication effectif facteur de multiplication prompt = $k_{eff}(1-\beta_{eff})$ sections efficaces de fission et de capture
$\frac{\varphi^{\star}}{\overline{\Psi}}$, $\overline{\Psi}$	facteur d'importance de la source importances movennes des neutrons source et des neutrons de fission
$\rho_{\rm s}, \rho_{\rm eff}$	réactivités source et effective = $\frac{k_{sou eff} - 1}{k_{sou eff}}$
$ \begin{array}{l} \rho_{\$} \\ N_{s} \\ G \\ \nu \\ E_{f} \\ E_{p} \\ N_{d} \\ N_{f} \\ \alpha \end{array} $	réactivité exprimée en « dollars » = ρ/β nombre de neutrons de spallation (neutrons source) créés par proton gain énergétique du système hybride nombre de neutrons moyen émis par fission énergie moyenne libérée par fission énergie cinétique des protons incidents sur la cible de spallation nombre de neutrons disponibles par fission nombre de fissions constante de décroissance exponentielle dans la cinétique point (physique des réacteurs, cf.
P_{th} S I e $E_{cible(p,n)spal}$	relation (28)) ; désigne aussi le nombre de neutrons nécessaires pour créer une fission = $(\sigma_f + \sigma_c)/\sigma_f$ puissance thermique nombre de neutrons source par seconde courant de protons envoyé sur la cible de spallation charge électrique élémentaire énergie moyenne nécessaire pour produire un neutron par spallation sur un matériau cible donné
ℓ	temps de vie moyen (= durée de vie moyenne) d'un neutron prompt
ℓ[=ℓ*]	temps de vie moyen (= durée de vie moyenne) d'un neutron de fission (tient compte des neutrons retardés)
$ \begin{array}{l} \Lambda \\ \beta_{eff} \\ \overline{\tau} \ [= t_m] \end{array} $	durée de génération moyenne = temps moyen entre deux générations = ℓ / k_{eff} fraction effective de neutrons retardés temps d'émission moyen des neutrons retardés (temps moyen entre la fission et l'émission du neutron retardé par son précurseur) = $\frac{1}{\sum \beta_i} \sum_i \beta_i t_i$ où β_i est la fraction de neutron émis
$\lambda ou \lambda_i$ $\overline{\lambda}$	avec le retard $t_i = 1/\lambda_i$ constante de décroissance pour un groupe de précurseurs (de neutrons retardés) constante de décroissance moyenne des précurseurs= $1/\overline{\tau}$
f n, n(t)	fraction de saut prompt quantité de neutrons dans le réacteur (fonction du temps)
Е С _{1, 2} С, С' f _{MSM} A _p A _d	efficacité d'un détecteur taux de comptage d'un détecteur facteurs de proportionnalité facteur de correction utilisé dans la méthode MSM aire de la surface « prompte » dans la méthode des aires aire de la surface « retardée » dans la méthode des aires
n_c, n_r k_c	populations de neutrons dans le cœur et le réflecteur facteur de multiplication du cœur
$ au_c, au_r$ f_{rc}, f_{cr}	durées de vie promptes des neutrons dans le cœur et le réflecteur fractions de neutrons fuyant du réflecteur vers le cœur et inversement ; on note aussi $f=f_{cc}f_{rc}$ dans les modèles « à deux régions » des méthodes d'ajustement
С _і <i>Ю</i> , <i>Ю</i> і	population de precurseurs du groupe <i>i</i> racines des équations différentielles d'évolution temporelle de la population de neutrons dans un coeur

$P(\tau)$	distribution des temps entre les générations de neutrons, où $ au$ est « l'âge » auquel un
	neutron donne naissance à une autre génération de neutrons
$P'(\tau)$	distribution $P(\tau)$ normalisée à 1
P_{H}, P_{L}, P_{C}	population de neutrons à un niveau haut (H) de la source de neutrons, à un niveau bas (L), et juste après la décroissance prompte lors du passage du niveau haut au niveau bas (C) dans la méthode de source jerk
ϕ	flux de neutrons
c_H	population de précurseurs au niveau haut dans la méthode de source jerk
SI	source de neutrons intrinsèque d'un cœur due à la nature du combustible

Introduction

Depuis près de quinze ans le concept du couplage d'un accélérateur de particules à un réacteur nucléaire sous-critique muni d'une cible de spallation a refait surface dans le cadre des études de systèmes innovants pour la production d'énergie nucléaire et la transmutation des déchets nucléaires. C'est avec le développement des accélérateurs électrostatiques vers la fin des années trente (en particulier le cyclotron inventé par E.O. Lawrence) que G. Seaborg et ses collaborateurs ont l'idée d'utiliser les neutrons émis par une cible d'uranium bombardée par des protons de haute énergie pour réaliser la transmutation de noyaux lourds et créer des transuraniens. En particulier ils sont les premiers à utiliser ce principe pour produire du plutonium 239 en 1941. A cette période et jusqu'au début des années soixante le potentiel d'un tel système conduit surtout à imaginer des dispositifs destinés à produire du plutonium pour des applications militaires. Parallèlement à cela les canadiens conduits par W.B. Lewis s'intéressent à ces systèmes pour produire de l'énergie : n'avant pas de séparateur isotopique, des neutrons de spallation sont utilisés pour produire de l'uranium 233 à partir de thorium 232 et ainsi augmenter la quantité de matière fissile d'un réacteur. Mais le rapide développement des réacteurs refroidis à l'eau mena à l'abandon de cette piste. Le concept refit surface dans les années quatre-vingt avec les équipes de K. Furukawa, C. Bowman et C. Rubbia et des objectifs variés. La première s'intéressait à un ADS à sels fondus pour mettre en place une filière surrégénératrice à partir du cycle ²³²Th-²³³U. Le projet de C. Bowman consistait à y ajouter l'incinération des transuraniens, en particulier celle du plutonium, et des produits de fission à vie longue. Enfin le projet de C. Rubbia poursuivait des objectifs similaires mais avec un réacteur rapide refroidi au plomb liquide. C'est à partir de ces derniers concepts que les efforts de recherche se sont accentués au niveau international. Il est intéressant de constater qu'au cours du temps on est passés de la production de transuraniens à leur destruction, à partir du même principe assisté par accélérateur. Si aujourd'hui la communauté internationale admet que les avantages de sûreté de ces réacteurs sous-critiques ne sont pas suffisants pour justifier leur déploiement dans une perspective de production d'énergie, elle continue néanmoins de s'y intéresser pour l'incinération des actinides mineurs.

Après un rappel des principes de base des ADS ce cours refait un point sur le développement des recherches consacrées aux ADS depuis l'école Joliot-Curie de 1996 consacrée à la production d'énergie nucléaire et au traitement des déchets. On pourra se reporter aux cours de cette première école pour trouver les bases de chacun des points clés de ces systèmes ainsi qu'une autre approche des principes de base des systèmes pilotés par accélérateur [1].

1. Principe et intérêt des réacteurs hybrides ou « ADS »

1.1. Milieu multiplicateur sous-critique

Un milieu multiplicateur de neutrons est un milieu contenant des noyaux fissiles, formant l'essentiel du combustible nucléaire, où l'absorption d'un neutron par l'un de ces noyaux peut conduire à la fission de celui-ci, et donc à l'émission de nouveaux neutrons, mais aussi à la production de nouveaux isotopes par augmentation de la masse du noyau fissile (captures neutroniques). La présence d'autres noyaux (isotopes non fissiles du combustible, matériaux de structure,...) peut conduire également à la capture *stérile* (i.e. n'engendrant pas de nouveaux neutrons) de neutrons. Lorsque l'on fait le bilan des neutrons créés et absorbés dans ce milieu, ou plus exactement le rapport des deux, on caractérise son *facteur de multiplication k*, que l'on peut aussi définir comme le rapport du nombre de neutrons de la génération *i*+1 au nombre de neutrons de la génération *i*. Lorsque ce facteur k < 1, on dit que le milieu est *sous-critique*. Un neutron injecté dans ce milieu va initier la création un certain nombre de neutrons de fission, il est *multiplié* par un facteur k/(1-k), mais la réaction en chaîne finira par s'éteindre, ce qui est la caractéristique d'un milieu sous-critique.

1.2. Principe d'un système hybride

Contrairement au cas d'un réacteur critique (k=1), la réaction en chaîne dans un réacteur souscritique doit donc être entretenue par un apport continu de neutrons : une source de neutrons doit être introduite dans le milieu multiplicateur. La source de neutrons la plus communément admise pour ce type de système est une source de spallation créée par l'interaction d'un faisceau de protons accélérés avec une cible lourde comme du plomb. Ceci conduit donc à l'association « hybride » d'un accélérateur de particules et d'un réacteur nucléaire. Un schéma de principe d'un tel système est montré figure 1.





1.3. Importance des neutrons source

On a vu par ailleurs (cf. cours *Physique des réacteurs* ibid.) qu'un milieu fini était caractérisé par son facteur de multiplication effectif k_{eff} .

Dans un réacteur sous-critique associé à une source, les premiers neutrons injectés dans le réacteur sont ceux de la source : ils ont une distribution énergétique et spatiale propre à cette source et un environnement donné (on peut être proche de la zone de combustible, ce qui favorise la multiplication, ou proche d'une zone « passive » ce qui l'atténue). L'optimisation du système conduit à placer la source au centre de la zone combustible. Les neutrons source se multiplient donc en s'éloignant de la source en prenant dès la seconde génération la distribution énergétique de neutrons de fission. De génération en génération la distribution spatiale des lieux de fission évolue progressivement jusqu'à une distribution asymptotique homogène dite « stabilisée » (ou celle du mode « fondamental») indépendante de la source initiale et équivalente à celle des neutrons de fission dans un cœur critique. Ainsi un milieu sous-critique couplé à une source de neutrons sera caractérisé par le facteur de multiplication source k_s qui tient compte du début inhomogène de la multiplication et qui est différent de k_{eff} .

Ainsi le nombre de neutrons dans une chaîne de fission initiée par un neutron source est:

$$1 + k_1 + k_1 k_2 + k_1 k_2 k_3 + \dots + k_1 k_2 k_3 \dots k_i + \dots = \sum_{i=0}^{+\infty} \left(\prod_{j=0}^i k_j \right) = \sum_{n=0}^{+\infty} k_s^n = \frac{1}{1 - k_s}$$
(1)

où k_i est le facteur de multiplication de la génération *i*, avec k_0 =1 représentant le neutron qui initie la chaîne de fission, et où k_s représente le facteur de multiplication moyen d'une chaîne initiée par un neutron source. On observe également que

$$\lim_{i \to +\infty} k_i = k_{eff}$$
 (2)

(cf. figure 2).

On définit le facteur d'importance de la source φ^* comme le rapport de l'importance² moyenne des neutrons source $\overline{\Psi}_s$ à celle des neutrons de fission $\overline{\Psi}_f$ [2, 3]. Dans le cas d'un

² Dans un système critique l'*importance neutronique* vient pondérer le flux neutronique $\phi(\vec{r}, v, \dot{\Omega})$ en fonction de l'énergie, la position et l'environnement du neutron à l'origine de ce flux, c'est-à-dire qu'elle détermine « l'importance » du point de naissance du neutron. On l'appelle aussi le *flux adjoint* $\phi^+(\vec{r}_0, v_0, \vec{\Omega}_0)$ qui est défini comme égal au nombre de neutrons présents dans le réacteur critique suffisamment longtemps après l'introduction d'un neutron de vitesse $v_0 \vec{\Omega}_0$ en \vec{r}_0 . Après les transitoires le flux

réacteur sous-critique, il peut être considéré comme le rapport du nombre de descendants d'un neutron source $k_{s'}(1-k_{s})$ au nombre de descendants d'un neutron de fission $k_{eff}(1-k_{eff})$. On a ainsi

$$\varphi^* = \frac{\overline{\Psi}_s}{\overline{\Psi}_f} = \frac{k_s}{1 - k_s} \frac{1 - k_{eff}}{k_{eff}} = \frac{\rho_{eff}}{\rho_s}, (3)$$

le facteur d'importance pouvant donc s'exprimer directement par le rapport des réactivités effective et source associées aux facteurs de multiplication du même nom. Examinons la valeur de ce paramètre :

- φ* < 1 : les neutrons de la source se multiplient en moyenne moins que ceux du cœur : cela peut être le cas par exemple si la source externe est placée loin de la zone de combustible
- φ^{*} = 1 : la source externe de neutrons est identique à la source de fission : c'est un cas assez théorique mais le facteur d'importance de la source intrinsèque d'un réacteur dont le combustible est du type MOX (où des fissions spontanées et des réactions (α, n) ont lieu) s'en approche fortement essentiellement parce que la zone d'émission de cette source est la même que celle de la source de fission, c'est-à-dire le combustible ; on s'approche également de cette valeur lorsque la source externe est une source D(d, n)³He
- φ* > 1 : les neutrons de la source se multiplient en moyenne plus que ceux du cœur : c'est le cas lorsque la source a une distribution énergétique permettant d'induire des réactions libérant des neutrons comme les réactions (n, 2n) : par exemple une source T(d, n)⁴He dont les neutrons de 14 MeV dépassent le seuil de 7 MeV des réactions (n, 2n) ; la position de la source par rapport au combustible (donc sa position) doit également être optimisée pour atteindre ce cas de figure.

Le paramètre φ^* est donc très important dans l'optimisation d'un système ADS car il caractérise la rentabilité des neutrons externes « ajoutés » et donc de la qualité du couplage entre la source et le cœur. On comprend aisément que ces neutrons « ajoutés » ont un certain « coût » énergétique, et qu'il convient par conséquent d'avoir un facteur d'importance le plus élevé possible pour réduire ce coût. Dans la maquette d'ADS à puissance nulle réalisée pour l'expérience MUSE-4 [7] la source externe de neutrons était une source T(d, n)⁴He placée au centre d'une petite zone de plomb elle-même placée au centre du combustible, ce qui permettait d'avoir φ^* supérieur à 2. Nous verrons au paragraphe 2.1 que la puissance thermique d'un système hybride est proportionnelle à φ^* et donc qu'à puissance thermique donnée, l'intensité du faisceau nécessaire pour alimenter la source de spallation est inversement proportionnelle à φ^* .



Figure 2 : Exemple de convergence du facteur k_s vers k_{eff} dans le cas d'un facteur d'importance de source $\varphi^* > 1$ [8].

observé sera donc $\phi^+(\vec{r}_0, v_0, \dot{\Omega}_0)\phi(\vec{r}, v, \dot{\Omega})$. Pour une description mathématique plus poussée nous renvoyons le lecteur aux références [4, 5, 6].

1.4. Gains neutronique et énergétique

Dans un système hybride un proton de haute énergie envoyé sur une cible lourde produit par spallation N_s neutrons source qui, multipliés dans le milieu sous-critique caractérisé par un facteur de multiplication k_s , produiront $N_s k_s/(1-k_s)$ neutrons de fission ce qui représente le gain neutronique. Le fonctionnement d'un système hybride étant entretenu par un apport de neutrons issus d'un système externe, il est intéressant de connaître le rapport entre l'énergie produite et l'énergie consommée par le système couplé réacteur-accélérateur seul, appelé gain énergétique :

$$G = \frac{N_s k_s E_f}{\nu (1 - k_s) E_n}$$
 (4)

où E_f est l'énergie moyenne libérée par fission, v le nombre moyen de neutrons émis par fission et E_p l'énergie incidente des protons envoyés sur la cible.

Une application numérique de cette expression basée sur des grandeurs réalistes des différents paramètres (N_s =31 pour une cible en plomb, E_f =0,18 GeV, v=2,5, k_s =0,97, E_p =1 GeV) conduit à un gain égal à 72. On peut calculer le gain énergétique total du système en tenant compte du rendement de production d'électricité à partir de chaleur (\approx 40%) et du rendement d'un accélérateur de haute intensité (\approx 40%) ce qui conduit à un gain énergétique de 11,5 : la puissance nécessaire au fonctionnement de l'accélérateur représente alors environ 9% de la puissance produite par le système, ce qui valide la notion de « rentabilité » sur le plan énergétique.

1.5. Intérêts d'un réacteur hybride : bilan neutronique

Outre les avantages liés à la sûreté et au pilotage (cf. § 2.2), un réacteur hybride permet d'avoir une certaine quantité de neutrons dans le réacteur disponibles pour autre chose que l'entretien de la réaction en chaîne. Cette quantité N_d est égale au nombre total de neutrons produits dans le réacteur moins le nombre de neutrons nécessaires pour produire N_f fissions. Pour créer une fission il faut $(\sigma_f + \sigma_c)/\sigma_f$ neutrons $(\sigma_f$ et σ_c étant les sections efficaces de fission et de capture du combustible respectivement), que l'on note aussi $(1+\alpha)$. On a alors :

$$N_{d} = \frac{N_{s}}{1 - k_{s}} - N_{f} (1 + \alpha)$$
 (5)

ce qui peut être mis sous la forme :

$$N_d = N_f \left(\frac{\nu}{k_s} - 1 - \alpha \right)$$
(6)

en remarquant que $N_s k_s / v(1-k_s) = N_f$.

Le nombre de neutrons disponibles par fission pour une puissance donnée est donc d'autant plus grand que k_s est petit. Il est à comparer aux (ν -1- α) neutrons disponibles par fission dans un réacteur critique à même puissance. Bien sûr dans le cas du réacteur hybride les neutrons disponibles supplémentaires viennent de l'apport de la source externe car ces neutrons là ne « coûtent pas de neutrons ». Ils ont cependant un coût énergétique, comme nous l'avons vu au paragraphe 1.4, qui conduit à optimiser k_s dans une certaine limite de rentabilité du système. Le nombre de neutrons réellement disponibles doit aussi prendre en compte les pertes par fuite ou captures « stériles » dans les matériaux de structure du réacteur. On évalue ces pertes à 0,2 neutrons par fission environ. Le bilan est plus ou moins favorable en fonction du spectre neutronique et de la composition du combustible. Tant que ce bilan neutronique est positif on peut envisager une utilisation de ces neutrons disponibles : la transmutation est l'application la plus sérieusement envisagée pour ce type de systèmes. L'incinération d'actinides mineurs quant à elle rend ce bilan plus qu'avantageux puisque les actinides, de par leur fission, entrent alors dans la catégorie « combustible » et le simple équilibre du bilan peut suffire.

Rappelons aussi que dans des conditions d'isogénération du combustible (chaque noyau

fissile consommé est remplacé grâce à un noyau fertile), ce bilan deviendrait $\left(\frac{\nu}{k_s} - 2(1+\alpha)\right)$.

2. Le pilotage et le contrôle des ADS

2.1. Relation courant/puissance

Exprimons la puissance thermique dégagée par le réacteur sous-critique en fonctionnement: elle se résume comme le produit du nombre de neutrons source par seconde *S* par l'énergie thermique dégagée par les fissions induites par un neutron source, soit :

$$P_{th} = S \frac{E_f k_s}{\nu (1 - k_s)}$$
 (7)

où E_f , v et k_s sont tels que définis au paragraphe 1.4. Le terme source S peut s'exprimer comme :

$$S = \frac{I}{e} \frac{E_p}{E_{cible(p,n)spal}}$$
(8)

où *I* est le courant du faisceau de protons envoyé sur la cible de spallation, *e* la charge électrique élémentaire, E_p l'énergie cinétique des protons, et $E_{cible(p,n)spal}$ l'énergie moyenne nécessaire pour produire un neutron par spallation sur un matériau cible donné. Cette dernière grandeur est introduite suite au constat qu'au-dessus de 500 MeV le nombre de neutrons créés par réaction de spallation sur une cible lourde épaisse est à peu près proportionnel à l'énergie des protons incidents. Ainsi pour une cible épaisse de plomb $E_p/E_{Pb(p,n)spal}$ est estimé à 31 aussi bien d'après les calculs que l'expérience [9, 10]. La puissance thermique dégagée s'exprime donc finalement :

$$P_{th} = \frac{I}{e} \frac{E_p}{E_{cible(p,n)spal}} \frac{E_f k_s}{\nu(1-k_s)} .$$
(9)

En première approximation, pour la compréhension du système, on estime que la plupart des grandeurs physiques intervenant dans cette expression sont stables dans le temps, ce qui conduit à écrire que :

$$P_{th}(t) = P_0 \frac{I(t)}{\rho_s}$$
 (10)

et donne une vision claire du pilotage de la puissance du réacteur par l'intensité du faisceau fourni par l'accélérateur. Afin de mettre en évidence l'importance du couplage entre la source et le cœur vu au paragraphe 1.3. notons que cette expression peut également s'écrire

$$P_{th}(t) = P_0 \frac{I(t)}{\rho_{eff}} \varphi^*.$$
 (11)

En toute rigueur ce n'est pas exactement la réalité dans un réacteur de puissance car sa composition évolue avec la consommation du combustible, entraînant ainsi une modification des grandeurs telles que v, E_f ou k_s , tandis que l'usure de la cible de spallation peut quant à elle conduire à un changement de $E_{p}/E_{Pb(p,n)spal}$. Il est toutefois intéressant de noter que l'évolution de certaines de ces grandeurs peut être compensée par *I*.

2.2. Pilotage et sûreté d'un système sous-critique

Dans un réacteur critique la condition de fonctionnement du réacteur est le maintien de k_{eff} =1. Le pilotage du réacteur consiste donc à maintenir cette valeur, ce qui est réalisé par insertion ou retrait de réactivité par l'intermédiaire de barres de pilotage. La puissance thermique d'un tel réacteur s'exprime :

$$P_{th}(t) = P_0 \exp\left(\frac{\rho_{eff}t}{\overline{\ell}}\right) = P_0 \exp\left(\frac{\rho_{eff}t}{(1-\beta_{eff})\ell + \beta_{eff}(\ell+\overline{\tau})}\right) = P_0 \exp\left(\frac{\rho_{eff}t}{\ell + \beta_{eff}\overline{\tau}}\right)$$
(12)

où $\overline{\ell}$ est le temps de vie moyen des neutrons de fission, ℓ le temps de vie moyen des neutrons prompts, β_{eff} la fraction effective de neutrons retardés, et $\overline{\tau}$ le temps d'émission moyen des neutrons retardés. Par conséquent les variations de réactivité doivent être petites devant β_{eff} afin que la puissance soit modifiée dans de faible proportions. Dans un réacteur sous-critique des variations aussi petites de réactivité n'auraient quasiment pas d'impact sur la puissance puisque celle-ci est proportionnelle à $1/(1-k_s)$ et qu'il est généralement admis que la valeur de k_s est de l'ordre de 0.97, soit une réactivité de – 3000 pcm ou une dizaine de β_{eff} . Le réel paramètre de pilotage d'un ADS est donc l'intensité de la source pilotée par l'accélérateur.

Les avantages en terme de sûreté d'un réacteur sous-critique ne sont valides que si l'on peut vérifier à tout instant que le réacteur reste loin de la criticité. Une mesure quasi-continue de la réactivité ou du facteur de multiplication du réacteur s'impose. L'expression (10) laisse penser qu'une mesure de puissance donne accès à cette mesure de réactivité. Cependant la grandeur directement accessible par cette mesure est ρ_s (ou k_s) qui gouverne la multiplication moyenne du système avec une source. Or en quelques générations le facteur de multiplication tend vers celui d'une source de fission stabilisée k_{eff} (cf. Eq. (2)), qui caractérise le réacteur en lui-même, la source étant alors « oubliée ». C'est pourquoi il est admis que la sûreté du système est gouvernée par keff et non k_s. Par conséquent c'est k_{eff} qui devra être surveillé et tenu loin de la criticité: on pourrait se faire la remarque que si k_{eff} venait à augmenter k_s augmenterait également puisqu'il est une valeur moyenne tenant compte de l'évolution vers k_{eff} (cf. figure 2) et en conclure que la mesure de k_s suffit donc. Cependant on peut imaginer que, tandis que k_{eff} augmente, d'autres paramètres comme l'usure (ou la « consommation ») de la cible de spallation font diminuer k_s de telle façon qu'il reste finalement constant³. On comprend alors qu'il est crucial de monitorer k_{eff} (ou ρ_{eff}) pour détecter toute évolution anormale de la réactivité du cœur. Cette question est un des thèmes maieurs et incontournables des expérimentations actuelles dédiées à la faisabilité des ADS. C'est l'objet du paragraphe suivant de faire un tour d'horizon des techniques récemment remises à l'épreuve pour mesurer ce paramètre, puis de préciser la procédure de mesure envisagée plus pratiquement.

2.3. Mesure et contrôle de la réactivité

2.3.1. Méthode « de référence »

La méthode de référence couramment utilisée pour qualifier des états sous-critiques consiste à réaliser dans un premier temps une mesure par chute de barre, comme dans les réacteurs critiques, ce qui permet de qualifier un premier état faiblement sous-critique. La détermination d'autres niveaux sous-critiques s'effectue ensuite par les méthodes de multiplication de source qui consistent à comparer le taux de comptage d'un détecteur au niveau considéré à celui obtenu au niveau qualifié par la chute de barre. Cette méthode de référence a été utilisée pour qualifier les réactivités des configurations étudiées lors de l'expérience MUSE-4 (SC0, SC2, SC3, SC3-Pb) [7], mais ne pourra s'appliquer au cas réel d'un ADS puisqu'il n'est pas prévu qu'il puisse être critique à quelque moment que ce soit. Il est cependant intéressant de connaître cette procédure dans la mesure où elle sert souvent de comparaison aux autres méthodes décrites plus loin.

2.3.1.1. Méthode par chute de barre ou « rod-drop »

Cette technique est basée sur l'insertion rapide (par « chute ») d'une barre de contrôle absorbante à partir d'un niveau de réactivité connu, la plupart du temps le niveau critique ρ =0. Cette insertion d'anti-réactivité doit être faible de façon à ce que les équations de la cinétique point restent applicables. On enregistre alors l'évolution temporelle de la population de neutrons qui s'ensuit dont on déduit la réactivité. Pratiquement ceci revient à ajuster la décroissance temporelle « lente » (c'est-à-dire après le saut prompt) par la solution des équations de la cinétique point pour une petite anti-réactivité :

$$n(t) = n_0 \left(\frac{\left(-\rho_{eff}\right)}{\left(-\rho_{eff}\right) + \beta_{eff}} e^{\frac{\rho_{eff} - \beta_{eff}}{\Lambda}t} + \frac{\beta_{eff}}{\left(-\rho_{eff}\right) + \beta_{eff}} e^{\frac{\overline{\lambda}\rho_{eff}}{\left(-\rho_{eff}\right) + \beta_{eff}}t} \right).$$
(13)

où $\overline{\lambda}$ est la constante de décroissance moyenne pour tous les groupes de précurseurs. L'identification de la fraction de saut prompt *f* telle que :

$$f = \frac{\left(-\rho_{eff}\right)}{\left(-\rho_{eff}\right) + \beta_{eff}}$$
(14)

³ De la même façon on ne peut déduire ρ_{eff} de la relation (3) car le simple calcul de ϕ^* ne peut rendre compte de son évolution.

permet de déduire la réactivité exprimée en dollars :

$$\rho_{eff}(\$) = \frac{\left(-\rho_{eff}\right)}{\beta_{eff}} = \frac{f}{1-f} .(15)$$

La partie la plus délicate est de déterminer sur la courbe enregistrée le point d'intersection entre la décroissance prompte et la décroissance lente. Cependant cette méthode standard donne des résultats précis et fiables.

2.3.1.2. Méthode par Multiplication de Source Approchée (MSA)

Cette méthode s'appuie simplement sur les propriétés multiplicatrices du milieu souscritique. Un tel milieu soumis à une source externe de neutrons produisant *S* neutrons/s, a une population de neutrons par seconde égale à :

$$N = \frac{S}{1 - k_{eff}}$$
(16)

ce qui donnerait dans un détecteur d'efficacité ε un taux de comptage C donné par :

$$C = \varepsilon \frac{S}{1 - k_{eff}} .$$
(17)

Le rapport des taux de comptage dans deux états sous-critiques 1 et 2 est alors :

$$\frac{C_1}{C_2} = \frac{1 - k_2}{1 - k_1}$$
(18)

la réactivité étant liée au facteur de multiplication par :

$$\rho_{e\!f\!f} = rac{k_{e\!f\!f} - 1}{k_{e\!f\!f}} \, \, (19)$$

on a alors la relation simple permettant de déduire une réactivité inconnue d'une autre connue:

$$\frac{\rho_2}{\rho_1} = \frac{k_2 - 1}{k_2} \frac{k_1}{k_1 - 1} = \frac{k_1}{k_2} \frac{C_1}{C_2} \approx \frac{C_1}{C_2}$$
(20)

Cette expression repose sur plusieurs hypothèses :

- l'efficacité de détection est la même pour les états 1 et 2 (ce qui est vrai si le détecteur est placé assez loin de la perturbation)

- tous les neutrons, qu'ils soient issus d'une fission ou de la source externe, ont le même pouvoir de multiplication dans chaque état (cela suppose que le cœur n'a pas changé dans sa composition ou géométrie et que la différence de réactivité entre les états 1 et 2 reste faible, c'est-à-dire inférieure à $\frac{1}{2} \beta_{eff}$)

Dans beaucoup de cas, en particulier si l'on utilise une source externe de neutrons de plus haute énergie que ceux de fission et/ou si du combustible a été déplacé ou retiré entre les états 1 et 2, ces hypothèses ne sont pas vérifiées et l'on doit alors utiliser la méthode de Multiplication de Source Modifiée décrite ci-dessous.

2.3.1.3. Méthode par Multiplication de Source Modifiée (MSM)

Elle consiste à ne pas réaliser les hypothèses simplificatrices de la méthode MSA. Les taux de comptage C_1 et C_2 de deux états sous-critiques 1 et 2 sont alors liés à un facteur près :

$$\frac{\rho_2}{\rho_1} = f_{MSM} \frac{C_1}{C_2}$$
. (21)

Ce facteur tient compte de la différence d'efficacité de détection entre les états 1 et 2, mais aussi de la différence de facteur d'importance de la source dans ces deux états. Ainsi ce facteur s'exprime :

$$f_{MSM} = \frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1} \frac{\varphi_2^*}{\varphi_1^*} .$$
 (22)

Compte tenu de l'expression (3) et en considérant que l'importance de la source reste inchangée entre les états 1 et 2, f_{MSM} se réduit à :

$$f_{MSM} = \frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1} \frac{\overline{\psi}_{f1}}{\overline{\psi}_{f2}}$$
. (23)

Ce facteur n'est pas accessible expérimentalement et doit donc être calculé ce qui, en pratique, est assez complexe, et ne rend pas cette méthode toujours simple et fiable à appliquer [11].

2.3.2. Méthodes « de source pulsée » (PNS methods)

Les méthodes dites « de source pulsée » (ou Pulsed Neutron Source) font partie des mesures dynamiques, c'est-à-dire qu'elles requièrent la variation d'une source appliquée au système c'est pourquoi elles sont a priori adaptées à un ADS qui possède de facto une source. Les mesures de PNS proprement dites nécessitent l'injection d'une grande quantité de neutrons sur un temps très bref, de l'ordre de grandeur de Λ (ou ℓ), et l'enregistrement de l'évolution temporelle de la population de neutrons dans le réacteur consécutive à cette injection. Cette évolution est ensuite interprétée à l'aide de différents modèles ou méthodes, principalement la méthode des aires et les méthodes d'ajustement.

Nous verrons en fin de ce chapitre la compatibilité de ces méthodes avec le fonctionnement d'un ADS [12].

2.3.2.1. Méthode des aires (area method)

La méthode des aires (aussi appelée méthode de Sjöstrand [13]) repose sur la séparation des surfaces de la réponse temporelle prompte et de la réponse temporelle totale (ou de la contribution temporelle des neutrons retardés). La réponse temporelle d'un réacteur sous-critique rapide à une impulsion de neutrons a l'allure montrée figure 3 (sur l'échelle de temps de cette figure on ne voit pas la « décroissance » de la contribution retardée qui s'étale en réalité sur plusieurs secondes).



Figure 3 : Contribution des neutrons prompts et retardés à l'évolution temporelle de la population de neutrons d'un réacteur sous-critique rapide après l'injection d'une impulsion de neutrons source.

En se basant sur la cinétique point l'équation de l'évolution temporelle de la population de neutrons après une impulsion (considérée comme un pic de Dirac) s'écrit :

$$n(t) = n_0 \left(e^{-\frac{-\rho_{eff} + \beta_{eff}}{\Lambda}t} + \frac{\overline{\lambda}\beta_{eff}\Lambda}{(-\rho_{eff} + \beta_{eff})^2} e^{-\frac{(-\rho_{eff})\lambda}{-\rho_{eff} + \beta_{eff}}t} \right)$$
(24)

où l'on distingue une composante « rapide » due aux neutrons prompts, et une composante « lente » due aux neutrons émis de façon retardée lors de la décroissance de leurs précurseurs. L'intégration de la composante prompte sur le temps conduit à l'expression de la surface A_p :
$$A_{p} = n_{0} \frac{\Lambda}{-\rho_{eff} + \beta_{eff}} = \frac{n_{0}}{\alpha}$$
(25)

tandis que l'intégration de la composante retardée donne la surface A_d (d comme « delayed »):

$$A_{d} = n_{0} \frac{\beta_{eff} \Lambda}{(-\rho_{eff} + \beta_{eff})(-\rho_{eff})} .$$
(26)

Le rapport des deux surfaces conduit directement à l'expression de la réactivité en dollars :

$$\rho_{eff}(\$) = \frac{A_p}{A_d} = -\frac{\rho_{eff}}{\beta_{eff}}.$$
(27)

Ainsi à partir de l'enregistrement de la réponse temporelle il est possible d'avoir accès à ces deux surfaces, en ayant pris soin toutefois de retirer la contribution de la source intrinsèque inhérente au combustible (due aux fissions spontanées et aux réactions (α , n)) lorsqu'elle n'est pas négligeable (voir figure 3). C'est une analyse relativement simple et robuste. Des corrections sur la valeur de ρ_{eff} peuvent s'avérer nécessaires pour prendre en compte des effets spatiaux liés à l'importance des neutrons. Elles sont obtenues à partir de codes de simulation neutroniques (stochastiques ou déterministes) mais restent inférieures à 10% [14, 15].

2.3.2.2. Méthodes d'ajustement (fitting methods)

La réactivité d'un système peut être déduite de paramètres de l'ajustement de la réponse temporelle par une fonction plus ou moins complexe dépendant du modèle d'interprétation. Cette méthode est simple et fiable lorsque l'on a affaire à un système bien décrit par la cinétique point : la décroissance temporelle « prompte » peut alors être ajustée par une simple exponentielle dont la constante de temps α permet de déduire la réactivité :

$$n(t) = n_0 e^{-\alpha t}$$
 Où $\alpha = \frac{-\rho_{eff} + \beta_{eff}}{\Lambda}$. (28)

C'est le cas d'un système thermique ou bien d'un système rapide proche de la criticité. Il est à noter que pour extraire la réactivité β_{eff} et Λ doivent être connus par ailleurs, et sont en général calculés. Dans le cas de systèmes plus complexes où plusieurs constantes de temps entrent en jeu, du fait de la présence d'un réflecteur par exemple, l'hypothèse d'un temps de génération moyen pour décrire tous les neutrons est trop réductrice et éloignée de la réalité pour conduire à une valeur correcte de la réactivité. En effet un neutron issu du combustible, et donc du cœur, peut ensuite passer plusieurs dizaines de microsecondes dans le réflecteur puis revenir se multiplier dans le cœur, ce qui est à l'origine de temps inter-génération très longs qui viennent distordre la simple distribution exponentielle de la population de neutrons. Il a été proposé [16, 15] de décomposer le système en plusieurs régions faisant intervenir chacune une constante de temps propre, ce qui conduit à ajuster la réponse temporelle prompte par autant d'exponentielles solutions du système d'équations de la cinétique associé.

Dans le cas d'un modèle à deux régions, le cœur et le réflecteur, les équations cinétiques donnent le système suivant :

$$\begin{cases} \frac{dn_c}{dt} = \left(k_c \left(1 - \beta_{eff}\right) - 1\right) \left(\frac{n_c}{\tau_c}\right) + f_{rc} \sum_i \lambda_i c_i + S \\ \frac{dn_r}{dt} = f_{cr} \left(\frac{n_c}{\tau_c}\right) - \left(\frac{n_r}{\tau_r}\right) \\ \frac{dc_i}{dt} = k_c \beta_i \left(\frac{n_c}{\tau_c}\right) - \lambda_i c_i \end{cases}$$
(29)

où n_c et n_r représentent les populations de neutrons dans le cœur et le réflecteur respectivement, k_c le facteur de multiplication du cœur, τ_c et τ_r les durées de vie promptes des neutrons dans le cœur et le réflecteur, f_{rc} et f_{cr} les fractions de neutrons fuyant du réflecteur vers le cœur et inversement et où $k_{eff}=k_c/(1-f)$ avec $f=f_{cr}f_{rc}$. La résolution de ce système par les transformées de Laplace et la

recherche des pôles ω_i de celle correspondant à l'évolution de la population de neutrons conduit à l'équation liant les pôles entre eux (ou équation de Nordheim) qui représentent les constantes de décroissance des exponentielles solutions du système:

$$\rho_{eff} = \omega \frac{\tau_c}{k_{eff} (1-f)} + \omega \frac{f\tau_r}{k_{eff} (1-f) (\tau_r \omega + 1)} + \sum_i \frac{\beta_i \omega}{\omega + \lambda_i} .$$
(30)

Parmi ces constantes de temps deux gouvernent la cinétique prompte : on peut ainsi ajuster la réponse temporelle prompte à l'aide de deux exponentielles. Des constantes issues de cet ajustement l'une correspond à l'inverse de la durée de vie moyenne des neutrons dans le réflecteur $-1/\tau_r$, tandis que l'autre est liée au temps de génération moyen des neutrons dans le cœur :

$$\omega_{3} = \frac{\rho_{eff} - \beta_{eff} - \frac{f}{k_{c}}}{\Lambda_{c}}$$
(31)

mais n'est pas liée de façon explicite au temps de génération moyen des neutrons dans le système global (directement accessible par le calcul). Des calculs supplémentaires rédhibitoires sont nécessaires pour avoir accès aux paramètres du cœur permettant d'extraire la réactivité de la constante issue de l'ajustement.

Si l'ajustement de la réponse temporelle est mieux approché par deux exponentielles que par une seule, il n'est néanmoins pas parfait. Un modèle d'interprétation reposant sur trois régions (le cœur, le réflecteur et l'écran) pour décrire le système et trois groupes d'énergie (rapide, épithermique, et thermique) a été proposé [15]. Il conduit à un système d'équations cinétiques dont la solution correspondant à la population de neutrons est la somme de trois exponentielles. Parmi les trois constantes de décroissance, la plus élevée est liée à la réactivité mais cependant avec les mêmes restrictions que dans le cas à deux régions, et donc le calcul d'un facteur de correction entre les paramètres « de cœur » et les paramètres « du système » est nécessaire. De plus, cette méthode requiert l'ajustement simultané des réponses de plusieurs détecteurs situés dans les différentes régions du système afin de déterminer les nombreux paramètres entrant en jeu dans cette description ce qui la rend très lourde et contraignante.

Plutôt que de compliquer le modèle par une approche semi-empirique faisant intervenir des approximations et des grandeurs peu accessibles, une autre méthode consiste à utiliser le calcul pour affiner la description de la vie des neutrons dans un premier temps [17]. Au lieu de décrire tous les neutrons par un temps de génération moyen Λ qui conduit à une distribution exponentielle des intervalles de temps entre deux générations, et donc de faire l'hypothèse que tous les neutrons ont la même vie, on simule la distribution des temps entre les générations que l'on appellera $P(\tau)$ (τ étant le temps écoulé depuis la création du neutron qui donnera naissance à la génération suivante). La forme de cette distribution tient compte de « toutes les vies possibles » des neutrons en donnant une probabilité à chacune. On a alors

$$\int_0^\infty P(\tau) d\tau = k_p \quad (32)$$

où k_p est le facteur de multiplication prompt du réacteur. La forme de cette distribution calculée pour le réacteur maquette MASURCA (réacteur rapide à combustible MOX avec réflecteur) est montrée figure 4. Si l'on normalise cette distribution à l'unité que l'on appellera $P'(\tau)$, la population de neutrons d'un réacteur de facteur de multiplication prompt k_p s'écrit simplement comme la somme des contributions de chaque génération de neutron :

$$n(t,k_p) = k_p P' + k_p^2 P' \otimes P' + k_p^3 P' \otimes P' \otimes P' + \dots = \sum_{i=1}^{\infty} k_p^i P' \bigotimes_{(i-1) \text{ fois}} P'.$$
(33)

A partir de cette description la détermination de k_p se fait en comparant la dérivée logarithmique de la réponse temporelle expérimentale à celles données par l'expression (33) calculée pour différentes valeurs de k_p :

$$\alpha(t,k_p) = \frac{1}{n(t,k_p)} \frac{dn(t,k_p)}{dt}$$
(34)

Celle s'ajustant au mieux aux données expérimentales fournit alors la valeur de k_p . La connaissance de la valeur de β_{eff} est ensuite nécessaire pour obtenir k_{eff} ou bien la réactivité puisque :

$$k_{eff} = \frac{k_p}{1 - \beta_{eff}}$$
 et $\rho_{eff} = \frac{k_{eff} - 1}{k_{eff}}$ (35)

Cette méthode, baptisée *ipso facto* « méthode k_p », repose sur un calcul précis de $P'(\tau)$ qui luimême repose sur la description géométrique et la composition du réacteur. Cependant il a été montré [17, 18] que les résultats donnés par cette méthode n'étaient pas très sensibles à la précision de la description ni aux bases de données utilisées pour le calcul ($P'(\tau)$ est obtenu par un calcul Monte Carlo). Ainsi le réacteur n'a pas besoin d'être décrit dans la configuration exacte correspondant à sa réactivité (puisqu'on la recherche) : une configuration voisine ou initiale suffit.



Figure 4 : Distribution P'(τ) calculée pour le réacteur MASURCA [18].

2.3.3. Méthodes de « retrait de source » (source jerk or prompt jump techniques)

Une autre façon de faire varier la source de neutrons est, à partir d'un état initial stationnaire, d'éteindre la source (lorsque cela est possible) ou bien de la « retirer » par une mécanique appropriée lorsqu'il s'agit d'une source amovible comme par exemple une source de ²⁵²Cf. Suite à la disparition de la source on observe sur une petite échelle de temps une décroissance prompte de la population de neutrons assez semblable à celle obtenue dans les mesures de PNS et, sur une plus grande échelle de temps, la décroissance des précurseurs qui donnent naissance aux neutrons retardés (voir figure 5).



Figure 5 : Illustration des grandeurs intervenant dans la méthode de retrait ou d'arrêt de source.

Juste avant le retrait ou l'arrêt de la source les populations de neutrons P_H et de précurseurs c_H sont respectivement :

$$P_{H} = \frac{\Lambda S}{(-\rho_{eff})}$$
 et $c_{H} = \frac{\beta_{eff}}{\Lambda\lambda}P_{H}$ (36)

tandis que juste après la disparition de la source et la fin de la décroissance prompte, sur une échelle où elle peut être vue comme un « saut prompt », en considérant que les précurseurs n'ont pas encore décru, la population de neutrons est :

$$P_{C} = -\frac{\Lambda\lambda}{\rho_{eff} - \beta_{eff}} c_{H} = -\frac{\beta_{eff}}{\rho_{eff} - \beta_{eff}} P_{H}.$$
 (37)

De ces deux équations on tire :

$$-\rho_{eff}(\$) = \frac{P_H - P_C}{P_C}$$
 (38)

par conséquent à partir de l'enregistrement d'une réponse telle qu'illustrée figure 5 la détermination de P_H et P_C suffit à calculer la réactivité en dollars. Pratiquement la détermination de P_C est toujours délicate car sa valeur est située à l'intersection de la décroissance prompte avec la décroissance lente : on procède généralement à l'ajustement de la décroissance lente, somme des exponentielles décroissantes des *i* groupes de précurseurs, en se plaçant sur une échelle de temps adaptée. Il est à noter que dans le cas où le réacteur a sa propre source intrinsèque de neutrons d'intensité S_I non négligeable, un niveau continu s'ajoute à toute la population et par

conséquent l'expression (38) devient $-\rho_{eff}(\$) = \frac{P_H - P_C}{P_C - S_I}$ ce qui nécessite la mesure de S_I .

Une variante de cette méthode appelée «technique de modulation de source» (Source Modulation technique) adaptée à l'utilisation d'une source pulsée a récemment été mise en œuvre avec succès [19]. Elle consiste à faire varier la fréquence de la source pulsée d'un régime rapide à un régime lent, ce qui a été démontré équivalent à faire simplement varier l'intensité d'une source continue entre un niveau haut S_H et un niveau bas S_L . Ainsi, comme le montre la figure 6, lorsque les précurseurs nés pendant la période de haute intensité ont décru, il subsiste une population de précurseurs P_L entretenue par la source à basse intensité.



Figure 6 : Illustration des grandeurs intervenant dans la méthode de variation de source.

La réactivité s'écrit alors :

$$-\rho_{eff}(\$) = \frac{P_H - P_C}{P_C - P_L}.$$
 (39)

Pour atteindre la valeur P_L il faut quelques centaines de secondes. Cependant il est possible théoriquement de réduire cette durée pour obtenir P_L si le facteur de variation de la source est connu puisqu'a priori $P_H/P_L = S_H/S_L$.

2.3.4. Méthodes « de fluctuation de bruit » (noise techniques)

Les méthodes de bruit reposent sur les propriétés statistiques des chaînes de fission. Elles consistent en l'étude des fluctuations de la population de neutrons dans le réacteur : celle-ci peut être réalisée avec ou sans source externe, mais un des défauts de ces méthodes étant essentiellement le manque de statistique dans des conditions sous-critiques, l'utilisation d'une source est préférable. Adaptées initialement à des sources continues [20, 21], elles ont été récemment adaptées à des sources dépendant du temps [22-24]. Plusieurs méthodes d'analyse existent :

- la méthode Rossi-alpha
- la méthode Feynman-alpha
- la méthode « CPSD » (Cross Power Spectral Density).

Toutes ont en commun d'essayer d'extraire la constante de décroissance du mode fondamental du réacteur pour en déduire la réactivité. Nous ne rentrerons pas dans le détail de ces méthodes mais donnons quelques grands traits de leur principe et renvoyons le lecteur aux références.

2.3.4.1. La méthode Rossi-alpha

Le principe de la technique Rossi- α est basée sur la détection des neutrons qui sont corrélés dans le temps (qu'ils soient issus d'une même chaîne ou de chaînes parentes) et l'étude de leur distribution appelée distribution Rossi- α . Pratiquement cette dernière est construite à partir des intervalles de temps entre la détection d'un neutron et celle de tous ceux qui lui sont ultérieurs (dans un intervalle de temps de l'ordre de 1 ms), en répétant l'opération pour chaque neutron détecté. Par construction cette distribution contient forcément également des neutrons qui ne sont pas corrélés. A partir d'une description basée sur la cinétique point la distribution Rossi- α peut se mettre sous la forme :

$$p_{Rossi}(t)dt = Adt + R.\exp^{-\alpha t} \alpha dt$$
 (40)

où α est tel que défini par la cinétique point (cf. Eq.(28)) et où *A* et *R* représentent les amplitudes des contributions des neutrons non corrélés et corrélés respectivement. Comme dans la méthode d'ajustement par une exponentielle appliquée aux mesures réalisées en PNS, l'ajustement de la distribution Rossi- α expérimentale par l'expression (40) permet d'obtenir α dont on déduit la réactivité. On a vu cependant que pour des réacteurs très sous-critiques et mal représentés par la cinétique point la réactivité extraite de α n'était pas exacte. La méthode Rossi- α a donc les mêmes restrictions d'application.

2.3.4.2. La méthode Feynman-alpha

La méthode Feynman- α est la version intégrale de la méthode Rossi- α . On recherche ici les déviations à la loi de Poisson de la variance du taux de comptage qui sont produites par les fluctuations de la population de neutrons issue des chaînes de fission. Pour obtenir la distribution Feynman- α , l'intégration du taux de comptage dans des intervalles de temps pris de plus en plus grands entre 1 μ s et 1 ms environ est d'abord réalisée. Puis la variance et la valeur moyenne de la distribution des coups dans chaque intervalle sont calculées. L'analyse s'appuie sur le fait que le rapport de ces grandeurs s'écarte de celui donné par une loi de Poisson (due à des événement entièrement aléatoires) à cause des neutrons induits par les chaînes de fissions. En formalisant ces écarts en reprenant l'expression (40) de la distribution Rossi- α , on peut identifier la constante de décroissance α et en déduire la réactivité. Les limites de la cinétique point à reproduire le comportement de réacteurs très sous-critiques s'appliquent là encore à cette méthode.

2.3.4.3. La méthode CPSD

La mesure de la « densité spectrale de puissance » (PSD) vient de la transformée de Fourier de la corrélation en temps entre deux signaux. Lorsque l'on utilise un seul et même détecteur cette transformée conduit à une « auto-densité spectrale de puissance » (APSD). Lorsque deux détecteurs distincts sont utilisés on parle de « densité spectrale de puissance croisée» (CPSD). A partir de la fréquence de coupure de chacune de ces densités la valeur de α peut être extraite. Ces transformées reposent aussi sur les hypothèses de la cinétique point.

2.3.5. Procédure de contrôle de la réactivité d'un ADS

Toutes les méthodes qui ont été présentées dans la section 2.3.4. ont été mises à l'épreuve lors des campagnes de mesure de l'expérience MUSE-4 (MUltiplication d'une Source Externe) qui s'est déroulée de 2000 à 2004 [7]. Elle consistait en le couplage d'un réacteur rapide (MOX/Na) de puissance quasi nulle (MASURCA – MAquette SURgénératrice à CAdarache) et d'une source pulsée de neutrons (GENEPI – GEnérateur de NEutrons Pulsé Intense). Le réacteur MASURCA, critique dans sa configuration de référence, a pu être reconfiguré en réacteur sous-critique par retrait de combustible à la périphérie du cœur afin d'étudier trois niveaux de sous-criticité correspondant à peu près aux réactivités -500 pcm (SC0), -3000 pcm (SC2) et -5000 pcm (SC3). L'objectif principal de cette campagne était de déterminer les méthodes les mieux à même de fournir une valeur fiable de la réactivité du système dans un premier temps, et dans un second de

proposer une procédure pour contrôler ce paramètre « en ligne » c'est-à-dire pourvoir le connaître de manière directe par un indicateur quasi continu au cours du fonctionnement de l'ADS.

La problématique est la suivante : dans une version «de puissance» un ADS est piloté par un faisceau continu interagissant avec une cible de spallation. Au cours de sa phase de fonctionnement on souhaite contrôler en permanence la puissance du réacteur ainsi que sa réactivité. De plus, on a besoin de pouvoir contrôler la réactivité également pendant la phase de chargement du combustible (c'est-à-dire sans la source de spallation) et de la caractériser en fin de chargement pour connaître l'état initial du réacteur. Enfin, dans un réacteur de puissance il n'est pas prévu de chargement initial « critique » : les méthode retenues devront donc s'affranchir de calibration dans cet état et donner des valeurs absolues. Si certaines grandeurs peuvent être mesurées de façon statique (c'est-à-dire en mode stationnaire du réacteur), comme la puissance thermique dégagée par le réacteur ou l'intensité du faisceau, d'autres, nous l'avons vu, requièrent des mesures dynamiques et donc la variation d'une source. Il va sans dire que le réacteur ne doit pas être perturbé par ces mesures.

Pour ce qui est du monitorage de la réactivité en phase de fonctionnement, il est proposé dans un premier temps de tirer profit de la relation (12) sous la forme

$$-\rho_{eff}(t) = C \frac{I(t)}{P_{th}(t)} = C' \frac{I(t)}{\phi(t)}$$
(41)

qui peut fournir un bon indicateur de l'évolution relative de la réactivité par la simple mesure des grandeurs statiques I, le courant de faisceau, et la puissance thermique aisément accessible par une mesure de flux ϕ . Cependant, les grandeurs contenues dans la constante C' ne sauraient être considérées comme invariables dans le temps, tout au moins à moyen et long termes. En effet l'efficacité de production de neutrons de la cible de spallation est susceptible de décroître au fur et à mesure que la cible « s'use », le faisceau peut se disperser en aval de la dernière mesure de courant, l'efficacité des détecteurs de flux peut varier, etc. L'évolution de tous ces facteurs reste à investiguer. Pour que la relation (41) reste fiable il convient donc de s'assurer régulièrement que C' reste constant ou bien d'en mesurer l'évolution le cas échéant. C'est pourquoi il est recommandé dans un second temps d'effectuer à intervalles réguliers des mesures de calibration de recoupement par une technique permettant des mesures absolues fiables de la réactivité. Cette technique est à choisir parmi les plus prometteuses des mesures dynamiques décrites plus haut. Comme elles requièrent toutes une variation de la source il est proposé d'effectuer périodiquement des interruptions du faisceau continu (appelées « beam trips »), suffisamment longues pour permettre d'être exploitées par les modèles mais suffisamment courtes pour passer inapercues au niveau thermique sur les matériaux du réacteur ou de l'accélérateur. La durée de ces interruptions reste à définir suivant la dureté du spectre neutronique dans une gamme de guelques centaines de microsecondes à quelques millisecondes (l'influence de la durée de cette interruption sur la qualité des résultats est à investiguer également). L'interruption proprement dite (c'est-à-dire le transitoire) doit être brève devant le temps de génération moyen du réacteur de façon à ce que l'enregistrement de l'évolution temporelle de la population de neutrons puisse être exploité dans sa composante prompte aussi bien que dans sa composante retardée. Ainsi deux familles de méthodes ont été retenues : celles qui exploitent la partie prompte (méthode k_p cf. section 2.3.2.2.) et celles exploitant le «saut prompt» (cf. section 2.3.3.). Elles sont pour l'instant les seules à pouvoir être adaptées d'une source pulsée (où la source est proche d'un pic de Dirac) à l'interruption d'une source continue. Les méthodes d'ajustement par des exponentielles nécessitent trop de paramètres qui affaiblissent la qualité des résultats. La méthode des aires quant à elle, assez fiable et robuste pour les fortes sous-criticités, serait réservée au monitorage de la réactivité pendant les opérations de chargement du cœur : elle requiert impérativement une source pulsée et il est envisagé pour ce faire de disposer d'une telle source pour ces opérations. Les méthodes de bruit ont la faiblesse de s'appuyer sur la cinétique point qui ne reproduit pas bien le comportement des réacteurs très sous-critiques et rapides et sont mal adaptées aux combustibles exotiques contenant des actinides mineurs (forts taux de réactions (α , n) et fissions spontanées induisant une grande part de bruit non corrélé).

