

## Prospectives 2004

### Thème : « Physique et Chimie pour le « nucléaire » et l'environnement »

A. Billebaud, S. Hubert et S. Leray

L'effet de serre dû aux énergies fossiles, l'épuisement à long terme des ressources et l'accroissement de la demande en énergie des pays émergents (Chine, Inde) laissent envisager une reprise de l'énergie nucléaire à plus ou moins long terme. Cependant, la poursuite du développement de l'énergie nucléaire nécessite de garantir une sûreté maximale des réacteurs, d'aborder la question des ressources (les réserves d'uranium étant limitées) tout en empêchant la prolifération et surtout trouver une solution, acceptable par la société, pour la gestion des déchets nucléaires à vie longue.

Dans ce contexte, la loi Bataille de 1991 a initié de nombreuses recherches selon trois axes : séparation-transmutation, stockage souterrain, conditionnement - entreposage longue durée, et a suscité depuis une douzaine d'années une forte mobilisation des chercheurs de l'IN2P3 et du DAPNIA autour de ces objectifs, particulièrement sur la gestion des déchets nucléaires à vie longue provenant des cycles des combustibles, dans le cadre de PACE (GDR PRACTIS, NOMADE, GEDEPEON) et en étroite collaboration avec d'autres acteurs du nucléaire (CEA, COGEMA, ANDRA, EDF...). Si d'importants résultats ont été obtenus et des solutions proposées sur la réduction de la radiotoxicité, sur le conditionnement, et la séparation poussée, des progrès restent à accomplir, et certaines recherches sont plus avancées que d'autres. Il est donc fortement vraisemblable qu'en 2006, quelques décennies de recherches restent encore nécessaires.

Dans le futur un effort important doit être poursuivi en radiochimie, en particulier sur le comportement des radionucléides (RN) sous rayonnement, la chimie des RN dans les milieux innovants pour la séparation et dans les nouveaux combustibles, tout en continuant d'améliorer nos connaissances sur les propriétés physicochimiques des actinides et l'acquisition de bases de données thermodynamiques permettant de simuler le comportement des RN à long terme dans l'environnement.

Pour répondre aux enjeux du développement de l'énergie nucléaire, de nouvelles filières devront être développées. Des études sont engagées au niveau international, dans le cadre du Forum Génération IV, afin d'évaluer quelle pourrait être une quatrième génération de réacteurs plus sûrs, produisant moins de déchets, optimisant les ressources en matières fissiles et non proliférants.

La définition et l'évaluation des nouveaux concepts de réacteurs et des différentes options pour l'amont et l'aval du cycle, avec des contraintes de performance et de sûreté accrues, nécessitent évidemment de pouvoir disposer de nouvelles données expérimentales et d'outils de simulation adaptés et validés. Ceci demande à la fois des mesures fondamentales auprès d'installations appropriées, des études théoriques pour améliorer les outils de simulation, des démonstrations à différentes échelles des concepts ou solutions techniques proposés, des études d'impact et de scénarios. Ces recherches doivent évidemment être menées en collaboration étroite avec les autres acteurs du domaine au niveau français (CEA, EDF, FRAMATOME, COGEMA...), européen (projets des différents PCRD) et mondiaux. Les physiciens nucléaires du DAPNIA et de l'IN2P3 se sont mobilisés ces dernières années pour apporter leur contribution dans ces domaines. Des dispositifs expérimentaux ont été construits, des expériences réalisées, des outils de simulation mis en place et des équipes se sont constituées. Il s'agit maintenant de pérenniser ces compétences et de renforcer les équipes, étant donnée l'ampleur de la tâche, afin qu'une évaluation et une validation scientifiques des différents concepts ou solutions puissent être faites.

En marge des applications à l'énergie nucléaire, d'autres domaines pourraient bénéficier de ces compétences: sources de neutrons, production d'isotopes radioactifs, astrophysique, métrologie, médical... En particulier, la caractérisation de matériaux par de nouvelles méthodes nucléaires non destructives (photofission, utilisation de neutrinos) suscite depuis peu un grand intérêt dans le domaine de la sécurité intérieure, le contrôle de la prolifération, le démantèlement des installations. Des études à la fois fondamentales et de validation des techniques sont requises et nécessitent le renforcement des équipes existantes.

#### 1. Radiochimie pour le nucléaire et l'environnement

La recherche en radiochimie porte sur la chimie de la matière radioactive dans le secteur de l'énergie nucléaire présent et futur (amont et aval du cycle des combustibles nucléaires) ainsi que dans

l'environnement et la médecine. Il est clair que les questions liées à la gestion des déchets nucléaires (confinement et entreposage, migration des radionucléides à partir d'un site de stockage) sont toujours d'actualité et le resteront après 2006. De plus, les études liées au « nucléaire du futur » (Génération IV, RSF) devront être développées, notamment sur l'extraction/séparation (en particulier par électrochimie et pyrochimie et extraction innovante avec les liquides ioniques), la mise au point de nouveaux combustibles et de matrices de transmutation. Ces différents sujets nécessitent pour certains des études très prospectives ainsi qu'une forte implication en recherche fondamentale.

Concernant la radioactivité dans l'environnement le problème fondamental est l'évaluation du risque radiologique par la modélisation de la migration et des transferts des radionucléides dans le cycle biogéochimique naturel et jusqu'à l'homme. Enfin, dans le médical, la radiochimie a un rôle important à jouer sur la mise au point des nouvelles techniques d'imagerie et de radiothérapie interne.

Les programmes de recherche sur le comportement des actinides en particulier ont une spécificité : ils doivent permettre d'effectuer des extrapolations dans le temps. Ainsi, l'identification, l'analyse et la hiérarchisation des phénomènes physico-chimiques à l'origine de ce comportement doivent constituer un ensemble expérimental permettant de décrire rigoureusement ces processus, et conduire à une compréhension suffisamment fine permettant ces extrapolations.

La radiochimie ne peut pas achever sa mission dans ce vaste domaine sans une recherche fondamentale dans tous les domaines de la physico-chimie des actinides et autres radioéléments (dans le solide, en solution et aux interfaces) et sur les effets chimiques des rayonnements ionisants, ni sans une bonne connaissance de la métrologie des radionucléides. De plus elle nécessite l'accès à des laboratoires nucléarisés et à des instrumentations et des infrastructures lourdes permettant la manipulation et l'analyse de la matière radioactive en respectant des règles de radioprotection strictes, ce qu'il faut prendre en compte.

Dans ce contexte général, où la radiochimie reste un domaine pluridisciplinaire incontournable, deux grands thèmes de recherche seront développés plus particulièrement :

- **La physico-chimie des radionucléides** concerne les études cinétique, thermodynamique, structurale et la spéciation des radionucléides en phase solide, et en solution homogène / hétérogène. Il s'agit ici d'une part de recueillir les données de base (thermodynamique, structurale et cinétique) qui font défaut pour la modélisation des processus contrôlant le comportement de ces éléments dans un milieu donné, d'autre part de développer de nouvelles recherches sur les milieux innovants pour l'extraction/séparation et la (co)conversion de combustibles pour les systèmes du nucléaire du futur.

- **La physico-chimie sous irradiation.** La science de l'irradiation est un domaine complexe où la physique atomique, la physique de la matière condensée et la chimie se côtoient pour une approche fondamentale qui, de tout temps, a eu des retombées dans de nombreux domaines appliqués. En effet, les irradiations, qu'elles soient liées à l'activité humaine ou naturelle, ont des conséquences qu'il est important de connaître afin de mieux les utiliser ou de s'en prémunir.

