

## **Préparation des journées de prospectives IN2P3/DAPNIA**

**Thème : Physique et chimie pour le nucléaire et  
l'environnement.**

**Groupe 5 : Mesures neutroniques fondamentales.**

**Coordinateurs :**

**Gérard Barreau(CENBG) et Eric Berthoumieux (SPhN)**

## Les données neutroniques de base

Le neutron, avec les particules alpha, a été le premier projectile utilisé pour induire des réactions nucléaires. Les accélérateurs puis les réacteurs ont permis de générer des faisceaux de neutrons suffisamment intenses pour **la mesure des sections efficaces d'interaction de ces neutrons avec différents noyaux**. En tant que particule neutre, le neutron peut avec une très faible énergie cinétique être absorbé et former un noyau composé dont l'énergie d'excitation varie entre 4 et 9 MeV suivant la nature de la cible. Dans cette gamme d'énergie d'excitation, ce noyau composé peut réémettre le neutron (par **diffusion élastique ou inélastique**), décroître vers l'état fondamental par émission gamma (**capture radiative**) ou bien **fissionner** si le noyau et l'énergie disponible le permettent. Les variations des sections efficaces de ces différents processus, sont importantes et varient avec le type de réaction, la nature de la cible et l'énergie du projectile incident.

Pour des énergies de neutrons comprises entre 0 et 20 MeV, on distingue 3 régions :

- i) la région dite des neutrons thermiques (en dessous de l'eV) où les sections efficaces de réactions varient approximativement comme l'inverse de la vitesse du neutron,
- ii) la région dite des résonances pour lesquelles les sections efficaces peuvent atteindre plusieurs milliers de barns. Ces résonances correspondent à des états quasi-liés du système noyau cible+neutron situés à des énergies d'excitation légèrement supérieures à celle de l'énergie de liaison du neutron dans le noyau composé formé. La densité de ces résonances varie considérablement en fonction de la masse du noyau cible : dans les noyaux légers ( $^4\text{He}$ ,  $^7\text{Li}$ ..) leur espacement atteint plusieurs centaines de keV avec des largeurs supérieures à plusieurs dizaines de keV, alors que pour les actinides, plusieurs centaines de résonances ont été observées dans une gamme d'énergie de quelques centaines d'électron-volt. **Chaque résonance est définie par sa position en énergie, son moment angulaire et ses largeurs partielles associées aux différentes voies possibles de désexcitation du noyau composé**. Les théories actuelles ne peuvent prédire que les largeurs moyennes, alors que les physiciens des réacteurs utilisent une description résonance par résonance.
- iii) A plus haute énergie, à partir de quelques keV pour les noyaux lourds (actinides), la densité des résonances et l'augmentation des voies possibles de désexcitation (réactions inélastiques, fissions multiples et réactions  $(n, xn)$ ) deviennent telles que l'on atteint très rapidement le domaine du continuum. C'est ici que **la confrontation théorie expérience demeure la plus riche**. On dispose maintenant de modèles de réactions nucléaires (modèle optique en voies couplées, modèle statistique et de pré équilibre) dont le caractère prédictif peut être ainsi testé par les mesures.

## **Les données neutroniques pour la physique des réacteurs**

En dehors de la physique fondamentale, ces sections efficaces neutroniques sont utilisées pour de nombreuses applications industrielles dont évidemment l'énergie nucléaire. **Elles jouent un rôle essentiel dans les calculs neutroniques** (évaluation du facteur de multiplication  $k$  ou calcul de la distribution de puissance dans le cœur d'un réacteur). La conception des réacteurs actuels (études de faisabilité) et leur amélioration (performances et sûreté) sont à l'origine de vastes campagnes de mesures neutroniques dont les premières remontent aux années 1950. **Elles ont permis notamment de fixer les données nucléaires du combustible (les noyaux**

**clés  $^{235,238}\text{U}$  et  $^{239}\text{Pu}$  de la filière U-Pu) et des matériaux de structure (Fe, Zr,..) des réacteurs REP qui équipent la plupart des parcs électronucléaires dans le monde.**