L'ensemble de la procédure reste à valider expérimentalement dans des conditions d'interruption de faisceau continu, sur des installations de puissance nulle pour commencer, ce qui motive les programmes « YALINA » (Sosny, Bélarus) et « GUINEVERE » (Mol, Belgique) en cours de développement, puis sur un démonstrateur d'ADS. Comme nous l'avons dit plus haut la

maîtrise de ce point est cruciale pour la mise en œuvre d'un tel système et concentre actuellement une grande partie des efforts de recherche en physique des réacteurs expérimentale des équipes impliquées dans ce projet en Europe.

3. Vers un démonstrateur...

3.1. Synthèse des avancées récentes

Un récent travail de synthèse très complet portant sur les recherches consacrées au développement des ADS a été réalisé par le CEA, le CNRS et FRAMATOME [25]. Il présente essentiellement les travaux réalisés en France mais pour la plupart au sein de collaborations et de programmes européens. En prenant largement appui sur ce document nous résumons ici (sans prétendre être exhaustif) les avancées majeures de ces dix dernières années de recherche sur les différents points technologiques de l'ADS et présentons brièvement les projets de démonstrateur en l'état (autant que faire se peut).

3.1.1. L'accélérateur

En France et en Europe les recherches dans le domaine des accélérateurs pour l'ADS se sont concrétisées par le groupe de travail « accelerator » (coordonné par le CNRS) du projet PDS-XADS (Preliminary Design Studies for an eXperimental ADS) dans le cadre du 5^{ème} Programme Cadre de Recherche et Développement (PCRD) d'EURATOM. A l'issue de ce programme les spécifications propres à l'accélérateur d'un démonstrateur d'ADS de 600 MeV ont été définies, et celles représentatives d'un ADS industriel (1 GeV) affinées. Le cahier des charges de l'accélérateur pour un démonstrateur est le suivant :

- énergie du faisceau de protons : 600 MeV
- courant moyen du faisceau sur la cible : 6 mA (10 mA pour la démonstration)
- stabilité de puissance du faisceau : ±2%
- stabilité de la taille du faisceau sur la cible : ±10%
- nombre d'arrêts intempestifs du faisceau : moins de 5 par an de durée supérieure à 1 seconde.

D'autre part le concept retenu doit pouvoir être étendu à l'accélérateur de 1 GeV d'une installation industrielle (étape suivant logiquement celle de la construction d'un démonstrateur). Très vite le choix se porte sur une machine accélérant un faisceau continu plutôt que pulsé car plus fiable à forte puissance, plus simple et plus flexible (il est à noter que de telles machines « radiofréquence » (RF) fournissent toujours un faisceau ayant une microstructure, de l'ordre de la nanoseconde pour un accélérateur linéaire et d'une dizaine de nanosecondes pour un cyclotron). Ceci n'empêche cependant pas si besoin de pulser l'intensité du faisceau tandis que la RF reste appliquée continûment aux cavités accélératrices, ce qui permet de procéder aux « interruptions » nécessaires au contrôle de la réactivité comme nous l'avons vu dans la section 2.3.5. (pour peu que celles-ci soient inférieures aux temps d'inertie thermique de la cible et du réacteur). Parmi les deux grandes familles d'accélérateurs linéaires (linacs), les cyclotrons, premièrement évoqués aux débuts du renouveau du concept d'ADS, ont finalement été délaissés au profit des linacs pour les raisons suivantes :

- l'intensité d'un linac peut aisément atteindre 100 mA, tandis qu'au-delà de 5 mA cela est plus problématique pour un cyclotron
- un cyclotron est construit pour une énergie de sortie figée tandis qu'un linac peut facilement être modifié pour atteindre des énergies plus élevées que celle prévue initialement par l'ajout de modules
- un linac satisfait mieux le critère de fiabilité.

Sur ce dernier point, la stratégie de fiabilité adoptée repose sur trois concepts : celui du surdimensionnement, de redondance et de tolérance à une panne. Ce critère est plus facilement rempli par un accélérateur modulaire composée de plusieurs sections comme un linac. Ce dernier, moins compact qu'un cyclotron, permet de plus de maintenir le niveau d'activation des structures assez bas ce qui facilite la radioprotection et les opérations de maintenance. La conclusion de ces études rejoint celle de l'AEN/OCDE qui recommande également les linacs pour un démonstrateur,

ou une installation de puissance plus élevée, pour les mêmes raisons que celles citées. Les cyclotrons peuvent cependant selon la même agence s'avérer adaptés aux expériences préliminaires de basse puissance, le critère de fiabilité étant alors moins crucial.

Le design retenu pour l'accélérateur est schématisé figure 7. Il comprend un injecteur de protons classique, composé d'une source ECR (Electron Cyclotron Resonance) et d'un accélérateur linéaire RFQ (Quadrupôle RadioFréquence), puis pour la partie intermédiaire (jusqu'à 5 ou 50 MeV) un DTL (Drift Tube Linac) supraconducteur ou « chaud », suivi de plusieurs modules permettant d'atteindre l'énergie finale : des cavités supraconductrices de type « Spoke » audessous de 100 MeV et au-delà des cavités supraconductrices « elliptiques ». La fiabilité de la partie « injecteur » serait assurée par le doublement de celle-ci en guise de « rechange ». Celle des autres composants seraient assurée par leur surdimensionnement qui permet, lorsqu'une cavité tombe en panne, de compenser son absence par les autres sans perte de faisceau. En adoptant un schéma de maintenance alternant 3 mois de fonctionnement et un mois de maintenance, il est possible de procéder à la réparation des modules défectueux régulièrement. Ce design a l'avantage d'être complètement adaptable à la puissance recherchée : ainsi 19 cryomodules sont nécessaires pour un accélérateur de 600 MeV, 9 sont suffisants pour une installation de 350 MeV (telle que MYRRHA, cf. la section 3.3), et 31 permettent d'atteindre le 1 GeV requis dans un système industriel.



Figure 7 : Schéma de référence de l'accélérateur linéaire envisagé pour un ADS [26].

La partie injecteur bénéficie actuellement du programme de recherche IPHI (Injecteur de Protons de Haute Intensité), collaboration CEA-CNRS-CERN, qui a consisté en la construction d'une source ECR haute intensité (programme SILHI « Source d'Ions Légers Haute Intensité) et d'un RFQ d'énergie de sortie 3 MeV. La source a d'ores et déjà montré de bonnes performances ainsi qu'une bonne fiabilité (taux de disponibilité de 99.8% pour une intensité de 90 mA). Quant au RFQ il est en cours de construction à l'automne 2006.

Les cavités supraconductrices de la section d'accélération intermédiaire font elles l'objet d'importants programmes de R&D génériques afin d'en optimiser la fiabilité. Des prototypes de cavités Spoke sont en cours de test. La R&D sur les cavités elliptiques de la partie haute énergie est déjà avancée en Europe car leur application ne se limite pas aux ADS. Néanmoins un prototype comprenant tous les modules auxiliaires (coupleur de puissance, système cryogénique, systèmes RF...) nécessaires à son fonctionnement en situation réelle doit être construit et éprouvé en particulier au niveau de la fiabilité requise pour un ADS.

Enfin des études particulières sont dédiées à l'élaboration d'un système RF permettant de gérer le problème des arrêts de faisceau, et capable, en cas de défaillance d'un module, de réaccorder en moins d'une seconde l'accélérateur entier pour retrouver un faisceau nominal et de répondre ainsi au critère de « tolérance à une panne ».

Ces travaux se poursuivent dans le cadre du 6^{ème} PCRD dans le domaine 1 « design » du projet intégré EUROTRANS dédié à la transmutation des déchets nucléaires de haute activité en ADS. Les objectifs de ce projet sont l'étude de la faisabilité technique et la conception d'un prototype d'ADS industriel dédié à la transmutation.

3.1.2. La cible de spallation

Le choix s'est porté sur une cible liquide ce qui facilite le refroidissement de celle-ci, et le plomb initialement envisagé a été échangé contre l'eutectique plomb-bismuth (LBE) qui présente l'avantage d'avoir une température de fusion plus basse que celle du plomb seul (125°C contre 325°C). Dès les premiers concepts récents d'ADS des travaux de R&D se sont intéressés à la fenêtre séparant le liquide de la cible du vide de l'accélérateur, souvent citée comme le point faible du concept. L'acier martensitique T91 a été choisi pour remplir cette fonction car il possède d'excellentes propriétés thermomécaniques (son faible coefficient de dilatation minimise les contraintes induites par le dépôt d'énergie des protons), une bonne résistance à la corrosion en présence de Pb-Bi, et une bonne tenue à l'irradiation. Compte tenu de ces choix, au cours des dix dernières années les efforts de recherche ont porté d'une part sur les matériaux eux-mêmes et leur physico-chimie, en particulier pour prévoir les interactions entre la cible liquide et la fenêtre, et d'autre part sur le design et la technologie de la cible proprement dite. Depuis des concepts sans cible ont également vu le jour (cf. section 3.3). La plupart des résultats disponibles portant sur le comportement des matériaux en présence de l'alliage Pb-Bi hors irradiation ont été obtenus au cours du programme TECLA (TEChnologies, materials, and thermal-hydraulics for Lead Alloys), ceux concernant le comportement des matériaux sous irradiation proviennent du programme SPIRE (SPallation and IRradiation Effects), et ceux relatifs au design d'une cible avec fenêtre du projet MEGAPIE (MEGAwatt Pllot Experiment). Tous ces programmes ont été réalisés dans le cadre du 5^{ème} PCRD d'EURATOM et se poursuivent pour certains dans le domaine 4 « DEMETRA » (DEvelopment and assessment of structural materials and heavy liquid MEtal technologies for TRAnsmutation systems) du 6^{ème} PCRD IP-EUROTRANS.

3.1.2.1. Les matériaux

La physico-chimie du Pb-Bi doit être mesurable et contrôlable. Des études thermodynamiques ont été réalisées pour identifier les phases en présence à l'équilibre pour l'alliage Pb-Bi en fonction de la température mais également en présence de la principale impureté métallique provenant de la corrosion, le fer, et du principal produit de spallation, le mercure. En plus de ces éléments, l'espèce qui conditionne majoritairement la pureté de l'alliage et le comportement des matériaux en contact avec est l'oxygène dissous dans l'alliage. Il a été montré qu'à des teneurs en oxygène faibles l'acier T91 peut se dissoudre dans le milieu à une vitesse qui dépend d'un certain nombre de paramètres, tandis qu'à des teneurs plus élevées une couche d'oxyde peut se former à la surface de l'acier et le protéger dans certaines conditions de la dissolution. A des teneurs encore plus élevées l'oxyde de plomb PbO peut précipiter dans l'alliage et engendrer des obturations dans la tuyauterie. Le contrôle de la chimie du milieu s'impose donc et à cet effet des sondes de mesure d'oxygène fiables fonctionnant entre 200 et 750°C ont été développées.

L'étude de la corrosion de l'acier T91 dans l'alliage Pb-Bi a été réalisée par la mesure à différentes températures de la vitesse de corrosion pour de faibles teneurs en oxygène, en mode statique et en mode dynamique. Des modèles prédictifs et des bases de données nécessaires à ces modèles ont pu être établis. Les cinétiques d'oxydation pour de plus fortes teneurs en oxygène ont été déterminées. Ces études ont permis d'établir les conditions de protection optimales de l'acier T91.

Les propriétés mécaniques de l'acier T91 en contact avec l'alliage Pb-Bi avec et sans contraintes mécaniques ont été investiguées. Les conditions de fragilisation de l'acier en présence de Pb-Bi ont pu être cernées.

D'autres études ont porté sur les matériaux en conditions d'irradiation, en particulier sur les effets d'un spectre de spallation sur l'acier T91 de la fenêtre. En effet, en plus du dommage neutronique, les produits de spallation tels que l'hélium peuvent avoir un rôle prépondérant dans la fragilisation du matériau. Il a été mis en évidence une fragilisation accrue en présence d'hélium au dessous de 300°C. Des durcissements du matériaux ont également été observés sur des échantillons irradiés dans la même gamme de températures tandis qu'au-dessus le degré de fragilisation diminue. Il a été conclu de ces travaux que les aciers martensitiques sont de bons

candidats pour la fenêtre et les structures irradiées s'ils sont utilisés entre 350 et 550°C, des températures plus basses favorisant la fragilisation par l'irradiation et les produits de spallation.

3.1.2.2. Le design d'une cible avec fenêtre

En matière de recherche sur la faisabilité d'une cible de spallation avec fenêtre pour un ADS le projet MEGAPIE est sans doute l'expérience la plus avancée et constitue déjà une référence dans ce domaine pour un démonstrateur. Dans le but de valider le couplage entre un accélérateur et une cible de spallation de métal liquide, une cible de Pb-Bi liquide a été conçue et réalisée pour être couplée à un faisceau de protons de 1 MW (1,7 mA à 575 MeV) au SINQ de l'Institut Paul Scherrer (PSI) en Suisse.

Le module complet de la cible comprend plusieurs systèmes représentés figure 8: le faisceau de protons arrivant par le bas doit d'abord traverser une double enceinte de confinement en AlMg₃ refroidie par eau lourde. Le faisceau traverse ensuite la fenêtre en acier T91 (voir figure 9) pour interagir avec le Pb-Bi liquide contenu derrière la fenêtre où se produisent les réactions de spallation et où se fait donc l'essentiel du dépôt de puissance du faisceau. Une pompe électromagnétique fait remonter le métal liquide par la zone centrale de la cible pour lui faire traverser un échangeur de chaleur situé au-dessus. Le métal refroidi redescend par la zone périphérique externe de la cible. Une deuxième pompe électromagnétique réinjecte directement une partie du métal refroidi au plus près de la fenêtre par un tube de contournement pour améliorer son refroidissement (pompe et tube « by-pass »). Des systèmes auxiliaires à l'extérieur de la cible assurent l'alimentation en courant et en fluides, le remplissage en Pb-Bi, l'évacuation de la chaleur, la gestion des gaz et le contrôle commande de l'ensemble.

La première phase de conception du système a été riche d'enseignements car elle a dû tenir compte des contraintes du SINQ (faisceau arrivant par le bas, géométrie de la place disponible) pour loger l'ensemble des constituants de la cible, et s'adapter aux équipements disponibles pour la manutention et le stockage. La seconde phase, qui a vu la construction de la cible et qui comprend également son irradiation au PSI est en cours d'achèvement : la cible est en effet en cours d'irradiation à l'automne 2006 et produit donc des neutrons. La dernière phase d'analyse des matériaux et du retour d'expérience à l'issue de cette irradiation est prévue pour le premier semestre 2007.



Figure 8 : La cible du projet MEGAPIE avec détail de la zone cible-fenêtre [27].

Un travail également très important a été réalisé pour établir le dossier de sûreté de MEGAPIE afin d'obtenir l'autorisation de fonctionnement des autorités de sûreté, analysant les

accidents sévères comme la perte de confinement due à la rupture de la fenêtre et/ou la rupture de la double paroi de confinement. Ce travail s'appuie entre autres sur des simulations neutroniques et sur le retour d'expérience du programme LISOR (Llquid metal-SOlid Reactions under irradiation), sous-tendu par le projet MEGAPIE, et destiné à étudier les propriétés des aciers en conditions de contraintes mécaniques, dommages aux radiations et corrosion due à la circulation de Pb-Bi liquide, grâce à l'irradiation par des protons de 72 MeV (PSI) d'une boucle de Pb-Bi liquide.



Figure 9 : Fenêtre en T91 de la cible du projet MEGAPIE [27].

3.1.2.3. Le design d'une cible sans fenêtre

Des designs de cibles sans fenêtre ont été étudiés, en particulier pour le projet de démonstrateur d'ADS. Pour ce dernier deux concept ont été examinés : l'un à flot de Pb-Bi liquide horizontal (figure 10) l'autre à flot vertical (cf. cible de MYRRHA section 3.3.3.). Le concept à flot horizontal étudié a cependant révélé plus d'inconvénients que son concurrent comme la difficulté de faire fonctionner des pompes avec des arbres longs (les pompes sont situées au-dessus de la cible) et l'absence d'unité de purification du liquide par manque de place.



Figure 10 : Projet de design d'une cible sans fenêtre avec flot de Pb-Bi horizontal [29].La zone cible est au sommet en jaune, le fluide circule de gauche à droite, et de la périphérie vers le centre, les échangeurs de chaleur sont situés à l'intérieur du module en bas (violet).

3.1.3. Le combustible

Dans l'optique de la transmutation, ou plus exactement de l'incinération des actinides mineurs dans un ADS, il est nécessaire de mettre au point le ou les combustibles qui les contiendra. Plusieurs aspects sont à prendre en compte dont sa facilité de fabrication, son aptitude au retraitement, ses performances de transmutation ainsi que son comportement en phase accidentelle. Les études sur les combustibles ont débuté par des études génériques destinées à mieux connaître les propriétés physico-chimiques des composés d'actinides, leur interaction chimique avec leur environnement, ainsi que leur comportement sous irradiation. Un véritable programme de développement ne sera possible qu'une fois les paramètres de fonctionnement de

l'ADS, tenant compte des marges associées aux transitoires de puissance, établis (ces paramètres pouvant varier d'un projet à l'autre).

Les traits caractéristiques majeurs des combustibles envisagés pour les ADS sont de ne pas contenir d'uranium fertile (afin de préserver les performances de transmutation), de contenir une concentration de 45 à 70% en actinides (essentiellement Am et Cm, avec une concentration maximale de 3g/cm³) ainsi qu'entre 55 à 30% de Pu de vecteur isotopique essentiellement composé d'isotopes pairs. De tels combustibles ont l'inconvénient d'avoir une forte émission γ et neutronique, ce qui peut être problématique lors de sa fabrication, d'avoir des propriétés thermiques et thermodynamiques moins bonnes que les combustibles de type U-Pu, de contenir des espèces américiées très volatiles, et d'émettre beaucoup d'hélium sous irradiation. Tous les composés de transuraniens susceptibles d'entrer dans la composition de ces combustibles ont déjà été identifiés. C'est un compromis entre les contraintes thermiques, mécaniques, chimiques, neutroniques et technologiques qui doit être trouvé. Les combustibles envisagés sont de trois types : les combustibles métalliques, les nitrures carbures et sulfures, et les oxydes. Ces combustibles ont des propriétés différentes en ce qui concerne le relâchement des gaz de fission et d'hélium, l'interaction chimique avec la gaine du combustible et le gonflement sous irradiation dû à l'endommagement par les produits de fission. Compte tenu de ces diverses caractéristiques on trouve finalement trois concepts en compétition :

- les combustibles chauds⁴ qui permettent le relâchement aisé des gaz (céramiques réfractaires à joint⁵ hélium, combustibles oxydes (Pu, AM)O₂ à matrice inerte MgO ou MgAl₂O₄, combustibles nitrures (Pu, AM)N à matrice inerte ZrN et joint He)
- les combustibles froids⁶ à faible relâchement gazeux dont le joint métal liquide permet l'écoulement de la chaleur vers le caloporteur (combustible nitrure à joint sodium) mais dont le relâchement des gaz et le gonflement doivent être étudiés
- les combustibles froids à fort relâchement gazeux dont le gonflement sous irradiation à faible température peut être compensé par le jeu entre la gaine et le combustible : audelà d'une certaine pression ce gonflement favorise l'interconnexion entre les pores formant ainsi des canaux débouchant à la surface et favorisant l'expulsion des gaz (combustible (Pu, AM)Zr à joint Na).

Sur la base des études existantes sur les nouveaux combustibles de transmutation pour les réacteurs actuels, une première évaluation réalisée en collaboration avec le DOE (US) et le JAERI (Japon) a sélectionné trois types de combustible dont le comportement sous irradiation sera étudié : il s'agit du combustible métallique à joint sodium Pu-AM-40Zr, du nitrure à joint hélium ou sodium (Pu, AM, Zr)N, et du composite oxyde (Pu, AM)O₂ + MgO ou ⁹²Mo. Ces combustibles seront irradiés dans ATR (réacteur d'irradiation américain) et dans Phénix (programmes FUTURIX-FTA) afin d'étudier leur gonflement dû aux dommages créés par les produits de fission et les effets de la création d'hélium. D'autres irradiations de combustibles sans actinides, mais précurseurs des combustibles ADS, réalisées dans les réacteurs rapides russe BOR 60 (prog. BORA-BORA) et suédois R2 (prog. CONFIRM) apporteront un complément d'information.

Les programmes FUTURE et CONFIRM qui se sont déroulés dans le 5^{ème} programme cadre se poursuivent dans le DM3 AFTRA (Advanced Fuels for TRAnsmutation) de IP-EUROTRANS dont les objectifs sont de mener des études de conception, de développement et de qualification (dans des conditions représentatives) d'un combustible sans uranium compatible avec la conception de l'ADS de référence, objet du DM1 (DESIGN).

3.1.4. Les données nucléaires

Concernant les avancées récentes dans le domaine des données nucléaires pertinentes pour les ADS, l'auteur renvoie aux cours « Mesures de sections efficaces de fissions d'intérêt pour la transmutation des actinides mineurs » de B. Jurado (ibid.) et « Données et modélisation de la spallation pour les réacteurs hybrides » de A. Boudard (ibid.). Une synthèse peut également être trouvée dans la référence [25]. Débutées par les programmes HINDAS et nTOF_ND_ADS dans le cadre du 5^{ème} PCRD, elles se poursuivent dans le DM5 NUDATRA (NUclear DAta for

⁴ ≥ 1000°C

⁵ le « joint » est le matériau qui comble le jeu entre le combustible et sa gaine

 $^{^{6} \}leq 700^{\circ} \mathrm{C}$

TRAnsmutation) de IP-EUROTRANS dans le 6^{ème} PCRD dont l'un des objectifs est d'améliorer les incertitudes associées aux données de conception nécessaires aux ADS, tant pour la neutronique du cœur que pour le cycle du combustible associé ou la radioprotection du système.

3.2. Projets européens de démonstration pour un ADS industriel

Les premières études de conception d'un ADS expérimental ont été menées au cours du projet PDS-XADS (Preliminary Design Studies for an eXperimental ADS) dans le cadre du 5^{ème} PCRD, premier effort européen cohérent dans la conception d'une installation complète de démonstration de la technologie des ADS. Ces études ont porté sur les principaux points clés du système : l'accélérateur, la cible de spallation, et le cœur sous-critique. Deux phases sont identifiées dans ce travail :

- la première se base sur la technologie de combustible disponible, à savoir le MOX, et sert à la démonstration du concept d'ADS et aux tâches d'irradiation préliminaires
- la deuxième doit démontrer la faisabilité de la transmutation sur un grand nombre d'assemblages contenant des actinides mineurs et exige un haut niveau de flux rapide.

Ces études ont été menées à travers trois concepts dont deux étudiés en collaboration avec des industriels :

- un concept refroidi à l'eutectique Pb-Bi de 80 MWth (ANSALDO, I)
- un concept refroidi au gaz de 80 MWth (FRAMATOME ANP, F)
- un concept refroidi à l'eutectique Pb-Bi de 50 MWth déjà à l'étude par le SCK-CEN (projet MYRRHA).

Nous reviendrons plus en détail sur ce dernier projet dans le paragraphe 3.3. et ne décrirons ici que les deux premiers (dont les schémas sommaires sont donnés figure 11). Tous ces concepts ont pour point commun l'insertion verticale du faisceau de l'accélérateur par le haut du cœur.



Figure 11 : *Projets d'XADS de 80 MWth refroidi au Pb-Bi, d'ANSALDO (à gauche) et refroidi au gaz, de FRAMATOME ANP (à droite) [25].*

3.2.1. XADS refroidi au Pb-Bi liquide

Ce concept est basé dans une large mesure sur des technologies connues. Le cœur est de petite taille mais extrapolable à une plus grande puissance. La cible de spallation est constituée, comme le caloporteur, de Pb-Bi liquide. La température de ce dernier est limitée entre 300 et 400°C afin de limiter les contraintes thermiques et la corrosion. Les assemblages de combustible ont un séjour limité dans le cœur pour ces mêmes raisons. Le combustible est du MOX. En fonctionnement nominal le refroidissement du cœur est assuré par convection naturelle assistée par une injection d'argon (mais sans pompes afin d'éviter les problèmes de corrosion et d'érosion de ces dernières) et l'évacuation de la puissance résiduelle en cas d'arrêt est réalisée de manière passive par circulation naturelle. Le caloporteur circule entre le cœur (source chaude) situé sous le

plenum et la source froide (échangeurs de chaleur) située en haut. Un certain nombre de composants utilisent des matériaux de technologie extrapolée de la filière des réacteurs au sodium. Ce projet de système est dédié à la démonstration du concept et il n'est pas prévu qu'il délivre de l'énergie électrique : la puissance est dissipée dans l'atmosphère par des échangeurs d'air.

Les caractéristiques du cœur ont été étudiées. Il consiste en assemblages hexagonaux de combustible tous identiques disposés en cinq couronnes autour du module de spallation. Chaque assemblage comporte 90 crayons chargés en combustible MOX sur une hauteur de 87 cm. Ceci conduit à un k_{eff} =0.97 en début de vie. Autour de la zone combustible se trouve une zone « tampon » de trois couronnes d'assemblages factices dans lesquels circule le Pb-Bi afin de créer un réflecteur radial, tandis que le plenum et la partie réceptacle « basse » de la cuve forment les réflecteurs axiaux. La réactivité a été calculée de façon à rester très en deçà de la criticité lors des transitoires mais aussi en cas d'accidents équivalents à une insertion de réactivité. En fin de vie du cœur le facteur de multiplication atteint 0.93. La puissance spécifique du système est de 40 W/cm³.

3.2.2. XADS refroidi au gaz

Ce deuxième concept utilise l'hélium (gaz inerte et non radioactif) comme caloporteur et s'inspire de la technologie des projets de GT-MHR (Gas Turbine Modular Helium Reactor) et RNR (Réacteur à Neutrons Rapides) à gaz actuels. Le système est constitué de deux cuves reliées entre elles par une tubulure: la première abrite le cœur, la cible de spallation, les systèmes associés à la manutention du combustible et le système de refroidissement à l'arrêt, tandis que la deuxième contient le système de conversion de puissance constitué d'une soufflante à hélium pour la circulation du caloporteur, et d'un échangeur hélium/eau pour évacuer la puissance vers un circuit secondaire. La cuve du réacteur se situe dans un puits de cuve en béton refroidi à l'eau : la coupe de l'ensemble est montrée figure 11. Le caloporteur se trouve à une pression moyenne de 60 bars et est mû par circulation forcée pendant le fonctionnement en puissance, avec des températures d'entrée et de sortie de 200 et 450°C. Le gaz présente ici l'avantage d'être inerte, et donc de ne pas induire de corrosion, et d'être sans réactivité chimique. Les opérations de maintenance en sont également facilitées. La cible envisagée, en Pb-Bi liquide, est située dans un module confiné sur l'axe vertical du réacteur et la fenêtre métallique la séparant de l'accélérateur se trouve dans le plan médian du cœur. Le Pb-Bi circule grâce à une pompe externe et c'est également en dehors de la cuve que se trouve l'échangeur de chaleur qui permet de refroidir le liquide et ainsi la fenêtre. Au-dessus du cœur se trouve un plenum chaud d'hélium d'environ 6 mètres de hauteur dus à la présence du dispositif de manutention du combustible et dans lequel des échangeurs de chaleur de secours permettent l'évacuation de la puissance résiduelle par convection naturelle du gaz pressurisé. Ce réacteur peut générer de l'électricité par cycle direct mais l'option du relâchement de l'énergie dans l'atmosphère est aussi envisagée.

Le cœur de ce système comporte 90 assemblages hexagonaux de combustible disposés autour du module de spallation. Six assemblages absorbants sont répartis à leur périphérie afin d'atteindre des marges suffisantes d'anti-réactivité lors de la manutention du combustible. Chacun des assemblages combustible contient 37 crayons chargés en MOX sur 1.5 mètre de hauteur. Une zone réflecteur en acier constituée de trois couronnes d'assemblages entoure le cœur. Les cinq dernières couronnes servent à la protection neutronique et γ (deux sont constituées de crayons de carbure de bore et cinq de blocs de carbure de bore). Le k_{eff} issu d'un compromis entre les situations accidentelles et les performances de fonctionnement du cœur se situe entre 0.96 et 0.97. La puissance spécifique du système est de 46 W/cm³.

3.2.3. Des conclusions de PDS-XADS vers les projets actuels

D'autres aspects comme les systèmes de manutention pour le rechargement du combustible et des composants, la sûreté de l'installation, la protection neutronique et radiologiques ont également été abordés, mais de façon très préliminaire pour certains. Les concepts étudiés, bien que préliminaires, ont confirmé la complexité du système mais n'ont pas mis en évidence de points rédhibitoires quant à la faisabilité d'une installation expérimentale. La technologie liée à l'utilisation du Pb-Bi est sans doute la plus délicate car la plus novatrice. La cible

de spallation est l'élément sur lequel on ne peut s'appuyer sur un retour d'expérience. Plusieurs concepts de cibles ont été étudiés et nécessitent davantage de travaux de R&D notamment pour estimer la durée de vie de la fenêtre. De nouveaux concepts sans fenêtre sont sérieusement envisagés.

Les différences entre ces deux concepts d'ADS proviennent essentiellement des propriétés thermiques du caloporteur. Le concept refroidi au Pb-Bi bénéficie de l'extrapolation des travaux réalisés sur les RNR au sodium mais une importante R&D reste nécessaire pour solutionner les problèmes potentiels de corrosion et d'oxydation. La puissance spécifique envisagée (de l'ordre de 40 MW/m³) ne pose pas de problèmes du point de vue du refroidissement cependant elle limite l'efficacité du système en terme de transmutation. L'augmentation de cette puissance peut améliorer notablement cette efficacité mais sans doute au détriment de la sûreté intrinsèque de l'installation pour l'instant très favorable. Cependant ce concept ne semble pas satisfaire aux critères de l'autorité française de sûreté en ce qui concerne l'Inspection en Service des réacteurs à neutrons rapides refroidis par un métal liquide s'il devait être considéré à une échelle industrielle.

Par comparaison la technologie gaz, fluide caloporteur ne se limitant pas à cette filière, minimise les besoins en R&D et simplifie les questions d'architecture du réacteur, d'inspection en service (fluide transparent) et de maintenance des composants internes. Les points majeurs à investiguer restent la durée de vie du doigt de gant réacteur entourant la cible de spallation (irradiation importante), la fiabilité requise pour l'évacuation de la puissance résiduelle (qui repose sur des systèmes actifs secourus pour les états dépressurisés) et la concomitance d'accidents sévères.

Par extrapolation de ces études à un système de quelques centaines de MWth il semble possible d'atteindre un optimum de transmutation d'actinides mineurs (qui serait alors d'environ 45 kg/TWhth) mais la démonstration de la faisabilité technique et économique d'un transmuteur de déchets reste à étudier.

Les travaux entrepris dans le projet PDS-XADS et les différents groupes R&D transmutation dans le 5^{ème} PCRD se poursuivent dans le 6^{ème} PCRD (2004-2009) dans le projet intégré EUROTRANS. Ce projet reprend les objectifs des études de faisabilité et de conception d'un prototype d'ADS industriel dédié à la transmutation. Ses principaux objectifs sont de développer un ADS générique (European Transmutation Demonstrator) avec, pour le court terme, la conception détaillée d'un ETD/XT-ADS (eXperiental demonstration of the technical feasibility of Transmutation in an ADS) de quelques dizaines de MWth et, pour le long terme, la conception d'un ETD/EFIT (European Facility for Industrial Transmutation) de référence, d'une puissance de quelques centaines de MWth. Le projet MYRRHA porté par le SCK•CEN (Belgique) décrit cidessous est actuellement sérieusement envisagé pour être le ETD/XT-ADS.

3.3. Le projet MYRRHA

Le projet MYRRHA (Multipurpose hYbrid Research Reactor for Hightech Applications) a débuté en 1998 au SCK-CEN comme une version améliorée du concept d'installation d'irradiation ADONIS (Accelerator Driven Operated Nuclear Isotope System) étudié de 1995 à 1997 par le SCK-CEN en collaboration avec IBA (Ion Beam Applications, Louvain-la-Neuve, B) qui était déjà basé sur un concept ADS et essentiellement dédié à la production de radio-isotopes pour la médecine (en particulier le ⁹⁹Mo). L'objet de MYRRHA est d'accueillir des programmes plus élargis, aussi bien dans les domaines des matériaux de structure pour les réacteurs à fusion et fission que dans celui des combustibles pour les filières actuelles ou futures. Mais en premier lieu MYRRHA vise à contribuer de façon majeure à la démonstration du concept d'ADS à une échelle raisonnable, et à celle de la faisabilité technologique de la transmutation d'actinides mineurs et de produits de fission issus du cycle du combustible. Après un premier design (2002) d'une puissance nominale de 30 MWth, ce projet a évolué en 2004 vers une installation de 50 MWth. Une description complète du projet MYRRHA dans cette version peut être trouvée dans le document « MYRRHA project, Draft 2 » [28]. Nous en résumons ici quelques grandes lignes.

3.3.1. Description générale

MYRRHA est un réacteur de type « piscine » dont la cuve à fond plat est posée au sol et non suspendue principalement à cause du poids du caloporteur, ici du Pb-Bi liquide. Le métal liquide a

été choisi comme caloporteur afin d'avoir une densité de puissance élevée et pour ce faire le Pb-Bi a été préféré au sodium afin d'éviter les risques d'incendie. De plus il est identique au matériau choisi pour la cible de spallation. Tous les composants du circuit primaire sont insérés dans le réacteur par le haut à travers le couvercle. L'emplacement de la cible de spallation, au centre du cœur, est de petite taille de façon à conserver la place disponible dans le cœur pour loger des expériences. Le concept retenu pour la cible est une cible sans fenêtre car aucun matériau ne pourrait supporter la densité de puissance déposée (~10 kW/cm²) dans la fenêtre, la densité de courant étant d'environ 150 μ A/cm². Le niveau de sous-criticité choisi est k_s =0.95, ce qui garantit la sous-criticité même dans des circonstances accidentelles d'insertion de réactivité. Les caractéristiques de l'accélérateur de protons pour atteindre 50 MWth dans ces conditions sont une énergie de 350 MeV et une intensité de 5 mA⁷.

3.3.2. Le design de l'accélérateur

Le premier accélérateur envisagé était un cyclotron produisant 2 mA de protons de 250 MeV, ce qui était des caractéristiques raisonnablement extrapolées d'un cyclotron existant développé par IBA pour la proton thérapie. Cependant cette puissance de faisceau ne permettait pas d'atteindre les caractéristiques neutroniques attendues du cœur, c'est pourquoi les caractéristiques finales du faisceau de protons sont devenues 350 MeV x 5 mA. Bien que rentrant encore dans des fourchettes accessibles à un cyclotron, les conclusions du groupe de travail « accélérateur » de PDS-XADS concernant le point crucial de la fiabilité de la machine ont conduit à préférer l'option d'un accélérateur linéaire (LINAC). Le design de cet accélérateur est en tous points semblable à celui décrit dans le paragraphe 3.1.1. Son coût est évalué à 185 M€.





⁷ Une application numérique réalisée à partir de l'expression (7) vue au chapitre 1 donne 52 MWth avec k_s =0.96, v=2.95, E_f =210 MeV et S= 1.9x10¹⁷ n/s (un proton de 350 MeV produit en moyenne 6 neutrons source par spallation sur Pb-Bi), valeurs caractérisant la source et le cœur de MYRRHA [28].

3.3.3. Le design de la cible de spallation sans fenêtre

La puissance résultant du faisceau délivré par l'accélérateur, compte tenu des conditions ci-dessus, est de 1.75 MW, dont 82% sont déposés dans la cible de spallation sous forme de chaleur. Une évacuation continue de la chaleur de la cible est donc nécessaire, ce qui a conduit au choix d'une cible en métal liquide. L'eutectique plomb-bismuth a été choisi, comme pour le fluide caloporteur. Nous avons vu que la densité du courant de protons entraînait une puissance déposée dans une éventuelle fenêtre trop élevée pour garantir l'intégrité de celle-ci. Un concept sans fenêtre a donc été préféré. Compte tenu du peu de place pour loger la cible, la surface libre de celle-ci sera réalisée par un flux coaxial vertical du fluide. La boucle de spallation passe dans le cœur et se referme à l'extérieur du cœur pour le laisser accessible (voir figure 13). Tous les composants actifs de la cible sont placés dans la partie décentrée du module de spallation, cela inclut :

- l'échangeur de chaleur dont le circuit secondaire utilise le caloporteur LBE de l'enceinte principale
- une pompe mécanique
- une pompe magnéto-hydrodynamique qui régule le flux du liquide de spallation et permet d'ajuster la position de la surface libre du liquide dans le module de spallation
- le système de vide constitué d'un ensemble de pompes cryogéniques
- le système de conditionnement et de filtrage du LBE.

La position décentrée de ces éléments réduit aussi l'irradiation à laquelle est soumis l'ensemble, et en particulier la formation d'He dans les structures qui conduirait à un renouvellement très fréquent des éléments des composants de la boucle. Toute la boucle de spallation peut être retirée de l'enceinte après le déchargement du cœur. On peut également ne retirer que le sous-module contenant les composants actifs afin de réaliser des opérations de maintenance tout en laissant la boucle de spallation en place. Toutes ces opérations peuvent être réalisées dans le hall du réacteur sous atmosphère inerte.



Figure 13 : Positionnement de la boucle de spallation dans l'enceinte de MYRRHA (le cœur du réacteur est au centre) et détail de la boucle seule [28].

Le matériau cible en lui-même circule depuis le module de spallation décentré et traverse l'axe central du cœur sous-critique. Il s'écoule à travers trois canaux d'amenée entourant la ligne de transport de faisceau. La zone cible proprement dite est la zone de surface libre formée par le liquide au confluent de ces trois canaux, au milieu du cœur (voir figure 14). Le faisceau de protons arrive sur la cible par le haut et après la zone d'impact le liquide s'évacue par un canal central unique qui l'achemine par le tube en u inférieur vers les échangeurs de chaleur et le système de pompage. L'évacuation de la puissance se fait donc par convection forcée à travers un échangeur dont le circuit secondaire est le caloporteur LBE de l'enceinte principale. La circulation du liquide dans la cible se fait à 10 litres/s ce qui conduit à une augmentation de température de moins de 100°C par rapport à la température opérationnelle optimale de 240°C. Le contrôle de la zone de recirculation est très important car si elle est trop petite ou trop grande cela conduit à une

évaporation de gouttelettes de LBE susceptibles de polluer le vide du tube faisceau, conséquence de l'absence de fenêtre. En particulier le paramètre à monitorer est la hauteur de cette zone. Ceci est réalisé par un LIDAR (LIght Detection And Ranging), un laser situé dans le tube faisceau qui mesure par réflexion sa distance à la surface de recirculation. Cette information est utilisée pour contrôler les pompes mécanique et magnéto-hydrodynamique réglant l'équilibre des flux entrant et sortant du nez de la cible dont dépend la surface libre. Le niveau de cette surface est particulièrement difficile à maintenir pendant les procédures de démarrage ou d'arrêt, ainsi que pendant les beam trips. C'est pourquoi une seconde surface libre est maintenue dans la boucle de spallation à environ 2.3 m au-dessus de celle de la cible.

L'absence de fenêtre implique que la cible soit sous un vide compatible avec celui de l'accélérateur. L'unité de spallation est donc connectée au tube central du faisceau par une canalisation pompée jusqu'à 10⁻³ mbar par un système intégré. Ce système de pompage permet également de collecter (et plus tard d'évacuer) dans des pompes à absorption les émanations radioactives volatiles polluant le vide. De plus, la température de la surface libre est ajustée via le débit du liquide de façon à minimiser l'évaporation excessive du LBE dans le tube accélérateur et préserver la qualité du vide (température maximale de 450°C).

Le conditionnement du LBE est nécessaire pour afin d'inhiber la corrosion et de prévenir la formation d'agglomérats solides d'impuretés qui pourraient boucher les canaux. La stratégie pour limiter la corrosion consiste à maintenir le pourcentage massique d'oxygène dans le LBE à 10⁻⁶. Ceci se fait par un traitement des vapeurs d'eau et d'hydrogène. Cependant l'unité de spallation étant maintenue sous vide le traitement n'est possible que pendant les opérations de maintenance. Du fait de la nature réductrice des produits de spallation et de l'hydrogène provenant du faisceau de protons, l'action opposée d'ajout d'oxygène est incluse, ce qui conduit à une unité de conditionnement dédiée. De plus, une filtration magnétique est prévue à l'entrée de la pompe magnéto-hydrodynamique pour extraire les produits de corrosion (essentiellement des composés de Fe et de Ni) pouvant boucher le pompe. Enfin à la surface de la seconde surface libre un écrémage est envisagé pour retirer les résidus flottants.



Figure 14 : Détail du « nez » de la zone cible coaxiale avec surface de recirculation, photo de la coupe transverse de la zone cible [28].

La forme particulière de cette cible et la nécessité de ne pas trop chauffer la cible dans sa zone centrale de recirculation induit le choix d'un profil de faisceau annulaire, où le courant est plus intense dans la couronne et moindre en son centre (figure 14).

Enfin notons que dans ce concept de cible « sans fenêtre » il existe néanmoins une séparation entre le tube faisceau et la zone cible qui est une fenêtre d'Al froide située très en amont de la cible.

3.3.4. Le design du cœur sous-critique

Le cœur de MYRRHA est à spectre neutronique rapide refroidi par du LBE liquide. Il est constitué d'un réseau de 99 assemblages hexagonaux contenant eux-mêmes 91 aiguilles (avec un pas de 8.55 mm). La zone combustible est constituée d'aiguilles MOX (30% de Pu) du type de celles utilisées dans les réacteurs rapides, dans 45 assemblages dont la hauteur de combustible est de 60 cm. Les trois hexagones centraux sont retirés pour laisser la place au module de spallation (figure 15). Les assemblages périphériques sont disponibles pour des irradiations et études de transmutation des actinides mineurs et produits de fission à vie longue.

Le tableau 1 résume les caractéristiques du cœur de MYRRHA calculées en début de vie du réacteur. La valeur de k_{eff} =0.95 a été choisie pour rester dans les marges de sûreté souscritiques en cas d'incident conduisant à une injection de réactivité. Les effets sur la réactivité de différentes situations incidentelles ont été calculés et sont donnés dans le tableau 2.



Figure 15 : Configuration type du cœur de MYRRHA (la zone sombre représente la zone combustible, la zone centrale est libre) [28].

Tableau 1 : Résumé des caractéristiques du cœur de MYRRHA calculées en début de vie [28].

Neutronics Parameters	Units	MYRRHA values
Proton heam energy	MeV	350
Accelerator current	mA	5
Proton beam heating	MW	1.43
Source neutron yield per incident proton		6.0
neutron source Intensity	10 ¹⁷ n/s	1.9
Initial fuel mixture	MOX	$(U-Pu)O_2$
Initial (HM) fuel mass (m _{bol})	Кg	514
Initial Pu-enrichment (Pu/HM)	wt%	30
K _{ar}		0.95521
K,		0.96007
$MF = 1/(1 - K_s)$		25.04
Source importance: o*		1.127
Thermal Power (⁴) (P ₀)	MW	51.75
Specific power	kW/kgHM	101
Peak linear Power (hottest pin)	Witness	352
Av. Linear Power (hottest pin)	wiem	272
${\rm Max}\Phi_{\rm actual}$ in the fast core (near the hottest pin)		4.1
$Max \; \Phi_{^{21}MeV}$ in fast core (near the hottest pin)	10 ⁴⁵ n/cm ² s	0.8
$Max \; \Phi_{>0.35MeV}$ in fast core (near the hottest pin)		1.0
$(^3)$ E _f = 210 MeV/fission		

Incidental situation	Reactivity effect	
incidental situation	(pcm)	
Fuel pin pitch compaction	444	
H ₂ O-vapour inside hottest fuel assembly	420	
Cold (coolant) density effect	443	
Coolant voiding hottest fuel assembly	72	
Overall fast core coolant voiding	-18670	
Voiding three peripheral reflector channels	-706	
Doppler effect (Tf: 300K<=> 1 500K)	-398	

Tableau 2 : Calculs des effets sur la réactivité de diverses situations incidentelles [28].

4. Conclusion

Il y a dix ans, en 1996, le concept d'ADS ou réacteur hybride était dépoussiéré et remis au goût du jour avec la préoccupation d'apporter une réponse au problème de la gestion des déchets nucléaires issus des parcs électronucléaires actuels, point clé de l'acceptation de la filière nucléaire pour le futur. De nombreux organismes se sont engagés dans la recherche induite par ce regain d'intérêt pour les ADS, avec la volonté d'investiguer très concrètement la faisabilité d'un tel système. Aujourd'hui force est de constater que ces dix dernières années d'efforts ont apporté de nombreuses réponses sur des points clés, même si d'autres nécessiteront plus de temps. Depuis, la problématique des déchets s'est élargie et enrichie car il est apparu qu'elle ne pouvait être décorrélée des choix énergétiques pour le futur. Cela a donné naissance à l'étude de nouveaux systèmes nucléaires intégrés dans de nombreux scénarios visant une production d'énergie accrue pour répondre à la croissance de la demande aussi bien qu'à la réduction des déchets produits à l'horizon 2050. Ainsi les ADS trouveraient leur place dans certains de ces scénarios, essentiellement dédiés à l'incinération des actinides mineurs comme les américiums ou les curiums. Les choix sur ces échelles de temps n'étant pas encore arrêtés, les recherches se poursuivent afin de faire le tour des options technologiques possibles. C'est le but que s'est fixée la communauté engagée sur les recherches en soutien au développement des ADS en Europe que de parvenir a minima à la construction d'un prototype de ce système à l'horizon 2016, qui pourrait être le réacteur belge MYRRHA. Rendez-vous dans dix ans donc...

Remerciements

Je tiens à remercier mes prédécesseurs dans l'enseignement touchant à ce sujet qui sont également les auteurs de documents précurseurs en ce domaine dont je me suis largement inspirée pour la première partie de ce cours, en particulier H. Nifenecker, J.-M. Loiseaux, O. Méplan, et S. David, membres de l'équipe *physique des réacteurs* du LPSC de Grenoble et de l'équipe *physique de l'aval du cycle et de la spallation* de l'IPN d'Orsay respectivement. J'associe à ces remerciements mes indéfectibles collègues grenoblois R. Brissot et C. Le Brun qui se sont prêtés à la relecture des deux premières parties de ce cours. Je remercie pour leur aide P. Baeten (en particulier d'être l'auteur des principaux documents qui éclairent ma compréhension des méthodes de mesure de la réactivité) et D. De Bruyn du SCK-CEN (Mol, Belgique), ainsi que A. Guertin (Subatech Nantes) qui m'ont fourni la plupart des informations sur le projet MYRRHA. Enfin je remercie M.-G. Porquet ainsi que le Comité d'Organisation de l'Ecole Joliot Curie de la confiance qu'ils m'ont témoignée en me confiant ce cours.

Références

- [1] J.-M. Loiseaux, « Principes de base et caractéristiques particulières des systèmes souscritiques assistés par accélérateur », Ecole Joliot-Curie 1996.
- [2] G.D. Spriggs, R.D. Busch, T. Sakurai, S. Okajima, *« The equivalent fundamental-mode source »*, Annals of Nuclear Energy 26 (1999) 237.
- [3] M. Plaschy, « Etudes numériques et expérimentales de caractéristiques d'un système rapide sous-critique alimenté par une source externe », Thèse de doctorat, Ecole polytechnique fédérale de Lausanne (2004).
- [4] P. Reuss, « Précis de neutronique », collection Génie Atomique, EDP Sciences, (2003).
- [5] R. Barjon, *« Physique des réacteurs nucléaires »*, Institut des Sciences Nucléaire de Grenoble (1993).
- [6] J. Salmon, H. Charpentier, J. Guilloud, B. Lemaire, P. Millies, « Théorie cinétique des neutrons rapides », Bibliothèque des sciences et techniques nucléaires, Presses Universitaires de France, (1961).
- [7] Collaboration MUSE, 5th EURATOM FP-Contract #FIKW-CT-2000-00063. Deliverable #8: Final Report (2005).
- [8] S. David, « Capacités des réacteurs hybrides au plomb pour la production d'énergie et l'incinération avec multirecyclage des combustibles. Evolution des paramètres physiques. Radiotoxicités induites», Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier-Grenoble I (1999).
- [9] D. Hilscher et al., Nuclear Instrumentation and Method A414 (1998) 100.
- [10] A. Abanades et al., Nuclear Instrumentation and Method A478 (2002) 577.
- [11] G. Perret, « Amélioration et développement des méthodes de détermination de la réactivité. Maîtrise des incertitudes associées », Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier-Grenoble I (2003).
- [12] A. Garelis, *« Survey of pulsed neutron source methods for multiplying media »*, Proceedings of the Symposium on Pulsed Neutron Research, AIEA, Karlsruhe, Allemagne, 10-14 mai 1965.
- [13] N.G. Sjöstrand, « Measurement on a subcritical reactor using a pulsed source », Arkiv för Fysik Band 11 nr 13 (1956) 233.
- [14] M. Carta, A. D'Angelo, V. Peluso, G. Aliberti, G. Imel, V. Kulik, G. Palmiotti, J.F. Lebrat, Y. Rugama, C. Destouches, E. Gonzalez-Romero, D. Villamarin, S. Dulla, F. Gabrielli, P. Ravetto, M. Salvatores, *« Reactivity assessment and spatial time-effects from the MUSE kinetics experiments »*, Proceedings of International Conference on the Physics of Fuel Cycles and Advanced Nuclear Systems PHYSOR 2004, Chicago, USA, 25-29 avril 2004.
- [15] D. Villamarin-Fernandez, « *Análisis dinámico des reactor experimental de fisión nuclear MUSE-4 »*, Thèse de doctorat, Université Complutense de Madrid 2004.
- [16] G.D. Spriggs, R.D. Busch, J.G. Williams, "Two-region kinetic model for reflected reactors", Annals of Nuclear Energy 24 (1997) 205.
- [17] F. Perdu, « Contributions aux études de sûreté pour des filières innovantes de réacteurs nucléaires », Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier-Grenoble I (2003).
- [18] J. Vollaire, « L'expérience MUSE-4 : mesure des paramètres cinétiques d'un système souscritique », Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Grenoble (2004).
- [19] P. Baeten, R. Brissot, Y. Rugama, A. Billebaud, C. Le Brun, E. Liatard, J. Vollaire, C. Destouches, « Analytical investigation and experimental application of the source modulation technique to measure ρ/β_{eff} », Progress in Nuclear Energy 48 (2006) 550.
- [20] R.E. Uhrig, *« Random noise techniques in nuclear reactor systems »*, Ronald Press, New York (1956).
- [21] J.A. Thie, « *Reactor noise* », Rowman and Littlefield Inc., New York (1963).
- [22] I. Pazsit, M. Ceder, Z. Kuang, "Theory and analysis of the Feynman-alpha method for deterministically and randomly pulsed neutron sources ">, Nuclear Science and Engineering 148 (2004) 67.
- [23] I. Pazsit, Y. Kitamura, J.Wright, T. Misawa, *«Calculation of the pulsed Feynman-alpha formulae and their experimental verification »*, Annals of Nuclear Energy 32 (2005) 986.
- [24] P.Baeten, « *Heuristic derivation of the Rossi-alpha formula for a pulsed neutron source »*, Annals of Nuclear Energy 31 (2003) 43.
- [25] A. Alamo, F. Balbaud, P.Y. Beauvais, J.L. Courouau, P. Debu, G. Granget, C. Latge, S. Leray, F. Mellier, S. Pillon, P. Richard, G. Rimpault, M. Salvatores, A. Terlain, F. Varaine, D. Warin, R.

Brissot, H. Doubre, H. Flocard, T. Kirschner, A. Mueller, J.C. Steckmeyer, B. Carluec, B. Giraud, *« Synthèse des études pour le développement des ADS »*, CEA/DEN/CAD/DER/SESI/LCSI/NT DO22 18-11-2005.

[26] J.L. Biarotte et al. *« Definition of the XADS-class reference accelerator concept »*, PDS-XADS report, Deliverable 63 of EU contract FIKW-CT-2001-00179 (2004).

[27] F. Groeschel et al. Journal of Nuclear Materials, 335 (2004) 156.

[28] H. Aït Abderrahim et al., *« MYRRHA Pre-Design File - Draft 2 »*, SCK•CEN Report R-4234, Juin 2005.

[29] A. Guertin, com. privée (2006).

Autres sources

H. Nifenecker, O. Méplan, S. David, *« Accelerator driven subcritical reactors »*, Institute Of Physics, Series in fundamental and applied nuclear physics (2003).