La majorité des thèmes de recherche sont soutenus dans PACE (PARIS, NOMADE et GEDEPEON) ainsi que dans le Réseau Européen d'Excellence ACTINET 6. Une partie importante de ces recherches est menée en collaboration étroite avec le CEA, l'ANDRA et l'EDF, plusieurs laboratoires CNRS, européens et internationaux.

Enfin, la place prépondérante prise par l'industrie nucléaire en France, a conduit au fil des années, à une prise de conscience de l'impact de cette industrie sur l'environnement. Dans ce contexte, la mesure de la radioactivité naturelle ou artificielle dans l'environnement, est devenue une préoccupation sociétale. L'implication de l'IN<sub>2</sub>P<sub>3</sub> dans le domaine de la **métrologie** repose essentiellement sur des démarches individuelles des laboratoires qui se sont investis ces dernières années.

## **2. Scénarios et physique des réacteurs pour le nucléaire du futur**

Les études systèmes et scénarios ainsi que la physique des réacteurs sont fortement couplées. Les systèmes envisagés pour l'incinération des déchets ainsi que ceux faisant l'objet d'études pour une production d'énergie pérenne nécessitent à la fois l'utilisation de méthodes stochastiques de simulation neutronique afin d'évaluer les déchets produits ou incinérés, les inventaires de matière fissile produite ou les possibilités de déploiement, et des validations expérimentales de certains concepts et grandeurs neutroniques. Plusieurs systèmes dominent les études à conduire.

Les réacteurs sous-critiques (ADSR), dédiés à l'incinération des actinides mineurs, ont déjà fait l'objet de plusieurs programmes expérimentaux (FEAT, TARC, MUSE). Ils doivent se poursuivre par des programmes menés auprès de systèmes de complexité croissante (TRADE, MYRRHA), dédiés en particulier au développement des procédures de contrôle et de maîtrise de l'ensemble cœur-cible-faisceau (mesure de la réactivité, procédures de démarrage et d'arrêt,...) et à la compréhension de la neutronique des systèmes sous-critiques mais aussi critiques. Les ADSR nécessitent entre autres des calculs spécifiques d'incinération de l'américium en s'appuyant sur les projets de démonstrateur actuels (MYRRHA,...), ainsi que des études de sûreté en situation accidentelle.

Les réacteurs à gaz sont envisagés à la fois en spectre thermique, pour l'incinération du plutonium civil et militaire, et en spectre rapide (GFR) pour la production d'énergie en cycles régénérateurs U/Pu et Th/U. Les réacteurs à spectre thermique demandent à être optimisés en particulier dans la composition des combustibles, tandis que les rapides représentent un axe prioritaire de la DEN du CEA. Plusieurs caloporteurs (Na, Pb, He) sont encore à comparer sur le plan des simulations dans le domaine des RNR, notamment en ce qui concerne la sûreté et les déchets produits et la capacité d'incinération des déchets des filières futures ou actuelles ; le gaz fera néanmoins l'objet du prochain programme expérimental sur le réacteur maquette MASURCA (CEA Cadarache) à l'horizon 2006. De nouveaux matériaux pour le combustible ainsi que pour le réflecteur y seront étudiés, ainsi que l'impact de la présence des canaux de gaz en terme de fuite de neutrons. L'IN2P3 devra prendre part à ce nouveau programme. Les études des nouveaux matériaux pourront être complétées par des mesures neutroniques sur la plateforme PEREN (LPSC).

Les réacteurs à sels fondus (RSF) permettent la régénération du combustible en cycle thorium et spectre thermique grâce au traitement en ligne du combustible liquide. Ils doivent encore être optimisés et simplifiés sur le plan du retraitement. La quantification de certains procédés de séparation chimiques sera réalisée dans le laboratoire de chimie de PEREN. Les études de sûreté de tels réacteurs restent également à réaliser par le couplage de la neutronique à la chimie ainsi qu'à la thermo-hydraulique. La réalisation d'une boucle de sels fondus à échelle réduite permettrait de tirer des enseignements en R&D utiles aux études scénarios.

De manière générale, l'étude du cycle Th/U, qui permet de maintenir les ressources naturelles de combustible contrairement à l'utilisation de l'uranium enrichi, doit être poursuivie, et les possibilités de produire l'uranium 233 nécessaire à la mise en œuvre de ce cycle grâce à la transmutation de couvertures de thorium dans des RNR U/Pu ou à l'utilisation de MOX thorié dans les réacteurs à eau légère, seront quantifiées.

Toutes ces études ont en commun l'utilisation de moyens de simulation numérique adaptés. Le développement d'un code global permettant de traiter l'évolution des combustibles est en cours et ce code devra ensuite être validé. Des outils plus spécifiquement dédiés aux études sûreté seront développés : ils permettront le calcul des coefficients de vide et de température, la prise en compte de la thermohydraulique et des effets de contre-réaction de cœurs de différents types. D'autres outils sont à l'étude pour l'analyse des sensibilités de la criticité et d'autres paramètres aux données nucléaires utilisées dans les calculs. Enfin l'évaluation de l'activation des structures d'un réacteur et la participation au démantèlement d'un certain nombre d'installations existantes permettra d'acquérir une expérience applicable à la conception de réacteurs innovants en matière de choix des matériaux, ceci afin de minimiser les volumes à traiter en fin de vie des centrales.

## **3. La physique nucléaire pour les réacteurs du futur et autres applications**

La conception des systèmes innovants pour la production d'énergie ou l'incinération des déchets nucléaires, mais aussi d'autres applications comme les sources de spallation, la caractérisation des déchets

ou le contrôle de la prolifération, nécessitent des études de physique nucléaire alliant mesures fondamentales, développements théoriques et validation en vraie grandeur.

#### ○ **Mesures neutroniques fondamentales**

Les systèmes innovants mettent en jeu, par rapport aux réacteurs actuels, des matériaux différents et un domaine en énergie beaucoup plus vaste. Il s'agit donc d'améliorer et d'étendre les données existantes, et d'en établir de nouvelles, en particulier concernant les actinides mineurs. Depuis une dizaine d'années, plusieurs équipes du DAPNIA et de l'IN2P3 effectuent des mesures de données neutroniques. Ces actions sont coordonnées par le groupement de recherche GEDEPEON et certaines font l'objet d'une vaste collaboration internationale (Europe, USA et Russie). Les besoins et leur projection dans le futur sont en grande partie déjà inscrits dans le 6<sup>ème</sup> PCRD et concernent essentiellement des mesures de capture (DAPNIA), de fission et (n,xn) (IN2P3). Au-delà, il est envisagé d'étudier les caractéristiques des neutrons retardés, bien connues pour les actinides majeurs, mais beaucoup moins pour les isotopes de l'américium et du curium. Ces mesures seront complétées par une étude systématique des distributions en masses et charges des fragments de fission de ces transuraniens.

La disponibilité d'installations en Europe susceptibles de fournir des neutrons est essentielle. Pour des neutrons thermiques, l'ILL à Grenoble est utilisé. Pour des neutrons de plus haute énergie, divers accélérateurs, parfois très anciens, sont disponibles. En ce qui concerne les sources blanches de neutrons, le DAPNIA et l'IN2P3 sont déjà impliqués dans les installations de temps de vol GELINA en Belgique et n\_TOF au CERN. De nouvelles initiatives se développent autour de SPIRAL II à GANIL et de GSI à Darmstadt. 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 serait très souhaitable. 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,...).