Les sections efficaces mesurées ne sont pas directement utilisables par les physiciens des réacteurs puisque les mesures ne permettent pas de couvrir d'une manière exhaustive l'ensemble des besoins (cibles, réactions ou domaine d'énergie). C'est ici qu'intervient un long travail d'évaluation des données nucléaires : on combine les mesures expérimentales et les calculs théoriques, pour proposer une bonne appréciation des valeurs réelles des données issues des réactions nucléaires fondamentales. Le but de ces évaluations est de fournir une complète représentation de toutes les sections efficaces, des rendements de production, des distributions angulaires et en énergies des produits des réactions induites par neutrons.

Les données évaluées sont écrites dans un format standard lisible par les codes de calcul (le format ENDF développé aux Etats-Unis est maintenant employé par toute la communauté). Elles sont accessibles à travers différentes bibliothèques dont les plus connues sont ENDF/B-VI(USA), JENDL3.2(JAPON), JEF3.0(EUROPE) et BROND-2(RUSSIE) . Ces bibliothèques sont identifiées par un nom symbolique (JEF pour Joint Evaluated File) suivi d'un numéro de version. Ces bibliothèques font l'objet d'une constante remise à jour liée d'une part à l'apport de nouvelles mesures et d'autre part au retour d'expérience associé aux mesures intégrales où les paramètres d'un réacteur sont mesurés sur un spectre en énergie des neutrons représentatif de son fonctionnement (régime thermique ou rapide). La grande précision des calculs neutroniques (déterministe ou par méthode Monte-Carlo) permet maintenant de tester pour leur validation ces bibliothèques. Des analyses de sensibilité permettent d'isoler dans un domaine d'énergie donné, la donnée nucléaire erronée. Ces analyses de sensibilité dépendent des incertitudes liées à l'évaluation et des incertitudes expérimentales. Elles sont actuellement en plein développement et permettent dès à présent d'identifier pour un ou plusieurs noyaux, les données nucléaires et les gammes d'énergie dont l'impact est le plus important dans les calculs neutroniques. Elles devraient donc s'avérer très utiles pour définir des priorités dans les programmes de mesures.

### **Faut-il encore des données nucléaires?**

L'organisation des travaux de recherches pour résoudre le problème de la gestion des déchets nucléaires a fait l'objet d'une loi en 1991, pour une prise de décision attendue en 2006. Un axe de cette loi concerne l'étude de la **transmutation des déchets**. Une voie importante actuellement explorée concerne **la transmutation en réacteur des transuraniens** (du plutonium et des actinides mineurs (Am, Cm) dont la production actuelle dépasse la dizaine de tonnes). Au-delà de quelques centaines d'années, ce sont eux qui contribuent majoritairement à la radio toxicité potentielle des déchets de longue durée de vie. **Pour l'incinération des transuraniens, l'une des solutions envisagées repose sur un réacteur assisté par accélérateur (ADS).**

Par ailleurs la poursuite du nucléaire civil fait l'objet d'un vaste débat dans notre pays. Pour son maintien, cette industrie doit améliorer la sûreté de ses installations, assurer une meilleure utilisation des ressources naturelles et démontrer sa maîtrise à long terme des déchets qu'elle produit. De nombreuses voies sont encore à explorer avant qu'un choix puisse être arrêté en ce qui concerne le **nucléaire du futur**. Les voies importantes actuellement à l'étude en France sont :

- L'utilisation du cycle U-Pu au moyen de réacteurs rapides à gaz (GFR) ou rapides métal (SFR et LFR).

- Des concepts avec des combustibles innovant (par exemple TRISO) pour des réacteurs supercritiques (SCWR) ou à très haute température pour la production d'hydrogène (VHTR)
- L'utilisation du **cycle du thorium** (production 100 fois moindre de transuraniens) dans des réacteurs thermiques notamment des **réacteurs à sels fondus**.