A. Billebaud, H. Nifenecker, « Réacteurs hybrides », Techniques de l'ingénieur, BN 3 235 (2005).

Systèmes du futur et stratégies

S. David¹

Institut de Physique Nucléaire CNRS/IN2P3 et Université Paris XI 91405 Orsay

Résumé

Ce cours tente de discuter des choix futurs qui pourront être faits pour l'énergie nucléaire, et d'expliciter la physique qui définit les caractéristiques des différentes filières envisageables. Nous donnons en premier lieu un aperçu de la problématique générale de l'énergie au XXI^{ème} siècle, qui permet d'avoir une idée de ce qui peut être demandé dans le futur à l'énergie nucléaire. Nous détaillons ensuite les caractéristiques des filières actuelles, basées sur la fission de l235U, qui consomment seulement 0,5% du potentiel énergétique total du minerai. La question des réserves en uranium et de la nécessité de passer à des filières régénératrices est discutée. Quelques calculs physiques montrent rapidement que la régénération demandera de changer de technologie, de développer des réacteurs rapides pour le cycle uranium, ou des réacteurs à sels fondus basés sur le cycle du thorium. Les deux cycles uranium et thorium sont comparés, sur la base des inventaires en matière fissile, de souplesse de déploiement, et d'efforts de R&D à mener avant d'atteindre le stade industriel. En guise de conclusion, nous revenons sur des discussions abordées pendant l'école Joliot-Curie, en tentant de donner quelques points d'éclaircissement sur les différentes stratégies qui peuvent être adoptée dans les années à venir.

Abstract

This lecture deals with the different nuclear technologies which could be developed in the future. We present some physical aspects of future fission-based nuclear reactors. First, we give an overview of the energy problematic in the coming century, in order to define what could be requested from nuclear power. We describe the present reactors, based on the fission of U-235. They require around 200 tons of natural uranium to fission only 1 ton of fissile material. Regarding the estimated uranium resources, the question of the transition towards breeding reactors is discussed. Some simple calculations show that breeding of plutonium can be reached only with a fast neutron spectrum. For the thorium cycle, breeding with thermal neutrons requires the use of molten salt reactors. These two fuel cycles are compared in term of fissile inventory, ability of deployment, and R&D efforts. As a conclusion, we discuss some questions which showed up during the Joliot-Curie school, concerning the different strategies which could be chosen in the coming years.

¹ sdavid@ipno.in2p3.fr

1	Contexte énergétique et nucléaire	337
	1.1 Le contexte actuel	337
	1.2 La production d'électricité	339
	1.3 La consommation d'énergie dans le futur	340
	1.4 Les contraintes de l'effet de serre	341
	1.5 Le casse-tête énergétique	341
2	La situation en France	343
	2.1 Retraitement ou cycle ouvert ?	343
	2.2 Le combustible MOX	345
	2.3 Déchets et matières valorisables	345
3	Le potentiel de production des filières actuelles	346
	3.1 L'uranium enrichi	346
	3.2 La masse de combustible nécessaire	347
	3.3 Le retraitement	348
	3.4 Optimisations possibles	349
	3.5 Réserves d'uranium et potentiel de production	350
4	Nucléaire durable : la régénération	351
	4.1 Principe de base	351
	4.2 Les neutrons disponibles	352
	4.3 L'inventaire de matière fissile	354
	4.3.1 L'inventaire en cœur	354
	4.3.2 L'inventaire total de matière fissile	356
	4.4 Le temps de doublement	357
5	Les réacteurs rapides	359
	5.1 Les différents concepts	359
	5.2 Le déploiement des RNR	360
6	La voie plus innovante du cycle thorium	362
	6.1 Généralités sur le thorium	362
	6.2 Le concept MSBR	364
	6.3 Le concept TMSR	366
	6.3.1 Le concept TMSR thermique	366
	6.3.2 Le concept TMSR sans graphite	367
	6.4 Le déploiement des RSF au thorium	368
7	Epilogue : quelles stratégies pour le futur ?	371

1 Contexte énergétique et nucléaire

1.1 Le contexte actuel

La consommation mondiale s'élève aujourd'hui à plus de 10 milliards de tep pour une population d'environ 6 milliards d'individus. Observons tout d'abord la consommation d'énergie globale des grandes régions du monde.



source DGEMP – chiffres clé de l'énergie, édition 2004

L'Extrême-Orient, qui domine depuis 1990 environ la consommation d'énergie dans le monde. La croissance de l'énergie y est forte, du fait du développement rapide de la Chine et de l'Inde. La part de l'Extrême-Orient dans la consommation d'énergie mondiale passe de 18.7% en 1973 à près de 30% en 2001.

L'Amérique du Nord : les Etats-Unis (et dans une moindre mesure le Canada, du fait de sa faible population) sont de très gros consommateurs d'énergie pour une population limitée. La part de l'Amérique du Nord dans la consommation mondiale a tendance à baisser : 31.7% en 1973 contre 26.4 aujourd'hui.

L'Europe de l'Ouest voit sa consommation d'énergie croître raisonnablement depuis une trentaine d'années. Comme pour l'Amérique du Nord, la part de l'Europe décroît : 22.7% en 1973 contre 17.7% aujourd'hui.

L'ex-URSS : l'effondrement du système soviétique au début des années 1990 est nettement visible en termes de consommation d'énergie.

On observe également que l'Amérique latine et l'Afrique se développe lentement. Leur part dans la consommation d'énergie mondial augmente légèrement : 3.6% et 3.5% respectivement en 1973, pour 4.4% et 5.1% aujourd'hui. Ces régions sont pourtant énormément peuplées.

Regardons de plus près la consommation d'énergie moyenne par habitant selon ces mêmes régions du monde. On consomme donc en moyenne environ 1.5 tep chaque année. Les différences de consommation peuvent être très importantes entre les pays riches et les pays pauvres. La figure suivante donne quelques exemples de consommation d'énergie par habitant pour les grandes régions du monde.



source DGEMP - chiffres clé de l'énergie, édition 2004

On observe que l'Amérique du Nord doit son statut de champion du monde uniquement à cause de l'effondrement du système soviétique... On observe également que pour un niveau de vie du même ordre de grandeur, un européen consomme près de deux fois moins d'énergie qu'un américain du Nord ou qu'un australien. Ceci est du pour beaucoup à la géographie des pays et des villes. Aux Etats-Unis, la densité de population est très faible et les transports entre villes demandent souvent plusieurs milliers de km. De plus, les villes elles mêmes sont très étalées, et ceci a deux conséquences : d'une part le déplacement intra urbain demande souvent de longues distances par rapport aux villes concentrées (comme en Europe), et d'autre part, il est difficile de mettre en place des réseaux efficaces de transports en commun. A cela s'ajoutent l'utilisation de véhicules très lourds, et une utilisation massive de la climatisation pendant les périodes chaudes. Notons que pour des raisons de confort, mais aussi de santé, la climatisation est en pleine croissance en Europe (canicule de 2003). On note également que la consommation par habitant en Asie est relativement constante, et que le fort accroissement noté dans la figure précédente de la consommation globale de l'Asie n'est dû finalement qu'à l'augmentation de population.

Enfin on mesure l'écart important entre les régions pauvres du monde (Afrique, Amérique latine, ...) et les pays développés. Ecart d'autant plus important pour l'Afrique que la consommation d'énergie par habitant stagne depuis 30 ans.

Le tableau suivant donne la répartition des différentes sources d'énergie primaires utilisées aujourd'hui.

Source	(Gtep/an)	%
Fossile	8,0	80
dont		
Charbon / pétrole / gaz	3,7 / 2,1 / 2,2	37/21/22
Nucléaire	0,6	6
Renouvelables	1,32	13,2
dont		
Hydraulique	0,7	7
Biomasse traditionnelle	0,6	6
Solaire, éolien, géothermie,	0,02	0,2
nouvelle biomasse, etc		
TOTAL	10 Gtep	100%

Source DGEMP

Note : La structure de la consommation est calculée à partir de tep « électrique » utilisant la définition « avant 2002 », soit 1 MWh = 0,222 tep.

On constate que les combustibles fossiles dominent la production d'énergie : plus de 80% de notre consommation fait appel à ces sources d'énergie (charbon, pétrole et gaz).

La biomasse traditionnelle représente une part importante de l'énergie dans le monde, environ 11%. Il s'agit principalement de bois de chauffage « gratuit » (donc difficilement comptabilisable...), utilisé massivement dans les pays en voie de développement. Il faut distinguer cette biomasse traditionnelle de la « nouvelle » biomasse, qui elle, nécessite la mise en place de toute une filière. Cela concerne principalement les nouvelles centrales électriques au bois (granulés, copeaux, ...), les centrales de chauffage urbain et les biocarburants. Cette nouvelle biomasse est aujourd'hui totalement négligeable dans la production d'énergie, même si localement elle peut être tout à fait significative. Il en va de même des autres nouvelles sources d'énergies renouvelables, comme l'éolien, le solaire ou la géothermie.

L'énergie hydraulique est une énergie renouvelable très développée. En France le potentiel hydraulique est utilisé à plus de 95%. Pourtant, cette source d'énergie ne représente que 7% de la consommation mondiale d'énergie. La moitié environ par des barrages, l'autre moitié par des centrales au fil de l'eau. Il existe un fort potentiel, mais malheureusement dans des régions souvent éloignées des régions peuplées, ce qui rend difficile sa mise en œuvre.

Enfin, l'énergie nucléaire représente aujourd'hui environ 6% de la production d'énergie, autant que l'énergie hydraulique, et comme celle-ci, elle est dédiée à la production d'électricité.

1.2 La production d'électricité

L'électricité joue un rôle très important dans la consommation d'énergie mondiale. La consommation d'électricité augmente toujours plus vite que la consommation d'énergie globale, du fait du développement des pays pauvres qui ont petit à petit recours à l'électricité. Cependant, aujourd'hui, 2 milliards de personnes n'ont pas accès à l'électricité.

Le tableau suivant donne les différents modes de production pour différentes régions du monde, le cas de la France y est indiqué.

Production électique par filière en 2001 en TWh	Combustible fossile	Nucléaire	Hydraul.	Géothermie Eolien photovoltaïque	TOTAL
Amérique du	3100	894	585	106	4684
	4004	004	F7 4	00	0000
Europe	1664	964	571	89	3290
France	46.8	421	78.6	3.7	550
Allemagne	364.2	171	23	24	583
Danemark	31.3	-	-	6.4	37.7
Suède	6.4	72	79	4	162
TOTAL	5754	2290	1295	218	9556
OCDE					
DODAD					

Source DGEMP

On constate que la France est un cas à part, seule la Suède est relativement comparable, puisque ces deux pays n'utilisent que très peu de combustibles fossiles pour produire de l'électricité, l'alternative étant le nucléaire et l'hydraulique. On constate également que des pays comme l'Allemagne ou le Danemark, symboles médiatiques de la lutte écologique du 21^{ème} siècle produisent leur électricité essentiellement avec des combustibles fossiles, la part des énergies renouvelables hors hydraulique ne dépassant guère 4% pour l'Allemagne pour la production d'électricité. Le Danemark quant à lui produit environ 17% de l'électricité par énergie renouvelable, essentiellement les éoliennes.

La France s'est lancée dans le nucléaire dans les années 70, en même temps que d'autres pays comme l'Allemagne ou les Etats-Unis, essentiellement pour des raisons d'indépendance énergétique, mise à mal lors du choc pétrolier de 1973. Les programmes nucléaires de la plupart des pays se sont vite arrêtés, dès le contre-choc pétrolier, le premier accident de Three Miles Island aux USA puis Tchernobyl. Seule la France a poussé à son terme son programme nucléaire, et produit aujourd'hui près de 80% de son électricité par les centrales nucléaires.

1.3 La consommation d'énergie dans le futur

Les scénarios démographiques prévoient aujourd'hui une augmentation de la population de 50% environ sur 50 ans, soit environ 9 milliards d'habitants en 2050. Au-delà, il semble extrêmement difficile de prévoir quoi que ce soit, certains scénarios prédisant une baisse de la population mondiale, d'autres une croissance continue. Si l'on fait l'hypothèse simpliste (et donc fausse !) que l'on consommera en moyenne autant d'énergie par habitant en 2050 (soit 1,5 tep/hab/an), cela donnerait une consommation d'énergie annuelle de 15 milliards de tep en 2050. En fait, la croissance de la population est beaucoup plus forte dans les pays aujourd'hui en plein développement, qui ne consomme encore que très peu d'énergie par rapport aux pays riches, qui eux voient leur population rester relativement stable. La tendance est donc à une consommation en 2050 bien au-delà des 15 milliards de tep, si cela est bien entendu possible du point de vue des ressources, de l'économie et de l'environnement...

Les scénarios prévoient des consommations d'énergie en 2050 entre 15 et 30 Gtep. Aucun d'entre eux ne prend vraiment en compte le problème de ressources en combustibles fossiles, très difficiles à quantifier précisément. On sait pourtant que le pic de production du pétrole arrivera autour de 2020, les plus pessimistes le prévoyant pour 2010. Le pic de production du

gaz devrait suivre celui du pétrole de 10 ans environ. Enfin, pour le charbon, les réserves sont plus abondantes, mais sa consommation risque d'augmenter rapidement avant 2050 afin de remplacer le pétrole et le gaz. Ainsi, le charbon ne semble pas être une source durable au-delà du siècle à venir.

1.4 Les contraintes de l'effet de serre

Brûler une matière carbonée rejette dans l'atmosphère du CO_2 . Ce CO_2 s'accumule, et on mesure aujourd'hui déjà une augmentation de la concentration de CO_2 dans l'air de près de 40% par rapport à l'époque pré-industrielle. Il n'y a plus aucun doute aujourd'hui sur le fait que ce CO_2 provient des activités humaines et principalement de l'utilisation massive des combustibles fossiles.

Les recommandations des climatologues nous imposent de mettre en place des politiques de réduction massive d'émission de gaz à effet de serre, CO_2 en tête. Il faut qu'en 2050, l'humanité émette en moyenne 2 fois moins de CO_2 qu'aujourd'hui, soit 3 milliards de tonnes de carbone émise par an au niveau de la planète. Si en 2050 chaque habitant émet la même quantité de CO_2 , pour une population de 9 milliards d'habitants, un français devra en émettre 6 fois moins qu'aujourd'hui (d'où le fleurissement des scénarios « facteur 4 »), un allemand 9 fois moins et un américain du Nord 15 fois moins. Les scénarios « facteur 4 » qui fleurissent en France, déjà extrêmement difficile à atteindre sont calculés pour une population de 6 milliards d'habitants, et sont donc encore insuffisants.

Il faudra donc réduire considérablement notre utilisation des combustibles fossiles, ou mettre en place des stratégies de captage et stockage de CO_2 à très grande échelle.

1.5 Le casse-tête énergétique

D'après ce dont nous venons de discuter, nous pouvons maintenant lister les trois points clé du casse tête énergétique :

- La consommation d'énergie doit augmenter, pour satisfaire le besoin légitime des pays pauvres à atteindre un meilleur niveau de vie.
- Les réserves de combustibles fossiles (80% de notre production énergétique actuelle) vont s'épuiser dans le siècle à venir.
- Nous devons réduire nos émissions de gaz à effet de serre d'un facteur 2 au niveau mondial en 50 ans.

La figure suivante résume la situation (critique). Il ne s'agit pas d'un scénario à prendre au pied de la lettre, mais plus d'une illustration graphique du casse-tête énergétique et des ordres de grandeurs mis en jeu.



Résoudre le problème nécessitera donc de mettre en place le captage et stockage du CO_2 issu du charbon, développer le nucléaire et encore plus les nouvelles énergies renouvelables. Et cela ne pourra suffire : il faudra mettre en place des politiques d'économie d'énergie et optimiser l'efficacité énergétique.

En résumé, aucune source, aucune option ne peut seule résoudre le problème, les batailles de chapelles (entre pro nucléaire et anti, entre pro renouvelable et anti, entre pro sobriété et anti) sont des batailles du siècle passé, qui nous conduiraient à la catastrophe.

Si le nucléaire est amené à jouer un rôle pour lutter contre l'effet de serre et remplacer les énergies fossiles qui viendront à disparaître, il faut envisager des taux de croissance qui peuvent atteindre un facteur 10 en 50 ans. Bien entendu un tel développement ne sera pas sans risque : déchets, prolifération, sûreté des installations. Le développement des énergies renouvelables non plus : par exemple, que penser d'un monde où les pays pauvres mourraient de faim, mais produiraient les biocarburants nécessaires aux pays riches ? Et que penser des économies d'énergie ? Le fonctionnement de notre société est basé sur une utilisation massive d'énergie, économiser conduit à une baisse générale de la consommation, une récession économique, une augmentation massive du chômage, serons nous capable de gérer ces problèmes ? Quoi qu'il en soit, c'est maintenant qu'il faut aborder ces questions, et pas dans 20 ans, il sera trop tard.

Nous présentons dans ce cours les différents aspects de ce que peut être un nucléaire du futur durable et déployé à grande échelle, du point de vue de la gestion des ressources et des déchets.

2 La situation en France

Tous les réacteurs électrogènes qui fonctionnent en France sont des REP (Réacteur à Eau Pressurisée) qui utilisent un combustible à base d'uranium enrichi (UOX). La puissance installée est de 63 GWe pour une production annuelle de l'ordre de 420 TWh, soit un taux d'utilisation des réacteurs entre 75 et 80%. Cette production représente environ 75% de la production électrique française. Ce parc nucléaire a été installé rapidement dans les années 70. La durée de vie initiale des réacteurs était de 30 ans. Les études réalisées en cours de fonctionnement permettent



d'envisager un prolongement de cette durée de vie à 40 ans, voire au-delà pour les réacteurs les plus récents. Les premiers réacteurs devraient ainsi s'arrêter en 2020. En envisageant une augmentation de la durée de vie moyenne des réacteurs à 45 ans, le rythme d'arrêt des réacteurs serait de l'ordre de 2GWe installés par an, soit une diminution linéaire de la puissance installée du parc actuel de 60 GWe à 0 entre 2020 et 2050.

Les premiers réacteurs construits ont une puissance de 900 MWe, alors que les derniers (paliers N4) ont une puissance de 1450 MWe. Les turbines à vapeur utilisées en aval du réacteur pour transformer la chaleur produite en électricité ont un rendement thermique de 33% environ. Ce faible rendement (comparé aux 45% des centrales à gaz) vient essentiellement du fait que l'eau sortant du cœur doit être liquide, et que les tenues sous pression des matériaux permettent d'atteindre des températures de l'ordre de 270 °C.

2.1 Retraitement ou cycle ouvert ?

Certains pays comme la Suède ou les Etats-Unis considèrent aujourd'hui ce combustible usé comme un déchet à stocker. En France, on retraite ce combustible pour en extraire la matière dite valorisable, le plutonium et l'uranium. En effet, le plutonium est essentiellement composé de ²³⁹Pu, qui est un noyau fissile au même titre que l'²³⁵U. Le retraitement consiste à extraire l'uranium et le plutonium des combustibles usés. Le plutonium est réutilisé sous forme d'un nouveau combustible MOX (Mixed Oxyde), mélange d'uranium appauvri et de plutonium (environ 7% de Pu). Ce combustible MOX est utilisé dans 20 réacteurs REP de 900 MWe, à hauteur de 30% du cœur, et produit aujourd'hui environ 8% de la puissance électrique nucléaire, 92% provenant des combustibles UOX. Aujourd'hui, environ 80% du plutonium issu des UOX usés est recyclé sous forme de MOX. Les UOX usés non retraités sont entreposés tels quels.

Lors de la phase de retraitement du combustible UOX usé :

- les produits de fission volatils sont relâchés dans l'atmosphère (les gaz rares comme le krypton) ou dans la mer (iode et tritium).
- les autres produits de fission et les actinides mineurs (Np, Am et Cm) sont considérés sans ambiguïté comme des déchets nucléaires. Ils sont coulés dans des verres très résistants (vitrification), ce qui constitue un conditionnement considéré aujourd'hui comme définitif ; ils sont donc destinés *in fine* au stockage. Il semble aujourd'hui très difficile d'envisager la reprise de ces verres pour en extraire les noyaux qui pourraient être transmutés (c'est-à-dire transformés en noyaux stables ou à vie courte) dans les réacteurs du futur.
- le plutonium est séparé du combustible UOX usé pour être utilisé sous forme de combustible MOX.
- l'uranium irradié est également séparé. Une partie (30%) est aujourd'hui ré-enrichi et alimente 2 tranches de réacteurs.



2.2 Le combustible MOX

Le plutonium est donc séparé puis mélangé avec de l'uranium appauvri, et constitue ainsi un nouveau combustible, le MOX (Mixed Oxyde). La concentration du plutonium dans l'uranium est de l'ordre de 7%. Ce combustible reste environ 4 ans en réacteur. Une fois utilisé, il contient (en masse) encore beaucoup d'uranium (91%), 4% de plutonium, 4% de produits de fission, et enfin environ 1% d'actinides mineurs, essentiellement Américium et Curium produits à partir de captures successives sur les isotopes du plutonium.

Ce combustible MOX usé est ensuite entreposé en attente d'un traitement éventuel dans le futur. Comme il contient du plutonium, il est considéré comme une matière valorisable, même s'il contient également beaucoup de matières non valorisables, comme les produits de fission ou les actinides mineurs.

2.3 Déchets et matières valorisables

On peut lister les principales matières nucléaires issues de la production d'électricité :

- uranium appauvri : issu du processus d'enrichissement de l'uranium naturel, et pour une moindre mesure de l'uranium de retraitement
- combustibles UOX non retraités : 20% environ des combustibles UOX usés ne sont pas retraités et sont entreposés en attente. Comme ils contiennent du plutonium, ils sont considérés comme matière valorisable
- combustibles MOX usés : tous les combustibles MOX sont entreposés « tels quels » sans retraitement, et considérés comme matière valorisable
- verres (déchets C) : les produits de fission et actinides contenus dans les UOX retraités sont vitrifiés ensemble et constituent les déchets de haute activité à vie longue (HAVL)
- déchets B : les coques et embouts issus du retraitement des combustibles UOX sont compactés et forment les déchets de moyenne activité à vie longue. Les volumes sont plus importants que le HAVL, mais leur radioactivité est bien moindre (environ 2% de celle des HAVL).

Une autre façon de présenter ces données est de se placer du point de vue des véritables déchets, c'est-à-dire les produits de fission et les actinides mineurs :

- produits de fission non volatiles : 70% vitrifiés (UOX), 30% entreposés (MOX usés et UOX non retraités)

- actinides mineurs : 35% vitrifiés (provenant des UOX), 65% entreposés (MOX usés et UOX non retraités)

On s'aperçoit donc que du point de vue des matières non valorisables, seule une partie est considérée comme déchet, du fait de la stratégie de retraitement incomplète. Pour les actinides mineurs, qui ont une radioactivité et une radiotoxicité beaucoup plus importante sur le long terme que les produits de fission, seuls 30% sont gérés en tant que déchets, le reste étant entreposé dans les MOX usés. La terminologie de « déchets » et de « matière valorisable » prête donc à confusion. Bien entendu, le plutonium joue un rôle clé dans cette terminologie. Nous reviendrons longuement sur le rôle que peut jouer le plutonium dans le futur, et sur la justification de son classement comme « valorisable ».

3 Le potentiel de production des filières actuelles

Nous discutons ici du potentiel de production des filières utilisées actuellement, en détaillant leur consommation en uranium naturel et les points qui peuvent être optimisés sans modification majeure des réacteurs.

3.1 L'uranium enrichi

Entretenir une réaction en chaîne avec de l'uranium naturel ou faiblement enrichi en 235 U nécessite de disposer de neutrons de faible énergie. En effet, en dessous d'un eV d'énergie, la fission de l²³⁵U est fortement favorisée par rapport à la capture sur ²³⁸U, et même si ce dernier est présent en bien plus grande quantité, la forte section efficace de fission de l'²³⁵U est suffisante pour assurer le maintien de la réaction en chaîne. Il est donc nécessaire de ralentir les neutrons, produits aux alentours de 2 MeV, à des énergies thermiques, de l'ordre de 0,025 eV. Si l'on souhaite utiliser de l'uranium naturel, il faut un modérateur efficace et très peu capturant, comme le graphite et l'eau lourde. L'utilisation de l'eau légère demande un enrichissement du combustible en ²³⁵U afin de compenser les pertes parasites par capture neutronique sur l'hydrogène. Le degré d'enrichissement est choisi afin de pouvoir laisser le combustible plusieurs années dans le réacteur. Il était au début de l'ordre de 2,5%, et atteint 3,7% aujourd'hui. Les réacteurs de type EPR prévoient d'utiliser un uranium enrichi à 5 ou 6%.

Le processus d'enrichissement ne pouvant être parfait, on rejette une certaine quantité d'²³⁵U dans l'uranium appauvri. On peut calculer la masse d'uranium naturel M_{nat} nécessaire pour produite une masse M_{enr} d'uranium enrichi :

$$\frac{\mathsf{M}_{\mathsf{nat}}}{\mathsf{M}_{\mathsf{enr}}} = \frac{\mathsf{x}_{\mathsf{enr}} - \mathsf{x}_{\mathsf{app}}}{\mathsf{x}_{\mathsf{nat}} - \mathsf{x}_{\mathsf{app}}}$$

Avec x_{nat} la proportion d'²³⁵U dans l'uranium naturel ($x_{nat} = 0,72\%$), x_{enr} la proportion d'²³⁵U dans l'uranium enrichi et x_{app} la proportion d'²³⁵U dans l'uranium appauvri.

La technique utilisée actuellement, notamment en France, est celle de la diffusion gazeuse. Elle consiste à faire passer un gaz d'uranium (UF₆) à travers des membranes ; l'uranium le plus léger diffusant plus rapidement, le gaz sortant est légèrement enrichi en ²³⁵U. En répétant cette opération un grand nombre de fois, on peut ainsi enrichir l'uranium naturel à des teneurs de l'ordre de 3 à 5% en ²³⁵U. Le taux de rejet de l'²³⁵U dans l'uranium appauvri est de l'ordre de 0,25%. Cette technique consomme énormément d'énergie : en France, deux réacteurs nucléaires sont dédiés à l'alimentation de l'usine Eurodiff, qui assure la production d'uranium enrichi pour le parc français. Avec $x_{app} = 0,2\%$ et $x_{enr} = 3,7\%$, la formule précédente donne $M_{nat} = 7 M_{enr}$. Ainsi on extrait 7 fois plus d'uranium naturel que la masse de combustible nécessaire à alimenter les réacteurs REP.

Plus l'uranium naturel est cher, plus on a tendance à « mieux » l'enrichir, c'est-à-dire diminuer le taux $d^{235}U$ dans l'uranium appauvri. Dans le futur, la technique de l'ultracentrifugation est amenée à remplacer la technique de diffusion gazeuse. Elle permet de réduire considérablement la consommation d'énergie : moins de 100 kWh pour produire 1 kg d'uranium enrichi à 3% contre 9500 kWh pour la technique à diffusion gazeuse.

Réduire le taux de rejet de l'²³⁵U dans l'uranium appauvri de 0,25% à 0,1% permet d'économiser 20% des ressources en uranium naturel, puisqu'on a alors $M_{nat} = 5,7 M_{enr}$.

3.2 La masse de combustible nécessaire

Lors du fonctionnement du réacteur, la puissance est maintenue à peu près constante. Elle peut varier selon la demande ; elle est par exemple plus faible en été qu'en hiver. Raisonnons à puissance fixée. La puissance correspond au nombre de fissions par seconde, multiplié par l'énergie délivrée par chaque fission. On a donc :

$$P_{th} = \sum_i N_i \sigma_i^{fis} \ \varphi \epsilon_f$$

où P_{th} est la puissance thermique du cœur, N_i le nombre de noyau de l'espèce i dans le cœur, σ_i^{fis} sa section efficace moyenne de fission, φ le flux neutronique moyen dans le cœur, et ε_f l'énergie délivrée par fission ($\varepsilon_f \approx 200 \text{ MeV}$). En raisonnant pour 1 cm³ de combustible, on a :

$$p_{th} = \sum_i n_i \sigma_i^{fis} \varphi \, \epsilon_f$$

où p_{th} est la puissance émise par un cm³ de combustible. Dans la pratique, on sait extraire une certaine quantité de chaleur de 1 cm³. Cette valeur dépend du caloporteur, de sa capacité calorifique, de sa vitesse d'écoulement le long des barreaux de combustibles, de sa pression, de sa température, etc... La température de sortie est la plus haute possible afin d'avoir un rendement thermique le meilleur possible, mais il est limité par des contraintes technologiques. En particulier pour l'eau, monter sa température lorsqu'elle est liquide impose des pressions élevées. La fiabilité de la tenue des systèmes utilisés est au cœur de la sûreté des réacteurs, et limite ainsi la température de sortie maximale admissible. On voit donc que la densité de puissance thermique admissible dans le cœur dépend de très nombreux paramètres. Elle est de l'ordre de 330 W/cm² dans les réacteurs français de type REP, et peut atteindre 500 W/cm³ dans un réacteur refroidi au sodium.

Connaissant le nombre de noyaux fissiles (via la densité du combustible), leur section efficace moyenne de fission, et l'énergie délivrée par une fission, on peut ainsi calculer le flux neutronique dans le cœur :

$$\varphi = \frac{p_{th}}{\displaystyle \sum_{i} n_{i} \sigma_{i}^{fis} \ \epsilon_{f}}$$

La densité de l'oxyde d'uranium étant de 10 g/cm³ environ, on obtient un flux de l'ordre de quelques 10^{14} n/cm²/s.

La densité de puissance thermique de 330 W/cm³ de combustible permet également de calculer l'inventaire initial nécessaire pour faire fonctionner le réacteur. On a :

$$V_{comb} = \frac{P_{th}}{p_{th}}$$

Et

 $M_{comb} = V_{comb} \ d_{comb} = \frac{P_{th}}{p_{th}} \ d_{comb}$

Cela donne environ 80 tonnes pour un réacteur de 1 GWe.

Enfin, la masse de matière fissionnée chaque année par un réacteur de puissance électrique P_e vaut :

$$M_{\rm fis} = \frac{P_{\rm e}}{\eta_{\rm th} \varepsilon_{\rm f}} \frac{M_{\rm mol}}{N_{\rm av}}$$

où η_{th} est le rendement thermique de l'installation, M_{mol} la masse molaire du combustible et N_{av} le nombre d'Avogadro. On calcule ainsi qu'un REP fissionne environ 1 tonne de matière pour produire une puissance de 1GWe pendant 1 an.

On constate donc d'après les calculs précédents que 80 tonnes de combustible à uranium enrichi permet de faire fissionner 3 tonnes de matière, puisqu'il reste environ 3 ans en cœur. L'uranium enrichi est donc utilisé à 3/80 = 3.75%. Cela est dû au fait que ce combustible contient essentiellement de l'²³⁸U qui fissionne très peu dans un réacteur à neutrons thermiques, comme les réacteurs REP.

3.3 Le retraitement

	t=0	t=3 ans
²³⁸ U	26328	25655
²³⁵ U	954	280
²³⁶ U	-	111
²³⁹ Pu	-	156
Pu tot	-	266
Am, Cm	-	20
PF vie moyenne 137 Cs, 90 Sr (≈ 30 ans)	-	43
PF vie longue $(\approx 10^{5-6} \text{ ans})$	-	63
PF total	-	946

A l'issue d'un premier passage en REP, le combustible à la composition

Deux éléments contiennent un potentiel énergétique non négligeable : l'uranium et le plutonium. L'uranium contient encore plus de 1% d'²³⁵U, c'est-à-dire plus que l'uranium naturel. Il peut donc être ré-enrichi. En France, près de 30% de l'uranium irradié est ré-enrichi et alimente deux tranches, soit 3% environ du parc. Retraiter et ré-enrichir tout l'uranium irradié des centrales permettrait donc d'économiser environ 10% d'uranium naturel.
Le plutonium quant à lui est essentiellement composé de ²³⁹Pu, qui est fissile. Il peut donc jouer le rôle de l'²³⁵U dans le réacteur. En France, environ 80% du plutonium est recyclé sous forme de combustible MOX.

Malheureusement, le ²³⁹Pu n'est pas un fissile de très grande qualité en spectre de neutrons thermiques : sa section efficace de capture est très importante, environ 50% de sa section efficace de fission. Ainsi la production de ²⁴⁰Pu est élevée, et le ²⁴⁰Pu peut dégrader sensiblement le fonctionnement du réacteur. En effet, le ²⁴⁰Pu n'est pas un noyau fissile, mais son seuil de fission est assez bas, ainsi le coefficient de vide peut vite devenir positif lorsque le ²⁴⁰Pu est présent en quantité notable dans le cœur. Cet effet limite considérablement le potentiel énergétique du recyclage du plutonium dans les réacteurs à spectre thermique.

3.4 Optimisations possibles

D'après les calculs précédents, on peut dresser le tableau suivant :

	Consommation pour 1GWe.an	
U fissionné	1 tonne	
U enrichi	27 tonnes	
U naturel	180 tonnes	

On obtient donc un taux d'utilisation global du minerai de 1/180 = 0,55%.

La filière des réacteurs à eau peut bien entendu être optimisée :

- le taux d'²³⁵U dans l'uranium appauvri peut être réduit, notamment grâce à la technique de l'ultracentrifugation; atteindre un taux de rejet de 0,1% permet d'économiser environ 20% sur la consommation en uranium naturel.
- Le recyclage de tout le plutonium permet d'économiser 10% des ressources en uranium naturel, sans modification de technologie.
- Le ré-enrichissement de tout l'uranium irradié représente également une économie de 10% sur la consommation de l'uranium naturel.
- Multirecycler tout le plutonium ne permet pas d'augmenter sensiblement le potentiel énergétique du combustible irradié. L'accumulation d'isotopes non fissiles du plutonium, importante en spectre thermique, n'est pas favorable. L'économie peut atteindre 15% en modifiant la géométrie du cœur du réacteur. Il faut par exemple réduire la quantité de modérateur (réacteurs sous modérés) pour éviter au maximum l'empoisonnement du cœur par les isotopes non fissiles et les produits de fission.
- D'autres solutions encore : on peut également enrichir l'uranium appauvri accumulé depuis le début de l'industrie nucléaire (près de 200000 tonnes en France), qui contient encore de l'²³⁵U parfois en quantité non négligeable. On peut également envisager d'augmenter le rendement des installations en augmentant la pression et donc la température de sortie de l'eau du cœur.

La somme de toutes ces mesures permettrait d'atteindre des consommations d'uranium naturel de l'ordre de 100 tonnes/GWe/an, soit environ 2 fois moins qu'aujourd'hui.

3.5 Réserves d'uranium et potentiel de production

Il existe beaucoup d'incertitudes sur les réserves en uranium. Les réserves prouvées d'uranium sont de l'ordre de 4 millions de tonnes (Mt). Les estimations des réserves terrestres ultimes en uranium sont de l'ordre de 16 à 23 Mt, selon les études. Il existe bien 3Gt d'uranium dissous dans les océans, mais l'extraction de cette ressource semble totalement irréaliste aujourd'hui.



En fait, ces chiffres dépendent fortement du prix maximum envisagé de l'uranium. Ce prix limite envisagé est fixé aujourd'hui à 400 kg (le prix actuel de la livre d'U₃O₈ est de 40\$). Pour fixer ce prix limite il faut tenir compte du fait qu'il existe des technologies qui permettent de consommer 100 fois moins d'uranium que les réacteurs actuels. Ces filières sont plus chères à construire, mais une fois construites, le prix du combustible uranium est négligeable. Afin de fixer des limites aux ressources d'uranium, il faut donc tenir compte du fait que si l'uranium devient très cher, ces technologies (décrites par la suite) deviennent compétitives. Notons qu'aujourd'hui, le prix de l'uranium naturel représente environ 4% du prix de revient final du kWh nucléaire.

Les ressources ultimes en uranium sont donc difficiles à quantifier, puisqu'elles dépendent évidemment de la quantité d'uranium que l'on saura extraire à un prix donné, mais également du prix de revient des différentes filières de réacteurs. Ce seuil est délicat à déterminer, du fait de progrès éventuels de la technologie de l'extraction, du manque de prospection - jusqu'à récemment - de gisements d'uranium, du coût (encore inconnu) des différents réacteurs régénérateurs envisagés, enfin de contraintes macroéconomiques et géopolitiques. Aujourd'hui, le prix limite d'extraction, auquel les technologies surgénératrices deviennent compétitives est estimé à 400 \$/kg, soit 10 fois plus qu'aujourd'hui. Cela correspond selon les sources à des ressources ultimes en minerai d'uranium de 16 à 23 millions de tonnes.

D'après ce qui vient d'être discuté, on peut tracer le tableau suivant :

Draduction nucléaire mondiale	285 GWe		
	(équivalent pleine puissance)		
Consommation mondiale d'U nat	60000 t/an		
Réserves U (RRA+RSE+spéculatives)	16-23 millions de tonnes		
Potentiel de production			
- au taux actuel (et utilisation actuelle de U)	280-400 ans		
- scénario « nucléaire x 10 » et optimisation de	- 50 80 and		
l'utilisation de l'U naturel en REP	$\approx 30 - 80$ ans		

Note : RRA : ressources raisonnablement assurée, RSE : ressources supplémentaires estimées.

On constate donc que les filières actuelles ne sont pas durables si le nucléaire est amené à jouer un rôle important dans le futur. A l'inverse, si cette énergie stagne dans le siècle à venir, ou si sa production est multiplié par seulement 2, les ressources en uranium semblent suffisante pour assurer une production d'énergie pour quelques siècles.

La situation actuelle semble annoncer une reprise importante du nucléaire dans le monde, dans le but de remplacer une partie des énergies fossiles (ressources limitées et lutte contre l'émission de gaz à effet de serre). Certains scénarios prévoient une multiplication par 8 du nucléaire dans les 50 ans qui viennent. Ce chiffre peut sembler énorme, mais dans ce cas, le nucléaire ne représenterait « que » 20% de l'énergie dans le monde, et le problème des ressources en fossiles et de l'effet de serre ne seraient pas encore réglés. Dans ce type de scénario, les tensions sur les ressources en uranium apparaîtraient avant 2050. C'est pourquoi de nombreux pays étudient aujourd'hui de nouvelles technologies, dites surgénératrices, permettant de réduire d'un facteur 100 la consommation d'uranium (par unité d'énergie produite). Ces technologies font appel à la régénération, que nous abordons maintenant.

4 Nucléaire durable : la régénération

4.1 Principe de base

Le but de la régénération est d'utiliser au mieux la matière naturelle disponible, c'est-à-dire l'uranium, ou même le thorium. L'²³⁸U et le ²³²Th sont les deux actinides les plus abondants, mais comme ils ont un nombre pair de neutrons, ils fissionnent très difficilement lorsqu'ils sont soumis à un flux de neutrons issus de fission de noyaux lourds. Lorsqu'ils absorbent un neutron, ils le capturent, et produisent ainsi un nouveau noyau. Dans les deux cas (²³⁸U et ²³²Th), le noyau produit est fissile. On qualifie donc l'²³⁸U et le ²³²Th de *noyaux fertiles* :

 $^{238}\text{U} + \text{n} \rightarrow ^{239}\text{U} \rightarrow ^{239}\text{Np} \rightarrow ^{239}\text{Pu}$ $^{232}\text{Th} + \text{n} \rightarrow ^{233}\text{Th} \rightarrow ^{233}\text{Pa} \rightarrow ^{233}\text{U}$

Dans les deux cas, la capture d'un neutron est suivie de deux décroissances β^{-} de relativement courte période (la plus longue est celle du ²³³Pa : 27 jours). Dans ce qui suit, on oubliera donc ces noyaux intermédiaires, pour écrire simplement que la capture d'un neutron sur l'²³⁸U produit un ²³⁹Pu, et une capture sur le ²³²Th produit un noyau d'²³³U.

Considérons maintenant un réacteur composé de ²³⁸U et de ²³⁹Pu. Le ²³⁹Pu fissionne et produit ainsi de l'énergie. Son stock a donc tendance à diminuer puisqu'il disparaît par fission et capture. Si on s'arrange pour que chaque noyau de ²³⁹Pu disparu soit remplacé par un nouveau noyau de ²³⁹Pu produit par la capture d'un neutron par un noyau de ²³⁸U, on dit que le réacteur est régénérateur ou iso-générateur.

Dans le cas d'un réacteur iso-générateur, la masse de matière fissile est constante dans le cœur, et seule la matière fertile diminue. Ainsi, chaque fission qui a lieu dans le réacteur provient d'un noyau de fertile (non fissile) qui aura auparavant capturé un neutron pour produire un noyau fissile. On ne consomme donc que de la matière fertile. Cela permet d'optimiser l'utilisation du minerai d'uranium naturel, puisque tout l'²³⁸U est utilisé pour

produire de l'énergie, alors que jusqu'à maintenant on n'utilisait que l'isotope fissile de l'uranium (235 U : 0,7% de l'uranium naturel).

La régénération permet donc d'extraire d'une masse donnée d'uranium naturel, 200 fois plus d'énergie que les filières actuelles. Les réserves prouvées d'uranium (et aussi de thorium) permettant alors d'envisager une production d'énergie nucléaire massive et durable sur plusieurs dizaines de milliers d'années. Mais comme on va le voir la régénération n'est pas toujours possible, d'ailleurs, les réacteurs actuels sont incapables de régénérer leur matière fissile.

4.2 Les neutrons disponibles

Pour régénérer la matière fissile par capture d'un neutron sur la matière fertile, il faut disposer de suffisamment de neutrons. Jusqu'à présent, les neutrons ne servaient qu'à induire une fission, qui créait à sont tour des neutrons, et la réaction en chaîne pouvait se maintenir d'ellemême. Chaque fission émet environ 3 neutrons, et sur ces 3 neutrons, il suffisait qu'un seul induise une fission pour maintenir la réaction en chaîne, les 2 autres pouvant être perdus.

Afin de régénérer la matière fissile, il faut maintenant que les 2 autres neutrons fassent des choses particulières. Considérons un réacteur composé d'un combustible 238 U/ 239 Pu et raisonnons pour une fission induite dans le cœur du réacteur. Le nombre de neutrons produits est noté v. On calcule maintenant le nombre de neutrons consommés pour à la fois maintenir la réaction en chaîne et régénérer la matière fissile.

- tout d'abord le maintien de la réaction en chaîne impose qu'une fission induise une autre fission. Comme on raisonne pour une fission, le nombre de neutron consommé pour maintenir la réaction en chaîne est 1.

- pour calculer le nombre de neutrons consommés pour régénérer la matière fissile, il nous faut d'abord calculer le nombre de noyaux fissiles perdus. Ce nombre ne vaut pas 1, car le noyau fissile ne fait pas que fissionner. Il peut en effet capturer le neutron. Comme on raisonne pour une fission du ²³⁹Pu, le nombre de neutron capturé par capture sur le ²³⁹Pu est le $\sigma_{cap}^{fissile}$

rapport des probabilités de fission et de capture de ce noyau, soit $\frac{\sigma_{cap}^{fissile}}{\sigma_{fis}^{fissile}}$, rapport que l'on

notera α . Pour une fission, on perd donc un peu plus que 1 noyau fissile, on en perd 1+ α . Le terme α dépend bien entendu du noyau fissile considéré (²³⁹Pu ou ²³³U), et aussi du spectre neutronique, puisque les sections efficaces sont des sections efficaces moyennées sur un spectre de neutrons. Comme on perd 1+ α noyaux fissiles, il faut les régénérer, ce qui demande à consommer de nouveau 1+ α neutrons sur la matière fertile, afin de maintenir le nombre de noyaux fissiles constant.

Récapitulons :

- production de neutrons : v
- consommation de neutrons :
 - 1 : un neutron induit une fission du ²³⁹Pu pour maintenir la réaction en chaîne.
 - α : nombre de neutrons capturés sur le ²³⁹Pu sans induire de fission

 $(1+\alpha)$: nombre de neutrons capturés sur la matière fertile pour régénérer les $1+\alpha$ noyaux fissiles disparus

Au total, on consomme donc $2(1+\alpha)$ neutrons.

On distingue donc trois cas :

 $v < 2(1+\alpha)$: le système est sous générateur, c'est-à-dire que la fission ne produit pas assez de neutrons pour à la fois maintenir la réaction en chaîne et régénérer la matière fissile

 $v = 2(1+\alpha)$: le système est iso-générateur : on a juste assez de neutrons pour régénérer la matière fissile et maintenir la réaction en chaîne

 $v > 2(1+\alpha)$: le système est surgénérateur, il a des neutrons disponibles après avoir maintenu la réaction en chaîne et régénéré la matière fissile. Ces neutrons disponibles peuvent être utilisés pour différentes choses, notamment pour produire plus de matière fissile que ce qui est consommée, afin de déployer une filière de réacteur.

Il s'agit ici d'un calcul simplifié, mais, les valeurs données par le terme $v - 2(1+\alpha)$ permettent de déterminer si un système peut être régénérateur ou non. Dans la pratique, on a toujours des pertes de neutrons (fuites ou captures parasites sur les matériaux de structure), ainsi pour qu'un système puisse être régénérateur, il faut absolument que ce coefficient $v - 2(1+\alpha)$ soit largement positif.

On appelle souvent ce terme le nombre de neutrons disponibles, puisque ce sont des neutrons disponibles pour faire autre chose que le maintien de la réaction en chaîne et la régénération de la matière fissile. On note donc :

 $N_d = v - 2(1+\alpha)$

Ce terme ne dépend que des propriétés de la matière fissile, c'est-à-dire ²³⁹Pu ou ²³³U, et ne dépend pas des propriétés de la matière fertile. On peut tracer ce terme en fonction de l'énergie du neutron incident, à partir des sections efficaces de capture et de fission du noyau fissile du cycle. On constate sur cette figure que pour le cycle uranium, seul le spectre rapide de neutron permet d'atteindre la régénération. En spectre thermique en effet, le nombre de neutrons disponible est clairement négatif, ce qui est du à une forte résonnance dans la section efficace de



capture du ²³⁹Pu au niveau de la bosse thermique. Pour le cycle thorium en revanche, le nombre de neutrons disponibles est relativement constant sur toute la gamme d'énergie, ce qui signifie que la régénération est théoriquement possible en spectre thermique ou rapide. En rapide, le nombre de neutrons disponibles est moins élevé que pour le cycle uranium, et nous

verrons que la régénération est difficile à obtenir en spectre thermique, du fait d'un empoisonnement rapide du réacteur par les produits de fission et le ²³³Pa.

4.3 L'inventaire de matière fissile

L'inventaire de matière fissile d'un réacteur régénérateur est un paramètre très important puisqu'il s'agit de la masse de matière fissile dont il faut disposer pour démarrer le réacteur. Il est donc le paramètre clé pour les études de scénarios. Pour les réacteurs à combustible solide, il faut prendre en compte la masse de matière fissile dans le cœur du réacteur, et prendre en compte le fait que ce cœur doit régulièrement être recyclé, et qu'il passe pour cela un certain temps dans une usine de retraitement, pendant lequel il n'est pas utilisé pour produire de l'énergie. Nous présentons ici un calcul simplifié de l'inventaire total de matière fissile.

4.3.1 L'inventaire en cœur

L'inventaire en cœur de matière fissile, noté I_c , est la masse de matière fissile nécessaire pour démarrer un cœur de réacteur régénérateur. On le normalise par GWe. On peut l'écrire :

$$I_c = M_{comb}C_{fis}$$

Avec M_{comb} la masse totale de combustible (toujours pour 1GWe) et C_{fis} la concentration de fissile dans le combustible :

$$C_{fis} = \frac{N_{fis}}{N_{fis} + N_{fer}}$$

La masse totale de combustible M_{comb} dépend principalement de la densité du combustible et de la quantité de chaleur que l'on sait extraire d'un volume donné de combustible. Comme on raisonne pour 1 GWe,on peut écrire :

$$P_{th} = \rho_{th} \; V_{comb} = \rho_{th} \; \frac{M_{comb}}{d_{comb}}$$

où V_{comb} est le volume total de combustible, ρ_{th} la densité de puissance (W_{th}/cm^3 de combustible) et d_{comb} la masse volumique du combustible (g/cm³). On obtient donc :

$$M_{\text{comb}} = \frac{P_{th}}{\rho_{th}} d_{comb} = \frac{P_{e}}{\eta_{th}\rho_{th}} d_{comb}$$

Avec $P_e = 1$ GWe la puissance électrique du réacteur, et η_{th} le rendement thermique de l'installation. Rappelons que la densité de puissance ρ_{th} est déterminée par des considérations de thermo-hydraulique, elle dépend des propriétés du caloporteur, de sa vitesse dans le cœur du réacteur, qui elle-même peut dépendre de la résistance à l'érosion des matériaux entourant le combustible (gaines). Le combustible est mis sous une forme qui résiste à des hautes températures ; c'est la raison pour laquelle on utilise aujourd'hui de l'uranium sous forme d'oxyde alors que l'uranium métallique a une densité beaucoup plus élevée (environ 19 g/cm³) et une température de fusion beaucoup plus basse. Enfin, le rendement η_{th} dépend essentiellement de la température de sortie du caloporteur ; pour l'eau dans les REP elle est de

270°C environ, mais pour le sodium elle peut être plus élevée (500°C), ce qui fait passer le rendement thermique de 33 à 40% environ. L'utilisation du gaz (He) à haute ou très haute température (800 à 1000 °C) peut laisser envisager des rendements de l'ordre de 50%.

Pour un réacteur refroidi au sodium de type Superphénix, la densité de puissance moyenne atteint 500 W/cm³, et le rendement 40%. Le combustible est un oxyde mixte d'uranium et de plutonium de densité 10 g/cm³. On obtient donc une masse totale de combustible dans le cœur du réacteur de $M_{comb} = 10^9 \times 10 \ 10^{-6} / 0.4 / 500 = 50 t/GWe$.

La masse totale de combustible n'est pas le paramètre le plus pertinent, la matière première (uranium naturel) étant disponible et peu chère. Le facteur important est la masse de matière fissile dans le cœur, c'est-à-dire ici le plutonium ; c'est en effet une matière non naturelle, produite par les réacteurs actuels, dont les stocks sont limités. Il est donc important de connaître la masse nécessaire qu'il faut accumuler avant de pouvoir démarrer un réacteur. Pour faire ce calcul, nous supposons que la condition de régénération est assurée, et que l'on a construit un réacteur exactement régénérateur (N_d = 0). Si la matière fissile est régénérée parfaitement, on peut écrire que le nombre de capture sur le fertile par unité de temps compense exactement le nombre d'absorption (capture et fission) sur le fissile par unité de temps. Cela s'écrit :

$$N_{\textit{fertile}}\sigma_{\textit{fertile}}^{\textit{capture}} \phi = N_{\textit{fissile}} (\sigma_{\textit{fissile}}^{\textit{capture}} + \sigma_{\textit{fissile}}^{\textit{fission}})\phi$$

Et on obtient :

$$C_{fis} = \frac{\sigma_{fertile}^{capture}}{\sigma_{fertile}^{capture} + \sigma_{fissile}^{capture} + \sigma_{fissile}^{fission}}$$

Cette formule donne la concentration fissile/fertile correspondant à la régénération. La concentration C_{fis} dépend donc uniquement des sections efficaces moyennes des noyaux fertile et fissile. Ces sections efficaces moyennes dépendent du spectre de neutrons, et donc de tout l'environnement du combustible (gaines, caloporteur, etc...). Le tableau suivant donne les valeurs de ces sections efficaces moyennes obtenues dans un réacteur à neutron rapide refroidi au sodium, de type Superphénix, on obtient une concentration en matière fissile de l'ordre de 13%.

	σ^{cap} fertile	σ^{cap} fissile	σ^{fis} fissile	c (%)
U/Pu rapide	0.3	0.5	1.85	13

On peut tracer le terme C_{fis} comme une fonction de l'énergie du neutron incident, puisqu'il s'agit simplement d'un rapport de sections efficaces, et ceci pour les deux cycles possibles, uranium et thorium. On constate immédiatement que le thorium, qui permet d'atteindre la régénération en spectre thermique, bénéficiera d'un inventaire en cœur plus faible puisque la concentration fissile/fertile est de l'ordre de 1,5% contre 13% en spectre rapide. Bien entendu, il faut prendre tous les autres paramètres en compte



pour comparer précisément les deux cycles uranium et thorium, mais il s'agit ici d'un avantage intrinsèque au cycle thorium.

4.3.2 L'inventaire total de matière fissile

Il faut maintenant tenir compte du retraitement du combustible. En effet, lorsqu'on laisse le combustible en cœur, la masse de matière fissile reste constante, mais la matière fertile disparaît petit à petit, et les produits de fission s'accumulent dans le réacteur. De plus, les matériaux de structure sont irradiés de neutrons, et perdent petit à petit leurs propriétés mécaniques. Il faut donc régulièrement retraiter le combustible. Le retraitement consiste à extraire les produits de fission et remplacer la matière fertile consommée. De plus, on change les gaines du combustible. Pendant qu'un cœur de réacteur est retraité, il ne peut être utilisé pour produire de l'énergie. Il faut donc bien prendre en compte ce paramètre pour calculer l'inventaire total de matière fissile nécessaire au fonctionnement d'un réacteur de 1GWe, supposé fonctionner en continu. Pour cela on introduit T_{irr} et T_{ret}, respectivement les temps d'irradiation (production d'énergie) et de retraitement. Le temps de retraitement comprend un temps de refroidissement préalable du combustible, nécessaire afin de pouvoir intervenir dessus, un temps de retraitement proprement dit où les différentes matière sont séparées, et un temps pour fabriquer le nouveau combustible avec des gaines neuves. Typiquement, il faudra de 5 à 10 ans avec les techniques actuelles pour retraiter un combustible issu d'un réacteur à neutrons rapides (RNR), alors que le temps d'irradiation sera de l'ordre de 5 ans.

L'inventaire total de matière fissile s'écrit donc :

$$I_{tot} = I_c \frac{T_{irr} + T_{ret}}{T_{irr}}$$

Donc si on prend un temps de retraitement de 5 ans et un temps d'irradiation de 5 ans, il faudra 2 cœurs pour faire fonctionner un réacteur en continu. Ceci double donc l'inventaire total de matière fissile nécessaire pour démarrer un RNR.