Un problème important concerne la disponibilité de cibles d'éléments transuraniens ou produits de fission très radioactives. 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 jusqu'à la mesure de sa section efficace. Dans certains cas, ces noyaux peuvent être étudiés plus facilement par réaction de transfert.

La mise en forme des données expérimentales pour leur utilisation dans les calculs de neutronique résulte d'un long travail d'évaluation. La collaboration avec les groupes spécialisés dans les évaluations (CEA/DAM à Bruyères-le-Châtel et CEA/DEN à Cadarache) doit être renforcée afin de valoriser les mesures effectuées par les expérimentateurs.

#### ○ **Spallation et systèmes hybrides (ADSR)**

En Europe, dans le cadre du 6<sup>ème</sup> PCRD, le projet IP-EUROTRANS est en train de se mettre en place. Son objectif est l'étude de faisabilité d'un prototype d'ADSR. Ce projet réunit l'ensemble des acteurs européens dans les domaines des combustibles, matériaux, accélérateurs et données nucléaires et vise une démonstration de certaines composantes d'un futur ADSR afin de rassembler tous les éléments permettant de décider la construction éventuelle d'un démonstrateur européen lors du 7<sup>ème</sup> PCRD.

En ce qui concerne les études liées au module de spallation, il s'agit d'évaluer et de démontrer la technologie des cibles de métal lourd liquide en termes de performances, de résistance aux dommages et de radioprotection, et d'estimer la tenue dans le temps des composants environnants comme la fenêtre ou le conteneur de la cible. Ceci nécessite, d'une part, la compréhension des mécanismes élémentaires des réactions de spallation. Des avancées importantes ont été accomplies ces dernières années grâce, en particulier, à l'approche globale développée au DAPNIA, alliant expérience, théorie et validation. Ces études doivent être poursuivies, en particulier avec des expériences de seconde génération auprès de GSI qui permettront d'aboutir à des modèles suffisamment fiables pour les simulations. D'autre part, des tests de matériaux dans des conditions représentatives et des validations en vraie grandeur dans des cibles de spallation comme MEGAPIE et TRADE sont indispensables, l'étape suivante étant la conception d'une cible pour un démonstrateur. Ces études demandent une collaboration entre physiciens, chimistes et ingénieurs, dont ceux d'autres départements du CNRS et d'autres directions du CEA.

Il est important de noter que les sources de spallation ont aussi beaucoup d'autres applications potentielles (caractérisation de matériaux pour l'industrie et la biologie, irradiation pour les réacteurs du

futur, la fusion, l'industrie spatiale, production de faisceaux radioactifs, ...) qui pourraient bénéficier de ces études. Des sources de spallation sont actuellement en construction aux USA (SNS) et au Japon (JPARC).

#### ○ **Photofission et autres nouvelles applications**

Les nouvelles possibilités offertes par la photofission ainsi que d'autres méthodes innovantes d'interrogation à distance, telles que la détection de neutrinos, suscitent depuis plusieurs mois un regain d'intérêt. Par exemple, la photofission peut être mise à profit pour la détection de matières nucléaires sensibles (projet européen NUMADE) ou le contrôle non destructif de blocs de déchets nucléaires (projet INFO du DAPNIA). Ceci est réalisé en utilisant un faisceau d'électrons, créant des gammas de bremsstrahlung. En mesurant la quantité de neutrons retardés émis par un colis après le bombardement du faisceau, on pourra estimer la quantité d'actinides présents dans le colis et, éventuellement sa composition. Ceci nécessite des expériences de base, des améliorations des outils de simulation et une estimation des performances potentielles. L'approfondissement des connaissances du processus de la photofission (distributions des produits de fission ou spectres d'émission des neutrons retardés) est nécessaire pour améliorer les systèmes de détections actuels. La photofission a aussi d'autres applications comme les générateurs de neutrons et la production d'isotopes radioactifs.

L'AIEA a récemment organisé un colloque à Vienne sur les possibilités offertes par les antineutrinos pour contrôler les installations nucléaires. En effet, le spectre et le nombre moyen des antineutrinos émis (par désintégrations  $\beta^-$ ) à l'issue de la fission d'un noyau diffèrent selon l'isotope. Il y aurait là un moyen permettant, en principe, de discriminer entre un fonctionnement fortement plutonigène et un autre qui ne le serait pas. L'AIEA a fait l'inventaire des scénarios malveillants permettant la production « discrète » de plutonium dans une centrale nucléaire. À chacun correspond une signature en termes d'antineutrinos bien précise (flux, spectres énergétiques, évolution temporelle). Un détecteur efficace d'antineutrinos permettrait de repérer les situations litigieuses ou mensongères. Parmi les différents acteurs se préoccupant de cette thématique (CEA/DRT, CEA/DAM, DGA), le DAPNIA est très bien armé dans ce domaine, grâce aux méthodes éprouvées et aux outils de détection performants empruntés à la recherche fondamentale.

#### **4. Conclusions**

Ces recherches se sont développées dans la **pluridisciplinarité** grâce, en partie, aux échanges et collaborations initiés dans les ateliers des GDR de PACE, dont la prolongation est indispensable. Elles ont bénéficié aussi bien de soutiens financiers de ces GDR que d'apports extérieurs (Europe, CEA/DEN, ANDRA, EDF, Universités...). Il est cependant souhaitable qu'à l'avenir ces activités soient soutenues par un **financement du DAPNIA et l'IN2P3 assurant leur pérennité**. Dans le tableau 1 joint, les besoins financiers par thématique et laboratoire sont résumés, en séparant les crédits de fonctionnement annuel propres et les investissements (indépendamment des sources de financement) estimés pour les prochaines années.

La réalisation des projets présentés dans ce document nécessite, plus encore, **une augmentation des moyens humains** si le DAPNIA et l'IN2P3 souhaitent avoir un rôle majeur dans le domaine de l'énergie nucléaire et de l'environnement. Le tableau 2 présente les effectifs totaux souhaités dans les différents laboratoires, par thématique, indépendamment des mouvements de personnel. L'existence de groupes compétents dans ces disciplines permettra aussi d'assurer la formation de futurs ingénieurs et techniciens du nucléaire, d'étudiants en science et plus généralement l'information du grand public, besoins qui ne manqueront pas de s'accroître si l'énergie nucléaire doit connaître un renouveau.

**Synthèse Prospectives à 10 ans IN2P3-DAPNIA**  
**Annexe: détail par thématique**  
**(3/09/04)**

## **A- RADIOCHIMIE POUR LE NUCLEAIRE ET L'ENVIRONNEMENT**

### **I- PHYSICO-CHIMIE DES RADIONUCLEIDES**

Les thèmes de recherche développés par les radiochimistes concernent l'étude des propriétés physico-chimiques des actinides et produits de fission à vie longue à l'échelle des traces ou en quantité pondérable, en solution, à l'interface solution/minéral, ou dans le solide, en relation avec la gestion des déchets nucléaires (amont et aval des cycles des combustibles) et l'environnement.

#### **1- Propriétés des actinides et autres radioéléments en solution**

La caractérisation et la quantification des espèces dissoutes (actinides et produits de fission à vie longue) dans les solvants aqueux ou non aqueux sont basées sur la détermination de leur forme chimique (complexation, valence), de leur structure (stoechiométrie/spéciation, nature des liaisons chimiques) et des données thermodynamiques associées (coefficient d'activité, constantes d'équilibre). L'ensemble de ces données expérimentales fiables est à la base de toute compréhension aussi bien pour la modélisation du comportement des radionucléides dans l'environnement, dans le domaine du vivant que pour la mise au point et/ou l'amélioration de procédés innovants de retraitement des combustibles pour les réacteurs de génération IV. Néanmoins elles favorisent des études fondamentales dépassant le cadre du cycle électronucléaire.