Là encore, les besoins en données nucléaires s'avèrent importants puisque ces projets innovants font intervenir des matériaux et des domaines d'énergie beaucoup plus vaste que ceux abordés dans le cycle de l'uranium. Les données nucléaires actuellement disponibles ne permettront pas de couvrir l'ensemble des besoins nécessaires pour les études de scénarios des réacteurs de nouvelle génération et du rendement de transmutation des incinérateurs de transuraniens. Dans certains cas, ces données doivent être connues avec une précision de quelques pour cent pour une étude réaliste de ces systèmes. Ces besoins se situent au niveau suivant :

- **Compléter et améliorer les données nucléaires de la filière Thorium.** Ceci concerne les sections efficaces de fission, de capture radiative, de diffusion inélastique et (n,xn) des noyaux clés de cette filière ( $^{232}\text{Th}$ ,  $^{231}\text{Pa}$ ,  $^{233}\text{Pa}$ ,  $^{233}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$  et  $^{236}\text{U}$ ).
- **Compléter ou améliorer les bases de données concernant les éléments transuraniens.** Préciser les moyens d'incinération et en apprécier le potentiel, nécessite de bien connaître les sections efficaces de fission et de capture induite par neutrons des différents éléments mis en jeu. Les banques de données présentent en effet, pour ces transuraniens, de grandes disparités : incohérence des sections efficaces proposées, voire leur inexistence.
- Les études des conditions optimales à la transmutation des déchets nucléaires passent aussi par des **mesures intégrales des potentiels d'incinération** d'actinides (nombre de fission par atome initial le long d'une chaîne de transmutation) dans des flux de neutrons donnés. Les actinides mineurs à étudier en priorité, car pouvant jouer un rôle dans les bilan de la transmutation, sont :  $^{241,242,243}\text{Am}$ ,  $^{237,238,239}\text{Np}$ ,  $^{242,243,244,245,246,248,250}\text{Cm}$ ,  $^{242}\text{Pu}$ ,  $^{249}\text{Bk}$  et  $^{250,251,252}\text{Cf}$

Il faut noter que tous ces travaux sont coordonnés au niveau français par un groupement de recherche, GEDEPEON, réunissant des établissements publics de recherche (CNRS et CEA) et des industriels (EDF, FRAMATOME). Au niveau européen la plupart des travaux concernant la transmutation des déchets s'inscrivent dans les programmes cadres européens.

## Les grands sites expérimentaux

Aucune machine ne permet encore à elle seule, de produire des faisceaux de neutrons dans une gamme d'énergie qui s'étend sur plus d'une dizaine d'ordres de grandeur. En revanche les possibilités de production (les sources) peuvent être nombreuses et variées. Ce sont les réacteurs et les accélérateurs sans parler des explosions nucléaires dont plusieurs ont été utilisées, dans les années 1960 pour mesurer des sections efficaces de fission.

La région dite thermique est encore du ressort des réacteurs. Le réacteur à haut flux de l'institut Laue-Langevin occupe ici une position incontournable. De par sa structure, ce

réacteur délivre des flux intenses de neutrons dans une très large bande de longueur d'onde autour de l'énergie de référence ( $\sim 25$  meV) (neutrons froids, thermiques, superthermiques et même épi-thermiques).

Des machines spécifiques ont été construites pour l'étude de la région des neutrons de résonances ou épithermiques. La séparation des résonances nécessite une très bonne résolution en énergie. C'est là que sont mis en œuvre les techniques de temps de vol pour mesurer l'énergie des neutrons sur des distances comprises entre 10 et 400 mètres. Les sources de neutrons fonctionnent alors en mode pulsé et leur spectre en énergie est suffisamment étendu pour couvrir ou déborder la région des neutrons de résonances. Deux types de sources sont utilisés :

- Les réactions photo nucléaires ( $\gamma, n$ ) ou ( $\gamma, \text{fission}, n$ ) induites par le rayonnement de freinage d'un faisceau d'électrons bombardant une cible lourde (W ou U). La machine GELINA de l'IRMM fonctionne sur ce principe.