Les concepts de RNR les plus aboutis aujourd'hui demandent un inventaire total de l'ordre de 10 à 12 tonnes de plutonium. Il s'agit de RNR refroidis au sodium, utilisant un combustible oxyde. Le type de retraitement envisagé est un retraitement par voie aqueuse, tel qu'il est pratiqué aujourd'hui à l'usine de La Hague pour retraiter les combustibles UOX des réacteurs REP. Les cycles d'irradiation seraient de 5 ans environ, et le temps de refroidissement nécessaire de 5 ans, et le temps de séparation/fabrication de 2 ans environ ; on aurait donc un temps de retraitement total T_{irr} de 7 ans environ. Réduire significativement ce temps de retraitement demanderait de pouvoir intervenir sur des combustibles plus chauds, ce qui est difficile avec les méthodes aqueuses actuelles. La voie de la pyrochimie, et de la pyrométallurgie est explorée, mais demande encore beaucoup d'effort avant d'atteindre la maturité industrielle.

Les RNR refroidis au plomb sont très semblables aux RNR sodium en termes d'inventaire de matière fissile. En revanche, les RNR refroidis au gaz présentent des différences notables. Le gaz pouvant extraire moins d'énergie thermique que le sodium (la quantité de matière au contact des barreaux de combustible est moins importante), la densité de puissance du réacteur (W/cm³ de combustible) est réduite. Mais le temps d'irradiation peut être allongé, et la température atteinte par le gaz en sortie de cœur peut être plus grande que celle atteinte par le sodium, le rendement thermique peut donc être amélioré ; ces deux paramètres tendent à

faire diminuer l'inventaire total de matière fissile par unité de puissance électrique. Enfin concernant le retraitement, il est aujourd'hui très difficile de répondre, puisque comme on l'a dit, le combustible, comme son retraitement, n'est pas défini. Mais pour atteindre des inventaires de l'ordre de 10 tonnes de plutonium par GWe, il faudra sans doute réduire considérablement le temps de retraitement, et donc imaginer des méthodes innovantes, par voie pyrochimique par exemple.

Le tableau suivant donne quelques ordres de grandeur pour comparer les concepts de RNR refroidis par métal liquide ou par gaz, en termes d'inventaires de matière fissile.

	Calopo	orteur	Caloporteur		
	Métal li	quide	Helium		
ρth (W/cm3)	50	0	200		
ηth	400	V0	50%		
dcomb (g/cm3)	10		10		
Cfis	0.13		0.13		
Icœur (tonnes)	6,5		13		
Tirr (années)	5 5		5	15	
Tret (années)	5	2	5	2	
Itotal (tonnes/GWe)	13 9		26	15	

Cette discussion s'applique bien entendu aux réacteurs à combustible solide, qui nécessite d'être retraité dans une usine. Dans le cas de réacteurs à sels fondus, que nous abordons dans la partie thorium, le combustible est retraité « en ligne », il existe donc une partie du cœur (1/3 environ) qui se trouve hors flux, dans les échangeurs de chaleur et dans l'usine de retraitement. Cette partie joue le rôle des assemblages combustibles solide en phase de retraitement puisqu'ils ne sont pas soumis à un flux de neutrons, et ne servent donc pas à produire de l'énergie. Le même type de calculs simplifiés peut donc être mené même pour des réacteurs à combustible liquide.

4.4 Le temps de doublement

Un RNR peut fonctionner en mode régénérateur, ou isogénérateur ; dans ce cas, sa masse de matière fissile est constante dans le cœur. Mais il peut également fonctionner en mode surgénérateur ; cela signifie que la masse de matière fissile augmente. Nous avons vu précédemment que le nombre de neutrons disponibles N_d était largement positif pour les réacteurs à neutrons rapides. Cela signifie donc que le mode surgénérateur est possible, il faut pour cela que ces neutrons disponibles soient capturés sur de l'²³⁸U pour produire plus de ²³⁹Pu que ce qui est consommé par fission. Concrètement, on entoure un cœur isogénérateur de couvertures contenant uniquement de l'²³⁸U. Ainsi, la plupart des neutrons qui auraient eu tendance à fuir hors du cœur sont capturés dans ces couvertures. Le plutonium ainsi produit ne sert pas au réacteur puisque le cœur sans couverture est isogénérateur. On retire donc régulièrement ces couvertures pour en extraire le plutonium et l'accumuler hors du réacteur. Au bout d'un certain temps, on en a accumulé suffisamment pour démarrer un nouveau réacteur. C'est ce que l'on appelle le temps de doublement : le temps au bout duquel un réacteur a surgénéré suffisamment de plutonium pour permettre le démarrage d'un nouveau réacteur.

Considérons que le nombre de neutrons disponibles et utilisés pour la surgénération est $N_{d\cdot}$ La masse totale de matière surgénérée chaque année est donc

 $M_{sur} = N_d F$

Où F est la masse de matière fissionnée chaque année et vaut : $\frac{P_e M_{mol}}{\eta_{th} \epsilon_e N_{av}} 3.14 \, 10^7$.

Raisonnons pour un RNR sodium de 1 GWe. Son rendement thermique est $\eta_{th} = 40\%$, il fissionne donc chaque année une masse de matière de : $10^9 \ge 0.239 \ge 3.14 \ 10^7 / (0.4 \ge 200 \ 10^6 \ge 1.6 \ 10^{-19}) = 977 \ \text{kg}$

Si on a $N_d = 0.3$, la masse de matière fissionnée est donc $M_{sur} = 977 \times 0.3 = 293 \text{ kg/an}$.

Le temps de doublement s'écrit :

 $T_{d} = \frac{I_{tot}}{M_{sur}}$

Et vaut dans le cas d'un RNR sodium $12000 / 293 \approx 40$ ans.

On constate donc qu'il faut environ 40 ans pour qu'un RNR surgénère suffisamment de matière pour permettre le démarrage d'un second RNR. Ce temps est du même ordre de grandeur que le temps qu'il faut à un REP ou un EPR pour produire l'inventaire total de plutonium d'un RNR.

Dans la pratique un parc de réacteurs est composé de plusieurs réacteurs, qui à un instant donné participent tous à la surgénération. Le premier réacteur peut être démarré à un temps T_d/N_r où N_r est le nombre de réacteur du parc. Ce nouveau réacteur participe alors à la surgénération. Ainsi le temps de doublement est diminué. On peut par exemple faire l'hypothèse d'un parc composé d'un nombre de réacteur très grand pour déterminer le temps de doublement minimum de la filière. Soit $N_r(t)$ le nombre de réacteur au temps t, I l'inventaire d'un réacteur et $x = M_{sur}/I_{tot}$ la fraction de fissile surgénérée par année. En un temps δt , on aura pu démarrer dNr réacteur avec :

$$dN_r = xN_r dt$$

Ce qui donne :

 $Nr(t) = N_r^0 exp(xt)$

Et on obtient un temps de doublement minimal noté $\,T_d^{\,\infty}\,$:

$$T_d^{\infty} = \frac{ln(2)}{x}$$

Il s'agit là du temps de doublement d'un parc constitué d'un grand nombre de RNR. Dans la pratique le temps de doublement réel sera donc toujours compris entre $T_d=I_{tot}/M_{sur}$ et $T_d^{\infty}=ln(2)T_d$.

5 Les réacteurs rapides

5.1 Les différents concepts

Le caloporteur de RNR doit être constitué d'un noyau lourd, il doit être liquide ou gazeux à des températures « accessibles » pour les matériaux que l'on connaît, il doit aussi capturer le moins de neutrons possible, et ne pas corroder les gaines de combustible. Les choix sont assez limités. Le meilleur candidat est aujourd'hui le sodium liquide. Dès les années 80, la France s'est lancée dans un programme d'un prototype industriel de RNR au sodium (Superphénix), les prévisions de l'époque envisageant une envolée des prix de l'uranium dès les années 2000.

Le sodium est un très bon caloporteur, en terme de capacité calorifique. Son principal problème est sa réaction explosive au contact de l'eau ou de l'air, qui oblige à mettre en place des dispositifs de sûreté très spécifiques.

A l'initiative des Etats-Unis, le Forum international Generation-IV mis en place en 2001 regroupe les experts des USA, du Royaume Uni, de la Suisse, de la Corée du Sud, de l'Union Sud-Africaine, du Japon, de la France, de l'Union européenne, du Canada, du Brésil et de l'Argentine. Il vise à identifier des systèmes déployables vers 2040 et satisfaisant aux critères de durabilité, d'économie, de sûreté et de résistance à la prolifération. Parmi les 6 réacteurs retenus, on retrouve trois concepts de RNR fonctionnant sur le cycle U/Pu.

De ces trois concepts régénérateurs, seule la technologie refroidie au sodium peut être considérée comme acquise, au niveau industriel. Elle souffre néanmoins d'une complexité due notamment à la grande quantité de sodium liquide présente dans les circuits de refroidissement primaire et secondaire. Concernant la sûreté du réacteur, le pilotage de ce type de machine est rendu délicat par des coefficients de vide des cœurs de grande taille qui peuvent être positifs, c'est-à-dire que la réactivité peut dans certains cas augmenter si le sodium quitte accidentellement le cœur. Le problème de la recompaction du cœur reste posé : si le cœur s'effondre sur lui-même, le système peut devenir surcritique et la réaction en chaîne peut s'emballer. D'autre part, cette technologie est rendue complexe et chère par les surcoûts inhérents à la technologie sodium. Des progrès restent donc à faire pour assurer une sûreté passive de ce type de réacteur et rendre cette technologie déployable rapidement à grande échelle.

Les RNR refroidis au gaz (de puissance comprise entre 600 et 2400 MWth), nécessitent de développer un combustible spécifique, compatible avec le refroidissement par du gaz à haute température et avec un spectre neutronique rapide. Le défi est d'arriver à un rendement thermodynamique atteignant 48%. Le type de combustible à particule retenu pour les concepts de réacteurs à gaz et à spectre thermique comporte du carbone et ralentit les neutrons. Ils ne peuvent donc être utilisés pour les concepts de réacteurs rapides refroidis au gaz. Il faudra donc rechercher des combustibles encore plus innovants, permettant d'atteindre de très hauts taux de combustion et résistants à l'irradiation jusqu'à des doses de 150 dpa (déplacements par atome), tout en assurant un confinement des produits de fission gazeux en situation accidentelle. Ces combustibles devront être également se prêter au recyclage. On peut envisager de remplacer les combustibles oxydes par des carbures (U, Pu) C ou des oxycarbures. Le combustible représente un verrou essentiel à lever pour les RNR gaz.

Le concept de refroidissement par du plomb (fondu à température voisine de 500°C) vient des réacteurs russes refroidis par l'eutectique plomb-bismuth ; son intérêt est la faible réactivité du caloporteur avec l'eau et l'air. Le métal fondu (dont la toxicité n'est pas à négliger) pose des problèmes considérables de corrosion avec les matériaux de structure, notamment au niveau de la cuve du réacteur qui doit résister pendant plusieurs années. Ceci pourrait être évité en particulier par un contrôle délicat de l'état physicochimique du caloporteur, que l'expérience MEGAPIE (PSI, Zurich) a permis de développer. Le combustible lui-même (métal, nitrures), de même que son cycle, sont à concevoir. Les problèmes de thermohydraulique sont considérables et l'inspection en service reste à développer. Des progrès significatifs dans la résistance aux matériaux doivent être obtenus pour rendre cette technologie utilisable à grande échelle au niveau mondial.

5.2 Le déploiement des RNR

Les calculs que nous venons d'effectuer montrent qu'il faut disposer d'une certaine quantité de plutonium pour démarrer des RNR régénérateurs. Si on se base sur l'exemple concret de RNR refroidis au sodium, il faut compter environ 12 tonnes de plutonium pour un réacteur de 1 GWe. Considérons le cas français, cela correspond à environ 12 x 60 = 720 tonnes de plutonium, si tout le parc français était constitué de RNR au sodium. La production de plutonium par les combustibles UOX est de l'ordre de 250 kg/(GWe.an), soit environ 250 x 60 = 15 tonnes par an pour le parc français. Il faut donc faire fonctionner le parc actuel pendant 720 / 15 \approx 50 ans avant de pouvoir effectuer une transition complète vers des RNR. Bien entendu, la transition ne peut être brutale, puisque les réacteurs REP ne s'arrêteront pas tous la même année, mais cela montre que chaque réacteur REP, de durée de vie de 40 à 50 ans, devra fonctionner entièrement avant d'avoir produit suffisamment de plutonium pour démarrer un RNR de même puissance.

Il faut également prendre en compte le fait que le plutonium est recyclé une fois en combustible MOX, ce qui le dégrade (les isotopes fissiles sont consommés). Il est donc probable que le parc français actuel, prévue pour 40 ans environ, soit insuffisant pour assurer une transition directe vers un parc semblable de RNR. Il faudra donc construire des nouveaux réacteurs de types REP (comme l'EPR), produisant du plutonium à partir d'uranium enrichi, afin d'accumuler suffisamment de plutonium pour un parc de 60 GWe de RNR.

Il s'agit ici d'ordres de grandeurs, mais il existe des programmes informatiques qui permettent d'étudier dans le détail les scénarios de transition entre les réacteurs actuels et les RNR régénérateurs. La figure ci-contre montre un exemple de ce type de scénario calculé dans



le détail. Il s'agit du parc français, considéré à puissance constante (60 GWe), où l'on considère que le parc actuel s'arrête entre 2020 et 2050 à hauteur de 2 GWe installé chaque année. Dans un premier temps, les réacteurs REP sont remplacés par des réacteurs de type EPR (European Pressurized Reactor), d'une durée de vie de 60 ans. Le concept EPR est une évolution du concept REP, et fonctionne sur le même principe (combustible UOX, refroidi à l'eau légère sous pression).

Entre 2035 et 2050, les REP qui s'arrêtent de fonctionner sont remplacés par des RNR régénérateurs, utilisant le plutonium issu des REP et EPR. A partie de 2080, les premiers EPR s'arrêtent de fonctionner, ils sont alors remplacés par des RNR. La fin de la transition apparaît donc en 2115, une fois que tous les réacteurs fonctionnant à l'uranium enrichi sont remplacés par des RNR régénérateurs. On constate ici que le déploiement de nouveaux réacteurs nucléaires durables est une entreprise de long terme. Cela est du au fait que la durée de vie des réacteurs est longue (60 ans pour les EPR), et que la masse de plutonium nécessaire au démarrage d'un RNR est importante (50 ans de fonctionnement d'un REP ou EPR). Il s'agit du scénario français de référence, très largement étudié, même si beaucoup le considère comme trop volontariste du point de vue de la date de déploiement des RNR.

La figure suivante montre un calcul précis de scénario (EDF), qui permet de suivre année après année la masse totale de plutonium présent dans le cycle, c'est-à-dire en réacteur et en usine de retraitement. Dans le cas de la transition REP \rightarrow RNR, l'inventaire total atteint 800 tonnes en 2080, et continue à croître légèrement. On constate également sur cette figure que si l'on n'a pas recours aux RNR régénérateurs, le plutonium peut être recyclé et stabilisé en REP pour atteindre une valeur d'équilibre d'environ 450 tonnes dès 2050. Cela contredit l'idée souvent répandue que l'on a besoin des RNR pour fermer le cycle du plutonium, alors qu'il s'agit bien de l'inverse : on a besoin du plutonium pour démarrer les RNR.



Masse de plutonium en fonction de divers scénarios réf M. Debes, EDF, journées SFEN, Mars 2006

6 La voie plus innovante du cycle thorium

6.1 Généralités sur le thorium

Le cycle du thorium a été étudié dès le début de l'industrie nucléaire. Le fait qu'il n'y ait pas d'isotope fissile dans le minerai explique qu'il n'est pas exploité aujourd'hui. Néanmoins, très vite le sujet de la régénération a été étudié, et les propriétés intéressantes du thorium ont conduit à des études approfondies et des expériences grandeur nature.

Le réacteur de Shippingport

Il s'agit d'un réacteur à eau sous pression. Durant la dernière phase d'opération, le cœur a été adapté pour utiliser un combustible Th/²³³U, ce qui a permis de démontrer la possibilité d'atteindre la régénération en spectre thermique avec le cycle thorium. Entre 1977 et 1982, l'expérience LWBR (Light Water Breeder Reactor) a permis d'atteindre la surgénération avec un cœur de 90 MWe. La gestion du cœur est très complexe, et les cycles d'irradiation doivent être très courts à cause d'un empoisonnement rapide du cœur. Par exemple il était nécessaire d'avoir une partie de l'assemblage mobile, constituée de thorium pur, qui jouait le rôle d'une barre de contrôle, afin de ne perdre aucun neutron pour le pilotage du réacteur.

D'autres expériences ont été menées sur des réacteurs à combustible liquide (RSF réacteurs à sels fondus), qui offrent la possibilité d'être retraités en ligne afin d'en éliminer rapidement les poisons neutroniques les plus gênants. Le combustible est sous forme de sels fondus, et sert également de caloporteur.

Le concept de RSF est né aux Etats-Unis dans les années 50, à l'Oak Ridge National Laboratory (Tennessee). Le premier RSF expérimental est issu d'un programme militaire américain sur la propulsion des avions devant allier autonomie, compacité et légèreté. L'Aircraft Reactor Experiment (ARE) est mis en service en 1954, et fonctionne de façon satisfaisante une centaine d'heures à la puissance de 2.5 MWth. Dans cette expérience, le sel est un mélange de fluorures (53% NaF – 41% ZrF₄ – 6% UF₄) qui a une température de fusion de 500°C. Le cœur est constitué d'un bloc d'oxyde de béryllium destiné à modérer les neutrons. Le sel circule dans ce bloc de béryllium et sort à une température de 850°C. Un problème de corrosion est survenu et a été rapidement maîtrisé. L'expérience a mis en évidence une stabilité suffisante du réacteur et un bon comportement du sel sous irradiation.

Le programme de propulsion nucléaire est arrêté en 1957, mais les bons résultats de l'ARE encouragent la poursuite des recherches sur les RSF à l'ORNL. Les études s'orientent vers un usage civil pour la production l'électricité et débouchent sur la mise en service en 1964 d'un réacteur expérimental : Molten Salt Reactor Experiment (MSRE) d'une puissance de 8MWth. Dans ce système, le cœur est constitué de graphite percé de canaux pour la circulation du sel combustible et des barres de contrôle. Le premier sel utilisé est un fluorure de lithium et de béryllium (« flibe ») : 65% ⁷LiF – 29% BeF₂ – 5% ZrF₄ – 1% UF₄. Ce sel échange sa chaleur avec un sel constituant le circuit secondaire (66%LiF – 34% BeF₂). Le lithium utilisé dans le sel combustible est enrichi à 99.995% en ⁷Li afin de réduire l'empoisonnement neutronique et la production de tritium dû à la présence de ⁶Li (réaction ⁶Li+n \rightarrow t+ α). De 1965 à 1968, l'uranium du sel est de l'uranium enrichi à 30% en ²³⁵U. De 1968 à 1969, le réacteur fonctionnera avec le même sel dans lequel l'uranium enrichi aura été remplacé par de l'²³³U pur.

Durant 5 années de fonctionnement sans incident, le facteur de charge est de l'ordre de 85%. Les problèmes de corrosion rencontrés dans l'ARE sont résolus grâce à l'utilisation de l'hastalloy-N (68% Ni – 17% Mo – 7% Cr – 5% Fe) comme matériau de structure pour la cuve et les tuyauteries. L'expérience démontre la tenue des matériaux à la corrosion et à l'irradiation, ainsi que la stabilité des sels fluorures. Le pilotage du système en mode critique est maîtrisé. Toutefois, il sera établi que le passage au stade industriel d'un RSF fonctionnant en spectre thermique et avec un combustible Th/U demande une étape supplémentaire de démonstration, notamment du point de vue du retraitement en ligne du combustible. L'expérience du MSRE aura tout de même testé la fluoration de l'uranium contenu dans le sel, étape clé du retraitement d'un combustible Th/U.

Le projet industriel MSBR (Molten Salt Breeder Reactor) voit le jour en 1969, et fait suite aux résultats encourageants de l'expérience MSRE. Il s'agit d'un projet de RSF électrogène fonctionnant avec le cycle thorium, d'une puissance électrique de 1GW. L'ensemble des études réalisées forme un tout cohérent et très complet, tant au niveau de la thermohydraulique que du retraitement en ligne. Le cœur du MSBR est constitué d'un bloc de graphite percé de canaux dans lequel le sel combustible circule de bas en haut en se réchauffant d'une centaine de degrés. La température moyenne du sel dans le cœur est de 650°C. Le sel envisagé est un sel de fluorures : 72% ⁷LiF – 16% BeF₂ – 12% (Th+U)F₄. Le circuit secondaire contient un autre sel : 92% NaBF₄ – 8% NaF, et le rendement thermique global se situe entre 40 et 45%.

L'unité de retraitement associée a pour but d'extraire les produits de fission du sel, ainsi que le protactinium, qui sera laissé hors cœur le temps qu'il décroisse pour produire l'²³³U, alors réinjecté dans le sel. La totalité du sel combustible (50 m³) est retraité en une dizaine de jours. Le système est surgénérateur. L'inventaire en ²³³U nécessaire au démarrage est de l'ordre d'une tonne, son taux de surgénération de 1.05 ; le temps de doublement de la filière est donc de l'ordre de 25 ans.

Ce projet se heurte à la concurrence des surgénérateurs à neutrons rapides, de conception plus classique, basés sur le cycle U/Pu et refroidis au sodium. Aux Etats-Unis, les études sur le MSBR sont arrêtées en 1976, pour des raisons politiques et financières, dues en partie à l'isolement de l'ORNL, seul laboratoire américain à travailler sur les RSF. En France, ces études sont poursuivies jusqu'en 1983 à EDF et au CEA. Ces travaux de ré-évaluation ont permis d'approfondir les problèmes liés à la sûreté et d'acquérir une meilleure connaissance du retraitement en ligne.

D'autres projets et études voient le jour dans les années 80, notamment au Japon (THORIMS-NES Thorium Molten Salt Nuclear Energy Synergetics). La voie des surgénérateurs en spectre thermique basée sur le cycle thorium est explorée dans différentes variantes, ainsi que la voie des réacteurs rapides basés sur le cycle U/Pu. Dès la fin des années 80, le concept de réacteur à combustible liquide trouve un nouveau domaine d'application dans le cadre des études sur la transmutation des actinides. L'organisme japonais JAERI étudie un concept RSF à neutrons rapides dédiés à l'incinération de transuraniens sur support inerte (sels chlorures). En 1992, C. Bowman adapte le concept du MSBR à un réacteur RSF à spectre très thermalisé dédié à l'incinération et à la dénaturation du plutonium issu des centrales à eau légère.

En France, le cycle thorium en RSF est relancé dans les années 1990 par différents concepts :

- TASSE (Thorium based Accelerator driven System with Simplified fuel cycle for Energy generation) étudié au CEA.
- AMSTER (Actinide Molten Salt TransmutER) étudié à EDF.
- TMSR (Thorium Molten Salt Reactor) étudié au CNRS.

Ces dernières études s'accompagnent d'efforts expérimentaux. Le programme européen MOST est ainsi chargé d'établir le bilan des recherches sur les RSF précédemment évoquées dans le but de définir les besoins en R&D.

6.2 Le concept MSBR

Outre la somme colossale d'études réalisées par l'ORNL dans les années 60 et 70, ce concept a été ré-évalué récemment en France. D'abord par EDF, qui a ré-éxaminé le projet historique en l'adaptant à l'utilisation d'uranium enrichi ainsi qu'à l'incinération de transuraniens (concept AMSTER ; Actinide Molten Salt transmuTER). Concluant aux limites d'une telle adaptation, liées à l'incompatibilité entre un spectre modéré par le graphite et l'incinération d'actinides, cette étude a conduit le CNRS à ré-évaluer le projet MSBR lui-même (surgénérateur de puissance basé sur le cycle thorium).

Le projet MSBR historique a en effet été optimisé de manière à obtenir le maximum de surgénération. Le retraitement consistait à retirer rapidement les produits de fission et le 233 Pa ; la totalité du sel combustible devait être retraitée tous les 10 jours, soit un volume de 5 m³ par jour. Le schéma de retraitement peut être résumé par les 4 étapes suivantes :

- bullage en continu des produits de fission gazeux et métaux nobles
- fluoration de U et Np, réinjecté dans le combustible
- extraction des actinides autres que le thorium (Pa, Pu, Am, Cm, ...) et réinjection différée (décroissance du ²³³Pa hors-flux)
- extraction réductrice des lanthanides du sel de thorium



Vue globale du projet MSBR, avec son unité de retraitement associée

Le réacteur a été modélisé fidèlement selon les données de l'ORNL. Avec un volume total de sel d'environ 50 m³, dont un tiers se situe hors-flux dans les échangeurs de chaleur, la puissance volumique moyenne dans le sel est d'une centaine de W/cm³ pour une puissance totale de 2500 MWth (équivalant à 1 GWe). La vitesse d'écoulement vertical du sel est de l'ordre du m/s, et maximale au centre du cœur. Au démarrage, une tonne d'²³³U (dans 70 t de thorium) suffit à rendre le réacteur critique.

Le temps rapide d'extraction des lanthanides et du protactinium a été une très lourde contrainte sur le dimensionnement de l'unité de retraitement associée au réacteur, et sur les différents procédés de séparation. Le projet a été abandonné en 1976, au profit d'un projet concurrent de réacteur à neutrons rapides, plus pour des raisons de choix d'investissement qu'à cause de véritables obstacles techniques. Toutefois, on a vérifié qu'un tel retraitement est nécessaire pour rendre le réacteur surgénérateur. En calculant l'évolution de la composition du sel combustible tout en simulant l'extraction des produits de fission telle qu'elle était prévue, on constate que leur taux de capture est suffisamment réduit pour autoriser un taux de surgénération supérieur à 1 du démarrage (1.09) jusqu'à l'équilibre (1.04, soit une production nette d'²³³U d'environ 40 kg.an⁻¹.GWe⁻¹).



Figure 1 Mise à l'équilibre ré-évaluée de l'inventaire des actinides dans le sel du MSBR

Ce système a pu ainsi être entièrement caractérisé à tout instant. A l'équilibre, l'inventaire des transuraniens reste faible (environ 0.1 tonne) et contient peu de noyaux radioactifs α gênants (seulement 8 kg de ²⁴⁴Cm par exemple). Du fait de son extraction, le ²³³Pa se désintègre surtout hors-flux, ce qui génère une puissance de quelques MW dans son réservoir de stockage. La principale voie de production de l'²³²U ici, en spectre épithermique, est la capture sur le ²³¹Pa. La proportion molaire d'²³²U dans l'uranium à l'équilibre est d'environ 0.1%, ce qui est suffisant pour la détection anti-proliférante du gamma associé de 2.6 MeV. La production de tritium de ce réacteur par réaction sur le ⁶Li et le ⁷Li du sel est évaluée à 150 g/an à l'équilibre, soit 50 fois plus qu'un REP mais moitié moins qu'un réacteur CANDU utilisé actuellement au Canada. Toujours en termes de déchets produits, un point dur du MSBR est la durée de vie estimée à 5 ans de son modérateur graphite endommagé par les neutrons d'énergie supérieure à la dizaine de keV, posant la question de son recyclage. En ce qui concerne la sûreté, les codes de l'époque ont mal évalués les coefficients de température en négligeant l'effet positif sur la réactivité d'une augmentation de la température du graphite. Il a ainsi été vérifié que le coefficient de température global, annoncé négatif, est en fait légèrement positif.

La marge neutronique libérée par l'abandon de la surgénération peut alors être utilisée pour ralentir et simplifier le retraitement d'une part, et améliorer les coefficients de température (diminution de la proportion de graphite en cœur) d'autre part. Du projet un peu trop ambitieux de surgénérateur MSBR, nous voilà parvenus au projet TMSR (Thorium Molten Salt Reactor) d'un RSF thorium qui soit réellement de 4^e génération.

6.3 Le concept TMSR

Des études ont été menées afin de rendre le concept MSBR plus réaliste en vue d'en déploiement avant 2050. D'une part, le problème des coefficients de sûreté devait être éclairci, et l'unité de retraitement grandement simplifiée. En levant la contrainte de la surgénération maximale, en imaginant donc des concepts uniquement isogénérateurs, il était possible de diminuer la vitesse de retraitement, et de réduire considérablement la taille de l'unité de retraitement. Il était également possible de simplifier les procédés d'extraction des poisons neutronique (notamment les lanthanides), et éventuellement ne pas laisser décroître le ²³³Pa hors flux, afin de ne produire à aucun moment de l'²³³U débarrassé de l'²³²U. Ces études ont conduit à la définition de plusieurs concepts valides, basés sur des spectres thermiques, épithermiques, voire quasiment rapides.

6.3.1 Le concept TMSR thermique

L'isogénération est compatible avec des temps de retraitement du combustible de l'ordre de 6 mois à 1 an. On peut alors envisager une étape préalable à l'extraction des lanthanides, qui consisterait à extraire le thorium du sel. La masse à traiter est de l'ordre de 300 kg par jour (au lieu de 6 tonnes dans le schéma MSBR), qui permet d'adapter une technique de précipitation du thorium par oxydation par exemple, suivie d'une fluoration pour le réinjecter dans le sel . Le schéma de retraitement simplifié est représenté sur la figure suivante.



Ce concept permet d'envisager une validation expérimentale à court terme des principes de base. Une proposition importante est la précipitation du thorium, afin d'obtenir un sel appauvri en actinides avant d'en extraire les lanthanides. Cette étape clé devra être étudiée en détail avant de valider le concept de retraitement simplifié.

Le coefficient de température peut être décomposé en un coefficient associé au sel et un autre au graphite. Le coefficient associé au sel, qui domine le comportement prompt du réacteur, est négatif ($-1.3 \ 10^{-5}/K$) dans la dernière évaluation du MSBR. Le coefficient de graphite est lui positif ($+1.7 \ 10^{-5}/K$) dans la même évaluation. Cela vient d'un épaulement dans la section efficace de fission de l'²³³U juste au dessus du pic thermique. Lorsque le graphite s'échauffe, le pic thermique monte en énergie et favorise la fission de l'uranium par rapport à la capture du thorium.

Diverses solutions peuvent être explorées pour retrouver un coefficient de température total négatif, comme la réduction de la masse de graphite en cœur, ou l'introduction d'un poison consommable contenant une résonance d'absorption proche de l'épaulement de la section efficace de fission de l'²³³U. Ces deux méthodes permettent d'obtenir des coefficients négatifs, mais dégradent légèrement les performances de régénération (durcissement du spectre, consommation de neutrons, ...). Une autre méthode peut être proposée, qui consiste à modifier la géométrie du cœur afin de durcir le spectre neutronique; dans ce cas, le coefficient de température est amélioré, mais le terme de fuite augmente. Pour rester régénérateur, les neutrons de fuite sont récupérés dans une couverture thorium, afin de conserver un taux de régénération optimal.

6.3.2 Le concept TMSR sans graphite

Un point dur du concept est sans aucun doute la durée de vie du graphite. Une variante du TMSR est aujourd'hui étudiée au CNRS, dans laquelle le graphite a été retiré du cœur. Les neutrons sont ralentis simplement par les noyaux légers du sel. Cela n'est pas suffisant pour atteindre un spectre très thermalisé, mais selon la quantité de noyaux lourds dans le sel (entre 5% et 25% typiquement) ; les spectres envisageables vont de l'épithermique au spectre rapide. Ces calculs (menées au LPSC Grenoble) ont démontré la viabilité d'un tel concept du point de vue des coefficients de sûreté qui se trouve nettement amélioré par rapport aux concepts thermiques modérés par du graphite. Le spectre plus dur permet également de simplifier énormément le retraitement : seul le bullage du sel se fait en ligne, les autres opérations peuvent se faire en batch, et représentent un retraitement du cœur entier sur plusieurs années. Cette simplification du retraitement permet également d'utiliser un combustible Th/Pu, puisque le bullage (seul module de retraitement réellement en ligne) fonctionne quelque soit la composition du sel.

Le concept de TMSR sans graphite présente donc beaucoup d'avantages. Du côté des difficultés, on peut citer le besoin de fonctionner à plus haute température, et les problèmes de recriticité du sel. Dans le concept avec graphite, le sel vidangé ne pouvait représenter de risques de criticité, puisque les concentrations critiques de fissile en spectre modéré étaient très inférieures aux concentrations critiques en spectre rapide. Ce n'est plus le cas dans le concept sans graphite. Fonctionner avec un spectre plus dur conduit également à un inventaire en cœur d'²³³U plus important, plus proche des inventaires de 10 tonnes/GWe typiques des spectres rapides. En minimisant la proportion de sel hors cœur, on arrive à environ 6 tonnes d'²³³U pour un réacteur de 1 GWe, soit 2 fois moins environ que pour un RNR classique (U/Pu et combustible solide), mais 6 fois plus que pour un RSF thermique de type MSBR. Du point de vue du déploiement, ce désavantage est compensé par le fait que l'on peut démarrer directement le réacteur en Th/Pu et le laisser converger vers le cycle Th/²³³U asymptotique. Il s'agit là d'un avantage important, puisque tout le plutonium peut être converti en ²³³U, et ne se retrouve donc pas dans les déchets nucléaires, comme lorsqu'il est utilisé en MOX Th/Pu

dans les réacteurs à eau (voir plus loin). Le temps de convergence du système Th/Pu vers le système Th/²³³U asymptotique est rapide pour les noyaux principaux (20 ans environ pour l'uranium et le ²³⁹Pu), mais beaucoup plus long lorsqu'on augmente en masse : il faut environ 50 ans pour atteindre la masse à l'équilibre du plutonium total (essentiellement ²³⁸Pu dans le cycle Th²³³/U asymptotique), et une centaine d'année pour le curium.



6.4 Le déploiement des RSF au thorium

Le concept TMSR sans graphite ne pose pas, sur le papier, de grandes difficultés de déploiement, car comme il a été mentionné, ils peuvent être chargés initialement en plutonium. La composition du sel évolue alors naturellement vers une composition $Th/^{233}U$.

Les concepts TMSR thermiques offrent certes la possibilité de réduire considérablement la masse de matière fissile à l'équilibre pour un parc donné de réacteurs. Cependant, comme ils doivent être couplés à un retraitement efficace et soutenu, ils ne peuvent être directement démarrés en Th/Pu, puisque la composition du sel évoluerait rapidement en quelques années, et l'unité de retraitement en ligne devrait être adaptée. Le déploiement de tels systèmes doit donc faire appel à une production $d^{233}U$ en amont. Diverses méthodes peuvent être imaginées. Nous envisageons ici la production $d^{233}U$ dans des réacteurs à eau sous pression, à l'aide d'un combustible Th/Pu. Il est certain que cette technique n'est pas la plus efficace du point de vue de la conversion de plutonium en 233 U, car le bilan neutronique du plutonium en spectre thermique est assez défavorable, comme cela a été montré dans le calcul précédent du nombre de neutrons disponibles pour la surgénération. Mais cette stratégie permet d'envisager un démarrage de TMSR sans recours à d'autres réacteurs innovants de 4^{eme} génération. Elle permet également de mettre en place une stratégie d'incinération de plutonium, tout en produisant un inventaire réduit d²³³U qui permet une transition future vers des réacteurs régénérateurs. En ce sens, il s'agit d'une stratégie très souple, puisqu'elle allie incinération de plutonium, et transition vers un nucléaire durable, ce qui est impossible à réaliser avec des réacteurs rapides, puisque ceux-ci demandent un inventaire important de matière fissile (Pu ou ²³³U).

Une transition au niveau français à puissance constante

On considère ici un scénario de transition au niveau français à puissance constante, basé sur le scénario précédent de transition REP \rightarrow RNR U/Pu. Dans le cas étudié ici, les EPR sont chargés en partie avec du MOX Th/Pu. Ces assemblages combustibles sont retraités pour en extraire l'²³³U destiné au démarrage des TMSR isogénérateurs. On considère qu'en fin de transition, tout le plutonium issu des REP et des EPR est utilisé une fois sous forme de Th/Pu. Cela permet de calculer quel peut être l'inventaire maximal en ²³³U des TMSR compatible avec cette transition, ce qui permet de déterminer quel type de TMSR peut être démarré de la sorte.



On envisage également que le programme de recyclage du Pu sous forme de MOX U/Pu est arrêté dès 2010, ceci pour ne pas consommer inutilement le plutonium. En effet, le plutonium issu d'un MOX usé est très dégradé, c'est-à-dire que sa proportion en noyau fissile est réduite par rapport à un plutonium issu d'un UOX usé. L'utilisation d'un Pu issu d'un MOX usé est très défavorable en spectre thermique, et quasiment inutilisable sous forme de Th/Pu afin de produire de l'²³³U.



La figure ci-dessus montre un calcul simplifié de l'évolution des différents inventaires lors de cette transition. On constate que l'inventaire final d²³³U produit par les EPR entre 2020 et 2080 est de 110 tonnes environ pour une puissance installée de 60 GWe. Cela correspond à un inventaire de 1,9 tonne par réacteur TMSR de 1 GWe. Cette valeur est tout à fait compatible avec les concepts de TMSR à spectre thermique ou épithermique, modérés au graphite. En revanche, il est impossible d'envisager une telle transition vers des TMSR sans graphite qui nécessitent des inventaires en ²³³U supérieurs à 5 tonnes. Cependant, il faut noter que cette transition est très ambitieuse du point de vue de la date de déploiement des TMSR, et sans doute peu réaliste du point de vue de la maturité industrielle de tels systèmes. Elle illustre néanmoins la souplesse de déploiement des TMSR thermiques, qui permettent comme cela a déjà été dit d'incinérer le Pu dans les réacteurs à eau actuels, sans s'interdire un déploiement futur de réacteurs isogénérateurs. Dans ce type de transition, le plutonium est utilisé en un seul passage. En effet, il peut être difficilement multirecyclé, puisque les réacteurs présents sont tous à spectre thermique. On récupère donc à la fin de la transition environ 480 tonnes de plutonium inutilisé, à considérer comme un déchet. Ce plutonium est séparé, puisqu'il aura fallu extraire l'²³³U des Th/Pu usé, et donc retraiter ces combustibles. Il est cependant très dégradé, et ne présente quasiment aucun risque de prolifération. Il est difficile de comparer ces 480 tonnes aux 800 tonnes de plutonium présents dans un parc 100% RNR, puisque dans ce cas, le plutonium est la matière fissile principale du cycle, il est constamment recyclé, et n'est donc pas considéré comme un déchet à stocker.

Une transition à puissance croissante

On peut illustrer une fois de plus l'avantage du cycle thorium en termes de souplesse de déploiement en envisageant une transition au niveau français, avec une puissance qui doublerait entre 2020 et 2100. On fixe par exemple la date de déploiement des TMSR à 2050, qui est plus réaliste du point de vue de la maturité de cette technologie, même si cette date est encore ambitieuse. En raisonnant de la même façon que précédemment, on obtient un inventaire maximal des TMSR de l'ordre de 1,6 tonnes/GWe, ce qui reste largement compatible avec les versions thermiques



des TMSR, dont l'inventaire est de l'ordre de 1 tonne par GWe. L'inventaire de Pu usé à considérer comme déchet est alors de 700 tonnes, contre 1600 tonnes de Pu dans le cycle pour un parc équivalent de RNR. La transition totale REP \rightarrow TMSR est assurée avant la fin du siècle, tout en doublant la puissance installée pendant cette période. Ce type de transition est irréalisable avec des réacteurs rapides. En effet, leur inventaire en plutonium est trop élevé et les REP et EPR n'en produisent pas assez pour alimenter 120 GWe de RNR U/Pu avant 2100.

7 Epilogue : quelles stratégies pour le futur ?

Il n'est pas question ici de dicter les stratégies à mener pour le futur, mais de discuter de quelques points qui semblent importants pour comprendre comment peuvent s'imbriquer les différents objectifs que l'on peut être amené à se fixer. Comment par exemple allier incinération de matière fissile et poursuite du nucléaire avec des réacteurs régénérateurs, ou encore comment mettre rapidement en place la séparation poussée des actinides mineurs alors que leur transmutation ne pourra avoir lieu que dans des réacteurs rapides, dont on n'est pas certain aujourd'hui qu'ils seront un jour développés au niveau industriel.

On s'attache ici à se baser sur des éléments de physique les plus factuels possibles, même si les objectifs que l'on souhaite atteindre, et qui sont les hypothèses de départ du problème posé, font appel à de nombreux paramètres, industriels, politiques et sociétaux.

Quand démarreront les réacteurs rapides, et démarreront-ils ?

Il est exclu de pouvoir répondre à cette question dès aujourd'hui, en se basant sur des chiffres reconnus. Si on se base sur des arguments industriels et financiers, les réacteurs à neutrons rapides ne verront le jour que si le nucléaire se développe massivement, et que l'uranium vient à manquer. Ces deux conditions réunies peuvent effectivement conduire à la mise en place de filières beaucoup moins gourmandes en minerai naturel grâce à la régénération, dont il a été beaucoup question dans ce papier.

Les réserves d'uranium sont finalement le cœur du problème, et plus précisément, les réserves en fonction du prix d'extraction. On est à peu près certain de savoir extraire 4 millions de

tonnes d'uranium conventionnel, et presque assuré qu'il existe près de 10 millions de tonnes supplémentaires, que l'on trouvera à condition de prospecter un peu. Mais rien n'interdit de penser que les réserves en uranium peuvent être beaucoup plus grandes, certains annoncent aujourd'hui le chiffre de 30 millions de tonnes qui peuvent extraites à un prix raisonnable. Dans ce cas, il est difficile d'imaginer que les réacteurs régénérateurs se développent avant la fin du siècle voire au-delà. Et qui peut dire ce qu'il se passera aux alentours de 2100 ? la population aura pu baisser, la demande en énergie baisser également, et la fusion arriver à maturité industrielle. Il faut donc envisager la possibilité de n'avoir jamais recours aux réacteurs rapides. Ceci a de nombreuses implications, la première étant que le plutonium n'est plus une matière valorisable à coup sûr. Considérer le plutonium comme un déchet à stocker, ou à incinérer va à l'encontre de la stratégie affichée par la France, mais correspond sensiblement à la position tenue jusqu'ici par les Etats-Unis (reviennent-ils réellement sur ce point avec génération 4, voir plus loin) ou d'autre pays comme la Suède.

Le statut du plutonium est donc aujourd'hui très flou, et focalise souvent les attaques des antinucléaires. Le fait est que l'on ne peut réellement pas répondre à la question « est ce un déchet ou non ? ». L'incinérer dès aujourd'hui serait très dommageable pour les générations futures qui pourraient manquer de source d'énergie avant la fin du siècle, et l'accumuler en prévision de l'arrivée des réacteurs rapides ne peut continuer indéfiniment. D'ici 2020, la situation pourrait se clarifier ; le pic du pétrole peut subvenir d'ici là et la politique nucléaire des grandes régions économiques s'afficher clairement.

La stratégie française du retraitement est-elle bien adaptée à ce flou ?

La stratégie française s'adapte finalement très bien à cette situation d'attente. En effet, le plutonium repasse une fois en réacteur, ce qui le consomme légèrement. Mais en revanche, les volumes de combustibles usés à entreposer en tant que matière valorisable, sont réduits d'un facteur 7 environ. Réduire le volume d'entreposage est bien entendu intéressant en soi, mais surtout cela permet de limiter considérablement les besoins en retraitement le jour où l'on démarrera les réacteurs rapides. En effet, le dimensionnement d'une usine de retraitement dépend des volumes de combustible à retraiter (uranium fertile et plutonium), et non de la masse de plutonium seule. Sans mono-recyclage du Pu en MOX, le démarrage rapide de RNR nécessiterait donc une installation 7 fois plus grande environ que l'usine La Hague, et qui ne fonctionnerait que quelques années afin d'extraire le Pu des UOX usés, avant de fonctionner à une capacité 7 fois inférieure une fois les RNR démarrés. Alors que dans la situation actuelle, le démarrage des RNR en France dès 2050 ne nécessiterait pas de changement de dimensionnement des installations déjà existantes, à la fois pendant la transition, et une fois l'équilibre atteint.

La stratégie française permet également de s'adapter à la situation où les RNR n'arriveraient jamais. Il faudrait alors décider de ce que l'on fait du plutonium, et dans le cas où la société déciderait de l'incinérer en le recyclant dans les REP (multi MOX), la compétence serait acquise et la première étape de multirecyclage déjà engagée. Les installations ne demanderaient que quelques modifications afin de gérer un plutonium plus dégradé et un combustible plus chargé en actinides mineurs. Mais encore une fois, on évite de devoir construire des usines de très grandes dimensions pour quelques années seulement, ce qui rendrait sûrement l'option de l'incinération du plutonium en REP indécidable.

A l'inverse, il faut noter que la stratégie actuelle du mono-recyclage est couplée à la vitrification globale des produits de fission à vie moyenne, à vie longue et des actinides

mineurs, ce conditionnement étant considéré comme définitif. Il semble donc impossible d'envisager d'autres gestions pour ces déchets que le stockage profond, alors que les pays n'ayant pas mis en œuvre le mono-recyclage et la vitrification peuvent envisager d'autres stratégies, qui permettraient de bénéficier des avancées technologiques futures en les appliquant aux déchets produits aujourd'hui. On pense par exemple à la séparation poussée et au conditionnement spécifique proposé par les USA : les produits de fission à vie moyenne sont séparés et entreposés pendant 300 ans environ, au-delà, le risque associé est grandement diminué. Alors que les autres noyaux à vie longue sont conditionnés pour le stockage. Comme ces derniers ont une puissance résiduelle beaucoup plus basse que les PF à vie moyenne, l'emprise au sol du stockage peut être sensiblement réduite, ce qui limiterait les besoins en sites de stockage, manifestement très délicats à trouver et à faire accepter aux populations locales.

Notons enfin qu'une stratégie de mono-recyclage avec un conditionnement non définitif des produits de fission et actinides mineurs allierait la souplesse du retraitement comme solution d'attente optimale, et n'interdirait pas aux déchets actuels de bénéficier des progrès techniques à venir sur la séparation poussée ou la transmutation.

Comment mettre en place rapidement la séparation de l'américium ?

On ne discute pas ici de l'intérêt ou non de la transmutation des actinides mineurs, sujet abordé dans d'autres cours de cette école, mais prenons comme hypothèse que la transmutation des actinides mineurs est souhaitée. Comme il a été mentionné, la vitrification actuelle des actinides mineurs interdit toute transmutation ultérieure, la reprise de ces verres s'avérant très délicate et couteuse. C'est d'ailleurs un argument souvent brandi contre la transmutation : « à quoi cela sert-il de transmuter dans le futur, puisque les actinides mineurs vitrifiés aujourd'hui seront stockés ? Et si on accepte aujourd'hui de les enfouir, pourquoi ne l'accepterait donc pas dans le futur ? ». Cela démontre simplement que si la transmutation doit être mise en œuvre, il faut très rapidement arrêter de vitrifier les actinides mineurs.

A cet arrêt de la vitrification des actinides mineurs, on peut opposer plusieurs arguments, le plus fort étant que les réacteurs qui permettraient de les transmuter n'existent pas encore, et peut être n'existeront jamais (voir la discussion sur l'arrivée ou non des réacteurs rapides...).

La solution proposée ici peut permettre d'allier à la fois la séparation des actinides mineurs et le flou concernant la mise en place des RNR : il s'agit en fait de recycler l'américium, principal actinide mineur avec le plutonium lors de son unique recyclage. L'intérêt étant de laisser l'américium constamment avec le plutonium. Comme on l'a vu, c'est bien le statut flou du plutonium qui conduit à ne pas retraiter aujourd'hui les MOX usés. On peut donc partir du principe que le jour où l'on gèrera les MOX, c'est que l'on saura ce que l'on fait du plutonium (retraitement pour en extraire le Pu ou stockage comme déchet), cela va de soi. Et ce jour là, on saura également décider de la meilleure façon de gérer l'américium, qui justement n'aura pas été vitrifié, et qui sera « disponible » dans les MOX. Cette stratégie demande certes de maîtriser la séparation poussée au niveau industriel, mais induirait sans doute peu de modifications des réacteurs, puisque la proportion d'américium en UOX est faible comparée à la concentration en américium des MOX en fin d'irradiation.

Il faut noter que le taux de transmutation de l'américium en un seul passage sera très médiocre, mais que ce n'est pas vraiment l'effet recherché. Il nous semble en tout cas que cette solution est la plus rapidement « décidable », toutes les autres qui dépendent de l'arrivée

des RNR conduiront *de facto* à la vitrification définitive de l'américium jusqu'en 2050 au mieux.

Déploiement des réacteurs rapides : le paradoxe français ?

La France produit aujourd'hui près de 80% de son électricité par le nucléaire. Tous les scénarios français envisagent une diminution de cette part d'électricité nucléaire, afin essentiellement d'avoir une plus grande souplesse pour gérer la production de pointe. Ainsi, l'augmentation nécessaire de la puissance électrique installée dans les 15 ans qui viennent pourrait être entièrement assurée par des petites centrales à gaz. En effet, le nucléaire peut difficilement être modulé pour suivre les pointes de consommation (quelques heures), le potentiel hydraulique étant utilisé quasiment à 100%, et l'éolien étant par essence intermittent, et donc incapable d'assurer une production de pointe.

C'est la raison pour laquelle les scénarios nucléaires de référence pour la France envisagent une puissance constante sur le siècle à venir. Dans ce cas, il est intéressant de noter que la France peut se trouver dans une situation défavorable, du fait de son « avance » dans le déploiement de son parc nucléaire. En effet, les réacteurs actuels vont devoir s'arrêter entre 2020 et 2050. Une décroissance linéaire entre 2020 et 2050 du parc actuel nécessite d'atteindre une durée de vie moyenne de 48 ans ; il semble donc aujourd'hui difficile de parier sur une décroissance plus lente du parc actuel.

Cela signifie qu'en 2050 tout le parc doit être remplacé. Le réacteur favori des sondages (période d'élection oblige) est l'EPR, d'une durée de vie annoncée 60 ans, et sans doute plus. Les EPR démarrés en 2020 s'arrêteront donc en 2080, voire 2100. Supposons maintenant que le besoin en RNR ne se fasse pas réellement sentir avant 2050, ce qui paraît probable au vu des ressources en uranium et du déploiement supposé du nucléaire au niveau mondial. La France se retrouverait avec un parc entier d'EPR, fonctionnant à l'uranium enrichi, dont le premier s'arrêterait seulement à la fin du siècle. Il n'y aurait alors « plus de place » pour les RNR, si le prix de l'uranium venait à augmenter rapidement aux alentours de 2050, ce qui encore une fois est tout à fait envisageable. Ce problème ne se pose vraiment qu'en France, puisque les autres pays, moins nucléarisés, peuvent envisager une croissance régulière de la part du nucléaire dans la production d'électricité dans les décennies à venir, et un démarrage régulier et à peu près continu de réacteurs pendant ce siècle.

Cela demande donc à la France de devoir anticiper plus que les autres, peut être en prenant le risque de démarrer des RNR en avance, même s'ils ne sont pas encore tout à fait rentables, où en envisageant d'arrêter plus tôt que prévu les EPR démarrés pour 60 ans au moins, ce qui implique des plans financiers de retour sur investissement à adapter.

Quel intérêt pour le cycle thorium ?

L'avantage le plus cité du cycle du thorium est de produire beaucoup moins d'actinides mineurs que le cycle uranium. D'un point de vue du risque associé à un stockage géologique profond, cela est grandement discuté, puisque les calculs effectués actuellement sur l'argile de Bure tendent à démontrer que les actinides stockés ont une vitesse de migration extrêmement faible. Le retour à la surface de ces noyaux est donc totalement improbable, puisqu'ils auront décru avant. Mais il n'en demeure pas moins que la radiotoxicité à long terme des déchets peut être diminuée d'un facteur 10 à 100 en utilisant le cycle thorium, par rapport au cycle uranium en réacteur rapide, ce qui limite le risque potentiel du stockage. Cet aspect rejoint les

discussions enflammées au sujet de l'intérêt ou non de la mise en œuvre de la transmutation dans des réacteurs rapides.

Un aspect qui nous semble plus important à détailler est celui de la minimisation de la masse de matière fissile en cœur. Cela vaut pour les réacteurs Th/²³³U à spectre thermique, qui ont été détaillés précédemment. Tout d'abord, si on envisage l'arrêt de la filière nucléaire dans le futur, une fois les réacteurs régénérateurs démarrés, il y a un avantage certain à gérer 10 fois moins de masse fissile, qui devient à ce moment là un déchet ultime. Mais plus important peut-être, envisager de développer le thorium dans le futur, permettrait de mettre en place des politiques volontaristes d'incinération de matière fissile, sans interdire d'effectuer une transition ultérieure vers des réacteurs régénérateurs.

On a vu par exemple qu'irradier un combustible Th/Pu en REP, permet de commencer à incinérer le plutonium, tout en produisant une petite quantité d'²³³U, largement suffisante pour démarrer des RSF Th/²³³U. Autrement dit, on n'hypothèque aucune solution à incinérer rapidement le plutonium dans un combustible Th/²³³U (cela suppose bien entendu de valider le concept de RSF Th/²³³U thermique !).

Et si le besoin de régénérateurs $Th/^{233}U$ ne faisait jamais sentir, l' ^{233}U pourrait être très facilement utilisé en REP sous forme d'uranium enrichi, et au pire, rendu non proliférant en le mélangeant avec l'uranium appauvri avant un stockage définitif.

Cet aspect de souplesse est spécifique au cycle thorium, puisque comme il a été déjà répété, incinérer le plutonium aujourd'hui hypothèque grandement les chances de démarrer massivement des RNR U/Pu dans le futur. Le cycle thorium peut en cela permettre de prendre des décisions rapidement afin de limiter l'accumulation de matière fissile civile, que l'on n'est pas assuré d'utiliser un jour.