Deux grands types de systèmes, ont été retenus : les solutions aqueuses, et les « nouveaux » solvants, liquides ioniques et sels fondus

##### ***1-1- Phase aqueuse***

En phase aqueuse, les propriétés d'intérêt principal des radionucléides sont les propriétés redox, la polymérisation et les interactions avec des complexants (hydroxo, carbonate, nitrate, chlorure, sulfate, sulfure, fluorure, phosphate, silicate, et les espèces organiques). Certaines données thermodynamiques de certains actinides et autres radioéléments sont rares et peu connues et des données expérimentales fiables sont nécessaires pour prévoir leur comportement dans l'environnement. Par exemple, le comportement du Pa à l'échelle des traces a été peu étudié jusqu'à aujourd'hui en milieu alcalin, alors que cet élément pourrait exister sous une forme mobile dans les eaux souterraines alcalines. De même Tc a une chimie riche et complexe. Par ailleurs peu de données existent pour des espèces polymères ou des complexes phosphatés de radionucléides tétravalents. Il est donc important d'améliorer et compléter les bases de données thermodynamiques dans ces milieux.

##### ***1- 2- Liquides ioniques et sels fondus***

Les milieux sels fondus et liquides ioniques présentent un intérêt considérable pour le retraitement des nouveaux combustibles car les actinides peuvent y présenter des propriétés structurales, redox et de complexation particulières par rapport aux milieux aqueux permettant de proposer des méthodes de séparation originale de ces éléments. Cette chimie est complexe et doit être défrichée, peu de résultats fondamentaux existent à ce jour.

- Dans les milieux ioniques, il s'agit d'approfondir nos connaissances sur la chimie de coordination des actinides et des lanthanides et les interactions actinides-solvant. Toutefois, des préoccupations plus appliquées ne sont pas exclues en relation avec la fonctionnalisation de ces solvants pour en faire également des extractants « verts ».

- Un exemple intéressant concerne le concept RSFogénérateur dont la partie "traitement du combustible" est l'un des points clés. Il s'agit d'étudier les aspects cinétiques (réactions précipitation/re-dissolution) d'un procédé de traitement simplifié du combustible sel fondu (30%ThF<sub>4</sub>- 70%LiF) déjà validé d'un point de vue thermodynamique.

Quel que soit le système choisi, le comportement des radioéléments vis à vis de la solvataion, des réactions redox, et de la complexation doit être étudié en utilisant plusieurs techniques éprouvées ou en développant de nouvelles méthodes de spéciation (microélectrochimie, électrophorèse et diffusion capillaire, EXAFS, spectroscopie de vibration et de fluorescence, couplage ICP-MS/CE et HPLC, Electrospray MS, sonde positronique, sonochimie).

## **2- Mécanismes réactionnels des actinides et autres radioéléments aux interfaces**

Les interactions solides/solution sont à la base des phénomènes de sorption des radionucléides par des solides minéraux et de dissolution/altération de phases solides contenant des actinides. Il est donc crucial de bien comprendre les mécanismes correspondants, pour prédire le comportement des radionucléides dans l'environnement (migration/rétention dans les sols, comportement à long terme du combustible irradié et du colis de déchets en site de stockage) ou en cas des procédés de retraitement.

### ***2-1- Mécanismes réactionnels de sorption***

L'acquisition de données thermodynamiques au niveau macroscopique couplée à une approche structurale au niveau microscopique des phénomènes de sorption des radionucléides doit continuer à être développée et validée sur de nombreux systèmes. Le développement de techniques autorisant l'accès à une information au niveau moléculaire ouvre de nombreuses perspectives dans ce domaine. Entre autres, la spectroscopie de photoélectrons X, la spectroscopie d'absorption X (ligne chaude 'MARS' sur SOLEIL, lignes FAME et ROBL à l'ESRF ou lignes dédiées à ANKA, Karkruhe) et les spectroscopies de champ proche seront utilisées.

Les études porteront sur la compréhension de la structure de l'interface solide/solution de radionucléides et sur la corrélation entre structure et réactivité : compréhension du rôle des défauts cristallins (créés par radiolyse ou irradiation interne) sur les propriétés de surface d'un solide, influence de l'eau sur les processus interfaciaux (propriétés physico-chimiques de l'eau suivant l'interface et la porosité du substrat), quantification des propriétés électriques de l'interface, spéciation des radionucléides (complexation, potentiel redox, précipitation ..). Les solides étudiés seront aussi bien des substrats méthodologiques (oxydes, silicates, phosphates) que des minéraux naturels comme les argiles (montmorillonite, bentonite, argilite) dispersées ou compactées (les propriétés de rétention n'étant pas les mêmes dans ces deux cas). L'évaluation des effets de température sur les mécanismes observés (méthodes micro-calorimétriques) devra être également traitée. Parallèlement à cette approche expérimentale, l'utilisation de la chimie quantique couplée à la mécanique moléculaire devrait permettre d'affiner considérablement notre connaissance des processus à l'interface solide/solution.

L'ensemble de toutes ces études physico-chimiques et structurales conduira à la modélisation des données recueillies afin de déterminer précisément les grandeurs thermodynamiques associées à ces processus de rétention et de prédire le comportement de ces radionucléides dans la géosphère. Tout ceci pourra contribuer à la création d'une base de données sur la physico-chimie des radionucléides aux interfaces.

### ***2-2- Mécanismes réactionnels de dissolution***

La compréhension des mécanismes de dissolution/altération de phases solides contenant des actinides (matrices de confinement, combustibles actuels et futurs, cible de transmutation,..) est fondamentale pour modéliser le comportement des radionucléides dans les sites de stockage, ou optimiser les étapes en amont du retraitement des nouveaux combustibles pour les réacteurs de génération IV.

La poursuite des approches macroscopiques cinétique et thermodynamique des mécanismes réactionnels de dissolution (mode statique ou dynamique) couplée à une approche structurale microscopique (méthodes spectroscopiques, entre autres micro-Raman, MET, cartographie X ...) sera étendue à plusieurs types de matrices minérales (phosphates, oxydes, carbures, silicates,). L'influence de différents paramètres chimiques (ligands, défauts créés par irradiation interne ou externe, potentiels électrochimiques, taille des particules, composition physico-chimique du milieu aqueux...) et de paramètres de transport des réactifs et des composants dissous sur les mécanismes de dissolution sera étudiée. Les phases secondaires formées seront identifiées (formulation, pureté, état de cristallinité ...) et leur solubilité déterminée. L'ensemble de ces données conduira à l'établissement de lois multiparamétriques de dissolution (en l'absence de saturation) puis à la modélisation du comportement à long terme des matériaux (phénomènes diffusifs et/ou précipitation à l'approche de la saturation).

### **3- Chimie des radionucléides dans le solide et données thermodynamiques**

Le comportement des actinides en milieu condensé, et en particulier à l'état solide, est conditionné par des grandeurs thermodynamiques et structurales souvent difficiles à déterminer, conséquence de la radioactivité inhérente à ces éléments. Les études dans ce domaine doivent cependant être poursuivies, eu égard à l'importance des thèmes qui y sont associés, tels que la synthèse et la caractérisation de matrices solides de conditionnement spécifique des actinides, et nouveaux types de combustibles, la mise au point de cibles de transmutation ainsi que les procédés de décontamination d'effluents et la (géo)chimie environnementale.