Les réactions de spallation induites par protons sur une cible lourde (Plomb) permettent également de produire des faisceaux intenses de neutrons. Ces réactions ont un rendement supérieur (20 à 30 neutrons par proton de un GeV) à celui des réactions induites par rayonnement de freinage (0.07 neutron par électron de 100 MeV). L'installation n\_TOF du CERN fournit ainsi des neutrons dont les énergies sont comprises entre 1 eV et 400 MeV. La source de neutrons de spallation SINQ au PSI avec des dispositifs de mesures nucléaires « in situ » tels que celui en construction dans la cible MEGAPIE, permettent de bénéficier de flux de neutrons de haute intensité ( $10^{14}$  n/s/cm<sup>2</sup>) avec des proportions de neutrons rapides (quelques MeV) pouvant atteindre plusieurs dizaines de %.

Des installations plus modestes sont également utilisées pour produire des neutrons rapides (de la centaine de keV à plusieurs dizaines de MeV). Il s'agit d'accélérateurs Van de Graaf (Geel, Bordeaux et Bruyères le château) de Tandems (IPN Orsay et Bruyères le château) ou de cyclotrons (Louvain, Uppsala ou Groningen) fonctionnant en régime continu ou pulsé. Ces machines présentent une grande souplesse d'utilisation (possibilité de produire des faisceaux de neutrons monocinétiques). Les neutrons sont produits par bombardement de cibles légères (Deutérium, Tritium, Lithium, Béryllium ou Carbone) par des protons, deutons ou particules alpha. La résolution en énergie est généralement moins bonne que celle obtenue par temps de vol, mais dans leur domaine d'énergie celle-ci est suffisante. En revanche, les flux de neutrons peuvent atteindre voire dépasser ceux délivrés par les installations de temps de vol.

Une technique originale concerne la spectrométrie par temps de ralentissement des neutrons dans un massif de plomb. Un accélérateur est utilisé pour produire des bouffées brèves de neutrons (10 ns à 1  $\mu$ s) dans un massif de plomb. Les propriétés de ralentissement du plomb (faible léthargie) et sa transparence aux neutrons permettent, par l'étude de la corrélation temps énergie des neutrons ralentis, de réaliser une mesure par temps de vol. Malgré sa mauvaise résolution, cette technique s'avère particulièrement intéressante dans le domaine des neutrons de résonances (0.1 eV à 10 keV) pour l'étude des propriétés de ralentissement de différents milieux (plomb, carbone, fluor, sodium, carbure de silicium) intervenant dans le cœur ou le réflecteur d'un réacteur. C'est la vocation de la plateforme PEREN installée au LPSC de Grenoble.

## Les équipes de recherche

Depuis une dizaine d'années, plusieurs équipes du DAPNIA et de l'IN2P3 effectuent des mesures de données neutroniques. Ces actions, rappelons le, sont coordonnées par le groupement de recherche GEDEPEON qui finance en partie la plupart des projets de recherche et la plupart font l'objet d'une vaste collaboration internationale ( Europe, USA et Russie). Chaque groupe a su développer sa propre expertise dans son domaine et une certaine cohérence se dégage de l'ensemble des mesures en cours ou à venir.

Le tableau ci-dessous présente ces programmes de mesures dont la plupart sont inscrits au 6<sup>ème</sup> Plan Cadre de la communauté européenne. Les mesures prévues dans le cadre du 5ème programme cadre européen, mais pas encore effectuées n'ont pas été reportées dans ce tableau.