Bibliographie

Faire une bibliographie précise sur les thèmes abordés dans ce cours est délicat. La plupart des thèmes abordés, et les discussions qui s'en suivent, pas toujours très « physique », se sont construits lors de différentes réunions, ateliers et auditions, qu'il est très difficile de lister.

Pour les aspects techniques, on peut se baser sur les thèses récentes qui ont eu lieu dans le domaine des réacteurs du futur, dont les travaux ont été utilisés pour ce cours :

- A. Nuttin, Potentialités du concept de réacteur à sels fondus pour une production durable d'énergie nucléaire basée sur le cycle thorium en spectre épithermique, thèse LPSC Grenoble, 2002
- L. Mathieu, Cycle Thorium et Réacteurs à Sel Fondu: Exploration du champ des paramètres et des contraintes définissant le "Thorium Molten Salt Reactor", LPSC Grenoble, 2005.
- F. Michel-Sendis, Contribution à l'étude de la production $d^{233}U$ en combustible MOX-ThPu en réacteur à eau sous pression, IPN Orsay, 2006.
- D. Kerdraon, *Optimisation par simulation du couplage entre un réacteur sous-critique et sa source de spallation. Application à un démonstrateur*, LPSC Grenoble, 2001.

Quelques articles sur les scénarios du futur

- D. Heuer et al. *Concept de réacteurs à sels fondus en cycle thorium sans modérateur*, Revue Générale du Nucléaire N°5/2006, p. 92-99 (septembre-octobre 2006)
- L. Boucher et al., *Impact on waste production of different transmutation scenarios*, proceedings of ICONE 14 (icone 14-89315)
- C. Garzenne et al., *La physique de la transmutation*, Revue Générale du Nucléaire, Mai 2006
- Spent Nuclear Fuel Recycling, Report to Congress, Department of Energy, Mai 2006.
- M. Debes, *Recherches sur la gestion des déchets radioactifs, l'axe 1 séparation et transmutation*, Revue Générale du Nucléaire, Mai 2006
- S. David et al., *Quels inventaires de déchets ultimes aujourd'hui, demain et aprèsdemain*, note CEA NT/SPRC/LECy/05-338, note PACE CNRS/DIR/PACE/2005.02
- D. Leroy et al., *l'uranium naturel, des ressources abondantes, mais à quel prix ?*, Revue des ingénieurs, 2003.
- JM Loiseaux et al., Innovative Systems for Sustainable Nuclear Energy Generation and Waste Management, New Trends in Nuclear Physics and Applications, Proceedings Pavie, 2005
- H. Nifenecker et al., *Scenarios with an intensive contribution of nuclear energy*, Global Energy Issues, Vol. 19, No.1, 2003, ISSN 0954-7118.

Sur l'énergie en général, il existe de nombreux ouvrage. Le seul que nous citerons propose une approche physique et très complète de la problématique générale de l'énergie, des émissions de CO_2 et des sources d'énergie du futur, avec leurs avantages et leurs inconvénients.

- *L'énergie de demain, techniques, environnement, économie*, sous la direction de JL. Bobin, E. Huffer, H. Nifenecker, groupe Energie de la SFP. EDP Sciences, 2005.

Les énergies autres que le nucléaire¹

Hervé Nifenecker

LPSC, Grenoble et Sauvons le Climat (http://www.sauvonsleclimat.org)

Résumé

On rappelle les différentes définitions de l'énergie utilisées par les économistes. Consommations présentes et envisagées des énergies fossile et nucléaire sont présentées ainsi que les réserves correspondantes. Le nombre d'années de réserve est calculé pour différents scénarios. On montre que seul le charbon et l'uranium permettent de faire face à la demande au cours du 21^{ème} siècle. L'utilisation massive, sans précautions particulières, de combustibles fossiles et, en particulier, du charbon est incompatible avec une évolution raisonnable du réchauffement climatique. On discute des techniques de charbon propre, y compris des perspectives offertes par la capture et la séquestration du gaz carbonique. On discute ensuite des énergies renouvelables, particulièrement dans leur application de production d'électricité. On distingue les énergies renouvelables à débit contrôlable de celles de caractère intermittent. Parmi les premières on trouve l'hydraulique, la biomasse et la géothermie. Parmi les secondes l'éolien et le solaire. Au plan mondial, l'hydroélectricité restera la principale source d'électricité renouvelable centralisée. Le solaire photovoltaïque avec stockage par batteries, est extrêmement prometteur pour l'équipement des régions dépourvues de réseau. La biomasse devrait fournir des carburants de substitution. La géothermie pourrait être une source intéressante de chaleur basse température. Le développement de l'éolien se heurtera au manque de capacité de stockage de l'électricité et sa contribution ne devrait pas dépasser 10% de la consommation électrique. Son développement est très lié à l'existence d'un fort soutien financier.

Abstract

The different meanings of the word « energy », as understood by economists, are reviewed and explained. Present rates of consumption of fossil and nuclear fuels are given as well as corresponding reserves and resources. The time left before exhaustion of these reserves is calculated for different energy consumption scenarios. On finds that coal and nuclear only allow to reach the end of this century. Without specific dispositions, the predicted massive use of coal is not compatible with any admissible value of global heating. Thus, we discuss the clean coal techniques, including carbon dioxide capture and storage. On proceeds with the discussion of availability and feasibility of renewable energies, with special attention to electricity production. One distinguishes controllable renewable energies from those which are intermittent. Among the first we find hydroelectricity, biomass, and geothermal and among the second, wind and solar. At

¹ Une grande partie de cet article s'inspire de chapitres divers du livre : « L'énergie de demain : technique, environnement, économie » EDP Sciences 2005. Nous mettons en référence dans le titre de certaines sections de ce cours le numéro des chapitres du livre qui s'y rapportent.

world level, hydroelectricity will, most probably, remain the main renewable contributor to electricity production. Photovoltaic is extremely promising for providing villages remote deprived from access to a centralized network. Biomass should be an important source of biofuels. Geothermal energy should be an interesting source of low temperature heat. Development of wind energy will be inhibited by the lack of cheap and massive electricity storage; its contribution should not exceed 10% of electricity production. Its present development is totally dependent upon massive public support.

Table des matières

	Résu	ımé	
	Abst	ract	
1	Conv	ventions (Chapitre 4)	
	1.1	Un exemple	
	1.2	Energie finale	
	1.3	Energie primaire	
2	Cons	sommations et ressources (chapitre 4)	
	2.1	Consommations	
	2.2	Ressources et réserves	
	2.3	Les prévisions des scénarios (chapitre 4)	
3	Elec	tricité et émissions de CO2	
	3.1	Les énergies non émettrices de gaz carbonique	
4	Les	combustibles fossiles	
	4.1	Réactions élémentaires	
	4.2	Les techniques de production d'électricité avec les combustibles fossiles	
	4.2.1	Génératrices à cycles combinés	
	4.2.2	Les techniques de charbon propre (chapitre 9)	
	4.3	La capture du gaz carbonique (cf. rapport de la commission présidée par Chr	istian
	Brodha	g pour le MEDD)	
	4.3.1	Transport du gaz carbonique	
	4.3.2	Les sites de stockage	
	4.3.3	Les exemples	
5	Les	énergie renouvelables continues	
	5.1	La biomasse (chapitre 13 et C. Acket sur http://www.sauvonsleclimat.org)	
	5.1.1	La production du carbone organique	
	5.1.2	Ressources de biomasse	
	5.1.3	Les biocarburants	
	5.1.4	Chauffage au bois	
	5.2	L'hydroélectricité (chapitre 12)	400
	5.2.1	Les différents types d'aménagements hydrauliques	400
	5.3	La géothermie (chapitre 14)	403
6	Les	énergies renouvelables intermittentes	404
	6.1	L'énergie éolienne (chapitres 15 et 16)	404
	6.1.1	Eléments de physique des éoliennes	404
	6.1.2	La ressource éolienne	409
	6.1.3	Les conséquences de l'intermittence	

	6.1.4	L'économie des éoliennes	411
	6.1.5	Les maréoliennes	412
6.	2 Le S	Solaire (chapitres 17 et 18)	413
	6.2.1	La ressource	413
	6.2.2	Le Photovoltaïque (chapitre 17)	413
	6.2.3	Le solaire « thermodynamique » (chapitre 18)	419
	6.2.4	Les tours météorologiques	421
7	Compara	iison des coûts	
8	Conclusi	ons	
Po	our en sav	voir plus	

1 Conventions (Chapitre 4)

Pour le physicien l'énergie se mesure simplement en Joules ou en ses multiples : Méga, Giga, Tera (soit mille Giga). Pour l'électricien, on utilisera plutôt le Watt-heure ou ses multiples. 1 Watt-heure (Wh) vaut 3600 Joules. Mais tout cela est trop simple pour les économistes ! Ils utilisent généralement comme unité pratique la Tonne Equivalent Pétrole (tep) qui est l'énergie dégagée par la combustion d'un tonne de pétrole. Ce pétrole est d'ailleurs un pétrole théorique qui veut représenter une composition moyenne du pétrole. 1 tep vaut environ 42 Giga Joules (GJ). On obtient alors le tableau de correspondance :

	Giga Joule (GJ)	Giga Watt-heure(GWh)	Tonne équivalent pétrole (tep)
1 GJ vaut	1	$2,77 \ 10^{-3}$	0,0238
1 GWh vaut	3600	1	85,7
1 tep vaut	42	0,0117	1

Tableau 1

Equivalences entre les unités d'énergie les plus courantes

Les combustibles fossiles ont différentes valeurs énergétiques mesurées en tep comme le montre le **Tableau 2**. La complexité ne s'arrête pas là. Les économistes distinguent aussi l'énergie utile, l'énergie finale et l'énergie primaire.

1 tonne de pétrole d'Arabie Saoudite	vaut	1,016 tep
1 tonne de pétrole US	vaut	1,028 tep
1 tonne de pétrole Chinois	vaut	1,000 tep
1 tonne de pétrole Norvégien	vaut	1,026 tep
1 tonne de Diesel	vaut	1,035 tep
1 tonne d'essence	vaut	1,070 tep
1 tonne de GPL	vaut	1,130 tep
1 tonne de fuel	vaut	0,960 tep
1 tonne de charbon US	vaut	0,646 tep
1 tonne de charbon Chinois	vaut	0,500 tep
1 tonne de charbon Allemand	vaut	0,600 tep
1 tonne équivalent Charbon (Tec)	vaut	0,690 tep

Tableau 2

Contenu énergétique de différents combustibles fossiles. Ces valeurs sont données à titre indicatif et varient en fonction du temps car la composition des combustibles varient de même dans chaque pays.

1.1 Un exemple

Pour définir les différentes formes d'énergie utilisées par les économistes il est éclairant de partir d'un exemple concret. Celui, par exemple, une voiture d'une tonne gravissant un col de 1000 mètres de haut. L'énergie utile déployée par cette voiture est 9,81 10⁶ Joules soit encore 2,725 kWh ou 233 grammes équivalent pétrole (233 gep ou 0,233 kgep. Elle est indépendante de la vitesse et de la longueur du parcours. Manifestement elle ne tient compte ni de la friction, ni de la résistance l'air, ni du rendement du moteur. Supposons maintenant que la longueur du col soit de 10 km et que la voiture consomme 20 kgep aux cent kilomètres en montée (un peu plus de 20 litres au cent). On voit que l'énergie consommée, celle que paiera l'usager appelée énergie finale vaut presque dix fois plus que l'énergie utile (environ 2 kgep). Supposons que, dans le cas considéré, le rendement du moteur thermique soit de 25%. 0,267 kgep (0,5-0,233) équivalent pétrole sont, en réalité, utilisés pour surmonter friction et résistance de l'air. Si le moteur était un moteur électrique de rendement 70% l'énergie finale est ramenée à 0,71 kgep au lieu de 2 dans le cas du moteur thermique.

Remarquons qu'en terrain plat l'énergie utile ainsi définie est nulle ! On peut certes introduire une vitesse de déplacement, et donc une valeur minimum de l'énergie nécessaire pour le déplacement à vitesse donnée, celle du travail à faire contre la résistance de l'air. Mais la valeur de ce travail dépend du Cx du véhicule et n'a donc pas une valeur définie. Il y a là de la marge pour améliorer l'efficacité énergétique, aussi bien d'ailleurs que sur le rendement du moteur.

L'histoire ne s'arrête pas là. Pour extraire le pétrole, le raffiner, le transporter et le livrer à la pompe il faut une énergie supplémentaire. En l'ajoutant à l'énergie finale on obtient l'énergie primaire. Dans le cas présent l'énergie supplémentaire est de l'ordre de quelques dizaines de pour cent de l'énergie finale. Retenons donc une énergie primaire de 2,2 kgep.

Dans le cas du moteur électrique la situation devient vite compliquée. Si l'électricité est produite

par un barrage hydroélectrique le rendement peut atteindre 90%, et l'énergie primaire vaut 0,77 kgep. Si l'électricité est produite par une centrale thermique ou une centrale nucléaire de rendement égal à 33% l'énergie primaire vaut alors 2,1 kgep. Mais, en général, on ne sait pas par quelle installation l'électricité est produite. La relation entre énergie finale et primaire est alors définie de manière conventionnelle.

1.2 Energie finale

L'énergie finale est donc celle utilisée par l'utilisateur final (autrement dit celle qui lui est facturée), peu importe l'usage qu'il en fait. Par exemple l'usage final de l'électricité se mesure en kWh qu'il s'agisse du chauffage des locaux ou des aliments ou du fonctionnement d'un ordinateur. Le rendement de cet utilisation n'intervient donc pas explicitement : le kWh utilisé avec des ampoules électriques standard est le même que celui utilisé avec des lampes à faible consommation même si, dans ce dernier cas la quantité de lumière émise est cinq fois plus importante. On peut, bien entendu, traduire les kWh en tep. Ainsi, une installation de chauffage électrique de 1 kW fonctionnant continûment pendant un an conduit à une énergie finale de 8,76 MWh, soit, en utilisant le Tableau 1, à 0,75 tep. Il est sous-entendu que l'utilisation d'un chauffage électrique consommant 8,76 MWh donnerait le même niveau de confort que celui d'un chauffage au fuel brûlant 0,75 tep, alors que, bien évidemment, il faudrait tenir compte de l'efficacité du chauffage au fuel, en particulier du rendement de la chaudière, alors que pratiquement toute l'énergie du chauffage électrique sert à chauffer l'air ambiant. On voit que cette pratique défavorise, en général, l'utilisation de l'électricité pour ses utilisations non captives, telles que le chauffage des locaux et les transports. Cette remarque est encore plus pertinente si l'on considère l'énergie primaire.

1.3 Energie primaire

L'énergie primaire est, en principe, l'énergie nécessaire pour produire l'énergie finale. A titre d'exemple considérons la production d'électricité à l'aide d'une centrale au fuel. Reprenons le cas ci-dessus d'une installation de chauffage électrique consommant une énergie finale $E_F = 8,76$ MWh, soit 0.75 tep par an. Le courant est produit par une centrale qui a un rendement R. Des pertes P sont inévitables pendant le transport depuis la centrale jusqu'au lieu d'utilisation. Il s'ensuit que l'énergie primaire qu'il faut dépenser pour fournir E_F est : $E_R = \frac{E_F}{R(1-P)}$. Par exemple, l'AIE choisit R(1-P)=0,33. Il s'ensuit que dans le cas de notre exemple, l'énergie primaire sera 2,25 tep par an. Au contraire dans le cas de l'utilisation d'une chaudière au fuel on fait l'hypothèse qu'énergie finale et primaire sont identiques, en tenant compte toutefois des consommations liées au transport et au raffinage. On voit donc que, pour

toutes les applications non captives, l'évaluation, à service équivalent, des performances énergétiques est systématiquement défavorable à l'électricité, en ce sens que l'utilisation de l'électricité apparaît comme la plus gaspilleuse d'énergie primaire. Pour l'AIE, toutefois, ceci n'est pas toujours vrai et dépend de la technique utilisée pour produire l'électricité. Si le facteur R(1-P) est pris égal à 0.33 pour les combustibles fossiles et nucléaire, il

l'électricité. Si le facteur R(1-P) est pris égal à 0,33 pour les combustibles fossiles et nucléaire, il est pris égal à l'unité pour l'hydroélectricité, l'éolien et le photovoltaïque. Pour le géothermique le désavantage est encore plus grand que pour les combustibles fossiles et le nucléaire puisque

l'AIE choisit une valeur de R(1-P) de 0,1.

L'IIASA n'utilise pas les mêmes conventions que l'AIE puisqu'elle retient des valeurs de R(1-P) variant entre 0,3 et 0,4. En effet l'IIASA estime que pour une comparaison valable entre les diverses méthodes de production d'électricité, il est préférable de déterminer la quantité de combustible fossile, le pétrole par exemple, qui serait nécessaire pour produire la même quantité d'électricité. C'est ainsi que pour le nucléaire et l'hydroélectrique elle retient la valeur de 0,4 et plutôt de 0,3 pour le charbon. Ces différentes valeurs de R(1-P) reflètent essentiellement les dépenses énergétiques de production du combustible, nulles pour l'hydroélectricité et maximum pour le charbon (essentiellement à cause du transport du charbon).

En France les facteurs de conversion entre énergies finales et primaires sont définis par la Direction Générale de l'Energie et des Matières Premières (DGEMP) du ministère de l'industrie. Pour l'électricité, jusqu'en 2001, la France appliquait strictement, depuis les premiers bilans énergétiques, la méthode de « l'équivalent primaire à la production » : quelle que soit l'origine de l'énergie électrique considérée, quel que soit son usage, un coefficient de substitution unique était utilisé. Ce coefficient était fixé à 0,222 tep depuis 1972 (auparavant, il était égal à 0,4 tec/MWh, soit 0,27 tep/MWh). Autrement dit, l'électricité était comptabilisée dans les bilans de l'Observatoire de l'énergie, à tous les niveaux (production, échanges avec l'étranger, consommation), avec l'équivalence 0,222 tep/MWh. L'électricité était ainsi comptabilisée comme la quantité de pétrole qui serait nécessaire pour produire cette énergie électrique dans une centrale thermique classique théorique de rendement égal à 0,086/0,222 = 38,7% (contre 31,9% avant 1972). La pratique française était donc très proche de celle de l'IIASA.

En session du 14 février 2002, le Conseil d'orientation de l'Observatoire de l'Énergie a résolu d'adopter, dès la publication du bilan énergétique de 2001, la méthode commune à l'AIE, Eurostat et le CME concernant le coefficient de l'électricité. Pour l'électricité, il convient en conséquence de distinguer trois cas :

- 1 l'électricité produite par une centrale nucléaire est comptabilisée selon la méthode de l'équivalent primaire à la production, avec un rendement théorique de conversion des installations égal à 33% le coefficient de substitution est donc 0,086/0,33 = 0,2606 tep/MWh;
- 2 l'électricité produite par une centrale géothermique est comptabilisée selon la méthode de l'équivalent primaire à la production, avec un rendement théorique de conversion des installations égal à 10%, soit un rendement de substitution de 0,86 tep/MWh
- 3 toutes les autres formes d'électricité (production par une centrale thermique classique, hydraulique, éolienne, marémotrice, photovoltaïque, etc., échanges avec l'étranger, consommation finale) sont comptabilisées selon la méthode du contenu énergétique, avec le coefficient 0,086 tep/MWh.

On peut constater qu'avec ces conventions le remplacement de toutes les centrales nucléaires, produisant environ 400 TWh, par des centrales au fuel de même rendement se traduirait par une diminution de la consommation d'énergie de 104 Mtep à 34 Mtep ! C'est, en sens inverse, le miracle de la multiplication des pains ! Une piste à approfondir pour les tenants d'une réduction de notre consommation d'énergie.

Dans la mesure où le choix d'une méthode de production d'électricité pourrait se faire par comparaison avec celle utilisant un combustible fossile, la pratique retenue par l'IIASA semble la mieux adaptée. Malgré cet avantage de la méthode utilisée par l'IIASA, nous retenons les

statistiques de l'AIE pour l'examen de l'évolution récente des consommations énergétiques car elles sont, en général, mieux documentées que celles de l'IIASA. La différence essentielle entre les deux approches concerne l'hydroélectricité.

2 Consommations et ressources (chapitre 4)

2.1 Consommations

Le Tableau 3 résume les contributions des différentes sources à la production d'énergie primaire. On remarque que pour une production d'électricité équivalente la convention de correspondance entre énergie finale et énergie primaire la production d'énergie primaire allouée au nucléaire est trois fois plus grande que celle de l'hydraulique.

La consommation (pratiquement égale à la production) mondiale d'énergie atteint plus de 11 Gtep. et celle des combustibles fossiles 9,1, soit plus de 80%.

charbon pétrole gaz nucléaire hydro biomasse éolien total						
					solai	re
Mtep 2775	4023	2307714	241	1173	57	11290
% 24,6	35,6	20,4 6,3	2,1	10,4	0,5	100,0

Tableau 3

Répartition de la production énergétique primaire (en Mtep) entre les différentes sources (AIE) en 2004. La colonne marquée « éolien, solaire » inclut également la géothermie à laquelle la convention de l'AIE donne un poids particulièrement important.

Il est aussi intéressant d'observer l'évolution des consommations. Elle est présentée sur le Tableau 4. On constate que c'est la consommation de charbon qui croît le plus vite. Ceci est à relier au développement très rapide de la consommation chinoise, comme on peut le voir sur la Figure 1.

charbon pétrole gaz nucléaire hydro biomasse éolien					total	
solai				solair	е	
croissance %4,6	2,2	2,5 1,4	1,7	1,8	2,9	2,7

Tableau 4

Evolution des quantités d'énergie primaire par source mesurée en moyenne annuelle entre 2000 et 2004 (AIE)



Figure 1

Taux annuels de croissance de la consommation énergétique calculé entre 2000 et 2004 (AIE) pour divers agrégats géographiques.

Globalement la croissance de la consommation énergétique ne montre aucun signe de ralentissement, au contraire, comme le montre la Figure 2. On remarque sur celle-ci qu'en 2004 la consommation énergétique du reste du monde a dépassé celle des pays de l'OCDE.


Figure 2

Evolution de la consommation mondiale d'énergie depuis 1973. On a aussi porté l'évolution de la consommation des pays développés (OCDE) et celle du reste du monde.

2.2 Ressources et réserves

Pendant combien de temps les ressources fossiles nous permettront de consommer au rythme actuel ? Pour répondre à cette question il faut évidemment en avoir une estimation. Or, comme pour ce qui concerne les diverses définitions de l'énergie, la situation est ici assez confuse. Il faut d'abord distinguer les réserves reconnues, les réserves probables et les ressources.

Les **ressources** sont constituées de toutes les quantités atteignables et éventuellement exploitables avec l'évolution des techniques. B. Durand (Energie et environnement : les raisons d'une crise annoncée, à paraître) donne l'exemple des 5 milliards de tonnes de méthane contenus dans l'atmosphère à une concentration de l'ordre de 1 ppm (partie par million) : il est techniquement possible de les extraire mais à un coût énergétique prohibitif (largement supérieur à l'énergie qu'on pourrait en tirer), ce qui n'en fait pas une réserve énergétique. On peut aussi citer les 3 milliards de tonnes d'uranium dissous dans les mers et océans qui sont généralement considérés comme des ressources avec la technique actuelle de réacteurs nucléaires qui exige 200 tonnes d'uranium naturel pour produire 8 TWh. Les réacteurs surgénérateurs qui utilisent 100 fois mieux l'uranium naturel transformerait l'uranium océanique en réserves.

Les **réserves** classées en trois catégories dans le monde pétrolier (B. Durand), les réserves **prouvées**, les réserves **probables** et les réserves **possibles**. Pour les autres combustibles fossiles on utilise des classifications similaires mais pas complètement identiques. Il arrive également qu'on parle de réserves **à découvrir** par opposition aux réserves prouvées. Même pour les réserves prouvées il existe des ambiguïtés car elles dépendent du prix d'extraction considéré comme acceptable. Par exemple, au prix de 80 \$/kg les réserves prouvées d'uranium sont de 2,4 millions de tonnes mais elles atteignent 4,7 millions de tonnes au prix de 130 \$/kg (Agence de l'Energie Nucléaire). Elles dépendent aussi des techniques de récupération, surtout pour le

pétrole et le gaz, mais aussi pour le charbon en ce qui concerne la profondeur envisageable des mines. Enfin les réserves de pétrole annoncées par les états producteurs servent à répartir les quotas de production. Ceci conduit à une surestimation des réserves.

Avec toutes ces précautions on obtient une estimation des réserves des combustibles fossiles et de l'Uranium donnée au Tableau 5.

Réserves (Gtep)	Charbon	Pétrole	Gaz	Uranium	Uranium(SPX)
				(REP)	
Prouvées	400-700	130-180	120-180	42	30000
A découvrir	1000-3000	80-240	200	280	3000000
Années	142-1000	32-92	60-165	70-430	42000-4300000

Tableau 5

Estimation des réserves prouvées et à découvrir pour les combustibles fossiles et l'uranium. Les estimations pour les combustibles fossiles sont données par B. Durand. Celles pour l'uranium par l'AEN. On indique également le nombre d'années de consommation minimales et maximales au rythme actuel

Sur le Tableau 5 le nombre d'années de consommation au rythme actuel sont indiquées. Toutefois il est peu probable que la consommation n'augmente pas considérablement au fur et à mesure du développement de pays comme la Chine et l'Inde.

2.3 Les prévisions des scénarios (chapitre 4)

De très nombreux scénarios de consommation énergétique à l'horizon 2050 ont été construits dans le cadre des études du GIEC. A titre d'illustration nous retiendrons les scénarios que l'IIASA a réalisé pour le compte du Conseil Mondial de l'Energie et du GIEC. Alors que l'IIASA a utilisé une seule évolution pour la population, il a considéré trois rythmes de croissance économique entre 2000 et 2100. Trois types de scénarios ont ainsi été considérés:

- 1. Le scénario A caractérisé par une croissance soutenue avec un rattrapage assez rapide des PVD (pays en voie de développement) sur les pays les plus développés. Le taux de croissance des anciens pays communistes est particulièrement rapide.
- 2. Le scénario B suppose une croissance assez faible des pays développés et modérément forte dans les PVD, à l'exception de la Chine où elle reste forte.
- 3. Le scénario C est un scénario à fort rééquilibrage entre pays développés et PVD.

Les scénarios A, B et C se distinguent aussi par l'évolution des intensités énergétiques dans les différentes régions. Rappelons que l'intensité énergétique est définie comme le rapport de la consommation d'énergie primaire au PIB. D'une manière générale, l'intensité énergétique décroît avec l'augmentation du PIB/habitant. Cette corrélation s'observe plus ou moins pour tous les pays d'économie de marché. Elle s'explique par la dématérialisation progressive de la production comme en témoigne la croissance du secteur tertiaire au fur et à mesure du développement économique. Les intensités énergétiques du scénario A sont plus faibles que celles du scénario B. Ceci est simplement dû au fait que la croissance des PIB est supposée plus forte dans le premier cas que dans le second. Le scénario C est caractérisé par des intensités énergétiques particulièrement faibles. Elles ne reflètent pas seulement une croissance des PIB, mais une politique volontariste de maîtrise de l'énergie. Seul le scénario C conduit à une diminution, particulièrement importante dans les pays industrialisés, de la consommation d'énergie par

habitant. Ce scénario tend à réduire les différences entre les consommations d'énergie des pays actuellement développés et ceux en voie de développement.

De plus, les scénarios de type A et C sont subdivisés en 3 et 2 sous-scénarios respectivement se distinguant essentiellement par le mix énergétique utilisé pour aboutir à la même consommation primaire. Le scénario A1 utilise intensément le pétrole, le scénario A2 le charbon et le scénario A3 le gaz. Le scénario C1 correspond à un scénario de sortie du nucléaire, contrairement au scénario C2. Afin de faciliter les comparaisons entre les sous-scénarios, l'IIASA leur a fixé un certain nombre de caractéristiques communes, en plus du niveau de consommation primaire et du Produit Mondial Brut : consommations d'énergie finales et parts relatives de l'électricité dans la consommation finale sont choisies comme devant être approximativement égales.

Les consommations cumulées entre 1990 et 2050 calculées pour les 6 scénarios sont indiquées sur le Tableau 6 ainsi que les réserves prouvées en 1990. Il est clair que, quelque soit le scénario, de considérables tensions apparaîtront pour le pétrole et le gaz. Il faut donc prévoir un recours croissant au charbon, d'ailleurs observé dès aujourd'hui.

Consommations cumulées 1990 à 2050 Gtep								
	A1 A2 A3 B C1 C2 Réserves 1990						Réserves 1990	
Charbon	200	275	158	194	125	123	540	
Pétrole	300	260	245	220	180	180	146	
Gaz	210	211	253	196	181	171	133	

Tableau 6

Consommations cumulées des combustibles fossiles dans les scénarios de l'IIASA. On indique également les valeurs des réserves prouvées en 1990, en accord avec les estimations du Tableau 5.

3 Electricité et émissions de CO2

Indépendamment de leur raréfaction les combustibles fossiles présentent le désavantage d'être la source de copieuses émissions de gaz carbonique, principal contributeur à l'effet de serre. Alors que les transports individuels sont et seront encore pendant longtemps dépendants du pétrole et, éventuellement, du gaz il est possible, dès aujourd'hui, de produire l'électricité sans y recourir en utilisant l'énergie nucléaire ou les énergies renouvelables au premier rang desquelles l'hydroélectricité. De plus si l'électricité est produite « proprement » elle permet de se chauffer sans émissions soit par chauffage direct, soit grâce à des pompes à chaleur. Elle permettra de développer les transports électriques collectifs et individuels et de produire de l'hydrogène sans émission de gaz carbonique. Elle a donc un rôle stratégique dans la lutte contre le réchauffement climatique, comme cela est évident sur la Figure 3. Les pays utilisant le charbon comme source principale de leur électricité ont une intensité carbone deux fois et demie plus grande que celle des pays qui n'utilisent pas de combustibles fossiles pour ce faire.

Rôle de l'électricité

tCO2/tep



Figure 3

Corrélation entre l'intensité CO2 (tonnage de CO2 émis par unité d'énergie utilisée en tCO2/tep) et la proportion d'électricité produite sans utilisation de combustibles fossiles, essentiellement grâce au nucléaire et l'hydraulique.

3.1 Les énergies non émettrices de gaz carbonique

Rappelons quelles sont les techniques de production d'énergie non ou faiblement émettrices de gaz carbonique :

- L'énergie nucléaire est largement couverte dans les autres exposés de cette école
- Les énergies fossiles peuvent être faiblement émettrices si on leur associe la capture et le stockage du gaz carbonique
- Les énergies renouvelables :
 - o Hydroélectricité
 - o Eolien
 - Solaire Photovoltaïque(PV) et thermodynamique
 - o Biomasse
 - o Solaire Thermique
 - o Géothermie
 - o Energies « marines »

Compte tenu de l'importance de l'électricité soulignée plus haut nous nous intéresserons surtout à la production de cette dernière.

4 Les combustibles fossiles

Rappelons tout d'abord quelques caractéristiques des combustibles fossiles utilisés de façon classique. Ce sont, essentiellement, le charbon, le gaz naturel dont le composant principal est le méthane et le pétrole qui est un mélange d'hydrocarbures liquides sont le plus léger est l'octane.

4.1 Réactions élémentaires

Les réactions élémentaires les plus importantes dans la combustion des combustibles fossiles sont donc :

- 1 dans le cas de la combustion du carbone :
 - $C+O_2 \rightarrow CO_2+4,08eV$ où le carbone est pris sous la forme solide(graphite).
- 2 dans le cas de la combustion du méthane : $CH_4+2O_2 \rightarrow CO_2+2H_2O+8,37eV$ l'eau étant prise sous forme de vapeur

CO2 par combustibles fossiles

3 dans le cas de la combustion de l'octane (pris à titre d'exemple) : $2C_8H_{18}+25O_2 \rightarrow 16CO_2+18H_2O+82,82eV$ l'eau étant prise sous forme de vapeur, soit une production d'énergie de 5,17 eV par molécule de CO2.

On remarque que pour la même production de CO_2 le méthane produit plus de deux fois plus d'énergie que le charbon. L'octane est dans une situation intermédiaires. Il faut toutefois rappeler que les pertes de méthane sont très pénalisantes pour l'effet de serre, son pouvoir de réchauffement étant de 20 à 60 fois celui du CO2 selon l'horizon de temps auquel on se place.



Figure 4

Taux d'émission de CO2 pour la production d'électricité par différents combustibles fossiles

Le charbon et le gaz sont essentiellement utilisés pour la production d'électricité et la production de chaleur tandis que le pétrole est utilisé pour les transports et, de manière plus modeste, pour la production de chaleur. Il est intéressant de comparer les émissions de CO2 pour la production d'électricité.

Sur la Figure 4 on distingue le cas d'une production pure d'électricité de celui où celle-ci est associée à la production de chaleur (co-génération). La co-génération est une technique clairement recommandable dans la mesure du possible. Toutefois il est rare que les besoins en électricité et en chaleur soient totalement synchrones, sauf dans certaines industries. La Figure 4 est donc optimiste dans sa présentation des performances de la co-génération.

4.2 Les techniques de production d'électricité avec les combustibles fossiles

4.2.1 Génératrices à cycles combinés.

La mise au point de matériaux réfractaires nécessaires aux programmes spatiaux, plus particulièrement aux moteurs de fusée, a eu des retombées importantes pour la technologie de production d'électricité. C'est ainsi que des turbines à gaz à haute température ont été mises au point. Dans ce cas les gaz faisant tourner la turbine sont les gaz de combustion. On limite la température de combustion à moins de 1300 d°Celsius pour éviter la formation d'oxyde d'azote.



Figure 5

Représentation schématique d'une turbine à cycles combinés.

Une turbine à cycles combinés est représentée sur la Figure 5. Le gaz et l'air réagissent dans la chambre à combustion. Les gaz de combustion à haute température sont dirigés vers la turbine dont ils entretiennent la rotation. La turbine est couplée à un alternateur producteur d'électricité.

Les gaz d'échappement de la turbine ont encore une température élevée, suffisante pour produire de la vapeur capable d'entraîner une turbine à vapeur productrice, elle aussi, d'électricité. On « combine » donc une turbine à gaz et une turbine à vapeur. La vapeur d'échappement de la turbine est encore capable d'entretenir un circuit d'eau chaude à la sortie d'un échangeur de température : c'est la co-génération d'électricité et de chaleur.

4.2.2 Les techniques de charbon propre (chapitre 9)

Le charbon est le combustible fossile le plus utilisé pour la production d'électricité. Il est abondant, relativement bon marché et géographiquement bien réparti. Par contre, indépendamment des émissions de gaz carbonique liées à sa combustion il est un combustible très polluant, en absence de contre-mesures. Les impuretés de soufre qu'il contient généralement conduisent à la formation d'anhydride sulfureux, précurseur des pluies acides et irritant bronchique. Pour des températures de combustion supérieures à 1300 d°C la production de dioxyde d'azote devient importante. Enfin, en absence d'un traitement des fumées, les centrales à charbon rejettent de grandes quantités de poussière. Rappelons que les cendres de charbon sont significativement radioactives du fait de la présence d'Uranium, de Thorium et de Potassium. Une centrale de 1 GWe brûle environ 3,5 millions de tonnes de charbon et ses cendres contiennent 1 à 2 tonnes d'Uranium et 3 fois plus de thorium. Pour réduire les rejets d'oxyde de Soufre les électriciens américains, encouragés par un système de permis d'émission, ont principalement utilisé deux techniques :

- soit utiliser le charbon du Wyoming, pauvre en Soufre, au prix de la mise en œuvre d'immenses « trains du charbon » entre le Wyoming et l'Est des USA.
- soit utiliser la technique du lit fluidisé. Dans cette technique le charbon, finement pulvérisé, est entraîné vers la chambre de combustion dans un rapide flux d'air. Il est alors possible de mélanger intimement de la chaux au charbon pour former des sulfates de calcium et diminuer de façon considérable les rejets de SO2. Par ailleurs, on limite la température de flamme à 900 d°C pour éviter la production de d'oxyde d'azote. Enfin les poussières sont filtrées par des filtres électrostatiques. A ce stade on considère que la combustion du charbon est propre.

Une autre technique, moins utilisée mais qui a un brillant avenir, consiste à gazéifier le charbon en brûlant le charbon dans un milieu humide et pauvre en oxygène. Dans les conditions stœchiométriques les réactions de gazéification s'écrivent :

$$C + \frac{1}{2}O_2 \rightarrow CO + 1, 1eV$$

$$C + H_2O \rightarrow CO + H_2 - 1, 23eV \text{ et}$$

$$2C + \frac{1}{2}O_2 + H_2O \rightarrow 2CO + H_2 - 0, 13eV$$

Équation 1

ce qui montre que cette réaction est très peu endothermique. Le mélange de monoxyde de carbone et d'hydrogène est le gaz de synthèse qui peut être brûlé proprement.

Notons qu'il est aussi possible, à partir du gaz de synthèse, de synthétiser des carburants liquides, par exemple, par la réaction de Fischer Tropsch utilisant des catalyseurs en Cobalt ou Fer :

$nCO+(n+1)H_2 \rightarrow C_nH_{2n+2}$

Ce type de synthèse est déjà été utilisé par les Allemands pendant la guerre de 39-40, puis par les Africains du Sud pendant le boycott. Ce procédé est rentable si le prix du pétrole dépasse

durablement 50 à 60 dollars par baril. Il est donc probable qu'il sera largement utilisé dans l'avenir, en particulier dans des pays comme la Chine. Ainsi le charbon remplacera-t-il le pétrole lorsque les réserves de ce dernier deviendront insuffisantes. La limite aux émissions de gaz carbonique ne viendra donc pas du « pic » du pétrole. De là l'importance de capturer et stocker le gaz carbonique.

4.3 La capture du gaz carbonique (cf. rapport de la commission présidée par Christian Brodhag pour le MEDD)

La capture du gaz carbonique est d'usage courant dans l'industrie chimique, essentiellement lorsque l'on veut éliminer le CO_2 et le H_2S de flux gazeux utiles. Il en est de même de l'extraction du gaz naturel qui est souvent accompagné de ces deux impuretés gazeuses. La pratique actuelle consiste à envoyer le CO2 dans une tour à la rencontre d'une solution d'amines (Figure 6). L'amine la plus utilisée est la monoéthanol amine (MEA, de formule NH2-CH2-CHOH), qui par réaction avec le CO2 donne un acide aminé (voir Figure 7)



Figure 6

Schéma d'une installation de capture de CO2. Le mélange sortant de la chambre à combustion est refroidi et injecté dans la colonne (absorber) où il interagit avec la solution d'amine. L'azote et l'oxygène sortent vers le haut de la colonne tandis que la solution d'amine contenant les produits de la réaction exothermique entre l'amine et le CO2 sort vers le bas de la colonne. La solution enrichie en CO2 doit être réchauffée pour libérer le CO2 qui doit être, à son tour, purifié par condensation de l'eau et de l'amine résiduelle. La solution d'amine est réchauffée, mélangée à l'amine enrichie en CO2 puis réinjectée en haut de colonne.



Figure 7

Réaction de fixation du CO2 par le MEA. Avec Q=0,9 eV

De la valeur Q=0.9 eV de la chaleur de réaction de fixation du CO2, on déduit que l'énergie nécessaire pour la re-séparation du CO2 représente environ 22% de l'énergie produite par la combustion du charbon.

Le composé résultant de la réaction entre l'amine et le CO2 est d'autant mieux lié, et le procédé d'autant plus efficace, que cette réaction est exothermique. Inversement, la re-séparation réclame d'autant plus de chaleur. D'autres amines ont des énergies de réaction plus faibles et donnent lieu à des recherches d'optimisation de procédé jouant sur le temps de réaction et l'énergie d'extraction. Signalons que les amines sont corrosives.

Le coût de la capture du CO2 est assez élevé et des recherches ont lieu sur des procédé alternatifs. On estime ce coût à entre 75 et 130 €tonne de carbone rejeté. Une des raisons de ce coût élevé vient de la présence majoritaire d'azote dans le gaz de combustion. C'est pourquoi on envisage une combustion sous oxygène pur. Ceci permettrait de diviser par 4 le volume de gaz à traiter.

Dans les deux cas précédents le CO2 est extrait après combustion. Il est aussi possible d'utiliser du gaz de synthèse pour produire l'électricité. Dans ce cas les réactions de l'Équation 1 sont complétées par une réaction catalysée du monoxyde de carbone sur l'eau :

 $CO+H_2O \rightarrow CO_2+H_2+0,46 \text{ eV}$

L'hydrogène produit par cette réaction est ajouté à celui fourni par les réactions de l'Équation 1 pour produire éventuellement de l'électricité ou, plutôt, pour être utilisé comme combustible pour les transports. C'est à ce niveau, dit de pré-combustion, que le CO2 peut être récupéré.

4.3.1 Transport du gaz carbonique

Il est nécessaire de transporter le gaz carbonique vers le site de stockage. Ceci peut se faire soit sous forme liquide dans des wagons, des camions, ou des bateaux citernes, soit par pipe line. La pression de liquéfaction du CO2 est d'environ 5 MPa et la pression de travail est d'environ 15 MPa. Le coût du processus de compression est estimé à environ 25 €tonne de C comprimé.

Le coût du transport sur quelques centaines de km est estimé à environ 10 €tonne de C. Finalement le coût de la séquestration est estimé à 20 €tonne. Le surcoût de la captureséquestration se situerait entre 130 et 185 €tonne de carbone. Ce prix est à rapprocher du prix du charbon de l'ordre de 30 €tonne. Dans un récent rapport le MEDD estime le coût du CO2 capturé et stocké entre 40 et 210 €tonne de C. Ces chiffres sont cohérents avec ceux que nous avons détaillés. Si le CO2 est utilisé pour récupérer du pétrole ou du gaz les coûts s'abaissent significativement mais les hydrocarbures récupérés risquent de contribuer eux mêmes à l'effet de serre.

4.3.2 Les sites de stockage

Il avait été envisagé de stocker le CO2 dans les grands fonds océaniques. En effet, le CO2 est sous forme liquide en dessous de 500 mètres. Cette solution a été abandonnée à cause des risques d'acidification des eaux marines et des risques de remontée de bulles de CO2.

Les sites envisagés sont les anciens gisements de gaz et de pétrole, les anciennes mines de charbon et les nappes aquifères salines. Le MEDD estime que les quantités qui pourraient ainsi être stockées atteindraient 250 GtC dans les anciens gisements, 250 GtC dans les nappes aquifères et 5 GtC dans les anciennes mines de charbon. Ces quantités sont de l'ordre de grandeur des réserves prouvées de charbon.

4.3.3 Les exemples

La séquestration du gaz carbonique est en cours d'évaluation dans un certain nombre d'expériences semi-industrielles. Les deux plus avancées sont celles du gisement de Sleipner exploité par la compagnie pétrolière norvégienne Statoil, et celle de Weyburn au Canada. Les deux expériences envisagent le stockage de 20 millions de tonnes de gaz carbonique. Weyburn (Saskatchewan) est un ancien gisement de pétrole. Le projet consiste à stocker dans ce gisement le gaz carbonique produit par l'usine de Beulah (Dakota du nord) qui transforme du charbon en méthane et autre hydrocarbures légers par réaction avec de l'eau. Le gaz carbonique est transporté à Weyburn par un pipeline de 320 km. Dans le cas de Sleipner le gisement de gaz relâche, en même temps que du méthane ou d'autres hydrocarbures gazeux, de grandes quantités de gaz carbonique. Or le gouvernement norvégien impose une taxe carbone de 155 €tonne de C. La séparation du gaz carbonique, sa mise en pression et son renvoi dans le gisement ne coûtent à la compagnie Statoil que 40 €tonne C. Dans ces conditions, l'opération est rentable. Chaque année 1 million de tonnes de CO2 sont ainsi réinjectées dans le gisement. Jusqu'à présent, sur aucun des deux sites, les géophysiciens n'ont observé de remontée du gaz. Il s'agit là d'un point crucial qui devra être vérifié dans des expériences menées à beaucoup plus grande échelle.

Les USA ont un programme ambitieux en la matière avec la construction d'une centrale au charbon de 275 MW capable de fournir électricité et Hydrogène. Le principe est de produire du "gaz de synthèse" puis d'oxyder le monoxyde de carbone en gaz carbonique. Celui-ci sera ensuite liquéfié et transporté dans un site de stockage où il servira à améliorer la récupération de pétrole (gisement de pétrole) ou de méthane (gisement de gaz ou ancienne mine de charbon). Le coût prévu de l'installation est de 1 milliard de dollars (soit environ 6 milliards d'euros par Giga-Watt de puissance électrique, à comparer aux 2 milliards d'euros par GWe pour un réacteur EPR). A terme, le but du programme est de construire des centrales produisant de l'électricité sans rejets avec un surcoût de seulement 10% et d'obtenir un prix de l'Hydrogène équivalent à une prix du pétrole de 10 €baril. Mais on est encore loin de ce but en admettant qu'on l'atteigne un jour.

5 Les énergie renouvelables continues

Nous désignons comme énergies continues celles qui ne sont pas intermittentes

5.1 La biomasse (chapitre 13 et C. Acket sur http://www.sauvonsleclimat.org)

Dans le monde, la source d'énergie renouvelable la plus importante est la biomasse continentale. Il s'agit de l'ensemble des forêts, prairies et champs cultivés. Pour ce qui concerne le cycle du carbone la biomasse apparaît comme un stockage de ce dernier pendant une durée variant de l'année (plantes annuelles) à plusieurs dizaines, voire centaines d'années (chênes, séquoias). Pendant leur croissance les plantes fixent le carbone du gaz carbonique de l'air grâce à la photosynthèse. Après leur mort les plantes subissent une décomposition qui relâche du gaz carbonique et du méthane. Une partie de la plante sert aussi à entretenir la vie animale qui, à son tour, se décompose à terme avec émission de CO2 et de méthane entre autres. Dans l'atmosphère le méthane est oxydé en gaz carbonique et en eau (c'est une combustion lente).

Dans la lutte contre le changement climatique la biomasse est utile dans la mesure où on peut remplacer la décomposition naturelle par une combustion artificielle. Une telle pratique tend même à diminuer l'émission de méthane au bénéfice de celle de CO2. Le méthane étant un gaz à effet de serre au moins 20 fois plus efficace que le CO2, le résultat de l'utilisation de la biomasse à des fins énergétiques est donc potentiellement très intéressant. Il y a toutefois lieu de modérer cet engouement par plusieurs considérations :

- La valorisation de la biomasse risque de se traduire par une surexploitation et, donc, par une accélération du déboisement et (ou) une augmentation de l'agriculture intensive grande utilisatrice d'engrais azotés émetteurs d'oxyde nitreux, puissant gaz à effet de serre. Une industrialisation croissante de l'exploitation forestière tendra à diminuer la bio diversité.
- Les produits de décomposition du bois sont des éléments nutritifs indispensables à toute une flore (champignons) et à toute une faune. Ne pas en laisser suffisamment sur place nuirait gravement à la biodiversité. Les éléments présents dans les cendres de combustion manqueront aux sols forestiers qui auront ainsi tendance à s'appauvrir.
- La production de biomasse énergétique entrera en concurrence avec la production de biomasse alimentaire, non seulement pour ce qui concerne la disponibilité foncière mais aussi les ressources d'eau.

Pour estimer les possibilités offertes par la biomasse ces limitations doivent être présentes à l'esprit.

5.1.1 La production du carbone organique

On estime que le réservoir mondial de biomasse terrestre est de l'ordre de 2300 milliards de tonnes de carbone (GtC). La quantité de carbone présente dans l'atmosphère avant le développement industriel était de 590 GtC. En absence des émissions anthropiques environ 60 GtC sont absorbés chaque année par la biomasse terrestre par photosynthèse tandis que la même quantité est émise du fait de la décomposition. Compte tenu du fait que la biomasse est partiellement oxygénée l'énergie correspondant à ces 60 GtC est estimée à 100 Gtep, soit 170 Gt de matière sèche et 570 Gt de matière humide.

L'utilisation de la biomasse consiste à accélérer ce métabolisme en accélérant les processus d'émission. Il est important de remarquer que les sols contiennent plus de carbone que la végétation visible. Au contraire, les sols cultivés sont particulièrement pauvres en carbone. Le

Tableau 7 illustre ces comportements et présente de nombreuses surprises : par exemple les forêts boréales stockent plus de carbone que les forêts tropicales (ceci est du à la lenteur des processus de décomposition dans le sol). L'avancée des cultures sur les forêts et les prairies naturelles conduit automatiquement à un relâchement de CO2.

	Tonnes de carb			
	Végétation	Sol	Total	% dans le sol
Forêt tropicale	120,4	122,6	243	50,5
Forêt des régions tempérées	56,8	96,2	153	62,9
Forêt boréale	64,2	343,8	408	84.3
Savane tropicale	29,2	116,8	146	80
Prairie des régions tempérées	7,2	235,8	243	97
Désert et zones arides	11,8	42,2	44	96
Toundra	6.,3	127,7	134	95,3
Zones humides	42,2	643,1	686	93,8
Terres cultivées	1,9	80,1	82	97,7

Tableau 7

Contenu en carbone de différents types de sol.

5.1.2 Ressources de biomasse

Sur les 100 Gtep produites par la biomasse environ 2,1 sont utilisées pour l'alimentation humaine, 0,4 Gtep comme matériau et 1,3 Gtep pour les besoins énergétiques dont 1,1 sous forme de bois de feu dans les PVD. On voit que nous utilisons dès maintenant environ 4% de la production de biomasse.

L'augmentation de la population et l'amélioration de son alimentation devrait conduire à un doublement de la consommation pour l'alimentation. On peut espérer que l'efficacité énergétique dans l'utilisation du bois de feu s'améliorera. Le potentiel énergétique mobilisable de la biomasse est estimée (G. Claudet) à 2,23 Gtep dont 1,6 procuré par les forêts. Cette ressource sera sans doute inférieure à 10% des besoins. Globalement on espère donc pouvoir exploiter environ 7% de la production totale de biomasse.

Pour l'Europe des 15 l'UE estime qu'il serait possible, en 2050, d'obtenir 63 Mtep des forêts, 20 Mtep des résidus de récoltes et 52 Mtep de cultures énergétiques, soit un total de 172 Mtep (12% de la consommation énergétique primaire) à comparer à 37 Mtep aujourd'hui. Il s'agit donc là d'une augmentation considérable qui sera toutefois loin de subvenir aux besoins.

Pour la France on estime qu'il est envisageable d'utiliser :

- 8 Mtonnes de plaquettes forestières
- 6 Mtonnes de déchets de l'industrie du bois
- 10 Mtonnes de déchets industriels (bois de construction etc.)

- 12 Mtonnes de déchets ménagers
- 19 Mtonnes de déchets agricoles
- 36 Mtonnes de cultures énergétiques

pour un total de 40 Mtep d'énergie primaire et de 20 Mtep d'énergie finale. Là encore ont trouve une contribution possible de la biomasse à hauteur de 15% des besoins.

Il faut ajouter que la disponibilité en eau risque d'être la vraie limite au développement des cultures énergétiques : il faut 10000 m³ d'eau pour produire 1 tep à partir de blé. L'énergie nécessaire au pompage de cette eau est de l'ordre de 0,12 tep/tep.

5.1.3 Les biocarburants

Les biocarburants appartiennent à deux catégories, les alcools ou les huiles. Les alcools sont des substituts à l'essence et les huiles au diesel.

5.1.3.1 L'éthanol

L'éthanol est obtenu par fermentation directe de plantes sucrières comme la canne à sucre ou la betterave. Une hydrolyse préalable est nécessaire pour les céréales et les tubercules qui sont riches en amidon. Les rendements énergétiques bruts à l'hectare sont les suivants :

- la canne à sucre : 7 à 8 m^3 / ha soit 3.5 à 4 tep / ha
- la betterave : 6.5 à 7 m³ / ha soit 3.3 à 3.5 tep / ha
- le blé $$:2.7\ \mbox{a}\ 3.1\ \mbox{m}^3\,/$ ha \$: soit 1.4 $\mbox{a}\ 1.6$ tep / ha
- le maïs : 2.9 à 3.4 m³ / ha soit 1.5 à 1.7 tep / ha

Ce tableau montre l'intérêt des cultures sucrières.

L'éthanol une fois obtenu doit être purifié et, surtout, distillé, ce qui est une opération dispendieuse en énergie. Par exemple, pour la betterave, partant du jus pour obtenir 1 litre d'éthanol qui représente un potentiel énergétique de 21 MJ il faut actuellement dépenser 6.6 MJ sous forme de vapeur et d'électricité, soit 1/3 de l'énergie finale. Pour le blé cette dépense énergétique se monte à 12 MJ, soit la moitié de l'énergie finale. A ces consommations liées à la distillation, il faut ajouter d'autres dépenses énergétiques (transports, broyages) mais aussi celles associées à la culture. Finalement on estime qu'avec 1 tep de dépense énergétique il est possible de produire entre 1,3 et 1,5 tep de bio-éthanol. L'opération de distillation fournit aussi des co-produits qui peuvent servir d'alimentation protéinée pour le bétail. Certains partisans des biocarburants partagent la dépense énergétique entre l'éthanol et les co-produits, ce qui améliore, bien sûr le rendement énergétique de l'opération. Toutefois cette pratique ne peut se justifier qu'aussi longtemps que la production de bio carburants reste faible. Le Tableau 8 montre l'influence des hypothèses sur le rendement énergétique :

	Prod. brute	Prod. nette	Prod nette	Prod nette
		(prorata masse)	(affect 100%)	(substitution)
	tep / ha	tep/ha	tep/ha	tep/ha
Betterave	3.5	2.01	0.6	0.67
Blé	1.6	0.92	+0?	0.19

Tableau 8

Exemples des variations dans l'estimation des productions nettes de bio carburants à l'hectare selon les conventions choisies pour affecter les dépenses énergétiques aux coproduits. La deuxième colonne donne la production brute par hectare. La troisième donne la production nette en affectant les dépenses énergétiques proportionnellement à la masse relative des co-produits et de l'éthanol. La quatrième colonne ne tient pas compte des coproduits. La dernière affecte aux co-produits l'énergie nécessaire pour les produire seuls. L'utilisation de l'éthanol dans les moteurs dépend des politiques publiques se traduisant par les normes imposées aux moteurs des automobiles. Ainsi le Brésil a-t-il rendu obligatoire la possibilité d'utiliser l'éthanol en grande proportion : dans ce pays aucune voiture ne fonctionne à l'essence seule. Globalement avec 14 Millions de m³ d'éthanol, ce sont plus de 30 % des transports qui reposent sur l'éthanol tiré de la canne à sucre. Les voitures utilisent soit de l'éthanol pur, soit un mélange de 24% d'éthanol dans l'essence, soit des mélanges variables allant jusqu'à 85%.