#### ***3-1 Synthèse et caractérisation physico-chimique***

Depuis quelques années, des procédés de synthèse de céramiques d'actinides à base de phosphate de Th et de terre rare possédant des propriétés physico-chimiques particulièrement intéressantes pour le conditionnement spécifique d'actinides (structure cristalline ou amorphe, solubilité, granulométrie, frittage) ont été mis au point. De nouveaux procédés de synthèse (voies hydrothermales et procédés sol-gel) devraient permettre l'élaboration de nouvelles phases solides particulièrement intéressantes pour la décontamination d'effluents. Par ailleurs sont envisagées l'étude structurale et la détermination des propriétés physico-chimiques de nouveaux matériaux tels que les pyrochlores comme matrice de transmutation ou les carbures ou nitrures d'uranium comme nouveaux combustibles. Il est de même envisagé des études cristallographiques de certaines familles de silicates, vanadates et titanates d'actinides de structures encore inconnues.

#### ***3-2 Solubilité et grandeurs thermodynamiques***

En absence de ligands forts, beaucoup de radioéléments tri et tétravalents ont une solubilité très faible, cependant il reste de grandes incertitudes en ce qui concerne la solubilité des actinides (IV) et certains produits de fission à vie longue en milieu naturel. Une approche systématique sur la solubilité de phases solides d'actinides tétravalents, de solutions solides et de produits de fission associée à des modélisations thermodynamiques seront entreprises avec entre autre les caractérisations des solides contrôlant cette solubilité, ceci afin de comprendre les différentes modifications de phases au cours du processus de précipitation. Les paramètres pertinents (surface spécifique, énergie de surface, solubilité,  $K_s$ , constante cinétique, coefficient d'activité) pour les bases de données thermodynamiques et cinétiques seront ainsi déterminés

### **4- Bio-géochimie et applications médicales des radionucléides**

Les activités présentées dans ce paragraphe s'inscrivent dans les thématiques décrites précédemment et plus particulièrement au niveau de la physico-chimie des radioéléments en solution aqueuse et aux interfaces. Elles sont mises à part du fait de leur caractère transversal.

#### ***4-1 Interaction avec la matière organique et microorganismes***

Les composantes majeures du cycle bio-géochimique CBGC (matière organique, micro organismes), phase minérales, eau et leur interactions avec les radionucléides déterminent la mobilité de ces éléments dans les eaux de surface et souterraines, en relation avec les contraintes hydrothermiques et géochimiques. Ainsi, la compréhension de ces processus est d'une grande importance pour la quantification de cette migration.

La dégradation de la matière organique et les organismes vivants génèrent des complexes forts comme les substances humiques et les sidérophores, qui peuvent augmenter la solubilité des radionucléides (RN) favorisant ainsi leur migration dans le milieu naturel. Les études portent sur la compréhension des mécanismes (cinétique, réversibilité, thermodynamique) d'interaction aux interfaces dans le système binaire (humique ou sidérophore)/RN ou ternaire humique/RN/minéral et sur la structure des complexes formés. L'influence de différents processus et paramètres (conformité, vieillissement, pH) sur l'interaction sera étudiée. Toutes les études conduiront à la modélisation de la migration des radionucléides dans le milieu aquatique naturel.

Les microorganismes peuvent affecter la mobilité des RN via des processus de bio-sorption, de bio-précipitation enzymatique et bio-accumulation ou indirectement par des changements des conditions physico-chimiques du milieu. Les études cherchent à comprendre et à quantifier les mécanismes de

réduction/précipitation et co-précipitation microbiologique des RN. Afin d'appliquer la connaissance acquise à la prédiction de la migration des radionucléides dans les sols naturels, des méthodes de caractérisation des conditions redox dans les sols à l'échelle microscopique seront développées.

#### **4-2. Applications médicales**

La radiochimie, de par ses compétences scientifiques et ses moyens techniques, est un acteur qui peut intervenir de manière forte à l'interface avec le domaine médical. Dans le contexte de la radio-immunothérapie des cancers notamment, la connaissance de la spéciation des radio-isotopes à l'état d'ultra-traces dans les milieux utilisés ainsi que la description des interactions des radio-isotopes avec les molécules / colloïdes utilisés pour leur transport *in-vivo* sont fondamentales. Ceci est particulièrement vrai pour l'astate qui est un radioélément dont les propriétés en solution sont à ce jour peu connues.

## **II- PHYSICO-CHIMIE DES RADIONUCLEIDES SOUS RAYONNEMENT**

La science de l'irradiation est un domaine complexe où la physique atomique, la physique de la matière condensée et la chimie se côtoient pour une approche fondamentale qui, de tout temps, a eu des retombées dans de nombreux domaines appliqués. En effet, les irradiations, qu'elles soient liées à l'activité humaine ou naturelle, ont des conséquences qu'il est important de connaître afin de mieux les utiliser ou de s'en prémunir. Nous pouvons ainsi classer les perspectives de recherche sur la physico-chimie sous irradiation en quatre grands domaines :

### **1- Les recherches pour l'énergie**

L'énergie nucléaire de fission et de fusion restera une source majeure d'énergie au cours de ce siècle avec la nécessité de maîtriser la sécurité des réacteurs du futur et la gestion des déchets. Les matériaux et les conditions de sollicitation de ces matériaux sont extrêmement variés: fort taux d'endommagement et haute température pour le combustible, les cibles de transmutation et les éléments de structure des tokamaks, irradiation sur des temps géologiques pour les matrices de stockage, intégrité des éléments de sécurité soumis à de faibles doses, corrosion sous irradiation... Aussi, à côté des études d'ingénierie de la tenue et de l'évolution à long terme des matériaux et des interfaces solide/liquide et solide/gaz sous irradiation, la recherche en amont doit-elle fournir les bases de l'interprétation du comportement des matériaux dans le champ complexe de leurs utilisations. Ainsi des expériences modèles bien ciblées devront permettre de comprendre les processus élémentaires et les éléments particuliers du problème réel. De plus, ces expériences sur des cas simplifiés permettront de caler les paramètres et de valider les simulations multi-échelles qui ont pour objectif de modéliser ces phénomènes complexes allant de la création des défauts à leur influence sur les propriétés macroscopiques, entre autres, mécaniques. La recherche en amont dans le domaine de la réactivité de surface en présence de radiolyse aux interfaces permettra de hiérarchiser les processus et d'identifier les mécanismes d'évolution qui, suivant les circonstances, peuvent devenir prépondérants.

### **2- Les recherches pour l'environnement**

Ce domaine est étroitement lié au précédent par les choix énergétiques et la gestion rigoureuse des déchets nucléaires. L'irradiation via l'interaction des particules irradiantes avec la matière est en outre un outil de caractérisation fort utile pour des mesures de pollution atmosphérique et des sols (ex d'ARCANE à Bordeaux) et pour l'étude des mécanismes de dépollution.

### **3- La science des matériaux**

L'irradiation en permettant le contrôle de la concentration et de la nature des défauts introduits dans les matériaux devient un outil de maîtrise de leurs propriétés macroscopiques. Dans les polymères, le durcissement par création d'un désordre contrôlé ou par réticulation est un exemple de modification de microstructure. Un autre exemple est celui de la microélectronique où l'implantation ionique s'est imposée pour des fins aussi variées que le contrôle du dopage, la durée de vie des porteurs ou la découpe de couches minces. Les perspectives dans d'autres domaines méritent d'être explorées.