Mesures	Objectifs	Installations utilisées	Equipes
$^{242,243}\text{Cm}(n,f) + ^{233,238}\text{U}(n,f)$ $^{243}\text{Am}(n,\gamma)$ incinération de cibles de $^{237}\text{Np}$ , $^{241}\text{Am}$ et $^{243}\text{Cm}$	Transmutation des actinides mineurs	ILL Grenoble	DAPNIA
Incinération de $^{237}\text{Np}$ et $^{241}\text{Am}$	Transmutation des actinides mineurs	MEGAPIE, PSI	DAPNIA
Section efficace totale $^{241}\text{Am}$ et $^{243}\text{Am}(n, \gamma)$	Transmutation des actinides mineurs	Geel et Ntof CERN	DAPNIA
$^{209}\text{Bi}(n, \gamma)$ $^{210\text{m,g}}\text{Bi}$ . Mesure du rapport de branchement isomère(m) fondamental(g)	ADS (radiotoxicité)	Geel	DAPNIA
$^{231}\text{Th}(n,f)$ , $^{231}\text{Pa}(n,f)$ , $^{233,234,236}\text{U}(n,f)$	Cycle du Thorium	n-TOF CERN	IPN Orsay
$^{237}\text{Np}(n,f)$ , $^{239,240}\text{Pu}(n,f)$ , $^{241,242,243}\text{Am}(n,f)$ , $^{244,245}\text{Cm}(n,f)$	Transmutation des actinides mineurs	n-TOF CERN	IPN Orsay
$^{242,243,244}\text{Cm}(n,f)$ par réaction de transfert et $^{243}\text{Am}(n,f)$	Transmutation des actinides mineurs	Tandem Orsay Van de Graaff Bordeaux	CENBG
$^{207}\text{Pb}(n,2n)$ , $^{232}\text{Th}(n,xn)$ et $^{233}\text{U}(n,2n)$	ADS et cycle du Thorium	Geel- Louvain n-TOF CERN	IRES
Rapport capture/fission pour $^{233}\text{U}$ dans la région des résonances	Cycle du Thorium	Plateforme PEREN Grenoble	LPSC-CENBG
Sections efficaces de diffusion élastique des neutrons ( $E_n < 0.5$ MeV) pour $^{12}\text{C}$ et $^{19}\text{F}$ .	Réacteur à sels fondus (RSF)	Plateforme PEREN Grenoble	LPSC-CENBG

Dans le domaine des neutrons thermique, l'essentiel des mesures est effectué auprès du RHF de l'Institut Laue Langevin de Grenoble par une équipe du DAPNIA. Les objectifs sont d'une part des mesures de sections efficaces de capture et fission et d'autre part des mesures

intégrales d'incinération sous hauts flux thermiques (bilan massique) des principaux transuraniens.

Auprès des installations de temps de vol (GEEL et n\_TOF), des équipes du DAPNIA et de l'IN2P3 (IPN Orsay et IRES) ont initié des mesures de sections efficaces de capture et de fission orientées vers la transmutation des transuraniens et le cycle du Thorium. La faisabilité des mesures de type  $(n, xn)$  vient d'être établie par une équipe de l'IRES. Les physiciens de l'IPN Orsay ont installé au CERN un ensemble très performant pour la mesure des sections efficaces de fission. Une équipe du DAPNIA participe à la mise en place d'un multidétecteur gamma auprès de n\_TOF. L'utilisation de cet équipement, nouveau en ce qui concerne les mesures neutroniques, va permettre de mesurer les sections efficaces de capture radiative de plusieurs transuraniens fortement radioactifs.

La mesure des sections efficaces (fission et capture) des actinides mineurs constitue très souvent un véritable défi pour les expérimentateurs. Leur forte activité alpha et/ou l'impossibilité de réaliser une mesure directe par neutrons ont conduit une équipe du CENBG à utiliser des réactions de transfert comme réaction de substitution. Mise en œuvre pour les déterminations des sections efficaces de fission et de capture du noyau  $^{233}\text{Pa}$  (cycle du thorium), cette technique sera prochainement utilisée pour la mesure des sections efficaces de fission de plusieurs isotopes du Curium.

## Les perspectives.

Dans cette revue, nous nous sommes efforcés de resituer les données neutroniques de base dans les recherches concernant la transmutation des transuraniens dans des flux intenses de neutrons thermiques ou rapides et le développement de systèmes innovants (la filière Thorium, les réacteurs haute température...). Cette réflexion repose sur une présentation des mesures en cours ou à venir, de leurs objectifs et des moyens mis en œuvre pour y parvenir. Les problèmes posés et leur projection dans le futur sont en grande partie déjà inscrits dans le 6<sup>ème</sup> PCRD, c'est-à-dire pour les 5 prochaines années. On peut donc raisonnablement penser que l'activité « données neutroniques » sera largement orientée par les problèmes actuels.