En France et en Europe le contenu en éthanol est limité à 5%. On peut atteindre 15% par l'intermédiaire de l'ETBE (Ethyl Tertio Butyl Ether) qui résulte de la réaction de l'éthanol avec l'isobutène. L'isobutène est issu de l'isomérisation du butane donc d'origine fossile. Finalement l'ETBE ne contient qu'un tiers d'éthanol.

5.1.3.2 Les huiles

De l'huile pure est obtenue après trituration en pressurant les graines d'oléagineux (ex: colza, tournesol, soja) puis en filtrant. Les opérations pour obtenir l'huile à partir des graines, nécessitent beaucoup moins d'énergie que pour la production d'éthanol. Il faut par exemple 2.45 MJ / litre d'huile pour les opérations de trituration, d'extraction et de raffinage pour une énergie finale de 36.8 MJ / litre, soit au total environ 7 % du potentiel énergétique final. Des huiles végétales ont pu être utilisées directement comme carburant Diesel, mais ceci a des limites qui se sont accentuées avec l'évolution des technologies moteurs. Les principales limites portent sur la viscosité à froid, le délai d'auto inflammation (indice de cétane) les dépôts, notamment à l'injection et enfin sur la qualité des émissions (pollution locale) Ceci conduit à ne pas retenir l'utilisation directe, mais à passer par un produit tel que les EMHV.

Les EMHV (esters méthyliques d'huiles végétales) résultent de la réaction de l'huile végétale, constituée de triglycérides avec le méthanol (CH³OH) Le méthanol est un des produits de la chimie organique le plus fabriqué au monde, essentiellement à partir du gaz de synthèse (CO + H²) lui-même obtenu à partir du méthane ou d'hydrocarbures. Les propriétés de l'EMHV sont très proches de celles du Diesel.

Les rendements à l'hectare de production de diesters sont plus faibles que ceux de l'éthanol :

Colza $1.2 \ a \ 1.3 \ t \ / \ ha$ ($1.1 \ a \ 1.2 \ tep \ / \ ha$) $+ \ 1.8 \ t$ de tourteaux

Tournesol 0.7 à 0.8 t / ha (0.66 à 0.75 tep / ha) $\,+$ 0.6 t de tourteaux

Il faut noter que des plantes plus « exotiques » produisent beaucoup plus, exemple palme (coprah) : 6 à 7 t / ha. L'estimation des productions nettes est moins sujette à débat que celle vue ci dessus pour l'éthanol, car les besoins énergétiques de la graine à l'huile sont relativement plus faibles et on obtient environ 0.9 tep/ha pour le colza et 0.6 tep/ha pour le tournesol, soit environ 3 tep de diester pour 1 tep dépensée.

5.1.3.3 La filière thermochimique

Tout comme il est possible de produire des carburants liquides et gazeux à partir du charbon, il est possible de produire des biocarburants à partir de matière ligno-cellulosique.

La thermochimie utilise la chaleur pour décomposer la matière lignocellulosique. Cette filière est sans doute la filière d'avenir pour l'exploitation énergétique de la biomasse.

Selon les conditions physiques de température, de vitesse de variation de la température, de la présence ou non de gaz de réaction, différents produits sont obtenus, certains aptes à être transformés en biocarburants. En fonction de la température, les constituants de la biomasse se décomposent en phases solide (charbon) liquide (huiles) et gazeuse, la part de ces deux dernières croissant avec la température de réaction.

5.1.3.3.1 Gazéification

L'objectif est de transformer l'essentiel de la biomasse en gaz de synthèse qui sera toutefois accompagné d'impuretés gazeuses telles que : CH4, CO_2 H₂O. La gazéification est réalisée à des températures élevées

 $(1.000 à 1.500 \circ C)$ en pression et en présence d'un réactif gazeux : air, vapeur d'eau (vaporeformage et oxydation partielle). Les techniques sont essentiellement celles retenues pour la gazéification du charbon. Les réactions en jeu sont très endothermiques (environ la moitié de l'énergie potentielle) mais les énergies nécessaires sont en général fournies (autothermie) par une combustion partielle des masses carbonées avec injection d'air (ou d'oxygène) Ceci donnera en plus des gaz recherchés du CO² et de la vapeur qu'il faudra séparer. Après purification, le gaz de synthèse peut être transformé en hydrocarbures selon la technique Fischer Tropsch.

Globalement le rendement massique (rapport de gazole produit sur masse sèche initiale) est à ce jour compris entre 15 % et 20 %, avec des espoirs d'améliorations. En faisant appel à d'autres sources d'énergies externes (allothermie) des rendements au-delà de 40 % peuvent être espérés.

Ceci se traduirait de la façon suivante : au lieu de produire 1 tep en consommant une partie de la biomasse pour fournir la chaleur nécessaire, on pourrait produire, à partir de la même quantité de biomasse, 2 à 2,5 tep de biocarburant en apportant 1 à 1,5 tep d'énergie extérieure (par exemple 11 à 17 MWh d'électricité)

5.1.3.3.2 Thermolyse

Dans la thermolyse, la décomposition qui s'effectue à des températures plus basses et en absence d'oxygène, conduit à la production des 3 phases : solide, liquide et gazeuse. Le niveau de température et la vitesse de variation de température fixeront leurs teneurs respectives.

Dans la thermolyse lente, des basses températures et un long temps de séjour, favorisent la formation de phase solide (charbon)

Dans la thermolyse rapide ou flash, des températures plus élevées (entre $450 \circ C$ et $650 \circ C$) et des courts temps de séjour (quelques secondes) favorisent la production d'huiles. L'huile assez lourde (densité 1.2) visqueuse peut être utilisée directement comme combustible, mais des progrès sont indispensables (recherches en cours sur l'hydrotraitement) pour passer à la production de biocarburants.

5.1.3.3.3 La liquéfaction directe ou conversion hydrothermale

Différents solvants sont envisagés, dont simplement l'eau. Les conditions de réaction sont réalisées dans la gamme 250 à 450 °C, avec une gamme de pression très large, depuis la pression atmosphérique, jusqu'à la pression critique de l'eau (221 bar) Ces procédés conduisent aussi à la production d'huile.

5.1.4 Chauffage au bois.

Le rendement des différents moyens de se chauffer au bois sont extrêmement variables :

- cheminée ouverte : 10 %
- poêle ou un foyer fermé avec insert rendement : 55 %
- chaudière moderne rendement supérieur à 75 %.

Actuellement le bois fournit environ 9,5 Mtep. La surface forestière augmente d'environ 0,4% chaque année.

La croissance du volume forestier atteint 112 millions de m³ correspondant à une fixation de carbone de 25 Mt. 10 MtC sont utilisées et 15 MtC sont stockées sous forme d'augmentation du volume forestier. A l'horizon 2050, en améliorant encore l'exploitation de la forêt on peut envisager une production d'énergie primaire de 23 Mtep.

Le combustible bois est relativement bon marché, variant entre 15 et 30 €MWh. En 2004 le prix du fioul lourd atteignait 40 €MWh et celui du gaz 31.

Par contre, pour une installation type chaufferie bois (< 1 MW) les investissements se chiffrent entre 700 et 900 €HT / kW installé. Pour des puissances de quelques MW les investissements se chiffrent entre 400 à 600 €HT / kW installé (un exemple récent: une chaufferie de 12 MW, investissement 7.1 M€)

L'investissement pour la chaufferie bois est de plusieurs fois (3 à 4) celui de la même installation en fuel ou gaz, l'écart relatif diminuant avec la puissance. En l'absence de crédits d'impôts ou de subventions la filière bois n'est donc pas encore rentable. Toutefois l'instauration de taxes carbone devrait changer les choses.

5.2 *L'hydroélectricité* (chapitre 12)

L'hydroélectricité est, de loin, la première source d'électricité renouvelable. Elle présente de nombreux aspects intéressants et, même, pour certains équipements, uniques. Tous les aménagements avec retenue peuvent servir à adapter la production d'électricité à la demande, avec des temps de réponse très courts. Les coûts de fonctionnement de l'hydroélectricité sont extrêmement bas et, lorsque les équipements initiaux ont été amortis l'hydroélectricité est imbattable économiquement.

Les inconvénients des aménagements hydroélectriques sont, essentiellement, liés à la taille des retenues qui ont des conséquences environnementales locales significatives et dont la mise en eau exige souvent de grands déplacements de population. Il arrive aussi que des barrages se rompent, ce qui peut entraîner des catastrophes très graves, comme le fut la rupture du barrage de Morvi, en Inde, qui cause la mort de 30000 personnes en 1979. Enfin lors de leur mise en eau les retenues peuvent provoquer de considérables émissions de gaz à effet de serre du fait de la décomposition de la biomasse ennoyée.

Nous passons ici en revue les différents types d'aménagements ainsi que les principales technologies de turbines.

5.2.1 Les différents types d'aménagements hydrauliques

Chaque site possède ses propres caractéristiques, hydrologiques, géologiques, topographiques, et sera aménagé en fonction de ses caractéristiques et des objectifs poursuivis : fourniture quasi permanente d'électricité, fourniture en période de pointe uniquement, stockage temporaire, etc.. Bien que chaque aménagement hydraulique soit très spécifique du site choisi, les différents aménagements peuvent être classés en quelques grandes familles.

5.2.1.1 Les aménagements avec retenue

De nombreuses rivières ont un débit très variable au cours de l'année, notamment du fait de la variation saisonnière des précipitations et du stockage naturel de la neige en hiver, et ceci d'autant plus que leur bassin versant est limité. C'est le cas de la plupart des rivières en altitude, mais également de certaines autres, comme la Durance en France. Lorsque l'on veut exploiter leur potentiel hydraulique, on est amené à construire des barrages qui vont eux mêmes stocker l'eau lorsqu'elle arrive en abondance, et permettre de la restituer et de la turbiner lorsqu'on en a besoin. Ces barrages ont des hauteurs variables, entre quelques dizaines de mètres et largement plus de 100 mètres en fonction de la topographie des lieux et des quantités d'eau à stocker. Ces quantités sont elles mêmes très variables, de quelques centaines de millions (Tignes) à quelques milliards de m³ (Serre-Ponçon) voire beaucoup plus (barrage Nasser sur le Nil en Egypte ou Kariba sur le Zambèze).

5.2.1.2 Les aménagements « au fil de l'eau »

Lorsque le débit d'une rivière ne varie pas trop au cours de l'année, on choisit généralement de l'équiper « au fil de l'eau », sans créer de retenue. C'est le cas de la plupart des fleuves une fois qu'ils sont arrivés en plaine, avec un débit important mais une faible pente. En France, c'est le cas du Rhône, en aval du Lac Léman, et du Rhin. L'eau que l'on veut turbiner est en général dérivée dans un canal latéral, sur une distance suffisante pour obtenir une hauteur de chute suffisante (de l'ordre de 10 m.) Sur le Rhin, par exemple, chaque usine, en turbinant environ 1000 m³/s sur une hauteur de 10 à 15 m, a une capacité de 80 à 120 MW ; la pente générale du fleuve permet d'installer une usine de ce type tous les 30 km environ.

5.2.1.3 Les stations de transfert d'énergie par pompage (STEP)

L'électricité ne peut pas être stockée, aussi cherche-t-on les moyens de stocker de l'énergie sous diverses formes. Une des plus efficaces est de la stocker sous forme d'énergie potentielle de l'eau. En heures creuses, alors que l'on dispose d'une production d'électricité excédentaire, on pompe de l'eau entre un bassin bas et un bassin haut ; en période de pointe, cette eau est turbinée pour fournir de l'électricité. Les hauteurs de chute sont en général très élevées (800 à 1000 m), les capacités des réservoirs (généralement artificiels) étant adaptées aux objectifs poursuivis. En France, la STEP de Revin est capable de fournir une puissance de pointe de 1000 MW environ et celle de Grand'Maison, 1800 MW.

5.2.1.4 Les différents types de turbines

La turbine va permettre de transformer l'eau qui s'échappe de la conduite en énergie de rotation. La forme et les caractéristiques des turbines dépendent des catégories d'installations hydroélectriques dans lesquelles elles sont employées :

- La turbine Pelton, généralement réservée aux usines de haute chute (de 300 à 1800 mètres), a été mise au point par Pelton au XIX^{ème} siècle. Cette turbine est constituée d'une roue, sur la périphérie de laquelle sont fixées des séries de cuillères doubles métalliques appelées augets. L'eau sort de la conduite forcée à grande vitesse et vient percuter avec force les augets de la roue par l'intermédiaire des injecteurs. La puissance maximale unitaire atteinte est de 400 MW.
- La turbine Francis est utilisée pour les moyennes chutes (entre 30 et 750 mètres). Elle ressemble à un cylindre évasé, divisé sur sa longueur par une série de cloisons longitudinales incurvées. Le pourtour élargi de la turbine est cerclé par une couronne percée d'une vingtaine d'ouvertures par lesquelles pénètre l'eau sous pression venant de la conduite forcée. Cette eau glisse sur les pales de la turbine et se dirige vers son cœur, d'où elle est évacuée. Lorsque l'eau s'écoule par les canaux de la turbine, elle abandonne sa pression aux pales de la turbine. C'est cette différence de pression qui est à l'origine de la rotation de la turbine. La puissance maximale atteinte est de 800 MW par unité.
- La turbine Kaplan sert dans les usines de basse chute (10 à 80 m). L'eau est canalisée par des puits ou des conduites en acier ou en béton de cinq à dix mètres de diamètre vers une chambre dont le tracé en colimaçon permet à l'eau d'arriver sur la turbine avec la meilleure efficacité. Les turbines Kaplan ont une forme d'hélice de navire. Leurs pales sont généralement orientables et permettent, par simple variation de leur inclinaison, d'ajuster la vitesse de rotation des turbines aux conditions de niveau d'eau. La puissance maximale atteinte est de

200 MW. Une variante des turbines Kaplan est celle des « groupes bulbes », pour les très basses chutes (5 à 20 m) dont la technique a été développée en France pour l'usine marémotrice de la Rance. L'alternateur est accolé à la turbine. Grâce à un système de protection étanche, ces groupes peuvent être complètement immergés dans l'eau. La puissance maximale atteinte est de 60 MW.

Pour les STEP, on emploie soit des groupes ternaires (dont la ligne d'arbre comporte la turbine, l'alternateur et la pompe) soit des groupes avec pompes-turbines réversibles capables d'assurer turbinage et pompage (de type Francis).

5.2.1.5 La ressource

Le Tableau 9 donne la puissance installée et l'énergie produite dans le monde. On constate qu'à l'exception de l'Afrique et de l'Océanie, la production hydroélectrique est bien répartie dans le monde. La disponibilité varie entre 38 et 54%. Le fait que cette disponibilité est notablement inférieure à 100% reflète le caractère de stockage des retenues. La production s'adapte à la demande, et, particulièrement à la demande en semi base et en pointe. Au niveau mondial l'hydroélectricité représente environ 18% de la production totale d'électricité.

	Amérique	Amérique	Europe	Afrique	Asie	Océanie	Total
	du Nord et	du Sud	(ouest &				
	Centrale		est)				
Puissance installée (GW)	157	108	171	20	225	11	692
Electricité produite (TWh)	700	512	567	75	750	42	2646
Disponibilité %	50	54	38	43	38	43	
Puissance en cours de construction (GW)	1,2	14,8	2,2	2,3	84	-	104,5

Tableau 9

Puissance hydroélectrique installée et Production dans les principaux agrégats géographiques

Le Tableau 10 indique le potentiel de l'hydroélectricité techniquement et économiquement accessible. L'Europe n'apparaît pas sur le tableau car pratiquement tous les sites possibles sont équipés. Il est encore possible d'aménager des centrales à fil de l'eau mais leur contribution ne pourrait pas dépasser quelques pour cent de la production hydroélectrique totale.

La consommation mondiale totale d'électricité atteint 16000 TWh. On voit que la production hydroélectrique techniquement faisable pourrait presque couvrir les besoins. Le potentiel économiquement réalisable reste très élevé.

La Chine produit actuellement 1600 TWh/an, mais l'hydroélectricité n'en représente que 17%, malgré des réalisations comme le barrage des Trois Gorges. Le potentiel hydroélectrique chinois est encore considérable.

Potentiel	Techniquement faisable (TWh/an)	Economiquement faisable (TWh/an)
Amérique du Nord et	1660	1000
Centrale		
Amérique du Sud	2665	1600
Asie	6800	3600
Afrique	1700	1000
Total	12825	7200

Tableau 10

Potentiel hydraulique techniquement réalisable dans le monde. A noter que le valeur encore élevée du potentiel économiquement faisable en Amérique du Nord correspond surtout au Canada

5.3 La géothermie (chapitre 14)

Alors que les autres énergies renouvelables sont des manifestations de l'énergie reçue du soleil, l'énergie géothermique provient de la désintégration des radioéléments (Uranium, Thorium, Potassium) présents dans les roches terrestres. Le flux de chaleur géothermique est, en moyenne, de l'ordre de 0,05 W/m2, soit 5000 fois plus faible que le flux solaire. Il faut remarquer ici que la référence à la « géothermie de surface » souvent faite par les vendeurs de pompes à chaleur est erronée. Il s'agit, en fait, d'énergie solaire stockée dans les premiers mètres de sol. Par ailleurs le faible flux géothermique n'est pas suffisant pour assurer le renouvellement de la chaleur extraite. On doit considérer que la géothermie consiste à exploiter des réservoirs de chaleur. Typiquement la durée de vie de tels réservoirs se mesure en dizaines d'années.

En moyenne, la température du sous sol augmente de 3 d° Celsius tous les 100m. Toutefois, dans certaines régions le gradient atteint 10 d° Celsius, et, de façon exceptionnelle jusqu'à 100 d° Celsius dans des points chauds associés à de fortes activités volcaniques.

Dans les cas habituels, même en descendant à 3000m la température atteinte n'excède pas 100 degrés. On ne peut guère utiliser la chaleur produite à cette température que pour chauffer des habitations. C'est la cas de la géothermie à basse enthalpie.

Dans les cas de forts gradients thermiques il est possible de produire de l'électricité.

Indépendamment du gradient thermique la nature des roches du sous sol est très importante pour déterminer la faisabilité d'une exploitation. L'idéal est que le gisement contienne de la vapeur d'eau qui peut alors être directement utilisée pour alimenter des turbines à vapeur. C'est ce qui se passe pour les centrales de Lardello, des Geysers et en Islande. Ces sites sont relativement rares. Par contre il existe de nombreux gisements potentiels de roches chaudes et sèches comme le granit. Toute la question est alors de fracturer la roche pour y faire circuler un fluide caloporteur. Un exemple est fourni par l'expérience de Soultz la forêt où l'on fait circuler de l'eau à 3500 m de profondeur pour obtenir 50 MW thermique générant 5 MW électrique.

La production mondiale d'électricité géothermique est d'environ 45 TWh à comparer aux 16000 TWh de la production mondiale.

Les énergies renouvelables intermittentes. 6

Les principales énergies intermittentes sont l'énergie solaire et l'énergie éolienne. Leur caractère intermittent nécessite qu'elles soient associées à des moyens de stockage ou à des moyens de production complémentaires.

6.1 L'énergie éolienne (chapitres 15 et 16)

6.1.1 Eléments de physique des éoliennes

La puissance délivrée par une éolienne dépend de la vitesse du vent et de la surface balayée par les pales. On considère une masse d'air animée d'une vitesse V. Un volume d'air de longueur L parallèle à la direction du vent et de surface S est caractérisé par une quantité de mouvement $SL\rho V$ et une énergie cinétique $\frac{1}{2}SL\rho V^2$, où ρ est la masse spécifique de l'air. Pour calculer la puissance passant par une surface S perpendiculaire à la direction du vent il suffit de poser L=V. La puissance du vent passant par la surface S s'écrit donc :

$$P_0 = \frac{1}{2} S \rho V^3$$

Équation 2

On schématise une éolienne comme un dispositif de surface S perpendiculaire à la direction du vent transformant une partie d'énergie du vent en mouvement perpendiculaire. La puissance enlevée au vent implique un ralentissement de l'air de la vitesse initiale V_1 à une vitesse finale V_2 . Remarquons que, pour assurer la conservation de la masse et dans la mesure où la masse spécifique de l'air varie peu, il est nécessaire que la colonne d'air se dilate latéralement en traversant l'éolienne. Par le passage à travers l'éolienne la colonne d'air perd donc une énergie $\frac{1}{2}\rho(V_1^2 - V_2^2)$. En supposant qu'au niveau du rotor de surface S la vitesse de la colonne est $\frac{V_1+V_2}{2}$

la puissance maximum rendue disponible pour l'éolienne vaut donc

$$P_{disp} = \frac{1}{4} \rho S(V_1 + V_2)(V_1^2 - V_2^2) = \frac{1}{4} \rho S V_1^3 \left(1 + \frac{V_2}{V_1}\right) \left(1 - \frac{V_2^2}{V_1^2}\right)$$

 P_{disp} est maximum pour :

$$\frac{V_2}{V_1} = \frac{1}{3}$$

Équation 3

et vaut

$$P_{\rm max} = \frac{16}{27} P_0$$

Équation 4

Cette relation a été démontrée par Albert Betz dès 1919, d'où son nom. La valeur $\frac{16}{27} \approx 0.6$ est une limite maximum du rendement des éoliennes qui est, en général, loin d'être atteinte.



Figure 8

Définitions des variables utilisées dans la description de la physique des éoliennes :

 α est l'angle de calage de la pale. V est la vitesse (physique) incidente du vent qui arrive perpendiculairement au plan de rotation de l'hélice. V_{apparent} est la vitesse d'un point de la pale par rapport à l'axe de rotation de l'hélice (vitesse tangentielle). U est la vitesse relative obtenue par composition de la vitesse physique et de la vitesse apparente. *i* est l'angle entre la surface de la pale et la vitesse relative. Il faut noter que les vitesses relatives et apparentes dépendent de la distance à l'axe de rotation. *P* est la portance et *T* la traînée.

Tout d'abord, la rotation des pales doit surmonter la résistance de l'air, et par là, l'échauffer. Par ailleurs, il existe un optimum de l'angle d'incidence du vent sur la pale qui dépend à la fois de la vitesse du vent et de la vitesse locale de la pale. Si on appelle Oz un axe perpendiculaire à la direction du vent et situé dans un plan perpendiculaire au plan de la pale la vitesse d'équilibre de la rotation est donnée par la condition d'égalité entre la force du vent et la résistance de l'air: $F_Z = F_{friction}$

Cette condition est équivalente à la relation :

$$\frac{U}{V} = \frac{\cos\alpha\sin\alpha}{2\sin^2\alpha + t_0}$$

Équation 5

qui montre comment l'angle de calage permet de contrôler la vitesse de rotation de la pale et, donc, la puissance de l'éolienne. Dans cette expression t_0 rend compte de l'épaisseur finie de la pale qui fait que même pour α =90 d° une force s'exerce sur la pale. A partir de l'Équation 5 on obtient une expression du rendement de l'éolienne :

$$R = \frac{\cos^3 \alpha \sin^5 \alpha}{\left(2\sin^2 \alpha + t_0\right)^3}$$

Équation 6

La Figure 9 montre la dépendance du rendement par rapport à l'angle de calage.



Figure 9 Variation du rendement en fonction de l'angle de calage pour t_0 =0,01

Comme la vitesse relative U est proportionnelle à la distance à l'axe de rotation la condition d'assortiment de la vitesse radiale à l'angle de la pale donnée par l'Équation 5 exige que l'angle α dépende de la distance à la pale. En effet la condition $F_z = F_{friction}$ doit être remplie sur l'ensemble de la pale. Si elle ne l'est que globalement et non localement, on aura $F_z < F_{friction}$ en bout de pale, et, au contraire $F_z > F_{friction}$ dans la région proche de l'axe puisque $F_{friction}$ croît avec la distance à l'axe. Il s'ensuit qu'on peut alors optimiser le rendement de la pale en augmentant $F_{friction}$ dans la région proche de l'axe. Les profils complexes des pales d'éoliennes modernes ont précisément pour but de remplir la condition donnée par l'Équation 5 autant que faire se peut. La vitesse maximale de rotation de l'hélice est fixée par l'apparition de turbulence en bout de pale. Finalement, pour les grandes éoliennes on obtient une expression de la puissance nominale d'une éolienne :

$$P_m = 0,29 \rho D^2 U_{\rm lim}^3 \left(\frac{2\sin^2 \alpha_{opt} + t_0}{\cos \alpha_{opt} \sin \alpha_{opt}} \right)^3$$

 α_{opt} est la valeur de l'angle de calage α maximisant le rendement de l'éolienne, comme on peut la déterminer, par exemple, sur la Figure 9. U_{lim} est la vitesse tangentielle limite acceptable. On voit donc que la donnée de U_{lim} et de P_m conduit à celle du diamètre de pale *D*. La vitesse limite

$$U_{\rm lim} = \frac{\omega_{\rm lim} D}{2}, \ (\omega \text{ en tours/s}) \text{ ce qui permet d'écrire}$$
$$P_m = 0,075 \rho D^5 \omega_{\rm lim}^3 \left(\frac{2\sin^2 \alpha_{opt} + t_0}{\cos \alpha_{opt} \sin \alpha_{opt}}\right)^3$$

où *D* est le diamètre (m) de l'éolienne, P_m sa puissance nominale (W), V_{nom} la vitesse (m/s) de référence du vent permettant d'obtenir la puissance nominale et ε l'efficacité de l'éolienne. L'efficacité est d'autant meilleure que la forme des pales permet d'approcher la valeur de l'angle optimum local de la pale. Typiquement on obtient un rendement de l'ordre de 0,4 pour un angle de calage de l'ordre de 10 degrés.

Le Tableau 11 montre quelques données pour des éoliennes de diamètre variable entre 1 et 100 mètres. Dans tous les cas la vitesse en extrémité de pale est limitée à environ 100 m/s (360 km/h), vitesse au delà de laquelle se produisent d'importantes instabilités des courants d'air. A cette vitesse limite correspond une vitesse nominale du vent de 18,5 m/s (66 km/h). Le rendement par rapport à la limite de Betz est supposé égal à 0.25, caractéristique des grandes éoliennes.

D		Ω t/s	P _m kW
	1	33,33	0,4
	2	16,67	1,6
	5	6,67	10,1
	10	3,33	40,3
	20	1,67	161,2
	50	0,67	1007,2
	100	0,33	4028,9

Tableau 11

Vitesses de rotation et puissance nominale d'éoliennes de différents diamètres

Au delà de la vitesse nominale du vent il est nécessaire de ralentir l'éolienne de manière à maintenir constante la vitesse d'extrémité de pale. Ceci se fait en faisant varier l'angle de calage de l'éolienne, soit en l'augmentant, soit en le diminuant par rapport à sa valeur optimale. Lorsque la vitesse du vent devient trop grande et qu'il y a des risques de détérioration de l'éolienne on amène l'angle de calage soit à 90 degrés, c'est la mise en drapeau, soit, au contraire, à 0 degrés,

c'est le décrochage dynamique. La première solution est plus sûre mais moins précise en ce qui concerne le maintien de la vitesse de rotation à la valeur nominale avant la mise en drapeau ; pour des vents supérieurs à 130 km/h il est nécessaire de freiner le rotor. La deuxième solution, plus précise, entraîne de grands efforts sur la structure en cas de tempête.

En pratique, donc, l'éolienne ne fonctionne à sa puissance nominale que pour des vitesses de vent supérieures à la vitesse nominale, comprise entre 15 et 20 m/s et inférieures à la vitesse de mise en drapeau comprise entre 25 et 30 m/s. La Figure 10 montre un exemple type du diagramme de la puissance délivrée en fonction de la vitesse du vent. En dessous de la vitesse de référence l'éolienne tourne à vitesse réduite (ici 50 km/h), ce qui rend difficile son adaptation au réseau. Il y a donc intérêt à ce que la vitesse de référence soit aussi faible que possible. Mais pour obtenir la puissance nominale à faible vitesse de vent les dimensions de l'éolienne deviennent rédhibitoires. Au dessus de la vitesse de référence le rendement de l'éolienne diminue évidemment.



Figure 10

Exemple d'évolution de la puissance fournie par une éolienne en fonction de la vitesse du vent.

6.1.2 La ressource éolienne

A l'aval d'une éolienne la vitesse du vent est considérablement freinée ; elle est environ le tiers de la vitesse amont. De ce fait on ne peut accepter une densité trop importante d'éoliennes. Typiquement la distance entre éoliennes doit être égale à au moins 5 fois le diamètre des pales. Si on dispose les éoliennes en rangées parallèles la distance entre rangées est comprise généralement entre 3 et 9 fois le diamètre de pales. A titre d'exemple des éoliennes de 1 MW espacées de 250m et disposées en rangées également espacées de 250m fournissent une densité d'énergie de 0,016 kW/m², soit 10 fois plus faible qu'avec des capteurs photovoltaïque. De plus il n'est intéressant d'installer les éoliennes que dans des sites suffisamment ventés permettant d'obtenir un nombre d'heures de fonctionnement équivalent pleine puissance supérieure à 2000 heures (disponibilité moyenne de 23%). En France, on estime que la ressource éolienne à terre est d'environ 66 TWh/an et de 97 TWh/an offshore. Il s'agit ici de chiffres théoriques. Une limite plus stricte provient de l'intermittence de l'éolien.

6.1.3 Les conséquences de l'intermittence

La Figure 11 montre la variation de l'efficacité des éoliennes implantées dans l'Aude (un des sites les plus ventés de France) pour les différents mois de l'année et différentes années. La valeur moyenne des efficacités est de l'ordre de 25%, ce qui est notablement plus élevé que celle mesurée pour la France entière qui est plutôt de 20%. Par ailleurs l'efficacité peut varier d'un

facteur trois de mois en mois, et, pour un mois donné d'année en année. la seule exception dans le cas considéré est le mois de février. Ce type de comportement difficile à prévoir est tout à fait général.



Figure 11

Rendement des éoliennes dans le département de l'Aude en fonction des différents mois mesurés de 2000 à 2004.

A l'intérieur d'un même mois les fluctuations sont aussi très importantes comme on peut le voir sur la Figure 12.



Figure 12

Evolution du rendement d'un parc d'éoliennes au mois de Janvier 1997

Il est clair que, si l'on désire utiliser toute la production éolienne, il faut disposer d'une source de substitution capable de réagir rapidement. La pratique très répandue de l'obligation d'achat impose d'ailleurs d'utiliser l'électricité éolienne quand elle se présente ; c'est ce qu'on appelle une énergie fatale.

Si on considère un ensemble géographique suffisamment vaste on peut espérer que les fluctuations s'annuleront. En fait, sur des durées de l'ordre de la semaine le développement d'anticyclones continentaux empêchent que cet effet de foisonnement soit très efficace. A l'échelle de la journée les fluctuations persistent, même à l'échelle d'un pays comme l'Allemagne comme on peut le voir sur le Tableau 12. En particulier on observe une variation de puissance de 1,6 GW soit de 42% entre 16h et 17h. Le réseau doit évidemment être capable de répondre à ces fluctuations. Pour ce faire il utilise trois systèmes d'ajustement :

- 1. la réserve primaire repose sur la variation de la fréquence du courant. Cette réserve intervient immédiatement mais ne peut absorber que 3% de variation,
- 2. la réserve secondaire qui repose sur la souplesse de réglage des différentes installations de production, soit environ 5% pour le nucléaire, 10% pour le thermique à flamme et 25% pour les barrages hydroélectriques,
- 3. Enfin, une réserve tertiaire formée de moyens aptes à être mis en service en moins de 20 minutes, essentiellement des turbines à gaz et des barrages.

Globalement, à titre d'exemple, la puissance totale mobilisable en France par ces différents moyens est de l'ordre de 6 GWe, soit environ 10% de la puissance du parc.

	10h	13h	14h	15h	16h	17h	18h
Puissance	4,4	4,5	4,2	5	5,4	3,8	4,4
éolienne(GW)							

Tableau 12

Evolution de la puissance fournie par les éoliennes allemandes le 24 octobre 2001

De ce qui précède on voit qu'il serait très imprudent qu'à un instant donné la puissance éolienne, dans un pays comme la France, dépasse 20% : une puissance de 20% pourrait atteindre 12 GW dont la variation rapide pourrait atteindre 6 GW. On pourrait envisager la construction de turbines à gaz supplémentaires mais, du même coup, on augmenterait les rejets de gaz carbonique aussi bien que le coût réel, déjà élevé, de l'éolien. Admettons toutefois une pénétration maximale de l'éolien de 30%. Comme l'efficacité des éoliennes ne dépasse pas 30%, on voit que l'électricité éolienne ne contribuera sans doute pas à concurrence de plus de 10% à la production d'électricité aussi longtemps que la question du stockage à long terme ne sera pas réglée. Le Danemark avec une proportion de 17% semble faire exception. En réalité le Danemark est intégré dans un réseau contenant aussi la Suède et la Norvège et sa contribution est à évaluer à cette aune. Elle ne dépasse pas 4%.

6.1.4 L'économie des éoliennes

On estime le coût des éoliennes à 1,3 M€MWe. Ce chiffre est à rapprocher du coût d'investissement de 2 M€MWe du nucléaire. Mais alors qu'une centrale nucléaire peut fournir environ 8GWh/MWe une éolienne ne fournit guère que 2,3 GWh/MWe. Pour l'investissement on voit que l'éolien coûte 2,2 fois plus que le nucléaire. Les frais de fonctionnement sont faibles dans les deux cas et ne changent pas fondamentalement ce rapport. Par contre, comme nous

l'avons dit plus haut, les éoliennes exigent l'existence de moyens de substitution. Il apparaît alors que leur mise en œuvre ne permet d'économiser que le combustible des ces moyens. Le Tableau 13 résume la composition des coûts des principales méthodes de production d'électricité. On voit qu'en 2004 l'éolien est compétitif avec le gaz, si l'on s'en tient à une estimation classique des coûts. Si on tient uniquement compte de l'économie de combustible : si les éoliennes remplacent des turbines à gaz le surcoût n'est que de 4 m€kWh. Dans le cas du charbon le surcoût atteint 31 m€kWh et, dans le cas du nucléaire, 44 m€kWh.

	Charbon	Gaz	Pétrole	Nucléaire	Eolien
Investissement	14	8	14	18	40
Fonctionnement	8	3	8	5	12
Combustible	21	48	75	8	
Total	43	59	97	31	52

Tableau 13

Eléments de coûts de l'électricité selon les modes de production (2004) en m∉kWh

L'objectif (raisonnable ou non) donné par l'UE d'atteindre 21% d'électricité renouvelable ne pourra être atteint que par le développement d'un parc considérable d'éoliennes. C'est ainsi que la Programmation Pluriannuelle des Investissements(PPI) énergétiques prévoit la construction de 17 GWe d'éoliennes. Dans le cadre du marché il a fallu attirer les investisseurs en leur assurant un rendement financier élevé. Ceci a été fait en instaurant une obligation d'achat à 82 m€kWh pour les éoliennes terrestres et de 130 m€kWh pour les éoliennes offshore. Ces prix de rachat assurent des temps de retour d'environ 8 ans. En 2015 le surcoût que devront payer les consommateurs français sera de près de 3 G€par an.

6.1.5 Les maréoliennes

Les analyses faites pour les éoliennes peuvent s'appliquer aux maréoliennes. Dans ce cas toutefois, le ralentissement du courant au passage d'une rangée de maréoliennes ne peut se traduire par une augmentation de la densité. C'est plutôt la hauteur de la colonne d'eau qui change.

Il est toujours possible d'appliquer la formule de Betz, au moins à titre de loi d'échelle. Le rapport de 770 entre la densité de l'eau et celle de l'air est partiellement compensé par la différence de vitesse entre les courants d'air et d'eau. Ainsi, pour un vent de 55 km/h, une éolienne de rayon égal à 50 m fournit une puissance de 2,3 MW alors que pour une vitesse de courant de 5,5 km/h une maréolienne de rayon égale à 50 m fournirait une puissance de 1,8 MW. Dans la pratique on recherche des endroits où les courants atteignent ou dépassent 10 km/h, par exemple au cap de La Hague. Le courant y atteint 15 km/h au maximum ce qui permettrait à une maréolienne de rayon 20 m, de fournir une puissance crête de 6,5 MW et une puissance moyenne de 1,6 MW. Le potentiel français est estimé à 3 GW. Un potentiel particulièrement important est offert par le Gulf Stream, dans le golfe du Mexique. Un courant continu d'une vitesse de 8 km/h occupe une superficie de 100*20 km².

6.2 Le Solaire (chapitres 17 et 18)

6.2.1 La ressource

Le flux d'énergie solaire reçu par une surface de 1 m² perpendiculaire aux rayons solaires est de 1 kW à la surface de la terre. La puissance moyenne reçue par m² de sol vaut donc 0,25 kW et l'énergie maximum reçue chaque année vaut 2190 kWh. En réalité, l'énergie réellement disponible est plus faible du fait de la nébulosité et de l'absorption de la lumière dans l'atmosphère. C'est ainsi que dans le Var l'énergie solaire disponible atteint 1800 kWh/an. Dans ces conditions, avec les techniques actuelles les cellules photovoltaïques fournissent 180 kWh/m2 pour une puissance crête de 100 W/m². L'énergie disponible pour le chauffage atteint, elle, environ 500 kWh/an.

Bien entendu on ne peut produire d'énergie solaire que si le soleil, même voilé, est présent !



Figure 13



La **Figure 13** montre le courant obtenu d'une cellule photovoltaïque en été et en hiver à la latitude de Lyon. On constate qu'il y a un facteur trois dans le courant maximum entre été et hiver. On constate aussi qu'en été et par temps clair une cellule de 1 m² devrait fournir environ 500 Wh. Si on désire stocker cette quantité d'électricité dans une batterie il faut une batterie de Plomb pesant environ 20 kg.

6.2.2 Le Photovoltaïque (chapitre 17)

6.2.2.1 Les technologies

Nous donnons quelques caractéristiques des cellules et panneaux photovoltaïques.

Une cellule délivre 0,8 Volts et une puissance crête maximale de 1 Watt. Un assemblage sérieparallèle donne une tension de 12 V pour une puissance crête de 50W. Un module photovoltaïque a une surface typique de 0,4 m². Il délivre 40 Wc et jusqu'à 200 Wh/jour. Un module coûte environ 150 Euros, soit 3 Euros/Wc.

Les principales technologies utilisées pour les cellules photovoltaïques sont :

- Le silicium cristallin qui domine, à près de 95%. Le multicristallin croît plus vite que le monocristallin
- Le silicium amorphe dont 40% sert dans des calculatrices et autres applications de faible puissance
- Les composites tels que le CdTe et le CIS ont encore une part limitée.
- Les semi-conducteurs organiques ont un coût de revient faible mais ont un faible rendement (3%) et, surtout, une faible durée de vie. On espère qu'ils seront opérationnels dans une dizaine d'années.

L'As-Ga qui a de très bons rendements mais coûte très cher est réservé essentiellement au spatial. Ses performances sont dues à l'utilisation de plusieurs couches sensibles à des zones différentes du spectre solaire.

	Labo 1 à 100 cm²	Pte série	Industriel m ²
Si cristallin	26	22	13-18
Si a	12-14	8-10	6-10
CdTe	15-16	10	7
CIS	15-18	10	8
AsGa	36 (multicouches)	30	25

Tableau 14

Performances des différents types de cellules photovoltaïques au stade du prototype de laboratoire, en petites séries et en réalisation industriel.

Le Tableau 14 donne les valeurs des rendements obtenus pour différents semi conducteurs. La Figure 14 montre l'évolution de la production de cellules photovoltaïques dans le monde. L'accroissement de la production est très rapide, de l'ordre de 50% par an dans les années récentes. Cette croissance est tirée par le développement de la production d'électricité fournie au réseau. La réalisation de systèmes autonomes augmente relativement moins vite.

Le temps de retour énergétique des cellules photovoltaïques est compris entre 1 et 4 ans alors que leur durée de vie excède largement 15 ans. La situation est moins favorable en ce qui concerne les batteries lorsqu'elles sont utilisées : leur temps de retour est de l'ordre de leur durée de vie.



Figure 14

Evolution de la production des différents types de matériaux utilisés pour les cellules. On note la part écrasante du Silicium mono ou multicristallin. En ordonnée la puissance crête totale fournie.

L'augmentation très rapide de la production s'est récemment manifestée par une augmentation des prix des modules, alors que la tendance était à une diminution rapide des coûts de production, d'un facteur 2 tous les 10 ans. Ce comportement est démontré sur la Figure 15.



Figure 15

Evolution du prix du Watt crête photovoltaïque (échelle de droite en €) et de la production (échelle de gauche MW). Notez l'extrapolation de la courbe des prix en 2007 et 2008 qui tient compte de la mise en service de nouvelles usines de fabrication.

6.2.2.2 Le photovoltaïque autonome

La vocation la plus évidente du photovoltaïque est de fournir de l'électricité dans des endroits dépourvus d'accès au réseau centralisé d'électricité : chalets et refuges isolés, villages des PVD éloignés des grandes agglomérations. On estime à 2 milliards le nombre d'humains qui pourraient ainsi en bénéficier, soit en ayant pour la première fois accès à un certain confort électrique, soit en remplaçant des sources polluantes et onéreuses par une source moins chère et propre. C'est ainsi qu'one estime qu'un investissement en photovoltaïque de 300 €, permettant d'alimenter une lampe basse consommation, ou un chargeur de batterie pourrait remplacer une lampe au kérosène, des bougies ou encore des piles chimiques qui reviennent à une dépense de 10€mois, soit 300 € en trente mois. Au delà de 30 mois le gain est donc assuré, à condition de pouvoir emprunter sans intérêt sur 30 mois, soit moins de 3 ans.

Dans un tel système le point faible est le stockage avec des batteries au plomb. En particulier, sur le long terme, ce sont les batteries qui contrôlent le coût du système, comme on peut le voir en comparant les coûts d'investissements initiaux à ceux calculés sur le cycle de vie de cellules.

Investissements	Module	Batterie	Modulation	Autres	total
Initial	65	13	5	17	100
Cycle de vie	65	89	5	17	176

Tableau 15

Coûts d'un système photovoltaïque autonome de production d'électricité pour l'investissement initial et pour l'ensemble du cycle de vie

Cette comparaison faite sur le Tableau 15 montre que la charge financière due aux batteries est plus importante que celle due aux cellules. Ceci souligne l'importance de la recherche sur les batteries au plomb pour en améliorer la durée de vie et en améliorer le recyclage, en particulier dans les pays utilisateurs. Ce recyclage est aussi impératif sur le plan environnemental et pour préserver les réserves de plomb. On voit aussi que le coût total d'un système autonome est environ trois fois plus important que le seul coût des batteries. Cette affirmation doit être modérée si on tient compte d'un taux d'actualisation qui tend à gonfler la contribution au coût des investissements initiaux.

Remarquons que, par comparaison, le coût de pose d'une ligne d'alimentation électrique s'élève à environ 30000 €km, soit le prix de 100 kits.

Le courant fourni par les modules photovoltaïque est à basse tension continue. Traditionnellement cette tension passe par un onduleur pour fournir une tension alternative de 220 Volts. Cette pratique est évidemment paradoxale. Il serait bien préférable d'utiliser des appareils fonctionnant directement en courant continu de basse tension. Les recherches dans ce domaine sont à la fois indispensables et insuffisantes. La Figure 16 montre que des gains d'efficacité énergétique considérables peuvent être effectivement attendus si on développe des matériels spécifiques.



Figure 16

Comparaison des consommations journalières (en Wh) entre différents équipements standard et spécialement conçus pour le courant continu.

6.2.2.3 Le photovoltaïque relié au réseau

Dans les pays industrialisé le stockage nécessité par l'intermittence du photovoltaïque est fourni par le réseau. Les mêmes considérations que celles faites par l'éolien doivent alors s'appliquer : la disponibilité moyenne de la source n'excède pas 25%. La puissance totale photovoltaïque ne

devrait pas dépasser 40% si on veut éviter des instabilités insurmontables. Il s'ensuit que la contribution du photovoltaïque relié au réseau ne devrait pas excéder 10% du total.

Par ailleurs, dans des pays situés au dans les régions tempérées ou nordiques la grande différence d'ensoleillement entre l'hiver et l'été conduit à de sérieuses difficultés : les besoins se situant surtout en hiver, un surinvestissement important serait nécessaire pour assurer une couverture constante de besoins. En réalité on voit difficilement comment le maintien d'une contribution significative du photovoltaïque pourrait se maintenir dans le cadre d'un marché sans distorsion. Le développement du photovoltaïque est lié soit à des subventions, soit à des crédits d'impôts et, tout particulièrement, à la pratique de l'obligation d'achat à un tarif rémunérateur. C'est la mise au point de telles politiques qui expliquent la croissance très rapide du photovoltaïque au Japon, en Allemagne et, depuis 2006, en France. Prenons l'exemple de cette dernière.

Exemple du financement d'une installation photovoltaïque intégrée privée en France

Surface de capteur : 15,6 m2 Rendement des cellules : 12,6 % Puissance crête : 2 kWc Production annuelle : 2100 kWh Coût du matériel éligible à crédit d'impôt HT : 16200 € Coût de l'installation MO HT : 2200 € Raccordement EDF : 600 € Total TTC : 19000 €

Crédit d'impôt : 8000 € Subvention de la région : 4800 € Subvention du département : 1000 € Total des aides : 13800 € Part du propriétaire : 5200 €

Recette annuelle : 1100 € Temps de retour : 4,7 ans

Il est clair que pour attirer les clients il a fallu ajouter le beurre et l'argent du beurre à la tartine. Par ailleurs si l'on retient le prix de 3 €par Wc pour les modules on voit que la partie purement photovoltaïque ne coûterait que 6000 € Comment justifier la différence de prix de plus de 10000 €HT sur le matériel ? Certes il faut compter sur l'onduleur et d'autres aspects de connectique. Mais à un tel prix il est clair que les progrès sur les cellules n'auront qu'un impact marginal. Dans quelle mesure n'est ce pas l'existence des subventions qui tire les prix vers le haut ? En tous cas, si l'on veut que l'effet de série se traduise par une baisse des prix il faut clairement revoir le système de soutien actuel.

6.2.2.4 Les toits photovoltaïques

Un concept qui pourrait rentabiliser les systèmes solaires intégrés dans le bâtiment est celui du toit trois en un : couverture, chauffage et production d'électricité photovoltaïque. Des serpentins situés sous les panneaux photovoltaïques les refroidissent et fournissent de l'eau chaude pour le chauffage et l'hygiène. Par exemple on considère qu'un toit de 50 m2 pourrait fournir 20000 kWh/an pour un plancher chauffant et 9000 kWh d'électricité pour un surcoût de construction de

15000 € Même sans subvention ni tarif de rachat exorbitant on peut espérer un gain annuel de l'ordre de 2000 €, soit un temps de retour de l'ordre de 8 ans. Il faut toutefois évaluer soigneusement l'influence des variations saisonnières de l'ensoleillement sur cette rentabilité : en particulier, il est probable que le chauffage serait soit insuffisant en plein hiver, soit excédentaire en été. Le temps de retour pourrait, en fait, assez facilement atteindre 15 ans.

6.2.3 Le solaire « thermodynamique » (chapitre 18)

Alors que, dans le solaire photovoltaïque, le rayonnement solaire est directement transformé en courant électrique, le solaire thermodynamique utilise la chaleur solaire pour réchauffer un fluide utilisé directement ou indirectement dans une équipement de production électrique. De très nombreuses variations sont possibles selon la forme des miroirs concentrateurs, de la nature du fluide caloporteur et des équipements de production électrique.

Les systèmes à concentration nécessitent la présence du soleil et un ciel clair car le rayonnement diffus est insuffisant pour faire fonctionner une centrale thermodynamique. Il est généralement nécessaire de suivre la trajectoire solaire. Il est aussi possible de stocker la chaleur pendant les cycles jour-nuit, ce qui permet de fournir de l'électricité 24h sur 24. L'encombrement des centrales thermodynamiques est environ deux fois supérieur à celui nécessité par la technologie photovoltaïque (effet d'ombre porté par les modules individuels).

Nous décrivons quelques systèmes significatifs.

6.2.3.1 La filière parabolique



Figure 17 représente un exemple schématique d'une centrale parabolique. Un miroir parabolique aussi parfait que possible, dans la mesure des contraintes de coûts, focalise les rayons solaires sur un capteur. Avec un miroir de qualité astronomique on arrive à une concentration du rayonnement solaire d'une facteur 10000. Dans la pratique, toutefois, on se satisfait d'un facteur 4000.

Presque toutes les réalisations sont aujourd'hui basées sur la mise en œuvre de verre argenté en face arrière comme surface réfléchissante. C'est de loin celle qui présente le meilleur rapport qualité-prix : excellent coefficient de réflexion, bonne tenue aux intempéries, prix modéré d'un produit industriel d'utilisation massive et ancienne.

Figure 17

Schéma d'une centrale parabolique

Un mécanisme est nécessaire pour suivre le mouvement du soleil. De ce fait, la surface de la parabole est limitée à quelques centaines de mètres carrés et la puissance renvoyée sur le foyer ne dépasse donc pas quelques centaines de kW. Le récepteur est généralement une chaudière à

gaz fonctionnant entre 600 et 800 d° Celsius. Ces gaz chauds alimentent un moteur de Stirling. Ces moteurs ont de bons rendements et on arrive à des rendements globaux énergie électrique versus énergie solaire supérieurs à 20% pour des puissances crêtes de quelques dizaines de kW.

6.2.3.2 La filière « centrale à tour »



La Figure 18 est une représentation schématique d'une centrale à tour. On peut considérer cette dernière comme une extrapolation des centrales paraboliques. On renonce à utiliser une vraie parabole (qui devrait être mobile ce qui est inimaginable en grande taille) et on la remplace par une pseudo-parabole, à foyer fixe, d'une taille pouvant atteindre plusieurs centaines de milliers de mètres carrés, et constituée de centaines ou de milliers de miroirs plans orientables. On appelle ces miroirs « héliostats » (en grec : qui fixe le soleil). Leur ensemble constitue le « champ d'héliostats ». On utilise ici l'image de la pseudo-parabole parce que, à chaque instant, les rayons solaires atteignant le centre de chaque héliostat sont réfléchis par le dispositif en direction d'un point unique, fixe dans le temps, et qui joue donc le rôle du foyer de la parabole.

Figure 18

Schéma de centrale à tour

Les miroirs individuels sont tous équipés d'un mécanisme leur permettant de suivre le soleil. La surface réfléchissante de la « parabole » étant fatalement déployée au sol, son « foyer » se trouve en altitude. Pour y disposer le récepteur, on est amené à construire une tour de grande hauteur qui donne son nom à la filière. Les concentrations atteintes varient entre 200 et 700. Au moins quatre fluides caloporteurs sont susceptibles d'être utilisés : l'eau-vapeur, les sels fondus, les métaux liquides et l'air. Un dispositif de stockage de chaleur est généralement associé à la centrale. Le rendement des miroirs atteint 20% tandis que le rendement thermodynamique atteint 40%, soit un rendement global de 8%.

6.2.3.3 la filière cylindro-parabolique

La figure 19 est une représentation schématique d'un récepteur parabolique. Le récepteur est orienté Est-Ouest et peut ainsi suivre le soleil par un mouvement simple dans une seule dimension. Par contre, la concentration ne dépasse pas 80. Sur l'axe du cylindre le collecteur contient de l'huile de synthèse comme caloporteur à une température de l'ordre de 400 d° Celsius. L'huile chaude permet de faire fonctionner une turbine à vapeur. Les rendements thermodynamique atteignent 38%. Le rendement global énergie électrique/énergie solaire est de l'ordre de 10%. Les principales centrales fonctionnant de manière commerciales, celles de Luz en Californie sont de ce type. C'est pourquoi nous donnons quelques résultats concernant ces centrales.
Ces centrales cumulent une puissance nette électrique de 354 MW. Elles fournissent leurs kilowatts-heures essentiellement au rythme de l'apport solaire. En Californie la pointe est provoquée par la mise en marche des climatiseurs, ce qui est favorable à l'exploitation de l'électricité solaire. Ceci a permis à Luz de facturer 40% de sa production à un tarif de pointe de 35 cents/kWh. Malgré ces circonstances favorables la société Luz a fait faillite. Le coût d'investissement atteignait 3500 dollars par kWe.



En réalité, la centrale ne fonctionnant que 25% du temps ce chiffre est à multiplier par quatre.

si on retient non la puissance maximum mais la puissance moyenne. Rappelons que le coût d'investissement d'une centrale nucléaire est de l'ordre de 2500 dollars par kWh.