L'irradiation est également un outil pour la synthèse de matériaux hors équilibre (mélange par faisceaux d'ions, stabilisation de phases hors d'équilibre...) ou de matériaux nanostructurés de géométries diverses par ségrégation ou modifications structurales (traces latentes par exemple).

Ces utilisations sont possibles sur les bases de la recherche amont menée en physique du solide sur la physique des défauts dans les matériaux irradiés. L'introduction contrôlée des défauts et leur identification sont corrélées à l'évolution de diverses propriétés macroscopiques des matériaux (transport, électrique, optique, magnétique,) pour mettre en évidence le rôle des défauts.

#### **4- La santé, le domaine du vivant**

La radiobiologie est un des volets les plus importants des études portant sur les effets des irradiations subies (radioprotection) ou voulues (radiothérapie) sur les matériaux du vivant. Cette science, par essence pluridisciplinaire, va de la physique de l'interaction particule-matière à la médecine, en passant par la chimie radicalaire et la biologie fondamentale.

Les recherches fondamentales ou appliquées sur la physico-chimie sous irradiation doivent donc pouvoir disposer d'accélérateurs (ions et électrons) et d'une instrumentation spécifique. De plus, il est important de rappeler que ces machines sont pour la plupart communes à d'autres domaines comme l'analyse par les techniques nucléaires ou la physique nucléaire.

#### **5- Projets techniques**

Un certain nombre de projets techniques sont en cours de développement :

- **le projet JANNUS** (fédération de laboratoire CEA-CNRS situés sur Saclay et Orsay, constitué de 3 accélérateurs électrostatiques d'ions couplés à une chambre expérimentale commune et d'un microscope électronique couplé à un accélérateur et un implanteur d'ions, opérationnel en 2006) .

- **Le CERI à Orléans**

Parmi les principaux projets techniques du CERI, le développement d'outils supplémentaires permettant la caractérisation des défauts induits par l'irradiation et l'étude des interactions défauts-impuretés est envisagé. La construction d'un accélérateur pulsé de positons lents et la réalisation d'une source intense basée sur l'emploi d'un linac permettraient d'aboutir à la construction d'un microscope à positons

- **CIRIL et les faisceaux du GANIL à Caen**

Les recherches sont essentiellement axées sur les effets des excitations électroniques sur les matériaux (molécules isolées, oxydes, polymères, matière vivante). Les projets portent sur le développement d'instrumentations en ligne permettant de décrire en temps réel les processus physico-chimiques déclenchés par l'impact d'ions multichargés (le faisceau direct de SPIRAL II particulièrement bien adapté) et les évolutions structurales des matériaux. Les études de radiobiologie en soutien à l'hadronthérapie prendront une importance accrue.

- **Cyclotron de Nantes**

Le Cyclotron de Nantes a trois objectifs principaux : la production de radionucléides émetteurs de particules alpha et de positons, l'étude de la radiolyse alpha de l'eau (recherche fondamentale et problématique du stockage des déchets), et la recherche en biologie (données fondamentales sur l'effet des radiations ionisantes sur les cellules tumorales et les tissus sains).

#### **Projet d'organisation**

La science de l'irradiation (pluridisciplinaire) implique différents secteurs de la recherche (IN2P3, SPM, SC), tant dans les moyens humains que dans les moyens techniques. Il serait souhaitable de regrouper les moyens mis à la disposition de cette science dans une structure identifiant clairement la discipline (sous forme d'un GIS ou d'un GDR).

### **III- METROLOGIE - ENVIRONNEMENT**

La politique énergétique menée par la France a octroyé une place prépondérante à l'industrie nucléaire. Le développement de ce secteur industriel (centres de production, usines de retraitement, gestion des déchets) a conduit au fil des années, et surtout après l'accident de Tchernobyl, à une prise de conscience de l'impact de cette industrie sur l'environnement. Alors que la demande de la société pour le contrôle de la radioactivité ne faiblit pas, il apparaît que la mesure fiable des doses se heurte à des difficultés non résolues posant problème quant à l'application des règlements de plus en plus stricts à l'échelle européenne. L'évolution de la dosimétrie et des mesures environnementales passe par la mise en œuvre de technologies modernes

développées dans des domaines de recherche plus fondamentale. Plusieurs laboratoires de l'IN2P3 dans le domaine « Métrologie/environnement » répondent de façons multiples et variées à cette demande.

### 1- Analyses et expertises dans l'environnement (IReS, LPC, Subatech)

Cette thématique regroupe toutes les activités liées à la détermination d'éléments radioactifs ou d'éléments stables présents à très bas niveau dans les matrices environnementales de toute nature (air, eaux, sols, bioindicateurs) soit dans le cadre de prestations analytiques pour des partenaires industriels, institutionnels ou associatifs soit dans le cadre de contrats de recherche ou de collaborations scientifiques nationales (CEA, CNRS, Université) ou internationales (Europe, Maghreb, Moyen Orient).

Dans le domaine de l'expertise sur site, les laboratoires sont consultés soit pour déterminer le point zéro radiologique soit pour mesurer la surveillance de sites classés, soit pour réaliser des expertises en vue de réhabilitation d'un site.

### 2- Radioprotection et dosimétrie (IPNO, IReS)

Les services de radioprotection de l'IPNO et de l'IReS assurent les missions de radioprotection, de contrôle et de dosimétrie réglementaire. Ces deux laboratoires sont actuellement conjointement engagés dans un programme de mise en place d'une démarche qualité selon le référentiel de la norme ISO/CEI 17025, en vue de l'obtention de l'accréditation par le COFRAC dans le domaine de la dosimétrie du personnel (films, détecteurs solides de traces nucléaires et détecteurs thermoluminescents pour la dosimétrie environnementales et d'extrême).

### 3- Recherche et développement (tous les laboratoires)

La vocation principale des activités de R&D est de valoriser les connaissances et les savoir-faire acquis dans le cadre de recherche à caractère plus fondamental, afin de développer de nouvelles méthodes d'analyse (chimie et métrologie des éléments en trace dans les matrices complexes) ainsi que des instruments de mesure innovants (métrologie, dosimétrie passive et opérationnelles).

Les perspectives de développement sont à prévoir essentiellement en dosimétrie passive (détecteurs photo-stimulables, détecteurs solides de traces nucléaires) et en dosimétrie actives par capteurs CMOS (dosimétrie multiplage neutrons et alpha pour la détection du radon et descendants), en métrologie (spectromètres portables : développement de méthodes analytiques pour quantifier par spectrométrie gamma in situ les radionucléides dans les sols) et en métrologie des éléments en trace dans les matrices environnement complexes (techniques d'analyses élémentaires : ICP-MS, AMS, techniques radiochimiques). Pour ce qui concerne les gaz, la métrologie appliquée au gaz radon pourrait aussi être une piste de développement.

En conclusion, les activités des laboratoires de l'IN2P3 dans le domaine « Métrologie /Environnement » répondent de façons multiples et variées à la demande accrue de la société en mesures radiologiques environnementales et sont par conséquent très valorisantes pour l'IN2P3. De fait, les interactions entre les différents laboratoires sont probablement à développer.