- Un premier problème concerne la disponibilité de cibles d'éléments transuraniens. Les équipes ont actuellement les plus grandes difficultés à obtenir ces cibles très radioactives (isotopes de l'Américium et du Curium) et pour lesquelles la demande est la plus importante. On ne peut que déplorer le fait que bien qu'étant dotés du plus grand parc électronucléaire européen, la matière première et même souvent nos cibles proviennent de laboratoires étrangers (Russie ou Etats-Unis). Pour effectuer des mesures directes sur des éléments à vie courte il est indispensable de se doter de tous les maillons de la chaîne allant de la synthèse de l'isotope à étudier jusqu'à la mesure de sa section efficace. Cette chaîne comprend :
  - La production de l'isotope : celui ci peut provenir de centrales du parc ou bien être synthétisé dans un réacteur à haut flux.
  - La préparation de la cible : Cette étape comprend la séparation chimique et isotopique, ainsi que sa mise sous une forme manipulable.
  - La qualification de la cible: c'est à dire la connaissance précise de sa masse, sa géométrie, sa composition chimique et isotopique.
- Les techniques d'incinération des actinides mineurs soulèvent elles-mêmes de nombreux problèmes techniques. C'est le cas des combustibles lourdement chargés en Américium ou en Curium pour lesquels les fractions de neutrons retardés ne sont pas compatibles avec

les exigences actuelles de sécurité des réacteurs. Les caractéristiques de ces fractions de neutrons retardés sont bien connues pour les actinides majeurs (Uranium et Plutonium), elles le sont beaucoup moins pour les isotopes de l'Américium et du Curium. Une étude de ces neutrons retardés doit être envisagée et complétée par une étude systématique des distributions en masses et charges des fragments de fission de ces transuraniens. L'Institut Laue-Langevin (spectromètre Lohengrin) et le Ganil (en combinant la technique de la cinématique inverse et les spectromètre ALPHA et VAMOS) nous semblent tout à fait appropriés pour mener ce type d'études.

- La mise en forme des données expérimentales pour leur utilisation dans les calculs de neutronique résulte d'un long travail d'évaluation. A ce niveau, il n'existe pas encore dans notre communauté de spécialiste confirmé de cette discipline. En revanche deux équipes de réputation internationale pratiquent cette évaluation depuis de nombreuses années dans le cadre du CEA / DAM (Bruyères le châtel) et du CEA/DEN (Cadarache). La collaboration avec ces groupes doit être renforcée afin de valoriser les mesures effectuées par les expérimentateurs.

Les expérimentateurs du DAPNIA et de l'IN2P3 ne pourront pas tout mesurer, les collaborations internationales sont donc essentielles : elles existent déjà au niveau européen à travers les sites GELINA et n\_TOF où les équipes françaises sont déjà bien implantées. Il existe par ailleurs de nombreuses installations en Europe susceptibles de fournir des neutrons. Un inventaire vient d'en être fait et la création d'un réseau vient d'être proposé à la communauté européenne. Il s'agit là de coordonner et d'optimiser les programmes de recherches initiés par le 6<sup>ème</sup> PCRD ou en gestation pour les nouveaux réacteurs à l'étude dans la prospective internationale Génération IV. Néanmoins, la plupart de ces installations utilise des accélérateurs parfois très anciens. Pour ce qui est des bases de temps de vol, GELINA n'est pas bien adaptée à l'étude d'échantillons fortement radioactifs et disponibles en faible quantité. Le problème de n\_TOF CERN, outre son devenir à moyen terme, concerne sa disponibilité réduite et une infrastructure mal adaptée à la manipulation de matière fortement radioactive. Là se pose encore la réalisation d'une machine européenne de nouvelle génération qui pourrait être l'European Spallation Source (ESS) dont la vocation pluridisciplinaire a souvent été évoquée. Les besoins pour une telle machine existent en Europe et recouvrent un spectre très large d'applications allant de la médecine à la physique fondamentale en passant par de nombreuses applications industrielles dont la neutronique pour le nucléaire (données, matériaux,...)