Figure 19 Schéma d'un récepteur cylindro- parabolique

En conclusion, les centrales solaires thermodynamiques ont encore de redoutables défis à surmonter pour être compétitives. Leurs chances sont plus grandes dans des pays à fort ensoleillement et lorsque la demande de pointe a lieu en été à cause des besoins de climatisation. Par rapport au photovoltaïque elles ont l'avantage de permettre un stockage sur 24 ou 48 h. Les petites centrales paraboliques pourraient être très intéressantes pour une production décentralisée à l'échelle d'un village ou d'une entreprise.

6.2.4 Les tours météorologiques

Deux concepts ont été proposés récemment qui utilisent l'énergie solaire pour mettre en mouvement d'importantes quantités d'air dont le mouvement est mis à profit dans des turbines pour produire de l'électricité. Il s'agit donc, en quelque sorte, d'imiter la nature en créant des vents artificiels.

6.2.4.1 La cheminée solaire

Ce concept est du à l'architecte allemand Jörg Schlaich. Il consiste en une serre de grande dimension servant à chauffer l'air qui s'élève dans une cheminée centrale de grande hauteur. Le courant d'air ainsi créé est utilisé pour mettre en œuvre des turbines. La Figure 20 est une représentation schématique de la cheminée solaire.

La température d'entrée dans la serre est T_0 . La température de l'air à l'arrivée à l'entrée de la cheminée est T_{am} . la température en sortie de cheminée est T_s tandis que celle de l'air au repos à une altitude égale à la hauteur de la cheminée est T_h . La hauteur de la cheminée est H_t et son diamètre D_t , tandis que le diamètre de la serre est D_{coll} . On peut alors calculer un rendement théorique des turbines :

$$\eta = 1 - \frac{T_s}{T_{am}} = \lambda \frac{H_t}{T_0}$$

 λ est le « gradient adiabatique sec » et vaut 10 d° Celsius/km. On voit que pour avoir un rendement acceptable il faut une tour très élevée. Avec $H_t=1$ km et $T_0 = 300$ d°K on obtient seulement un rendement de l'ordre de 3%.

Dans le projet australien la cheminée a une hauteur de 1 km, le collecteur un diamètre de 7 km, le diamètre intérieur de la cheminée est de 200 m. La puissance maximum serait de 200 MW et l'énergie électrique fournie de 750 GWh, soit moins de 1% de l'énergie solaire incidente sur le collecteur. Le kWh serait fourni à un coût de 0,06 € Il faut remarquer que l'inertie thermique de la cheminée et du collecteur est telle que le contraste jour-nuit est fortement atténué, le rapport entre puissance moyenne et puissance crête atteignant 45%.



Figure 20

Représentation schématique de la cheminée solaire

6.2.4.2 La tour à air refroidi

Ce système a été proposé par une équipe israélienne. Elle a été baptisée SNAP (SNeh Aeroelectric Power, où Sneh signifie buisson ardent en hébreu). La Figure 21 est une vue d'artiste de ce à quoi la tour SNAP pourrait ressembler. Dans le projet d'origine elle mesure 1200 m de haut et 400 m de diamètre. Le principe consiste à disperser des gouttelettes d'eau au sommet de la tour. L'évaporation de l'eau des gouttelettes refroidit l'air qui, devenant plus lourd, se met en mouvement vers le bas. L'air descendant peut s'échapper par les orifices situés au bas de la tour. Un courant de convexion (d'environ 2 millions de m³/s avec une vitesse de 16 m/s) susceptible d'entraîner des turbines s'établit ainsi. L'eau non évaporée se re-condense au bas de la tour. De grandes quantités d'eau sont nécessaires, d'autant plus difficiles à trouver que l'air

doit être très sec, ce qui n'est possible que dans un environnement désertique. Il est donc envisagé d'utiliser de l'eau de mer. L'énergie solaire est utilisée à réchauffer « naturellement » l'air froid sortant de la tour et ceci se fait sans l'adjonction d'une serre, à la différence du cas de la cheminée solaire. Typiquement la tour SNAP produirait une puissance de 400 MWe. Le coût de l'électricité produite devrait être notablement (peut-être un facteur 2) plus faible que celui de l'électricité fournie par la cheminée solaire.





Vue d'artiste de la tour SNAP

7 Comparaison des coûts

Le Tableau 16 donne une décomposition des coûts de l'électricité produite en France selon diverses méthodes. L'importance de la composante « combustible » est évidente pour les centrales au charbon, au fioul (pétrole) et au gaz. Le poids de l'investissement est lourd pour le nucléaire et surtout pour l'éolien et le photovoltaïque. L'Union Européenne a réalisé un programme de détermination des coûts externes des techniques de production d'électricité. Les combustibles fossiles ont un coût externe particulièrement élevé du fait de leur production de gaz carbonique et aussi, particulièrement pour le charbon, de polluants atmosphériques et de poussières. Nous avons reporté pour mémoire le coût minimum du solaire photovoltaïque entraîné par l'investissement seul. Le coût de l'hydroélectricité n'est pas indiqué mais est généralement plus faible que celui du nucléaire, une fois les investissements amortis.

	Nucléaire	Charbon	Gaz	Pétrole	Eolien	PV
Coûts	m€kWh	m€kWh	m€kWh	m€kWh	m€kWh	m€kWh
Combustible	8	21	48	75	0	0
Exploitation	5	8	3	8	12	
Investissement	18	14	8	14	49	300
Coûts internes	31	43	59	97	61	
Coûts externes	3	53	15	46	2	
Total	34	96	74	143	63	300

Tableau 16

Ventilation des coûts de l'électricité selon les méthodes de production. On a également indiqué la valeur des coûts externes calculés dans le cadre du programme eXterne de l'UE. On a également fait figurer une estimation du coût de l'électricité photovoltaïque basée uniquement sur l'investissement.

8 Conclusions

De toutes les énergies fossiles il semble bien que seul le charbon permette de franchir le cap de 2100. Si on veut éviter une catastrophe climatique il est impératif de mettre au point et d'utiliser le plus rapidement possible la technique de capture et de séquestration du CO2.

Parmi les énergies renouvelables, l'hydroélectricité devrait pouvoir fournir 20% de la consommation de façon fiable et économique, au prix, il est vrai de grandes migrations de population.

La biomasse contribue, dès à présent, à hauteur de 10% de la consommation d'énergie totale, surtout sous forme de bois de feu. Le domaine de prédilection de la biomasse devrait être la production de carburants et d'hydrogène. On pourrait envisager une contribution de l'ordre de 20% aux besoins de transport. Une exploitation trop importante de la biomasse poserait des problèmes environnementaux redoutables.

Sans moyens de stockage, les énergies renouvelables intermittentes ont un intérêt limité et on peut prévoir que la mode en disparaîtra avec les mécanismes de subvention. Dans les pays dotés de réseaux électriques développés la contribution de l'éolien et du solaire ne pourront sans doute pas contribuer à plus de 10% de la production d'électricité. Au contraire, dans les pays du Sud, bien ensoleillés, et en absence de réseau centralisé, le solaire photovoltaïque présente un grand intérêt et l'emportera sans doute sur le solaire thermodynamique. Le solaire thermique pourra, lui aussi, contribuer de façon significative à limiter l'usage des combustibles fossiles pour le chauffage.

La seule façon de faire face à la demande énergétique sans conduire à une évolution catastrophique des concentrations atmosphérique et océanique de gaz carbonique est de développer à la fois le nucléaire et la capture-séquestration du CO2 dans des installations de production d'électricité et de carburants de synthèse utilisant majoritairement le charbon.

Pour en savoir plus

Livres

" L'énergie dans le monde : bilan et perspectives " J.L.Bobin, H.Nifenecker, C.Stéphan, EDP Sciences 2001

" L'énergie de demain " J.L.Bobin, E.Huffer, H.Nifenecker EDP/Grenoble Sciences 2005

"A fond contre le CO2 " Denis Bonnelle, éditions du Cosmogone

"Energie et environnement, les risques et les enjeux d'une crise annoncée" Bernard Durand, à paraître chez EDP/Grenoble Sciences

Sites WEB

http://www.sauvonsleclimat.org http://sfp.in2p3.fr/Debat/debat_energie/index.html http://www.manicore.com/documentation/serre/index.html http://lpsc.in2p3.fr/gpr/french/gpr.html

Physique fondamentale avec des neutrons ultra-froids

Konstantin Protasov¹

Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie CNRS-IN2P3, Université Joseph Fourier, INPG, Grenoble

Résumé :

On présente une courte introduction à la physique des neutrons ultra froids (UCN – Ultra Cold Neutrons), dans laquelle on évoquera la découverte de ceux-ci, leurs propriétés les plus importantes ainsi que leur utilisation dans trois expériences de la physique fondamentale : la mesure de la durée de vie du neutron, la mesure de son moment électrique dipolaire et l'étude des états quantiques du neutron dans le champ gravitationnel terrestre.

Abstract :

A short introduction to the physics of Ultra Cold Neutrons (UCN) is given. It covers different aspects from their discovery, their major properties as well as their using in the three experiments of fundamental physics: measurements of the neutron life time and of its electric dipole moment and studies of neutrons quantum states in the Earth's gravitational field.

1. Neutrons ultra froids (UCN)

On utilise le terme « neutrons ultra froids » pour désigner une partie du spectre de neutrons qui ont des énergies extrêmement faibles (de l'ordre de 10^{-7} eV à laquelle on peut associer une température de l'ordre de quelques mK d'où le nom de ces neutrons) et qui peuvent être réfléchis par des surfaces de nombreux matériaux. Leur observation expérimentale date d'approximativement une quarantaine d'années, et la physique liée aux UCN a déjà pu apporter des résultats particulièrement intéressants. Elle vit aujourd'hui sa deuxième jeunesse, en particulier grâce à la construction et à la planification de nouvelles sources de neutrons (y compris celles de UCN) un peu partout dans le monde.

Dans ces cours, nous discuterons brièvement la physique des UCN et ses applications. La présentation plus systématique de la physique des UCN peut être trouvée dans les livres [1.1, 1.2].

¹ konstantin.protassov@lpsc.in2p3.fr

1.1. Introduction historique

La propriété fondamentale des UCN – se réfléchir à la surface des matériaux – paraît étonnante, surtout que le neutron lui-même a été découvert grâce à sa capacité à pénétrer de très épaisses couches de matière. C'est pourquoi le stockage des neutrons dans un volume paraissait alors impossible. Cependant, en 1959 Ya.B. Zeldovich a proposé une affirmation inverse [1.3]. Probablement, l'idée que les neutrons peuvent être stockés existait même avant, mais il n'y avait aucune étude expérimentale ni estimation théorique.

Ya.B. Zeldovich a utilisé le fait expérimental que les neutrons qui se propagent le long de la matière subissent une réflexion totale si la composante de la vitesse perpendiculaire à la surface n'excède pas une certaine valeur limite v_{lim} . Alors, il a conclu que tout neutron de vitesse totale inférieure à cette valeur-là doit être réfléchi par la matière. Ces neutrons peuvent être stockés dans un volume.

Il a fallu attendre presque dix ans pour qu'en 1968 le groupe de F.L. Shapiro à JINR (Dubna) fasse la première expérience qui a permis détecter ces UCN [1.4]. Il faut mentionner que cette expérience était largement motivée par l'idée d'utiliser les UCC pour la recherche du moment dipolaire électrique du neutron.

Le schéma de principe de cette première expérience avec les UCN est présenté sur la figure 1.1. Comme source de neutrons, on utilisait le réacteur pulsé IBR de 6 kW de puissance. Les neutrons sortant du réacteur étaient ralentis dans la paraffine, dans laquelle était plongé une partie de guide de neutrons (un tube en cuivre très courbé) par lequel les neutrons étaient déviés dans la salle expérimentale, où ils étaient enfin détectés. Ce tube doit être sous vide, sinon les neutrons sont chauffés par l'interaction avec l'air, et quittent le guide.



Fig. 1.1. Le schéma de principe de l'expérience. 1 - réacteur; 2 et 3 - modérateur (2 - paraffine, 3 - une couche fine de polyéthylène); <math>4 - tube en cuivre; 5 - tube en aluminium; <math>6 - tube de cuivre fin; 7, 9 - blindage; 8 - mur en béton de réacteur de 2 m d'épaisseur; <math>10 - guide courbé; 11, 12 - détecteurs, 13, 14 - l'interrupteur pour les détecteurs et son mécanisme; <math>15 - point d'arrêt du faisceau direct.

Le principe de fonctionnement du détecteur était simple : un des deux détecteurs (11 et 12) était fermé par un petit rideau (13) impénétrable pour les UCN mais transparent pour les neutrons plus rapides (il faut dire que le fond des neutrons plus rapides était très important

tandis que le taux de comptages des UCN restait très faible -1 tous les 100 s - à cause de leur flux particulièrement petit). Avec la différence des comptages de deux détecteurs, ce système a permis de voir pour la première fois des neutrons ultra froids.

Il faut dire que la première expérience a échoué pour une raison technique simple : le vide dans le guide n'était pas suffisant, et il y avait deux raison possible pour cela. La première est la mauvaise étanchéité du guide (et comme conséquence l'air qui pénètre là-dedans) et la deuxième est les produits de la décomposition sous l'effet de radiation forte de la source même des UCN (les expérimentateurs avaient l'impression que les neutrons rapides arrachent les protons au polyéthylène et ceci produit l'hydrogène – un poison mortel pour les UCN). L'envie de continuer cette expérience butait sur la nécessité de fermeture provisoire du réacteur pour sa reconstruction. Lors de la réunion de la direction de JINR, le directeur du laboratoire I.M. Frank (académicien, prix Nobel pour l'explication théorique du rayonnement de Cerenkov) a exprimé un doute sur la nécessité de retard de la mise en reconstruction du réacteur. Il préférerait prendre le temps de comprendre d'abord l'origine du phénomène. En effet, si la raison du mauvais vide était la décomposition du polyéthylène, il aurait probablement fallu changer la conception de l'expérience. La seule solution était de vérifier et prouver aux membres de la direction que le mauvais vide n'était pas lié aux problèmes du modérateur. F.L. Shapiro est sorti de la salle de réunion pour demander à A.V. Strelkov de vérifier (en une demi-heure !) cette hypothèse. La course contre la montre engagée par Alexandre Strelkov est une histoire épique. Il commence par sauter sur un vélo pour se rendre au réacteur, trouve une balance très précise, pèse deux fioles, une vide et une remplie du gaz du guide de neutrons, il s'aperçoit alors qu'il s'agit bien d'air. Finalement, il revient en hate près de la salle de réunion, et glisse sous la porte (la secrétaire ne lui permettait pas d'y rentrer) une feuille avec un seul mot écrit en majuscules : « ВОЗДУХ » (air). Les expériences ont été poursuivies et ont abouti à la découverte des UCN.

Cette anecdote historique racontée par V.K. Ignatovich dans [1.5] n'est pas sans rappeler une autre histoire dramatique plus récente de fermeture LEP au moment du « début de la découverte » du boson de Higgs. Espérons que le LHC nous dira si cette décision était la bonne...

Ce concours de circonstances a permis la publication de ce travail [1.4] juste deux mois avant la publication de Albert Steyerl [1.6] dans laquelle il a mentionné l'observation des neutrons dont le spectre se rapproche des UCN.

1.2. Propriétés des UCN

Les neutrons auxquels nous allons nous intéresser sont des neutrons avec des très faibles vitesses – de l'ordre de 10 m/s. La longueur d'onde de De Broglie de ces neutrons est de

l'ordre de 1000 Å, et quand un neutron interagit avec la matière, il ne voit pas un atome isolé mais plutôt un (très grand) ensemble d'atomes. Cette interaction peut être décrite par un potentiel, dit potentiel de Fermi.

Si nous supposons que le milieu est constitué d'atomes d'un seul élément chimique, alors le potentiel de Fermi U peut être écrit sous la forme :

$$U = \frac{2\pi\hbar^2}{m} b_{\rm coh} N \,. \tag{1.1}$$

Dans cette expression, b_{coh} est la longueur de diffusion cohérente (une caractéristique microscopique de l'interaction des neutrons avec les noyaux de la matière); N la concentration des atomes, m la masse du neutron.

Le signe du potentiel ne dépend que du signe de b_{coh} : les matériaux dont la longueur de diffusion est positive, c'est-à-dire avec un potentiel de Fermi positif, vont pouvoir réfléchir les UCN.

Le phénomène de cette réflexion est très simple. Le mouvement d'un neutron dans la direction z perpendiculaire à la surface à z = 0 peut être décrit par l'équation de Schrödinger :

$$\frac{\hbar^2}{2m} \frac{d^2 \psi(z)}{d^2 z} + (E - V(z))\psi(z) = 0$$
(1.2)

avec un potentiel

$$V(z) = \begin{cases} 0, & z < 0\\ U, & z > 0 \end{cases}$$
(1.3)

Si l'énergie cinétique du neutron est inférieure à U > 0, alors le neutron sera réfléchi par la matière quelque soit l'angle de sa quantité du mouvement par rapport à la surface. On peut reformuler cette condition de non pénétrabilité en terme de la vitesse limite :

$$v_{\rm lim} = \sqrt{2mU} \,. \tag{1.4}$$

Tous les neutrons dont la vitesse est inférieure à cette valeur seront réfléchis. Dans le tableau 1, nous avons donné quelques valeurs de vitesses limites pour les matériaux souvent utilisées dans cette physique.

Il faut dire que pour la plupart des matériaux que nous discutons, on peut négliger le processus de diffusion inélastique (dû à l'excitation des phonons) et l'absorption (dû aux réactions nucléaires que le neutron peut provoquer dans les noyaux atomiques). Soulignons que l'interaction des UCN avec la surface des matériaux est ainsi considérée comme diffusion purement élastique, c'est-à-dire que ces neutrons ne sont pas du tout « chauffés » par la surface, qui peut avoir une température beaucoup plus grande que celle qui est associée aux UCN (quelques mK).

Matériel	$b_{\rm coh}$, fm	Densité, g/cm ³	v _{lim} , m/s
D ₂ (liquide)	13	0,15	3,82
D_2O	18,8	1,1	5,57
C (graphite)	6,65	2,25	6,11
C (diamant)	6,65	3,52	7,65
Al ₂ O ₃	24,2	3,7	5,13
SiO ₂	15,8	2,3	4,26
Acier	8,6	8,03	6,0

Tableau 1. Les vitesses limites pour quelques matériaux.

Il faut mentionner deux particularités des UCN. La première est le fait que leur nombre dans un réacteur est extrêmement faible. Par exemple, pour un spectre maxwellien n(v) (neutrons thermalisés) correspondant à la température ambiante de T = 300 K, les neutrons de vitesse inférieure à la vitesse limite du cuivre v_{lim} (Cu) = 5,67 m/s ne représentent qu'une partie infime du nombre total des neutrons :

$$\eta = \frac{\int_{0}^{v_{\rm lim}} n(v) dv}{\int_{0}^{\infty} n(v) dv} \approx \frac{1}{8} \left(\frac{m v_{\rm lim}^2}{kT}\right)^2 \sim 10^{-11}.$$
(1.5)

Le deuxième problème des UCN connu de très longue date, presque depuis leur découverte, est le phénomène que l'on appelle la perte anormale des UCN : les UCN disparaissent des pièges matériels plus rapidement qu'ils ne devraient si l'on ne tient compte que de leur durée de vie. Autrement dit, il existe un mécanisme de perte supplémentaire. Jusqu'aujourd'hui, ce phénomène n'a toujours pas trouvé d'explication, malgré d'intenses efforts répétés. C'est un problème majeur, que nous ne pouvons pas traiter ici au-delà de cette remarque, forcés par l'absence de solution. Notons simplement que la recherche de cette solution n'est pas abandonnée, et des pistes très prometteuses existent.

1.3. Production des UCN

Vu la fraction particulièrement faible des UCN dans un réacteur, il vient naturellement à l'esprit l'idée qu'il faut enrichir cette partie du spectre. La façon le plus naturelle et assez efficace est de refroidir le modérateur (ou plutôt une partie du modérateur). En guise d'illustration, sur la figure 1.2, nous comparons deux spectres maxwelliens correspondant à deux températures différentes, et nous voyons que le nombre de neutrons de basse énergie augmente sensiblement avec la diminution de la température (on a fait une coupure à 500 m/s pour l'illustrer l'idée, alors que, bien sûr, les UCN proprement dit ont des vitesses presque dix fois plus faibles et ne sont même pas visible sur une telle figure). Cette idée est mise en place par l'introduction d'un volume de deutérium liquide (par exemple à 25K) pas très loin du cœur du réacteur. Les neutrons sortent ensuite par un guide. Les nouveaux projets prévoient même l'utilisation d'un glaçon de deutérium solide (qui aura une température encore plus basse – 10 K) mais la réalisation de ces projets nécessitera la solution de nombreux problèmes technologiques (il faut savoir maintenir cette très basse température près du cœur du réacteur, il faut que la durée de vie d'une telle source soit suffisamment grande, il faut garantir sa fiabilité mécanique dans un flux des neutrons extrêmement intense, etc.)



Fig. 1.2. Deux spectres maxwelliens correspondant à deux température différentes : le refroidissement induit une augmentation sensible de nombre des neutrons de basse énergie

Le refroidissement n'est pas le seul processus permettant diminuer les vitesses des neutrons. Les UCN ont des vitesses suffisamment basses pour que l'on puisse envisager et utiliser des solutions mécaniques relativement simples : on fait sortir des neutrons du réacteur vers le haut pour qu'ils perdent d'avantage d'énergie dans le champ pesanteur (par exemple, quand un neutron d'une vitesse de 15 m/s monte de 10 m, il a à la fin une vitesse de 5 m/s) ; Une autre solution est l'utilisation d'une turbine qui tourne dans le sens de mouvement des neutrons : les neutrons rebondissent sur les pales de la turbine et perdent ainsi une partie de leur vitesse. Toutes ces approches sont utilisées dans le réacteur à haut flux de neutrons qui fonctionne à l'Institut Laue Langevin de Grenoble et qui possède toujours la plus grande densité des UCN au monde. Le schéma de l'installation est présenté sur la figure 1.3.



Fig. 1.3. Le schéma de principe du guide PF1B à l'ILL.

La source de deutérium liquide se trouve à approximativement 0,7 m du cœur du réacteur. Les neutrons sont extraits vers le haut par un guide légèrement courbé, ils sont ralentis par la turbine qui les « distribue » aux différentes expériences.

Mentionnons ici une autre idée particulièrement élégante qui utilise les propriétés particulières de l'hélium superfluide, qui a été proposée par R. Golub et M. Pandlebury [1.7]. Sur la figure 1.4 nous avons présenté les lois de dispersion (la dépendance de l'énergie E de la quantité de mouvement Q) pour une particule libre non relativiste de masse m ($E = Q^2 / 2m$) et pour l'hélium superfluide (une courbe qui est linéaire pour les faibles Q et qui possède un minimum pour les grands Q). Sans discuter l'origine de cette dépendance particulière, on peut voir que ces deux fonctions se croisent en un point particulier. Ceci veut dire qu'un

neutron avec une quantité de mouvement de 0,7 Å peut transmettre son énergie au liquide superfluide (il crée une excitation d'un phonon) en perdant ainsi sa vitesse. Ce processus ne sera efficace que pour les neutrons de cette énergie (initiale) particulière, mais comme les expériences ont montré, ce processus s'avère suffisamment efficace pour obtenir une augmentation sensible de la densité des UCN. Le seul problème (et pas le moindre) est que ces neutrons restent dans l'hélium superfluide. Il faut donc soit faire une expérience in situ (par exemple, ils existent deux projets de mesure du moment dipolaire du neutron dans l'hélium superfluide – CryoEDM), soit apprendre à les extraire de ce liquide (une procédure réaliste existe, mais n'a pas encore été démontré expérimentalement, au moins, au moment de l'écriture de ces cours).



Fig. 1.4. Les lois de dispersion d'une particule non relativiste et de l'hélium superfluide.

Le développement des accélérateurs a donné lieu à une nouvelle génération des sources de neutrons – les sources de spallation. Ce sont des sources pulsées et sont ainsi bien adaptées aux expériences qui ne nécessitent pas de flux continu (c'est également le cas des réacteurs pulsés qui ont généralement les flux de neutrons très important dans le pic mais la moyenne dans le temps reste plus faible que celle des réacteurs à flux constant).

Au titre d'exemple ne citerons ici qu'une nouvelle source de neutrons ultra-froids appelée SUNS (Spallation Ultra-cold Neutrons Source) [1.8] basée sur le processus de spallation qui est en cours de construction au laboratoire PSI (Paul Scherer Institut) à Villigen en Suisse. Les neutrons seront produits par spallation à l'aide d'un faisceau intense de protons $(I_p \ge 2 \text{ mA}, T_p \ge 590 \text{ MeV})$ dirigé sur une cible de plomb. Après création, les neutrons seront tout d'abord thermalisés dans un volume d'eau lourde d'environ 4 m³ à température ambiante, puis convertis en neutrons ultra-froids UCN par passage au travers d'un modérateur en deutérium solide maintenu à basse température (~6 K). Le faisceau, opéré en mode pulsé, sera envoyé sur la cible pendant 8 s avec un cycle utile de 1 %. Ce temps devrait être suffisamment long pour pouvoir remplir le volume de stockage de 2 m³, tout en permettant le maintien du volume de SD₂ à basse température malgré l'importante quantité de chaleur déposée dans la cible (puissance du faisceau ~1 MW).

Des simulations Monte-Carlo ont montré qu'avec cette source, une densité de l'ordre de $3 \cdot 10^3$ UCN/cm³ peut être fournie aux expériences. Cela représente un gain d'environ 2 ordres de grandeur par rapport à la source la plus dense actuellement disponible auprès du réacteur de l'ILL à Grenoble. Il était prévu que cette source serait opérationnelle au début de 2006.

Sur la figure 1.5 (due à Mike Pundlebury), on voit évolution historique des installations avec le nombre croissant de densité des UCN. Il faut noter que les centres qui disposaient d'une densité non négligeable d'UCN n'étaient pas très nombreux (la plupart de ces installations sont des réacteurs nucléaires). Actuellement, la situation est en train d'évoluer très rapidement avec l'ouverture (ou projection) des différentes sources de spallation : SUNS au PSI en Suisse, LANSCE à Los-Alamos, SNS à Oak Ridge (Etats-Unis), JPark à Osaka au Japon etc. La création de ces nouvelles sources, il faut le dire, est largement motivée par des problèmes de la physique de la matière condensée (et, en particulier, par le développement très rapide des nanosciences et des nanotechnologies) qui sont les plus grands « consommateurs » de

neutrons. Cependant, tous les centres scientifiques préfèrent avoir un programme scientifique large qui couvre assez souvent les problèmes de la physique des UCN.

Notons, pour l'anecdote, qu'au moment où cette figure a été préparée, on croyait pouvoir obtenir les densités des UCN beaucoup plus importantes pour 2006. Ce n'est toujours pas le cas mais le retard par rapport à ces prévisions ne devrait pas être trop grand : la source au PSI devrait être mise en marche dans environ un an (au début de 2008), et les projets des nouvelles sources froides à l'ILL rentrent dans la phase de réalisation.



Fig. 1.5. Evolution de la densité des UCN : PNPI – StPetrsburg Nuclear Physics Institut (Gatchina, Russie) ; TUM – Technical University of Munich (Allemagne) ; IAE – Kurchatov Institut of Atomic Energy (Moscou, Russie) ; PSI – Paul Scherrer Institut (Villigen, Suisse).

2. UCN comme outil dans les problèmes de la physique fondamentale

En guise d'illustration de la beauté et de la puissance des UCN dans la solution des problèmes de physique, nous avons choisi trois expériences. Tout d'abord, la recherche du moment dipolaire électrique du neutron. Cette expérience a joué un rôle déterminant dans les recherches des neutrons ultra froids : on les a cherchés pour mesurer ce moment dipolaire. Aujourd'hui, ce sont les UCN qui donnent toute sa puissance à cette mesure. Comme l'a judicieusement remarqué Bob Golub : "It is fair to say that the neutron EDM has ruled out more theories (put forward to explain K^0 decay) than any experiment in the history of physics".

La deuxième expérience dont nous allons discuter ici est la détermination de la durée de vie du neutron, où encore une fois les UCN s'avèrent être l'outil le plus puissant pour trouver le résultat.

Enfin, la dernière expérience liée à la recherche et l'étude des états quantiques du neutron dans le champ gravitationnel n'est réalisable aujourd'hui qu'avec les UCN. Elle fait un pas de plus (qui ne sont pas très nombreux) dans l'étude expérimentale de la mécanique quantique dans les systèmes avec un champ gravitationnel et, pour l'instant, on n'est même pas capable de dire quelles seront les conséquences de cette expérience.

2.1. Moment électrique dipolaire du neutron

Comme nous l'avons déjà dit au début de notre cours, la recherche des UCN a été motivée par la recherche du moment dipolaire du neutron (EDM – electric dipole moment). Supposons que neutron dispose d'un moment dipolaire électrique et ainsi peut être écrit comme produit d'une charge par une distance qui sépare la charge positive de la charge négative :

$$\vec{d_n} = e \cdot \vec{r} = d_n \hat{\vec{s}} . \tag{2.1}$$

Mais vu que la seule direction privilégiée que l'on peut associer au neutron est celle de son spin, ce vecteur doit être proportionnel au spin. Le coefficient de proportionnalité d_n , s'il est non nul, implique la violation de la parité P. On peut le voir facilement à partir de la relation (2.1) si l'on remarque que l'opération de la parité P, par définition, renverse le vecteur $\vec{r} \rightarrow -\vec{r}$ et, par contre, l'opérateur du spin ne change pas de signe : $\hat{\vec{s}} \rightarrow \hat{\vec{s}}$. Ainsi, d_n est un pseudo scalaire, c'est-à-dire qu'il n'est pas conservé dans l'opération du renversement de l'espace. En effet, une valeur non nulle de l'EDM implique non seulement la violation de la parité P mais aussi celle de T, ce qui est équivalent à la violation de CP si l'on admet la conservation de CPT.

Aujourd'hui, la motivation de cette expérience est d'observer une nouvelle source de violation de CP au-delà du Modèle Standard. La violation de CP n'a été observée jusqu'à présent que dans le cas de la désintégration des mésons K^0 et plus récemment dans celui des mésons B. On suspecte en particulier l'existence de telles sources dans le secteur baryonique : c'est une des conditions nécessaires suggérées par Sakharov [2.1] pour expliquer l'asymétrie matière-antimatière observée dans notre Univers.

L'avantage principal de cette observable physique est que le Modèle Standard donne une valeur extrêmement faible pour le moment dipolaire du neutron (de l'ordre de $10^{-32} \div 10^{-34} \ e \cdot cm$) et ainsi facilite la recherche de la nouvelle physique : tout résultat non nul supérieur à cette valeur serait le signe d'une physique au-delà du Modèle Standard.

Depuis la première mesure de Ramsey [2.2] à la fin des années cinquante, la limite supérieure a été diminuée de 6 ordres de grandeur, pour atteindre la valeur actuelle [2.3]

$$|d_n| < 2.9 \cdot 10^{-26} \ e \cdot cm \quad (90\% \ CL)$$
 (2.2)

qui provient d'une expérience réalisée sur la source de neutrons ultra-froids du réacteur de l'ILL. Cette expérience (comme toutes celles qui visent à améliorer cette limite) sont des expériences particulièrement sophistiquées avec une étude très poussée des erreurs systématiques. Juste à titre d'exemple, on doit prendre en compte l'interaction du mouvement du neutron avec la rotation de la Terre (!) – comme une des sources possibles et visibles d'erreurs systématiques [2.4].

C'est pourquoi ici nous ne discuterons que le principe de ce type d'expériences qui utilisent la méthode dite de Ramsey.

Quand on plonge un neutron de moment dipolaire magnétique $\overrightarrow{\mu_n}$ dans un champ d'induction \overrightarrow{B} , l'énergie d'interaction est donnée par le produit scalaire $-\overrightarrow{\mu_n} \cdot \overrightarrow{B}$. De la même manière, si le neutron de moment électrique dipolaire $\overrightarrow{d_n}$ est plongé dans un champ électrique \overrightarrow{E} , l'énergie d'interaction est égale à $-\overrightarrow{d_n} \cdot \overrightarrow{E}$. L'hamiltonien du neutron dans les deux champs est donné par :

$$\widehat{H} = -\overline{\mu_n} \cdot \overline{B} - \overline{d_n} \cdot \overline{E} .$$
(2.3)

La différence d'énergie entre les états du neutron vaut :

$$\varepsilon = 2\mu_n B \pm 2d_n E \,. \tag{2.4}$$

Un champ magnétique supplémentaire oscillant peut induire des transitions entre les deux états (spin-flip). C'est la base de la méthode de résonance de Ramsey où, à un neutron polarisé plongé dans un champ électrique et un champ magnétique colinéaires, on applique une série de deux impulsions de champ magnétique oscillant (RF) séparés par une période de durée T de précession libre. La séquence expérimentale d'application des impulsions de champ magnétique oscillant est présentée sur la figure 2.1 :

1. Le spin du neutron suit la direction du champ magnétique constant (sans champ RF) ;

2. On applique un pulse de champ RF pour mettre le spin du neutron dans le plan perpendiculaire au champ magnétique constant ;

3. On laisse précesser le spin du neutron autour du champ magnétique et du champ électrique (avec sa fréquence de Larmor) pendant un temps T;

4. Un pulse supplémentaire du champ RF met le spin du neutron anti-parallèle au champ magnétique constant.



Fig. 2.1. La séquence expérimentale d'application du champ magnétique (RF) dans la méthode de Ramsey.

La vitesse de précession du spin (quand il est perpendiculaire au champ magnétique) et la phase accumulée dépendent de la valeur du champ et définissent la probabilité de spin-flip (autrement dit, le nombre de neutrons avec le spin renversé après la deuxième application du champ RF).

La méthode consiste à mesurer des décalages de la fréquence de résonance de Larmor induits par le couplage $-\vec{d_n} \cdot \vec{E}$. En inversant le sens de \vec{E} , on devrait observer un décalage Δv directement proportionnel à $d_n E$:

$$\Delta v = v_{\uparrow} - v_{\downarrow} = \frac{4d_n E}{h}.$$
(2.5)

Pour chaque configuration ($\overrightarrow{E_{\uparrow}}$ et $\overrightarrow{E_{\downarrow}}$) et pour différentes fréquences du champ RF appliqué, on compte le nombre de neutrons dans chaque état de polarisation après qu'ils ont subi la procédure de Ramsey. On détermine alors les fréquences v_{\uparrow} et v_{\downarrow} en ajustant une courbe de résonance aux données. Un exemple d'une telle courbe est donné sur la figure 2.2. En pratique, on fait précesser des neutrons ultra-froids polarisés dans une enceinte où règnent un très faible champ magnétique (de l'ordre du micro tesla) et un champ électrique le plus élevé possible (de l'ordre de 15 kV/cm). L'erreur statistique σ_d sur le moment électrique

dipolaire ainsi obtenu est donnée par :

$$\sigma_d = \frac{h}{4\pi\alpha T E \sqrt{N}}, \qquad (2.6)$$

où α , appelé visibilité de la frange centrale, est relié à la polarisation des neutrons et T le temps qui sépare l'application des champs RF pendant lequel le neutron précesse librement. On voit que cette erreur dépend du nombre total N de neutrons, et pour la minimiser, il faut augmenter la statistique.



Fig. 2.2. Le nombre de neutrons avec un spin parallèle au champ magnétique constant en fonction de la fréquence du champ magnétique oscillant (courbe de Ramsey).

Des nombreux projets visent à augmenter le nombre d'UCN. On rappellera encore une fois la construction de la nouvelle source de neutrons ultra-froids SUNS au PSI qui devrait permettre d'augmenter la densité de neutrons dans l'enceinte de précession d'un facteur 100, par rapport à la source de l'ILL. Un autre projet qui porte le nom CryoEDM envisage de produire des

UCN dans un volume important de ⁴He (par la méthode discuté dans la première partie du cours) en réalisant les mesures in situ.

2.2. La durée de vie du neutron

Une des mesures où l'utilisation des UCN s'avère particulièrement précieuse est celle de la durée de vie du neutron τ . La connaissance de la valeur précise de τ est importante, au moins pour deux raisons.

La première est liée à l'étude de la Matrice Cabibbo-Kobayashi-Maskawa qui décrit le mélange des saveurs. Dans l'hypothèse d'existence de trois générations de quarks, cette matrice doit être unitaire, et cette condition impose une relation entre les éléments de la première ligne de cette matrice qui décrivent le couplage du quark u avec les quarks d, s et b:

$$\left|V_{ud}\right|^{2} + \left|V_{us}\right|^{2} + \left|V_{ub}\right|^{2} = 1.$$
(2.7)

Cette relation peut et doit être vérifiée expérimentalement par des mesures de ces éléments matriciels séparément. Le premier V_{ud} gouverne la désintégration du neutron

$$n \rightarrow p + e^- + v_e$$

et il est lié à la durée de vie du neutron par la relation [2.5]

$$\left|V_{ud}\right|^{2} = \frac{(4908, 7 \pm 1, 9)s}{\tau(1 + 3\lambda^{2})}$$

où $\lambda = g_A / g_V$ est le rapport des constantes axial-vecteur et vecteur de l'interaction faible. Ce rapport est déterminé (avec une très grande précision) à partir d'une autre observable qui peut être mesurée dans la désintégration du neutron – l'asymétrie A. Les incertitudes dans le numérateur tiennent compte de la précision du calcul des corrections radiatives.

Ainsi la précision recherchée de la mesure de la durée de vie du neutron est de l'ordre de 10^{-3} . C'est pourquoi la mesure de τ est de première importance.

La deuxième raison qui rende la connaissance de la durée de vie du neutron très importante est le rôle majeur que joue τ en cosmologie, dans le cadre de la théorie standard du Big Bang. Le modèle de la nucléosynthèse primordiale prédit l'abondance des noyaux légers (D, ³He, ⁴He et ⁷Li) en utilisant les taux des différentes réactions avec le neutron $(n \leftrightarrow p + e^- + v_e, n + v_e \leftrightarrow p + e^-$, etc.). Aujourd'hui l'incertitude théorique sur l'abondance de ⁴He primordiale est dominée par l'incertitude sur la durée de vie du neutron [2.6].

Il existe deux approches principales pour mesurer τ : l'étude de désintégrations en vol (avec les neutrons froids) et l'étude de désintégrations des neutrons stockés dans un piége matériel ou magnétique.

Dans les expériences du premier type on mesure la vitesse de la désintégration du faisceau des neutrons dans un volume défini du faisceau. La durée de vie est déterminée à partir de l'équation

$$\frac{dN}{dt} = -\frac{N}{\tau}.$$
(2.8)

où N est le nombre de neutrons et dN/dt est la vitesse d'apparition des produits de désintégrations (protons et électrons) dans le volume fixé. Dans ces expériences, il est indispensable de mesurer à la fois le nombre de neutrons et la vitesse de leur disparition.

Les expériences dans lesquelles les neutrons (ultra froids) sont stockés dans un piège (on ne discutera ici que des pièges matériels) se sont basées sur la solution de l'équation (2.8) :

$$N(t) = N(0) \exp\left(-\frac{1}{\tau_{\text{eff}}}\right).$$
(2.9)

où nous avons introduit explicitement la durée du stockage τ_{eff} , qui est différente de τ à cause des pertes des UCN sur les parois des pièges, caractérisées par le temps τ_{pertes} :

$$\frac{1}{\tau_{\text{eff}}} = \frac{1}{\tau} + \frac{1}{\tau_{\text{pertes}}}.$$
(2.10)

Comme nous l'avons déjà discuté dans la première partie de cette présentation, ces pertes mal comprises et difficilement contrôlables représentent un problème majeur pour la physique des UCN. Elles sont à l'origine des erreurs systématiques dans ce type d'expériences, et tant que leur nature reste incomprise, il persistera un doute quant à la validité des résultats obtenus par cette méthode. Néanmoins, elle reste la plus précise au jour d'aujourd'hui et nous allons voir le principe de fonctionnement des installations expérimentales utilisant des UCN pour mesurer la durée de vie du neutron.

Pour contourner le problème des pertes difficilement contrôlables, on utilise une astuce : ces pertes sont dues à l'interaction des neutrons avec la surface des parois du piège dans lequel les neutrons sont confinés. Donc le temps τ_{pertes} dépend du rapport entre la surface S et volume V du piège. Dans la limité d'un piège infini $V/S \rightarrow \infty$, ce paramètre τ_{pertes} doit tendre vers 0, et le temps effectif vers la durée de vie du neutron. Ainsi, l'idée est de construire un piège d'une taille variable et d'étudier la durée de confinement du neutron dans ce piège en fonction du rapport V/S. Un exemple de l'installation expérimentale type [2.7] est présenté sur la figure 2.3.



Fig. 2.3. Le schéma de l'expérience typique pour mesurer la durée de vie du neutron avec les UCN.

Les UCN sont accumulés dans un piège de volume variable grâce à un des murs du piège qui est mobile. Sur la figure 2.4 on a présenté l'inverse du temps

$$\tau_{\rm eff} = \frac{t_2 - t_1}{\ln[N(t_1) / N(t_2)]}.$$
(2.11)

de stockage mesuré en fonction de l'inverse du parcours moyen entre deux collisions $\lambda = 4V/S$ (pour les différentes valeurs de l'intervalle de mesure $t_2 - t_1$). Il faut souligner que le rapport $N(t_1)/N(t_2)$ ne dépend ni de l'efficacité du détecteur, ni de la densité initiale des neutrons. De plus, la durée de mesures $t_2 - t_1$ peut être suffisamment grande (comparable à la

durée de vie du neutron) pour que les taux de comptage soient très grands et que le bruit de fond soit négligeable.



Fig. 2.4. Temps du stockage en fonction de l'inverse du parcours moyen entre deux collisions.

L'extrapolation $\lambda \rightarrow \infty$, permet d'obtenir la durée de vie du neutron : τ

$$r = (887, 6 \pm 3, 0) \text{ s}.$$
 (2.12)

Pour donner un aperçu de la situation expérimentale avec la mesure de τ , nous présentons dans le tableau suivant les résultats des dernières expériences avec une mention du type de celles-ci.

au , s	Туре	Auteurs, Année
878,5±0,7±0,3	stockage	A.P. Serebrov et al., 2005
886,8±1,2±3,2	faisceau	M.S. Dewey et al., 2003
$885,4 \pm 0,9 \pm 0,4$	stockage	S.S. Arzumanov et al., 2000
889,2±3,0±3,8	faisceau	J. Byrne et al., 1996
882,6±2,7	stockage	W. Mampe et al., 1993
$888,4 \pm 3,1 \pm 1,1$	stockage	V.V. Nesvizhevsky et al., 1992
893,6±3,8±3,7	faisceau	J. Byrne et al., 1990
887,6±3,0	stockage	W. Mampe et al., 1989
872 ± 8	stockage	A.G. Kharitonov et al., 1989
$878\pm27\pm14$	faisceau	R. Kossakowski et al., 1989
877 ± 10	stockage	W. Paul et al., 1989
891±9	faisceau	P.E. Spivak et al., 1988
$876 \pm 10 \pm 19$	faisceau	J. Last et al., 1988
870 ± 17	faisceau	M. Arnold et al., 1987
903 ± 13	stockage	Yu.Yu. Kosvintsev et al., 1986
937 ± 18	faisceau	J. Byrne et al., 1980
881 ± 8	faisceau	L.N. Bondarenko et al., 1978
918±14	faisceau	C.J. Christensen et al. 1972

Tableau 2. La durée de vie du neutron obtenue dans les différentes expériences.

Toutes les expériences sauf la dernière (la première ligne dans ce tableau) s'accordent assez bien entre elles et on peut calculer la valeur moyenne en pondérant ces résultats par leurs poids respectifs [2.5] :

$$\tau = (885, 7 \pm 0, 8) \text{ s} \,. \tag{2.13}$$

Malheureusement (ou heureusement) la dernière mesure de l'équipe de A.P. Serebrov affichée comme la plus précise est en flagrant désaccord avec cette valeur (la différence entre les deux valeurs dépasse 6σ). En fait, la valeur moyenne (2.13) est largement dominée par l'expérience du groupe de V.I. Morozov faite à l'ILL (S.S. Arzumanov et al., 2000) et il faut y voir surtout un désaccord entre les deux expériences utilisant les UCN stockés dans un piège matériel.

La raison de ce désaccord est probablement dans la sous estimation des erreurs systématiques dans une ou les deux expériences : tant que la nature des pertes n'est pas connue, on pourra difficilement prétendre avoir une incertitude systématique sur la durée de vie du neutron inférieure à une seconde. Une nouvelle expérience utilisant probablement d'autres types d'approches (pièges magnétiques, par exemple) serait particulièrement précieuse pour clarifier cette situation.

2.3. Etats quantiques du neutron dans le champ de pesanteur

Le problème du mouvement d'une particule de masse m dans le champ de pesanteur avec l'accélération g au-dessus d'un miroir parfait est un exercice de mécanique quantique connu de longue date. La solution de l'équation de Schrödinger dans ce potentiel a été découverte dans les années 1920 [2.8] et peut être trouvée dans la plupart des livres d'exercices de mécanique quantique [2.9, 2.10]. Pendant très longtemps, ce problème était considéré comme un excellent exercice purement académique qui admet des solutions analytiques exactes et qui peut être également traité par les méthodes approchées (en particulier, en approximation quasi-classique) avec des résultats assez spectaculaires.

L'extrême faiblesse de l'interaction gravitationnelle restait toujours l'obstacle majeur pour que ces états soient mis en évidence expérimentalement. Pour contourner cette difficulté, il faut utiliser des particules neutres de longue durée de vie et pour lesquelles l'interaction avec le miroir puisse être considérée comme une réflexion parfaite. Le choix d'un tel système n'est pas très grand : soit les UCN, proposés dès la fin des années 1970 [2.11], soit les atomes ultra froids (pour lesquels d'ailleurs, la mise en évidence des états quantiques reste pour l'instant à faire). Comme nous l'avons déjà discuté, un des problèmes majeurs des UCN est leur faible intensité. C'est pourquoi la série d'expériences [2.12, 2.13, 2.14] que nous allons discuter ici ne pouvait être faite qu'auprès du réacteur à grand flux de l'ILL.

2.3.1. Exercice de mécanique quantique

Commençons par un rappel de la solution de cet exercice de mécanique quantique. La fonction d'onde $\psi(z)$ du neutron dans le champ de pesanteur terrestre au-dessus (z > 0) du miroir parfait satisfait l'équation de Schrödinger suivante :

$$\frac{\hbar^2}{2m} \frac{d^2 \psi(z)}{d^2 z} + (E - V(z))\psi(z) = 0.$$
(2.14)

Le miroir situé à z = 0 peut être approximé par un potentiel infini :

$$V(z) = \begin{cases} \infty, & z < 0\\ mgz, & z > 0 \end{cases}$$
(2.15)

Il faut noter que l'énergie du neutron dans son état fondamental, comme nous le verrons plus tard, est de l'ordre de 10^{-12} eV et elle est beaucoup plus petite que la valeur du potentiel de Fermi du miroir qui est de l'ordre de 10^{-7} eV. Le domaine dans lequel le potentiel de Fermi

croît de 0 à presque l'infini n'excède pas quelques nanomètres. Il est ainsi beaucoup plus faible que la taille de la fonction d'onde dans l'état fondamental, qui est de l'ordre d'une dizaine de microns. C'est pourquoi l'approximation du potentiel de Fermi par une discontinuité du deuxième ordre est parfaitement valable. Ce potentiel infini en zéro donne la condition à l'origine pour la fonction d'onde :

$$\psi(z=0) = 0. \tag{2.16}$$

La solution exacte de l'équation (2.14) avec le potentiel (2.15) et régulière en z = 0 est donnée par une fonction spéciale dite fonction d'Airy [2.15].

$$\psi(z) = C \operatorname{Ai}\left(\frac{z}{z_0}\right). \tag{2.17}$$

Dans cette expression, nous avons introduit explicitement l'échelle caractéristique du problème

$$z_0 = \sqrt[3]{\frac{\hbar^2}{2m^2g}} \approx 5,87 \ \mu \mathrm{m}$$
 (2.18)

et la constante de normalisation C.

La condition en zéro (2.16) donne la condition de quantification

$$z_n = z_0 \lambda_n \tag{2.19}$$

où λ_n sont des zéros de la fonction d'Airy qui définissent les énergies quantiques du système $E_n = mgz_0\lambda_n$ (2.20)

Pour les quatre premiers états, nous avons

 $\lambda_n = \{2.34, 4.09, 5.52, 6.79, \ldots\}$

qui donnent

$$E_n = \{1.4, 2.5, 3.3, 4.1, \ldots\} \text{ peV}$$
 (2.21)

La probabilité de présence $|\psi_n|^2$ pour ces quatre premiers états est présentée sur la figure 2.5.



Fig. 2.5. La probabilité de présence $|\psi_n|^2$ en fonction de z pour les quatre premiers états quantiques.

Ce système et les fonctions d'ondes correspondantes ont de nombreuses propriétés remarquables, par exemple :

1. Toutes les fonctions d'ondes ont la même dérivée à l'origine qui est liée à l'intégrale de normalisation [2.16]

$$\psi'(0) = \left(\int_{0}^{\infty} \psi^{2}(\varsigma) d\varsigma\right)^{1/2}$$

2. De nombreux éléments matriciels peuvent être calculés analytiquement. Par exemple, pour l'opérateur d'impulsion (quantité de mouvement), on a les éléments non diagonaux $n \neq m$

$$(p_z)_{nm} = \frac{i\hbar}{z_n - z_m}$$

ou pour l'opérateur de coordonnée, les éléments non diagonaux $n \neq m$ (voir [2.17] où on peut trouver une relation de récurrence pour toute puissance de cet opérateur)

$$(z)_{nm} = 2z_0^3 \frac{(-1)^{n-m+1}}{\left(z_n - z_m\right)^2}$$

Ces résultats analytiques rendent le travail assez facile et agréable d'autant plus que les méthodes approchées (en particulier, l'approximation quasi-classique) donnent, pour ce problème de mécanique quantique les résultats remarquables. Par exemple, la formule de Bohr-Sommerfeld dûment modifié pour le potentiel infini [2.10] donne les énergies quasiclassiques E_n^{qc} (n = 1, 2, 3, ...)

$$E_n^{\rm qc} = \sqrt[3]{\left(\frac{9m}{8}\right) \left(\pi\hbar g \left(n - \frac{1}{4}\right)\right)^2}$$
(2.22)

qui se trouvent en parfait accord (la précision est de l'ordre de 1% même pour le niveau fondamental) avec les solutions exactes (2.21).

Cette expression analytique simple montre que l'énergie croît avec le nombre quantique n comme

$$E_n^{\rm qc} \sim n^{2/3},$$
 (2.23)

soit que la distance entre les niveaux voisins diminue avec n (le spectre se resserre). Comme d'habitude en approximation quasi-classique, il est utile d'introduire les point de rebroussement (les points tournants) par

$$z_n = E_n / mg , \qquad (2.24)$$

qui, pour les quatre premiers états, sont égaux à

$$z_n = \{13.7, 24.0, 32.4, 39.9, ...\} \mu m.$$
 (2.25)

Pour $z > z_n$, on parle de la zone interdite classiquement et dans laquelle le neutron pénètre par effet tunnel. Dans cette zone, la fonction d'onde décroît exponentiellement [2.3, 2.8]

$$\psi_n(\xi_n(z)) \sim \xi_n^{-1/4} \exp\left(-\frac{2}{3}\xi_n^{3/2}\right)$$
(2.26)

avec

$$\xi_n = \frac{z}{z_n} - \lambda_n \tag{2.27}$$

2.3.2. Découverte des états quantiques par la méthode dite intégrale

Cette forme de la fonction d'onde a donné l'idée de la méthode qui a permis d'observer les états quantiques pour la première fois. Il faut mesurer la transmission des neutrons à travers d'une fente étroite formée par le miroir horizontal bien poli et un autre miroir spécialement

préparé, l'absorbeur, qui sera capable d'absorber les neutrons avec une grande efficacité. Ce deuxième miroir doit être parfaitement parallèle au premier et se situe à une distance variable Δz de celui-ci.

Si l'absorbeur se trouve plus haut que le point de rebroussement $\Delta z \gg z_n$, alors il ne « touche » pas la fonction d'onde et les neutrons peuvent passer à travers de la fente sans pertes. Si la distance entre le miroir et l'absorbeur Δz diminue, la fonction d'onde de neutron $\psi_n(z)$ commence pénétrer l'absorbeur et la probabilité de pertes augmente exponentiellement. Si Δz devient plus faible que la taille caractéristique de la fonction d'onde de l'état fondamental z_1 , alors la fente devient non transparente pour les neutrons. C'est précisément ce phénomène qui a été étudié dans une série des expériences récentes [2.12 – 2.14].



Fig. 2.6. Le schéma de principe de l'expérience. De gauche à droite: les lignes grasses verticales représentent le collimateur d'entrée (1) ; les lignes avec des flèches montrent des trajectoires classiques de neutrons (2) entre le collimateur et la fente formée par le miroir poli (3, rectangle blanc) et l'absorbeur (4, rectangle noir). Les lignes (5) illustrent le mouvement quantique au-dessus du miroir et le carré noir représente le détecteur de neutrons.

Le schéma de l'expérience est présenté sur la figure 2.6. L'expérience consistait dans la mesure du flux de neutrons avec une vitesse horizontale de l'ordre de 5–10 m par seconde à travers de la fente entre le miroir et l'absorbeur. La distance entre le miroir et l'absorbeur peut être ajustée et mesurée avec une très grande précision.

Nous ne rentrons pas ici dans le mécanisme de cette absorption (il a été étudié en détails en [2.14]) mais soulignons simplement qu'avant d'être absorbé le neutron est diffusé par la surface rugueuse de ce miroir, c'est pourquoi dans nos articles nous préférons l'appeler le diffuseur et non pas l'absorbeur. Les propriétés de diffusion de ce miroir s'avèrent être beaucoup plus importantes que ses propriétés d'absorption.