## IV- RECRUTEMENT ET MOYENS FINANCIERS POUR LES PROCHAINES ANNEES

### 1- Besoins humains

● Compte tenu des départs à la retraite programmés et des projets souvent liés aux programmes nationaux et européens, que nous souhaitons renforcer et développer dans les 10 prochaines années et qui sont au cœur des grands problèmes de l'environnement et de l'énergie nucléaire, les souhaits des radiochimistes sont les suivants :

#### *Recrutements CR/MC souhaités (sections 13 et 14)*

Laboratoires	IPNO	IREs	SUBATECH	IPNL	CSNSM
Radiochimie	3	3	3	2	3
Métrologie		2	1		

● Les nombreuses techniques utilisées en radiochimie ainsi que les exigences de plus en plus fortes liées à la gestion des déchets chimiques et surtout radiochimiques exigent le support technique de

techniciens et ingénieurs chimistes spécifiques aux groupes de radiochimie. Il faut souligner ici la présence de nombreux thésards dans ces groupes (entre 4 et 8 par groupe), souvent dirigés par des enseignants chercheurs et qui nécessitent l'aide précieuse d'ITA.

**Recrutements ITA souhaités**

Laboratoires	IPNO	IRES	SUBATECH	IPNL	CSNSM
Radiochimie Métrologie	1IR+1T 1AI	1IR+1AI 2AI+1IE+1IR	1IR+2AI+2T (cyclotron) 3AI	1IR+2IE (accel)	1IE

\*Pour mener à bien les projets d'irradiation sur les matériaux auprès des accélérateurs, le CIRIL aurait besoin d'1 CR et d'1 IE

**2- Besoins financiers**

Il est à souligner ici que les recherches menées par les expérimentateurs radiochimistes nécessitent un budget de fonctionnement particulièrement élevé lié à la manipulation de la matière radioactive et aux mesures de sécurité qui en découlent et à des équipements spécifiques. Par ailleurs certains équipements (inexistants actuellement dans nos laboratoires) nécessaires pour les nombreuses caractérisations des milieux contenant de la matière radioactive (solide, solution, interface), doivent être nucléarisés. Actuellement ils peuvent mener leur recherche que grâce à l'apport de sources de financement extérieures (contrats, GDR, BQR, Europe, etc). Le coût de l'enlèvement des déchets chimiques et radiochimiques n'est pas inclus dans les budgets ci-dessous. Si une participation des groupes peut être envisagée, **il est nécessaire que l'IN2P3** comme par le passé, continue à y contribuer. La **recherche pluridisciplinaire et de valorisation de la radiochimie a un coût qu'il faut prendre en compte, pour que ses recherches restent pérennes.**

**Budget Fonctionnement, contrats compris, moyenné sur 3 ans et équipements demandés**

	Permanents ch/ens + IR	SDB IN2P3 +contrats k€	Equip <sup>t</sup> (AP, GDR,....	Equip <sup>t</sup> demandés k€
IPNO	11	55 (SDB) 115 (contrats)	70	1 microcalorimètre + Equip <sup>t</sup> sel fondu + 1 Electrophorèse capillaire : <b>250</b>
IReS	9	55 (SDB) + 38 (contrats)	74	1 XPS nucléarisé +1 boîte à gant : <b>300</b>
Subatech	8	35 (SDB) 265(contrats)	40	1DRX nucléarisé 1 equip <sup>t</sup> radiolyse cyclotron : <b>390</b>
IPNL	6	20(SDB) 30 (contrat)	20	1 source ECR pour VdG 4 MV, + 1 boîte à gants : <b>200</b>
CSNSM	5	24(SDB) 50(contrats)	25	Four, Tronçonneuse pour monocristaux, Amineuseur d'échantillon (microscopie) : <b>150</b>

\* Certains contrats peuvent servir à payer des visiteurs, thésards, post doc  
Un équipement DRX en ligne est demandé par le CIRIL sur IRRSUD dans le cadre du thème VII.

# B- SCENARIOS ET PHYSIQUE DES REACTEURS POUR LE NUCLEAIRE DU FUTUR

## I. ETUDES SYSTEMES ET SCENARIOS

### 1. Bilan

Les études systèmes et scénarios ont démarrés à l'IN2P3 et au DAPNIA il y a une dizaine d'années environ. Motivées dans un premier temps par l'axe 1 (séparation et transmutation) de la loi de 1991, ces études ont permis d'obtenir des descriptions détaillées de différents systèmes, réacteurs sous-critiques fonctionnant au thorium, ou incinérateurs d'actinides mineurs (combustible solide ou liquide). La voie des réacteurs à gaz à haute température a également été étudiée dans l'optique de l'incinération de plutonium civil et militaire. La problématique s'est rapidement élargie à la production d'énergie, notamment aux réacteurs à sels fondus à spectre thermique basés sur le cycle du thorium.

### 2. Systèmes et scénarios à étudier

On peut distinguer deux grandes familles de scénarios, ceux où le nucléaire se poursuit à un faible niveau, ou même s'arrête à plus ou moins long terme, et ceux où on envisage un déploiement massif de l'énergie nucléaire de fission d'ici 2050. Dans le deux cas, des améliorations significatives sont nécessaires sur la gestion de l'aval du cycle. Les scénarios de déploiement nécessite en plus de gérer utilement les diverses matière fissiles disponibles, notamment le plutonium issu des réacteurs actuels, qui dans ce cas ne peut être considéré comme un déchet. Nous listons ici les divers systèmes à étudier, en précisant le rôle qu'ils pourraient jouer selon le scénario envisagé.

#### 2.1. Les systèmes sous-critiques

Les réacteurs sous-critiques pilotés par accélérateur (ADSR ou réacteur hybride) sont optimisés pour l'incinération de déchets, en particulier l'américium et le curium issus des réacteurs fonctionnant à l'uranium (REP ou RNR U/Pu). De nombreuses études ont déjà été menées dans ce sens, et doivent être complétées par des calculs d'incinération de l'américium seul. Dans ce type de scénario, le curium, de courte durée de vie, décroît naturellement dans un site d'entreposage. Cette étude sera orientée sur un système hybride de référence (caloporteur et cible de spallation Pb-Bi) en s'appuyant sur les projets européens (Eurotrans) travaillant à la mise au point d'un démonstrateur (projets MYRRHA).

Concernant les études de sûreté, il faut quantifier en détail le comportement spécifique en situation accidentelle, deux couplages sont à envisager :

- ADSR Accelerator Driven System : la source de neutrons externe est amplifiée par le cœur sous-critique fonctionnant loin de la sous-criticité ( $k_{\text{eff}} \approx 0.95-0.97$ ).
- ACS Accelerator Coupling System : le source de neutrons externe est directement reliée à la puissance du cœur en simulant les neutrons retardés « manquant » au pilotage d'un réacteur critique. Cela permet d'envisager de travailler beaucoup plus proche de la criticité et de réduire ainsi le coût lié à l'accélérateur.

#### 2.2. Les réacteurs à gaz à spectre thermique

Le concept de réacteur à gaz à spectre thermique est dans ce cas un système très efficace, et a été étudié en détail dans l'optique de l'incinération du plutonium militaire dans un réacteur de type GT-MHR, et ont été ensuite appliquées au plutonium civil. Diverses voies d'optimisation doivent encore être explorées, comme l'incinération des actinides (Pu+AM) dans deux combustibles séparés pour obtenir des taux de transmutation optimisés, ou la diminution progressive du rapport graphite/combustible afin de durcir le spectre de neutrons.