Le spectre avant l'installation est isotrope et uniforme en hauteur et à l'entrée sa forme était définie par deux plaques du collimateur. Des efforts particuliers ont été entrepris pour la protection antivibratoire, contre le bruit de fond de neutrons et de gammas, et contre les champs magnétiques parasites avec lesquels les neutrons interagissent par leur moment magnétique. La description plus détaillée de ces blindages ainsi que du système de détection et de nivellement peut être trouvée dans les articles originaux [2.12 - 2.14].

En première approximation, le mouvement horizontal et le mouvement vertical du neutron peuvent être considérés comme indépendants. Le mouvement horizontal avec une vitesse moyenne de l'ordre de 5–10 m/s obéit aux lois classiques tandis que le mouvement vertical avec les vitesses de l'ordre de quelques centimètres par seconde et les énergies de l'ordre de quelques pico eV (2.21) est un mouvement quantique.

La longueur du miroir est déterminée par la relation d'incertitude énergie-temps $\Delta E \Delta t \sim \hbar$ et donne, même si cela peut paraître surprenant, une taille macroscopique à l'installation expérimentale. L'observation expérimentale n'est possible que si la distance entre les deux niveaux voisins $\Delta E_n = E_{n+1} - E_n \sim 1/n^{1/3}$ est plus grande que la largeur du niveau δE . Vu que la distance entre les niveaux diminue avec *n*, il est plus facile de mesurer les états les plus bas du spectre. La largeur de l'état quantique est déterminée par sa durée de vie (dans notre cas,

par la durée de l'observation, i.e. par la durée du vol de neutron au-dessus du miroir). Ainsi le miroir doit avoir une longueur telle que la durée du vol, soit $\Delta \tau \ge 0.5$ ms. Pour les neutrons ayant des vitesses de 10 m/s à 5 m/s, cela donne la taille de miroir de 10 cm.

Les résultats de la première expérience [2.12, 2.13] sont présentés sur la figure 2.7 où on voit clairement la différence entre le comportement prévu par la mécanique classique (ligne continue) et l'observation expérimentale qui suit fidèlement le comportement quantique espéré (ligne discontinue). En particulier, on voit explicitement que la fente entre le miroir et l'absorbeur n'est absolument pas transparente (le flux est égal à zéro au bruit de fond près) tant que son ouverture est inférieure à approximativement 15 microns (la valeur prédite par la mécanique quantique – la position du premier point de rebroussement). La ligne en tirets représente les calculs dans un modèle simple de mécanique quantique ; les nombres d'occupations des niveaux quantiques et la résolution expérimentale sont considérés comme paramètres ajustables.



Fig. 2.7. Flux des neutrons à travers d'une fente entre le miroir et l'absorbeur en fonction de la distance entre eux obtenu lors de la première expérience [2.12, 2.13]. La ligne en tiré représente les calculs dans un modèle simple de mécanique quantique ; les nombres d'occupations des niveaux quantiques sont considérés comme paramètres ajustables. La ligne continue donne le comportement classique et la ligne en pointillé – un modèle quantique simplifié qui ne tient compte que de l'état fondamental.

La ligne continue donne le comportement classique qui, d'ailleurs reproduit très bien des données expérimentales à partir de $50-100 \mu m$.

On peut penser que l'amélioration de la résolution expérimentale permettra voir une fonction « en escalier » pour séparer mieux des états quantiques voisins. Cependant, l'expérience suivante a montré que ceci n'est pas du tout le cas. L'augmentation assez spectaculaire de la statistique ne donne qu'un effet médiocre.

Ce résultat, au premier coup d'œil très décevant, trouve une explication théorique assez simple : il existe une résolution minimale qui limite la résolution expérimentale et qui est due au système lui-même. Cette résolution minimale est liée au mécanisme d'absorption des neutrons et s'explique par l'effet tunnel. En fait, la vision de absorption comme processus avec une probabilité de 100% si la taille de la fente est inférieure à la position du point de rebroussement et de 0% si elle est supérieure est, bien sûr, trop simple. Même si l'absorbeur se trouve à une hauteur (légèrement) supérieure à la position du point de rebroussement, il existe la probabilité non nulle que neutron se trouve dans un domaine interdit classiquement mais autorisé par la mécanique quantique - c'est l'effet tunnel.

On peut assez facilement décrire ce phénomène en se servant d'exactement la même approche que celle qui est utilisée pour décrire la désintégration des noyaux par l'émission des particules alpha. Ceci est d'autant plus facile que les fonctions d'ondes dans le domaine inaccessible classiquement ont une forme quasi-classique simple (2.26). On peut obtenir ainsi [2.14] une expression analytique assez simple pour le flux des neutrons à travers de la fente entre le miroir et l'absorbeur.

Dans le cadre de l'approche quasi classique ce flux $F(\Delta z)$ comme fonction de la position Δz d'absorbeur sous le point de rebroussement z_n ($\Delta z > z_n$) peut être écrit, pour un niveau donné comme :

$$F(\Delta z) \sim \operatorname{Exp}\left(-\alpha \operatorname{Exp}\left(-\frac{4}{3}\left(\frac{\Delta z - z_n}{z_0}\right)^{\frac{3}{2}}\right)\right)$$
(2.28)

où z_0 est donné par (2.18) et α est une constante qui peut être prise la même pour tous les niveaux. Les résultats de cette expérience sont présentés sur la figure 2.8.



Fig. 2.8. Flux des neutrons à travers d'une fente entre le miroir et l'absorbeur en fonction de la distance entre eux obtenu lors de la deuxième expérience [2.14]. Les courbes sont les mêmes que sur la figure 2.7.

Le facteur exponentiel après cette constante représente tout simplement la probabilité pour le neutron de passer du domaine permis classiquement au domaine inaccessible (classiquement) où se trouve l'absorbeur. Ce modèle décrit très bien les données expérimentales et donne une explication naturelle à la résolution minimale propre au système quantique. Grosso modo, pour que les deux niveaux quantique voisins n+1 et n soient résolus, il faut que la distance $z_{n+1}-z_n$ soit plus grande que l'échelle caractéristique du problème $z_0 = 5.87 \,\mu\text{m}$ (qui apparaît explicitement dans (2.28)). Si l'on regarde les valeurs des premiers points de rebroussement (2.25), on s'aperçoit que ceci n'est possible que pour l'état fondamental et le

premier état excité car pour même pour la paire suivante $z_3 - z_2 \approx 8 \ \mu m$ est déjà comparable à

 Z_0 .

Pour résumer ce paragraphe, on peut dire que les états les plus bas du spectre (et surtout le niveau fondamental) peuvent être clairement identifiés par la méthode intégrale. Cette observation représente en soit un résultat majeur qui peut être utilisé pour en tirer des conclusions intéressantes pour d'autres domaines de physique. Par exemple, il permet d'établir des limitations compétitives aux modifications de la loi de la pesanteur aux échelles proches de l'échelle caractéristique du problème.

Telles modifications sont prédites par des différents modèles si en vogue actuellement (des dimensions supplémentaires, l'axion, la mécanique quantique dite non commutative etc.) Nous ne discuterons pas ici ce type d'application des résultats obtenus mais le lecteur intéressé trouvera des références utiles, par exemple dans [2.18 – 2.20].

Bien sûr, on peut toujours améliorer la résolution en augmentant d'avantage la statistique mais la méthode intégrale trouve très rapidement sa limite dans la résolution des états excités.

2.3.2. Etude des états quantiques par la méthode dite différentielle

Pour résoudre clairement les états quantiques excités et mesurer plus précisément leurs paramètres, on doit appliquer d'autres approches, par exemple, en utilisant le détecteur sensible à la position avec une très haute résolution spatiale qui a été spécialement développé pour cette expérience [2.21].

Nous avons vu que la taille spatiale des fonctions d'onde de ce problème est tout à fait macroscopique (des dizaines de microns). C'est pourquoi on peut envisager la mesure directe de la probabilité de présence – la « photographie » de la fonction d'onde, pourvu que la statistique, c'est-à-dire le flux de neutrons qui se trouvent dans un (ou des) état quantique le permette. L'idée d'une telle mesure est relativement simple : au lieu de mesurer (compter) le nombre de neutrons en fonction de la distance entre le miroir et l'absorbeur, il faut fixer l'absorbeur à une certaine hauteur au-dessus du miroir et voir à quelle hauteur se trouve le neutron (en remplaçant le compteur par un détecteur capable de déterminer la position de neutron avec une grande précision).

Ce système sélectionnerait un nombre limité d'états quantiques (l'idéal serait de ne sélectionner qu'un seul mais le flux de neutrons même venant du réacteur de l'ILL est tellement faible qu'il ne laisse pas beaucoup de chance de trouver le signal par rapport au bruit). Le signal qui passe à travers de ce dispositif représente la somme des carrés des fonctions d'ondes de quelques états présents qui ne sont pas absorbés par l'absorbeur (on peut négliger les termes d'interférence car le spectre des vitesses horizontales reste très large et tous les termes d'interférence s'annulent).

De plus, si ce détecteur se situe relativement loin d'absorbeur, les états quantiques qui sont passés entre le miroir et l'absorbeur se propagent sur le miroir « librement » sans être ni déformés ni influencés par l'absorbeur.

La difficulté cependant reste le développement d'un tel détecteur avec une résolution spatiale de l'ordre de 1 μ m. Un tel détecteur a été développé et il représente une fine couche d'uranium (²³⁵UF₄) déposée sur un plastique (CR39). Les neutrons provoquent la fission des noyaux d'uranium et les produits de fission entre dans le plastique et créent les traces. Par le développement chimique dans une solution, ces traces peuvent être élargies pour avoir approximativement 1 μ m en diamètre. Le détecteur ainsi développé peut être analysé dans un microscope optique. La finesse de la couche d'uranium (inférieure à un micron) garantit que le point où neutron a provoqué la fission du noyau d'uranium reste très proche de l'endroit où le produit de fission a touché le plastique.

La première photo de la fonction d'onde a été obtenue dans l'expérience [2.14] et elle est présentée sur la figure 2.9. Il faut souligner que c'est la première fois que la fonction d'onde

de neutrons a été mesurée dans l'espace de configuration. D'une façon plus générale, la mesure de la fonction d'onde dans l'espace de configuration reste très rare en mécanique quantique (d'habitude, on fait les expériences de diffusion, c'est-à-dire on étudie la fonction d'onde dans l'espace de la quantité de mouvement). La courbe continue sur la figure 2.9 représente un calcul théorique avec les fonctions d'onde connues et les nombres d'occupations obtenus par la méthode intégrale (la résolution spatiale du détecteur est supposée d'être parfaite). Cette première expérience a montré que la méthode peut être utilisée et on peut avoir une résolution permettant l'étude fine de la forme de la fonction d'onde.



Fig. 2.9. La probabilité de présence de neutron dans le champ de pesanteur mesurée par le détecteur sensible à la position de très haute résolution (détecteur plastique avec une couche d'uranium déposée). La courbe continue représente un calcul théorique avec les fonctions d'onde connues et les nombres d'occupations obtenus par la méthode intégrale (la résolution spatiale du détecteur est supposée parfaite).

Cependant, la géométrie de cette expérience n'est pas optimale pour que l'on mette en évidence la variation spatiale de la fonction d'onde. Si l'on regarde la forme des fonctions d'onde de ce système présentées sur la figure 2.5, on se rend compte que toutes ces fonctions, sauf celle de l'état fondamental, possèdent un minimum (un zéro) aux alentours de 10 μ m. Cette particularité suggère une autre idée : si l'on pouvait « éliminer » l'état fondamental, la variation spatiale de la fonction d'onde serait beaucoup plus visible. En particulier, la signature indiscutable des états quantiques serait la présence sur la photo d'un minimum aux alentours de 10 μ m.

L'installation expérimentale qui permet de réduire la contribution de l'état fondamental d'une façon significative est montrée sur la figure 2.10. Le miroir principal a une forme particulière en escalier avec un pas « descendant ». Ici, on a deux systèmes de fonctions d'onde dans le champ de pesanteur : avant et après le pas d'escalier mais les fonctions d'ondes de ces deux systèmes sont décalées les unes par rapport aux autres de la valeur du pas Δz_{step} . Le choix adapté de Δz_{step} (de l'ordre de 20 micros) permet de peupler d'avantage les états excités : les neutrons, qui étaient dans l'état fondamental dans le premier système, vont se retrouver dans le premier état excité, dans le second système ; de même, le premier état excité du premier

système va surtout peupler le second état excité du deuxième système, et ainsi de suite. Le seul état qui ne sera pas peuplé (sa population sera fortement réduite) est l'état fondamental – il reste « caché » par le pas d'escalier.



Fig. 2.10. Le schéma de principe de l'expérience avec un miroir en forme d'escalier avec un petit pas négatif, permettant une suppression significative de l'état fondamental.

Les premiers résultats de cette expérience [2.22] correspondant à une semaine de prise de données sont présentés sur la figure 2.11. Les deux courbes théoriques représentent les calculs avec les nombres d'occupation des états quantiques calculés théoriquement et mesurés directement par la méthode intégrale. Même si ces résultats restent préliminaires on peut voir que les structures dans les fonctions d'onde sont beaucoup plus prononcées. Cette méthode est très prometteuse car elle permet d'accéder directement à la fonction d'onde. Elle nécessite encore une optimisation par rapport à la valeur Δz_{step} (il faut trouver un bon compromis pour le nombre d'états présent dans le système : il doit être suffisamment grand pour que les structures dans les fonctions d'onde soient statistiquement fiables mais il ne doit pas être trop grand, sinon les fonctions d'ondes des états excités lissent ces structures) et une prise de données plus longue pour augmenter la statistique.



Fig. 2.11. La probabilité de présence de neutron dans le champ de pesanteur mesurée par le détecteur sensible à la position de très haute résolution. Les deux courbes théoriques représentent les calculs avec les nombres d'occupation des états quantiques calculés théoriquement et mesurés directement par la méthode intégrale.

Conclusions

La physique des neutrons ultra froids fêtera dans pas très longtemps ses quarante ans. Ces années ont été marquées par de belles découvertes et des progrès considérables.

Avec la création et la planification des nouvelles sources des UCN, cette physique est en train d'entrer dans sa nouvelle phase. Elle aura besoin de nouvelles idées et de nouveaux acteurs. On peut espérer que les physiciens français (quasiment absents aujourd'hui, pour des raisons différentes et diverses, de ce domaine) participeront à cette nouvelle vague d'expériences.

On poursuivra certainement des expériences déjà bien avancées. En particulier, dans l'étude des états quantiques du neutron dans le champ de pesanteur nous ne comptons pas seulement sur l'amélioration et l'optimisation des méthodes existantes (intégrale et différentielle) mais nous travaillons activement sur l'étape suivante dans l'étude de tout système quantique – recherche des transitions résonantes entre ces états.

Cependant, il faudra concevoir des nouvelles approches pour résoudre des problèmes « anciens » comme la détermination de la durée de vie du neutron ou les pertes anormales des UCN et il faudra poursuivre la recherche des nouvelles méthodes pour augmenter la densité des neutrons ultra froids.

Remerciements

J'aimerais remercier mes collègues qui ont largement contribué à la préparation de ce cours : Peter Geltenbort, Mike Pendlebury, Gilles Quemener, Guillaume Pignol. J'aimerais remercier tout particulièrement Valery Nesvizhevsky avec qui notre travail commun dure depuis presque dix ans.

Références

[1.1] Golub, R.; Richardson, D.J., Lamoreux, S.K. Ultracold Neutrons; Higler: Bristol, 1991.

- [1.2] Ignatovich, V. K. The Physics of Ultracold Neutrons; Clarendon: Oxford, 1990.
- [1.3] Ya.B. Zeldovich, JETP 1959, 36, 1952.
- [1.4] Luschikov, V.I.; Pokotilovsky, Yu.N.; Strelkov, A.V.; Shapiro, F.L., *JETP Lett.* 1969, 9, 40.
- [1.5] Ignatovich, V. K., Physics-Uspekhi, 1996, 39, 283.
- [1.6] Steyerl, A., Phys. Lett. 1969, B29, 33.
- [1.7] Golub, R.; Pendlebury, J.M., ., Phys. Lett. 1975, A53, 133.
- [1.8] http://ucn.web.psi.ch/index.htm.
- [2.1] Sakharov, A.D., JETP Lett. 1967, 5, 24.
- [2.2] Smith, J.H.; Purcell, E.M.; Ramsey, N.F. Phys. Rev., 1957 108 120.
- [2.3] Baker, C.A.; Doyle, D. D.; Geltenbort, P.; Green, K.; van der Grinten, M.G.D.; Harris, P.G.; Iaydjiev, P.; Ivanov, S.N.; May, D.J.R.; Pendlebury, J.M.; Richardson, J.D.; Shiers, D.; Smith, K.F., *Phys. Rev. Lett.*, 2006, **97**, 131801.
- [2.4] Lamoreaux, S.K.; Golub, R., Comment on "An Improved Experimental Limit on the Electric-Dipole Moment of the Neutron," C.A.Baker et al, hep-ex/0609055
- [2.5] Review of Particle Physics, J. Phys. 2006, G33.
- [2.6] Lopez, R E.; and Turner, M S. Phys. Rev. 1999, D59, 103502/14.
- [2.7] Mampe, W.; Ageron, P.; Bates, C.; Pendlebury, J.M.; Steyerl, A., *Phys. Rev. Lett.* 1989, 63, 593.
- [2.8] Breit, G. Phys. Rev. 1928, 32, 273.
- [2.9] Flügge, S. Practical Quantum Mechanics; Springer-Verlag: Berlin, 1974; Vol. 1.
- [2.10] Galitzky, V.M.; Karnakov, B.M.; Kogan, V.I. La mécanique quantique. Problèmes résolus EDP Sciences: Les Ulis, 2002; Vol. 1; 2003; Vol. 2.

- [2.11] Luschikov, V.I. *Physics Today* 1977, **42**, 51 ; Luschikov, V.I.; Frank, A.I.; *JETP Lett.* 1978, **28**, 559.
- [2.12] Nesvizhevsky, V.V.; Börner, H.G.; Petoukhov, A.K.; Abele, H.; Bäßler, S.; Rueß, F.J.; Stöferle, Th.; Westphal, A.; Gagarski, A.M.; Petrov, G.A.; Strelkov, A.V. *Nature* 2002, 415, 297.
- [2.13] Nesvizhevsky, V.V.; Börner, H.G.; Gagarski, A.M.; Petoukhov, A.K.; Petrov, G.A.; Abele, H.; Bäßler, S.; Divkovic, G.; Rueß, F.J.; Stöferle, Th.; Westphal, A.; Strelkov, A.V.; Protasov, K.V.; Voronin, A.Yu. *Phys. Rev.* 2003, D67, 102002-1. Nesvizhevsky, V.V.; Petoukhov, A.K.; Börner, H.G.; Protasov, K.V.; Voronin, A.Yu.; Westphal, A.; Bäßler, S.; Abele, H.; Gagarski, A.M. *Phys. Rev.* 2003, D68, 108702.
- [2.14] Nesvizhevsky, V.V.; Petoukhov, A.K.; Börner, H.G.; Baranova, T.A.; Gagarski, A.M.; Petrov, G.A.; Protasov, K.V.; Voronin, A.Yu.; Bäßler, S.; Abele, H.; Westphal, A.; Lucovac, L. *Eur. Phys. J.* 2005, C40, 479.
- [2.15] Landau, L.D.; Lifshits, E.M. Quantum Mechanics; Pergamon Press: Oxford, 1977.
- [2.16] Quigg, C. and Rosner, J.L., Phys. Rep. 1979, 4, 167
- [2.17] Goodmanson, D.M., Am. J. Phys. 2000, 68, 866.
- [2.18] Nesvizhevsky, V.V.; Protasov, K.V.; Class. Quant. Grav. 2004, 21, 4557.
- [2.19] Bertolami, O.; Nunes, F.M.; Class. *Quant. Grav.* 2003, **20**, L61.
- [2.20] Nesvizhevsky, V.V.; Protasov, K.V.; Quantum States of Neutrons in the Earth's gravitational Field: State of the Art, Applications, Perspectives, In: "Trends in Quantum Gravity Research", Ed.: David C. Moore, Nova Publishers, 2006, p. 65.
- [2.21] Nesvizhevsky, V.V.; Börner, H.G.; Gagarski, A.M.; Petrov, G.A.; Petoukhov, A.K.; Abele, H.; Bäßler, S.; Stöferle, Th.; Soloviev, S.M. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research 2000, A440, 754.
- [2.22] Nesvizhevsky, V.V.; Börner, H.G.; Petoukhov, A.K.; Gagarski, A.M.; Petrov, G.A.; Lukovac, L.; Abele, H.; Wahrwold, S.; Baeßler, S.; Raeder, S.; Kuzmina, T.M.; Schrauwen, J.; Tischenko, V.M.; Protasov, K.V.; Voronin, A.Yu. *ILL Annual Report* 2004.

SEMINAIRES JEUNES

Réactions directes en voies couplées de l'8He Xavier MOUGEOT, CEA Saclay

L'étude des noyaux exotiques a conduit à la remise en cause de propriétés bien établies pour les noyaux stables (rayon quadratique moyen proportionnel à $A^{1/3}$, densité de matière uniforme, mélange homogène de protons et de neutrons, ...) et à la mise en évidence de nouvelles structures (halos, peaux de neutrons, ...). L'⁸He est le noyau le plus riche en neutrons accessible actuellement : il est situé à la drip-line neutron et possède un rapport N/Z égal à 3. C'est un cas idéal pour tester et contraindre les modèles de structure via leur interaction effective nucléon nucléon. Une précédente expérience du Groupe Exotique (F.Skaza et al., PLB 619 2005) a montré la nécessité de mesurer les différentes voies de sortie de réaction et d'effectuer les analyses dans le cadre du formalisme en voies couplées pour comprendre la structure de l'⁸He. L'expérience de cette thèse aura lieu au printemps 2007 au Ganil avec les détecteurs de faisceau Cats, ainsi que les télescopes de particules chargées Must et Must 2. Via la réaction ⁸He sur proton, nous aurons accès aux couplages entre la voie élastique et les voies inélastiques et de transfert d'un et deux neutrons, ainsi qu'aux spectroscopies des ^{6,7,8}He. La mesure des voies élastiques des réactions ⁸He sur ¹²C et ²⁰⁸Pb permettra d'évaluer la contribution des effets nucléaires et coulombiens sur le potentiel d'interaction ⁸He - cible. L'évaluation de ce potentiel sera complétée par la réaction ⁸He sur deuton, en cours d'analyse.

Mesure de la section efficace de fission de l'²⁴³AM en neutron rapide *Grégoire KESSEDJIAN, CEN Bordeaux Gradignan*

L'²⁴³Am constitue une part importante des déchets générés dans les réacteurs nucléaires actuels. Aujourd'hui, les ²⁴¹Am et ²⁴³Am sont les seuls isotopes qu'il est possible d'extraire et de séparer complètement du combustible usé. Ils représentent donc les seuls noyaux pour lesquels l'incinération par neutrons rapides puisse être sérieusement envisagée dans un futur relativement proche.

L'étude de faisabilité des incinérateurs requiert une connaissance précise des sections efficaces de fission et capture dans un spectre de neutrons rapides. Néanmoins, l'évaluation des données a été remise en cause par une étude récente de la section efficace de fission de l'²⁴³Am induite par neutrons rapides (1-6 MeV) effectuée à GNEISS. Afin de résoudre ce problème, nous avons réalisé une nouvelle mesure de cette section efficace du seuil de fission jusqu'au début de la deuxième chance fission. L'expérience a été réalisée sur le Van de Graaf 7 MV de l'IRMM (Institute for Reference Materials and Mesurements) à Geel en Belgique. Les détecteurs de fragments de fission sont constitués de cellules solaires. Deux cibles d'²⁴³Am (550 μ g/cm² chacune) ont été utilisées lors de cette mesure, elles sont placées perpendiculairement au faisceau de neutrons. Généralement, les données publiées ont été mesurées relativement à celle de l'²³⁵U (précision de 5%). Nous avons choisi pour référence la diffusion élastique (n,p) pour laquelle la section efficace est connue avec une meilleure précision (1%) dans une large gamme en énergie de neutron (1meV, 50MeV). Les mesures ont été comparées aux données expérimentales existantes. Elles sont substantiellement plus basses que celles récemment obtenues à GNEISS.

Contrôle du profil de densité dans le plasma de Tore Supra. Comparaison de différentes méthodes d'alimentation en particules

Nicolas COMMAUX, CEA Cadarache

La fusion thermonucléaire contrôlée par confinement magnétique fait partie des options permettant dans l'avenir de fournir de l'énergie à l'humanité. Ses avantages sont nombreux : abondance du combustible, peu de déchets produits, sûreté du réacteur...

Mais différents problèmes cruciaux se posent quant à la maîtrise de la fusion magnétique.

L'un d'eux est la manière dont on va assurer l'injection de combustible au cours du fonctionnement du réacteur dans le plasma (créé à partir du combustible pour le confiner et le chauffer) afin de compenser celui ayant déjà fusionné. Pour cela 3 techniques sont disponibles :

- l'injection de gaz classique : le combustible est injecté sous forme de gaz à pression modérée au bord du plasma. Cette méthode est simple mais elle déstabilise le plasma et est peu efficace (moins de 5% du combustible rentre dans le plasma)
- l'injection sous forme solide : le combustible est injecté sous forme de glace à grande vitesse : environ 1000 ms⁻¹. Cette méthode est difficile à mettre en œuvre mais elle est très efficace (jusqu'à 100% du combustible pénétrant dans le plasma) et perturbe beaucoup moins le plasma
- l'injection supersonique par impulsion : le combustible est injecté sous forme de gaz à forte pression au travers d'une tuyère de Laval afin d'atteindre des vitesses supersoniques. Cette méthode est intermédiaire en terme de mise en œuvre et d'efficacité.

Le but de cette thèse est la comparaison de ces différentes méthodes d'injection et leur caractérisation en terme de modification de la répartition de densité dans le réacteur. Il est en effet important que la matière se retrouve au centre du plasma car c'est là que les réactions de fusion ont lieu et qu'il n'y a pas de dégradation des performances du réacteur.

Etude des propriétés cinématiques des fragments spectateurs dans les collisions d'ions lourds

Antoine BACQUIAS, IPHC Strasbourg - GSI Darmstadt

Les installations de GSI (Darmstadt) permettent d'étudier les collisions d'ions lourds aux énergies relativistes. A l'aide du FRS, spectromètre magnétique de très haute résolution, les fragments sont parfaitement identifiés en masse et en charge. De plus, les vitesses longitudinales sont mesurées avec une précision relative de 5.10⁻⁴.

Les propriétés cinématiques sont des observables de choix pour tester les modèles d'équation d'état de la matière nucléaire. Elles sont aussi importantes -dans le cas de la spallation- pour le design des réacteurs hybrides (ADS).

Les distributions en vitesse des fragments issus du projectile reflètent les processus encourus lors de la collision. Loin d'être parfaitement connus, ces processus complexes mènent à des observations fort intéressantes. Ainsi, la forme des spectres, gaussienne pour les fragments les plus lourds, s'avère plus complexe pour les fragments les plus légers. La caractérisation de ces distributions par la vitesse moyenne et l'écart type ne peut alors se faire sans l'élaboration de modèles théoriques ou de simulations reproduisant les données.

D'autre part, différentes expériences ont fourni des valeurs inattendues pour les vitesses longitudinales moyennes, mettant à jour une réaccélération des fragments spectateurs légers. Cet effet ne peut être compris sans l'appui de théories (collaboration avec P. Danielewicz). La première partie de mes travaux a porté sur l'écart type des distributions en impulsion longitudinale, conduisant à un modèle à la fois plus complet et plus proche des observations que les prédictions utilisées jusqu'à présent (Goldhaber, Morrissey).

Dans cette recherche, le code Monte-Carlo ABRABLA reste un outil de choix pour tester l'influence sur nos observables des phénomènes envisagés pour décrire la collision.

Description microscopique des propriétés des fragments de fission Noël DUBRAY, CEA Bruyères-Le-Châtel

Des propriétés des fragments de fission des noyaux ²²⁶Th, ²⁵⁶Fm, ²⁵⁸Fm et ²⁶⁰Fm sont calculées à l'aide d'une approche auto-cohérente microscopique de type Hartree-Fock-Bogoliubov utilisant une interaction nucléon-nucléon effective de type Gogny (paramétrisation D1S). Dans un premier temps, les surfaces d'énergie totale sont calculées dans le plan (q₂₀, q₃₀), puis la ligne de scission est extraite, en respectant un critère de seuil de la densité de matière au niveau du "cou" du noyau.

Enfin, diverses observables telles que l'énergie totale, la distance entre fragments ou encore l'énergie cinétique totale des fragments sont calculées le long de cette ligne et comparées aux données expérimentales existantes.

Extension du modèle de cascade intra-nucléaire aux énergies comprises entre 2 et 10 GeV

Sophie PEDOUX, Université de Liège

Le modèle de Cascade Intra-Nucléaire de Liège (INCL) est utilisé pour décrire les réactions de spallation. Il a été testé et validé pour les énergies allant de 40 MeV à 2 GeV environ.

Dans INCL, le processus de collision entre deux nucléons est simulé par une sous-routine basée sur la méthode de Monte-Carlo. Les sections efficaces des diverses réactions possibles sont utilisées pour déterminer la réaction qui aura lieu. Jusqu'à présent, les réactions qui peuvent être simulées au cours d'une collision sont : NN->NN, ND->ND, DD->DD, NN->ND et D->pN.

L'extension envisagée du modèle à plus haute énergie consiste à y ajouter les voies inélastiques qui s'ouvrent entre 2 et 10 GeV, c'est à dire essentiellement la production multiple de pions, des collisions inélastiques p-N et la production de particules étranges.

La réalisation de la première de ces étapes a été l'objet de ma première année de thèse. Elle a conduit à l'introduction des sections efficaces de production d'un, de deux et de trois pions dans le programme suivie d'un modèle pour la répartition des charges sur les particules de la voie de sortie et d'une sous-routine supplémentaire pour répartir les impulsions sur les particules de la voie de sortie, quand il y a plus de 2 corps et en tenant compte des lois de conservation. Pour ce dernier point, nous avons utilisé un modèle de répartition uniforme dans l'espace de phase.

Nous sommes en train de tester ces modifications et de comparer nos résultats à l'expérience.

Simulations par méthodes déterministe (DRAGON) et Monte Carlo (MURE/MCNP) pour évaluer l'utilisation à court terme du thorium en réacteurs existants

Perrine GUILLEMIN, LPSC Grenoble

Le siècle qui débute voit une hausse de plus en plus importante des besoins énergétiques de la population mondiale. Les politiques énergétiques actuelles doivent non seulement faire face à cette hausse « galopante » mais aussi considérer un autre problème bien inquiétant : le changement climatique. Avant que la situation ne se dégrade complètement, il est sage d'envisager des scénarios où des énergies mieux adaptées prendraient le relais des énergies fossiles. Dans ce contexte, l'énergie nucléaire semble pouvoir jouer un rôle non négligeable. Les réacteurs dits de 4^{ème} génération, encore à l'étude, sont envisagés pour une production durable d'énergie. Parmi ces études, le thorium se présente comme un combustible complémentaire voire comme un remplaçant de l'uranium. Néanmoins, l'²³³U n'est pas comme l'²³⁵U, un isotope naturel ; se pose alors la question de sa production et du démarrage possible de réacteurs en Th /²³³U. L'enjeu du cycle thorium est donc de considérer la globalité du cycle : de l'extraction minière à l'entreposage des déchets, afin d'en évaluer la compétitivité par rapport à la filière uranium.

Fort de ce constat, le groupe de Physique des Réacteurs du LPSC de Grenoble a entrepris des études (simulations neutroniques) d'irradiation de thorium en réacteurs existants, notamment dans le réacteur canadien à eau lourde CANDU (CANadian Deuterium Uranium) et dans le réacteur à eau pressurisée REP français (en collaboration avec l'IPN d'Orsay). Ces études ont pour but d'évaluer à la fois la production d'²³³U et les potentialités immédiates du thorium en tant que combustible utilisé dans des technologies de réacteurs éprouvées (voire légèrement aménagées). A plus long terme, peut se poser la question du retraitement de l'²³³U accumulé et donc celle de son recyclage éventuel dans le même type de réacteur. Il s'agit alors de chercher à optimiser le taux de conversion des réacteurs existants.

Les outils de simulation utilisés pour ces études sont d'une part le logiciel C++ MURE (MCNP Utility for Reactor Evolution) et d'autre part les codes déterministes DRAGON (calcul de transport en cellule) et DONJON (calcul de diffusion en cœur). Ces derniers permettent d'identifier rapidement les configurations optimales, alors que moyennant des coûts en calcul plus élevés, les codes probabilistes établissent les calculs de référence. La complémentarité de ces deux méthodes autorise alors la validation des résultats tout en palliant le manque de données expérimentales sur le sujet.

Mesure des sections efficaces des réactions (n, xn) Habib KARAM, IPHC Strasbourg

La radiotoxicité du cycle de thorium est de deux ordres de grandeur inférieure à celle des réacteurs actuels, et l'activité de ses déchets devient inférieure à celle du thorium initial en moins de 1000 ans. Cependant il y a un besoin de données nucléaires pour cette nouvelle filière. L'équipe GRACE de l'IPHC s'est attachée à mesurer des sections efficaces de réactions (n,xn) mal connues jusqu'à présent ou pour lesquelles aucune donnée n'existe. Par exemple un cas spectaculaire est la réaction ²³³U(n,2n) qui s'oppose à la fission de ²³³U, c'est-à-dire à la source d'énergie et de neutrons dans le cycle rapide du thorium. Par ailleurs le produit de cette réaction,²³²U, pose déjà des problèmes à EDF pour le démantèlement des réacteurs actuels (production de gammas de haute énergie dans la filiation de cet isotope).
L'essentiel des mesures est effectué auprès du faisceau "blanc" de Gelina (IRMM Geel, uratom). Auprès d'un tel faisceau, l'énergie des neutrons est déterminée par temps de vol. Ceci est réalisé par spectroscopie gamma en ligne, qui permet d'identifier les noyaux finals.

Cependant, cette technique se heurte à la difficulté de séparer les gammas d'intérêt du gamma flash et ceci en moins de 2 microsecondes (sur une base de vol de 200 m pour les neutrons incidents). L'équipe GRACE a réussi à résoudre ce problème en diminuant le temps mort de la prise des données en utilisant la digitalisation des signaux issus des compteurs. Des mesures ont été effectuées avec succès sur les noyaux ²⁰⁶Pb,²⁰⁷Pb et ²⁰⁸Pb.

Les prochaines expériences concerneront les isotopes d'uranium bien plus actifs que ceux du plomb. Une première mesure de la réaction ²³⁵U (n,2n), avec une statistique limitée, nous a confirmé la faisabilité de notre méthode avec ces cibles actives. La mesure proprement dite est envisagée pour le début de 2007.

Etude et développement d'un détecteur gazeux de rayons X. Application à l'imagerie médicale

Olivier GAUGAIN, SUBATECH Nantes

Ces travaux portent sur l'étude et le développement d'un détecteur gazeux de rayons X en vue d'une application à l'imagerie médicale. L'objectif à terme est d'obtenir des images présentant un bon contraste, avec une bonne résolution spatiale tout en réduisant la dose absorbée par le patient lors d'un examen radiologique.

Le premier prototype développé est composé de deux espaces gazeux superposés, de type MICROMEGAS. Le photon X incident est converti en électrons dans l'espace de dérive, amplifiés par cascade électronique sous l'effet d'un champ électrique élevé dans le second espace, avant d'être collectés par l'anode. Pour obtenir une efficacité de détection permettant de réduire la dose, il est nécessaire d'augmenter la pression du gaz utilisé, ce qui induit l'utilisation de champs électriques de plus en plus élevés. Toutefois l'utilisation de champs électriques importants peut conduire à l'apparition de décharges, rendant le détecteur difficilement exploitable.

Nous avons alors développé un second prototype, le détecteur PIM, qui se compose de quatre gaps gazeux (un étage de pré-amplification et un de transfert étant introduits entre l'étage de dérive et d'amplification). Avec ce détecteur, les valeurs des champs électriques nécessaires à l'amplification sont plus faibles, pour des pressions similaires, qu'avec MICROMEGAS. Ainsi, il devient possible d'utiliser des pressions plus importantes (de l'ordre de 5 atmosphères dans la configuration actuelle).

L'objectif est maintenant de caractériser le détecteur à des pressions encore plus élevées et d'étudier sa résolution spatiale.

Développement d'un dosimètre personnel neutron à base de capteurs CMOS à pixels actifs *Mathieu TROCME, IPHC Strasbourg*

Dans le cadre de ses activités de recherche, l'Institut Pluridisciplinaire Hubert Curien (IPHC) de Strasbourg développe des capteurs CMOS pour la trajectographie en physique des particules. Tirant parti de la forte capacité d'intégration de la micro-électronique VLSI, ces capteurs d'un méga-pixel naturellement intégrés à leur électronique de traitement, ont été optimisés pour répondre aux contraintes des grands collisionneurs tels que le LHC (Large Hadron Collider) au CERN ou le futur ILC (International Linear Collider). Ils possèdent ainsi une excellente efficacité de détection aux particules chargées minimum ionisantes (> 99%) et une excellente résolution spatiale ($\sigma_{xy} \approx 1.5 \mu m$). Ils présentent également d'autres avantages : ils sont rapides ($f_{readout} = 5 MHz/pix$), radio-résistants ($\Phi \approx 10^{12} n_{1MeV}/cm^2.an$), consomment peu (5 V) et sont bon marché (silicium commercial). Concerné par des applications dosimétriques, le groupe RaMsEs (Radioprotection et Mesures Environnementales) explore aujourd'hui la possibilité d'utiliser ces nouveaux capteurs dans le domaine de la dosimétrie opérationnelle.

D'excellents résultats ont déjà été obtenus pour la détection de particules alpha en source (^{241}Am) et en milieu radioactif (Radon et descendants). La détection de neutrons thermiques pouvant se faire via celles de particules alpha, la problématique neutron est aujourd'hui à l'étude. A cet égard, les capteurs CMOS présentent une caractéristique de tout premier intérêt en dosimétrie neutron : ils sont quasiment transparents aux gammas. Les neutrons rapides étant les plus dangereux en termes de dose, des expériences ont récemment été validées au Laboratoire de Dosimétrie et de Métrologie des Neutrons à l'IRSN à Cadarache, à l'aide d'une source ISO d'²⁴¹AmBe et d'un convertisseur en polyéthylène. Une efficacité intrinsèque de 1.2×10⁻³ a été obtenue. Celle-ci est en très bon accord avec les calculs et simulations (MCNPX) effectués. Les régions thermiques et épithermiques sont maintenant en cours d'investigation.

Un nouveau capteur intégré de type "system-on-chip" ayant fait l'objet d'un dépôt de brevet européen est actuellement en phase de tests. Ce futur détecteur de neutrons, portable, transparent aux gammas et présentant une grande efficacité dans un faible volume à un prix raisonnable, semble promis à un bel avenir dans de nombreuses applications neutron : en dosimétrie bien sûr (industrie nucléaire et accélérateurs médicaux), mais également en imagerie neutron ou en monitorage de faisceaux.

Mise en place d'un nouveau dispositif expérimental pour la détermination des rendements massiques, isotopiques et isomériques des produits de fission. *Adeline BAIL, CEA Cadarache*

La détermination précise des rendements massiques, isotopiques et isomériques des fragments obtenus par la fission induite par neutrons thermiques est une donnée importante, que ce soit pour le pilotage des réacteurs nucléaires avec notamment le besoin de mieux connaître les caractéristiques des produits de fission neutrophages, ou encore pour la théorie, avec le besoin de valeurs expérimentales pour valider les modèles.

De nombreuses expériences ont déjà été menées, en particulier pour la détermination des rendements en masse des produits de fission des actinides classiques, tel que l'²³⁵U.

Cependant, une étude détaillée de la fission thermique de beaucoup de noyaux n'a pas encore été menée, et certaines valeurs déjà connues ne s'accordent pas toujours entre elles, y compris celles figurant dans les bibliothèques de données. De plus, les récents progrès des détecteurs permettent aujourd'hui une meilleure précision des mesures.

Le réacteur de recherche de l'Institut Laue-Langevin situé à Grenoble délivre un flux très intense de neutrons thermiques, permettant au spectromètre de masse Lohengrin installé sur le site de disposer d'un flux de 6E14 n/cm²/s, ce qui offre la possibilité d'étudier la fission nucléaire avec une statistique satisfaisante.

Ce spectromètre permet, par la combinaison de divers champs magnétiques et électriques, une séparation des produits de fission selon leurs rapports masse sur charge ionique et énergie sur charge ionique.

L'énergie des fragments peut être obtenue par une chambre d'ionisation, et permet alors l'obtention de la distribution en masse des produits de fission. En revanche, la détermination des rendements isotopiques nécessite la séparation des différents isobares à travers une ligne de masse. Pour cela, des détecteurs germanium et β ont été rajoutés à l'installation, car, lors de leur désintégration β , la désexcitation des noyaux nous permet de définir leur rendement par spectrométrie γ .

Des expériences ont déjà été menées pour les systèmes fissionants d'²³⁶U et de ²⁴²Pu, et d'autres mesures sont prévues pour la réaction ²³⁹Pu (n, f).

Contribution du quark étrange aux propriétés électromagnétiques de la matière hadronique

Maud VERSTEEGEN, LPSC Grenoble

La phase angle arrière de l'expérience GO a débuté fin 2005 pour une période de deux années. Elle entre dans le cadre d'un effort expérimental international, - HAPPEX, PVA4, SAMPLE -, visant l'étude et la meilleure compréhension de la structure interne du nucléon : proton et neutron. Il s'agit de mieux appréhender l'interaction forte et sa théorie fondamentale : la chromodynamique quantique ou QCD. Cette étude vise plus particulièrement la caractérisation de la contribution des quarks de la mer à la structure. Précisément, l'expérience GO déterminera la contribution des quarks étranges aux distributions de charge et de moments magnétiques (courants et spin) du proton et du neutron. Expérimentalement les facteurs de forme faibles du proton, sondé via l'échange d'un ZO, sont mesurés en diffusion élastique d'électrons polarisés de quelques GeV. L'interaction faible violant la parité, sa contribution est déduite à partir d'asymétries de comptages lorsque la polarisation des électrons est renversée. Ces quantités sont petites - quelques ppm, 10⁻⁶ - et sont mesurées avec une précision de quelques %. Ces mesures délicates sont réalisées à des cinématiques différentes - angles avant et arrière - et sur des cibles de proton et de deuton. Les résultats seront combinés avec ceux déjà connus sur les facteurs de forme EM (expériences mentionnées plus haut).

L'expérience GO se déroule au Jefferson Laboratory (Virginie USA). Elle s'appuie sur une collaboration entre les Etats-Unis, la France et le Canada, qui rassemble une centaine de physiciens et étudiants répartis dans une vingtaine de laboratoires. La partie Française (LPSC de Grenoble et IPN d'Orsay) a construit la moitié des détecteurs et de l'électronique associée à la phase I. Cette partie expérimentale (angle avant) s'est achevée en 2004. La mesure de la contribution du quark s aux contributions de charge et de courant a été réalisée dans une large gamme cinématique. L'analyse est terminée et du fait de l'impact de ses résultats, elle est l'objet de communiqués de presse du CNRS et du Jlab. Les résultats ont montré que la contribution de la mer était non nulle avec une dépendance marquée de la cinématique.

La première partie de l'expérience GO ne permet cependant pas de séparer la contribution de charge et de moment magnétiques (seule une combinaison linéaire est accessible). Pour cette séparation, sur un grand domaine en résolution spatiale dans le nucléon, une deuxième partie (angles arrière) a été installée durant 2005. Les prises de données remettent en route les détecteurs existant et testent les nouveaux détecteurs et modules d'électronique développés par le LPSC. Deux périodes de mesure à 687 MeV, longue de plusieurs mois chacune, ont eu lieu en 2006, pour deux cibles (LH2/LD2) avec lesquelles deux aspects de la physique du nucléon sont accessibles. Une deuxième énergie (362 MeV) a été réalisée durant l'été 2006. Cette série d'expériences permettra de séparer la contribution de charge et de courant à deux cinématiques différentes, complèteront les autres expériences au niveau mondial.

LISTE DES PARTICIPANTS

AICHE Mourad CENBG - BP 120 -F-33175 GRADIGNAN Cedex - aiche@cenbg.in2p3.fr **AKSOUH Farouk** DSM/DAPNIA/SPhN - CEA Saclay - F-91191 GIF-SUR-YVETTE Cedex - f.aksouh@gsi.fr **ANDRIAMONJE Samuel** DSM/DAPNIA/SPhN – CEA Saclay – F-91191 GIF-SUR-YVETTE Cedex – sandriamonje@cea.fr **AUDOUIN Laurent** IPN Orsay – 15 rue Georges Clémenceau – F-91406 ORSAY Cedex – audouin@ipno.in2p3.fr **BACOUIAS** Antoine IPHC Strasbourg / GSI Darmstadt - 23 Rue du Loess - F-67037 STRASBOURG Cedex 2 - a.bacquias@gsi.de **BAETEN Peter** SCK-CEN - Boeretang 200 - B-2400 MOL - Belgique - pbaeten@sckcen.be **BAIL Adeline** CEA Cadarache - DEN/CAD/DER/SPRC/LEDC - Bât. 230 - F-13108 SAINT-PAUL-LEZ-DURANCE Cedex - bail@ill.fr **BARREAU** Gérard CENBG - BP 120 -F-33175 GRADIGNAN Cedex - barreau@cenbg.in2p3.fr **BAUGE Eric** CEA/DIF/DPTA/SPN - BP 12 - F-91680 BRUYÈRES-LE-CHÂTEL - eric.bauge@cea.fr **BELAISSAOUI Amel** LPMPS - Département de Physique - Université Mentouri - Constantine - Algérie - belaissaoui_amel@yahoo.fr **BELGAID Mohamed** USTHB - Faculté de Physique - BP 32 - El Alia - Bab Ezzouar - Alger - Algérie - belgaidm@yahoo.com **BELIER Gilbert** CEA/DIF/DPTA/SPN - BP 12 - F-91680 BRUYÈRES-LE-CHÂTEL - gilbert.belier@cea.fr **BERERD** Nicolas IPN Lyon – 43 Bld du 11 Novembre 1918 – F-69622 VILLEURBANNE Cedex – bererd@ipnl.in2p3.fr **BERGER Jean-Francois** CEA/DIF/DPTA/SPN – BP 12 – F-91680 BRUYÈRES-LE-CHÂTEL – jean-francois.berger@cea.fr **BILLARD** Isabelle IPHC Strasbourg - 23 Rue du Loess - F-67037 STRASBOURG Cedex 2 - isabelle.billard@ires.in2p3.fr **BILLEBAUD Annick** LPSC Grenoble - 53 Avenue des Martyrs - F-38026 GRENOBLE Cedex - billebaud@lpsc.in2p3.fr **BOUDARD** Alain DSM/DAPNIA SPhN - CEA Saclay - Bât. 703 - F-91191 GUF-SUR-YVETTES Cedex - aboudrad@cea.fr **BOUZIDI Meriem** LPMPS - Département de Physique - Université Mentouri - Constantine - Algérie - bouzidi meriem1@yahoo.fr **CHEYNIS Brigitte** IPN Lyon – 43 Bld du 11 Novembre 1918 – F-69622 VILLEURBANNE Cedex – b.chevnis@ipnl.in2p3.fr **COMMAUX** Nicolas CEA Cadarache – DEN/CAD/DER/SPRC/LEDC – Bât. 230 – F-13108 SAINT-PAUL-LEZ-DURANCE Cedex – nicolas.commaux@cea.fr **CUGNON Joseph** Université de Liège – Physics Department B5 – B-4000 Sart Tilman LIEGE 1 – Belgique – j.cugnon@ulg.ac.be **CZAJKOWSKI Serge**

CENBG - Rue du Solarium - BP 110 - F-33175 GRADIGNAN Cedex - czajkows@cenbg.in2p3.fr

DASSIE Danielle CENBG - Rue du Solarium - BP 110 - F-33175 GRADIGNAN Cedex - dassie@cenbg.in2p3.fr **DAVID** Svlvain IPN Orsay - 15 rue Georges Clémenceau - F-91406 ORSAY Cedex - sdavid@ipno.in2p3.fr **DESSAGNE** Philippe IPHC Strasbourg - 23 Rue du Loess - F-67037 STRASBOURG Cedex 2 - philippe.dessagne@ires.in2p3.fr **DUBRAY Noël** CEA/DIF/DPTA/SPN - BP 12 - F-91680 BRUYÈRES-LE-CHÂTEL - noel.dubray@cea.fr **GAUGAIN** Olivier SUBATECH - BP 20722 - 4 rue A. Kastler - F-44307 NANTES Cedex 3 - olivier gaugain@yahoo.fr **GHETTA Véronique** LPSC Grenoble - 53 Avenue des Martyrs - F-38026 GRENOBLE Cedex - ghetta@lpsc.in2p3.fr **GUERTIN** Aranud SUBATECH - BP 20722 - 4 rue A. Kastler - F-44307 NANTES Cedex 3 - guertin@subatech.in2p3.fr **GUILLEMIN** Perrine LPSC Grenoble - 53 Avenue des Martyrs - F-38026 GRENOBLE Cedex - guillemin@lpsc.in2p3.fr **HAAS Bernard** CENBG - Rue du Solarium - BP 110 - F-33175 GRADIGNAN Cedex - haas@cenbg.in2p3.fr **JURADO Beatriz** CENBG - Rue du Solarium - BP 110 - F-33175 GRADIGNAN Cedex - jurado@cenbg.in2p3.fr **KAIM Samra** LPMPS - Département de Physique - Université Mentouri - Constantine - Algérie - Kaim3@caramail.com **KARAM Habib** IPHC Strasbourg - 23 Rue du Loess - F-67037 STRASBOURG Cedex 2 - habib.karam@ires.in2p3.fr **KERVENO Maëlle** IPHC Strasbourg - 23 Rue du Loess - F-67037 STRASBOURG Cedex 2 - maelle.kerveno@ires.in2p3.fr **KESSEDJIAN Grégoire** CENBG – Rue du Solarium – BP 110 – F-33175 GRADIGNAN Cedex – kessedji@cenbg.in2p3.fr **KIENER** Juergen CSNSM - Bâtiment 104-108- F-91405 ORSAY - kiener@csnsm.in2p3.fr **LABALME Marc** LPC/ISMRA - 6, Boulevard du Maréchal Juin - F-14050 CAEN Cedex - labalme@lpccaen.in2p3.fr **LECOUEY Jean-Luc** LPC/ISMRA - 6, Boulevard du Maréchal Juin - F-14050 CAEN Cedex - lecouey@lpccaen.in2p3.fr **LEFEBVRE-SCHUHL Anne** CSNSM - Bâtiment 104-108- F-91405 ORSAY - lefebvre@csnsm.in2p3.fr **MARTINO Jacques** SUBATECH – BP 20722 – 4 rue A. Kastler – F-44307 NANTES Cedex 3 – *jmartino@subatech.in2p3.fr* **MEOT Vincent** CEA/DIF/DPTA/SPN - BP 12 - F-91680 BRUYÈRES-LE-CHÂTEL - vincent.meot@cea.fr **MOUGEOT Xavier** DSM/DAPNIA/SPhN - CEA Saclay - F-91191 GIF-SUR-YVETTE Cedex - xmougeot@cea.fr **NIFENECKER Hervé** LPSC Grenoble - 53 Avenue des Martyrs - F-38026 GRENOBLE Cedex - herve.nifenecker@lpsc.in2p3.fr **PANEBIANCO** Stefano DSM/DAPNIA/SPhN - CEA Saclay - F-91191 GIF-SUR-YVETTE Cedex - spanebia@cea.fr **PEDOUX** Sophie Univ. Liège – Phys. Théo. Fond. – Bât. B5a – Allée du 6 Août, 17 – B-4000 LIEGE-1 - spedoux@ulg.ac.be

PORQUET Marie-Geneviève

CSNSM - Bâtiment 104-108- F-91405 ORSAY - porquet@csnsm.in2p3.fr

PRIEELS René

SC/PHYS/FYNU – 2 chemin du Cyclotron – B-1348 LOUVAIN-LA-NEUVE - r.prieels@fynu.ucl.ac.be

PROTASSOV Konstantin

LPSC Grenoble - 53 Avenue des Martyrs - F-38026 GRENOBLE Cedex - konstantin.protassov@lpsc.in2p3.fr

RUDOLF Gérard

IPHC Strasbourg - 23 Rue du Loess - F-67037 STRASBOURG Cedex 2 - gerard.rudolf@ires.in2p3.fr

SEMAY Claude

Univ. Mons Hainaut – Phys. Théorique – Place du parc, 20 – B-7000 MONS – claude.semay@umh.ac.be

SILVESTRE BRAC Bernard

LPSC Grenoble - 53 Avenue des Martyrs - F-38026 GRENOBLE Cedex - silvestre@lpsc.in2p3.fr

TROCME Mathieu

IPHC Strasbourg - 23 Rue du Loess - F-67037 STRASBOURG Cedex 2 - mathieu.trocme@ires.in2p3.fr

VARAINE Frédéric

 $CEA\ Cadarache - DEN/CAD/DER/SPRC/LEDC - Bat.\ 230 - F-13108\ SAINT-PAUL-LEZ-DURANCE\ Cedex - frederic.varaine@cea.fr$

VERSTEEGEN Maud

LPSC Grenoble - 53 Avenue des Martyrs - F-38026 GRENOBLE Cedex - maud.versteegen@lpsc.in2p3.fr

WAGEMANS Cyriel

Univ. De Gand - Proeftuinstraat 86 - B-9000 GENT - cyrillus.wagemans@ugent.be