#### 2.3. Les réacteurs à neutrons rapides

Ces réacteurs sont dédiés à une production durable d'énergie nucléaire, par la régénération en cycle U/Pu ou Th/U. Les 3 caloporteurs Na, Pb et He doivent être comparés quantitativement en terme de

coefficients de sûreté, d'inventaires en matière fissile et de quantité de déchets produits. D'autres caloporteurs plus innovants devront être évalués, comme les sels fondus.

Le concept de RNR U/Pu à couverture thorium devra être étudié en détail, puisque ce concept permettrait de produire des quantités importantes d'U-233 destiné à une filière thorium en réacteur thermique, régénérateur (RSF) ou légèrement sous-générateurs (CANDU, HTR, ...)

#### ***2.4. Les réacteurs Thorium à spectre thermique***

Les réacteurs à combustible liquide (sels fondus) permettent d'obtenir la régénération avec le cycle thorium en spectre thermique grâce au retraitement en ligne du combustible. Ces études doivent se poursuivre afin d'explorer les différentes voies possibles pour simplifier le retraitement du combustible, et de rendre ce système plus compétitif par rapport aux autres réacteurs « durables » sélectionnés par le forum GEN IV. Les aspects de sûreté sont également un point clé à quantifier grâce à des simulations détaillées couplant la neutronique, la chimie et la thermohydraulique.

D'autres types de réacteurs Th/U à spectre thermique et à combustible solide peuvent être intéressants dans le cas d'un couplage à des RNR et doivent être évalués (CANDU, HTR).

### **3. Simulation numérique des systèmes**

#### ***3.1. Evolution du combustible***

L'étude des scénarios décrits dans la partie précédente nécessite d'effectuer des simulations précises de neutronique, afin de calculer l'évolution du combustible. Nous utilisons principalement le code validé Monte Carlo MCNP, développé à Los Alamos. Ce code permet de décrire l'ensemble des paramètres statiques du système (spectre, flux, sections efficaces moyennes, etc...). Le calcul de l'évolution du cœur nécessite la mise en place d'un code d'évolution, qui résout les équations différentielles (équations de Bateman) régissant l'évolution des centaines de noyaux présents dans le réacteur (actinides et produits de fission). Un développement important de bases de données spécifiques est également nécessaire, afin de prendre en compte les différents effets de température (modérateur, effet Doppler, ...) et de mener les calculs des coefficients de sûreté. Un code global est en cours de développement. Dans le futur, il est envisagé de le faire valider afin de pouvoir le diffuser dans le milieu industriel. Cet objectif demandera sans doute une aide spécifique dans les années à venir.

#### ***3.2. Etudes de sûreté***

Les études de sûreté des différents concepts innovants sont primordiales. Pour chaque système (RSF, ADSR, RNR He, etc, ...) des études spécifiques doivent être menées. Les méthodes déterministes développées permettront de calculer à tout instant de la vie du réacteur ses coefficients de vide et de température. De plus, un modèle simplifié a été mis au point et permet d'envisager des études de sûreté des différents systèmes envisagés. Il prend en compte une description de la thermo-hydraulique et des effets de contre-réaction du cœur. Il doit permettre une étude quantitative en terme de contrôle de sûreté des réacteurs sous-critiques dédiés à la transmutation (ADSR et ACS), de réacteurs à combustibles liquides critiques ou sous-critiques et des réacteurs à gaz, à spectre thermique ou rapide.

#### ***3.3. Calculs de sensibilité***

L'étude de systèmes innovants fait appel à des bases de données souvent non validées, l'étude des sensibilités aux données utilisées est alors très importante, afin d'une part de donner des barres d'erreur sur les différents paramètres calculés, et d'autre part d'orienter les mesures de données nucléaires appliquées aux systèmes du futur.

Des études sont en cours pour développer et valider un ensemble d'outils permettant l'analyse des sensibilités de la criticité, et de paramètres intégraux (taux de combustion, paramètres de contre-réaction, etc...) aux données, ainsi que les incertitudes associées.

Les méthodes utilisées aujourd'hui pour la théorie des perturbations sont basées sur des solutions déterministes des équations de transport des neutrons dans les réacteurs et pourraient être adaptées dans le futur aux programmes stochastiques.

### **3.4. Application au démantèlement**

Le démantèlement des centrales civiles nécessite de gérer une grande quantité de matière irradiée pendant toute la durée de vie de la centrale. Afin de minimiser les volumes à traiter et de définir une stratégie optimale de stockage de ces matières radioactives, il est nécessaire d'évaluer précisément l'activation des structures entourant le cœur du réacteur. En collaboration avec EDF, le DAPNIA s'est engagé à jouer un rôle majeur dans le démantèlement de différentes installations (réacteur de l'Université de Strasbourg, réacteur Ulysse (INSTN), réacteur Rapsodie (CEA), accélérateur Saturne (CEA) et Lure (CNRS)). L'expérience acquise dans ce domaine pourra être appliquée au design de réacteurs innovants, notamment du point de vue du choix des matériaux environnants.

### **4. Couplage aux autres groupes travaillant dans la problématique de l'énergie nucléaire**

Ces études générales de systèmes et scénarios sont étroitement liées à d'autres thèmes de recherche, plus expérimentaux. Citons en particulier la physique des réacteurs expérimentale, telle qu'elle est menée dans les expériences MUSE, TRADE et PEREN. Un couplage plus fort avec cette discipline est indispensable à court terme, si l'on souhaite aller vers la validation expérimentale des systèmes étudiés par simulation, et pourrait se faire dans le cadre des programmes européens du 6<sup>ème</sup> et 7<sup>ème</sup> PCRD.

Dans tout concept du futur, le retraitement prend une place très importante, que ce soit en combustible liquide ou solide. C'est pourquoi une collaboration étroite entre physiciens et chimistes et à encourager. Le concept de réacteur à sels fondus fonctionnant au cycle du thorium a déjà permis un fort rapprochement entre physiciens et chimistes, et il est souhaitable que ce genre de collaboration étroite soit encouragé, et élargi aux autres systèmes du futur, notamment autour du combustible (et de son retraitement) pour réacteurs à gaz (spectre thermique ou rapide), ou des combustibles solides à base de thorium.

### **5. Conclusion**

Dans les 5 années à venir, il existe un grand nombre de systèmes et scénarios à étudier en détail, de la neutronique fine du réacteur à l'étude plus globale du déploiement de la filière. Ces études par simulation commencent à sélectionner les voies intéressantes pour le futur. A l'horizon de 10 ans, il apparaît clairement qu'un couplage fort avec l'expérience doit être encouragé, qu'il s'agisse de physique des réacteurs expérimentales, ou de chimie de retraitement.

## **II. PHYSIQUE DES REACTEURS EXPERIMENTALE**

### **1. Retour d'expérience en matière de physique des réacteurs**

Depuis la loi Bataille de 1991 la contribution du CNRS, et plus particulièrement de l'IN2P3, à la physique des réacteurs expérimentale s'est concrétisée par sa participation à plusieurs programmes expérimentaux internationaux dédiés à la physique des ADSR (Accelerator Driven Systems), permettant de débiter une activité de recherche jusqu'alors conduite exclusivement par la DEN du CEA. Citons les expériences FEAT (First Energy Amplifier Test) puis TARC (Transmutation by Adiabatic Resonance Crossing) conduites par Carlo Rubbia au CERN de 93 à 96 dont les objectifs étaient respectivement de valider la capacité d'un ADSR (remis au jour au début des années 90) à produire de l'énergie, ainsi que celle à transmuter des produits de fission à vie longue. De 98 à nos jours citons enfin les expériences MUSE-3 et MUSE-4 (Multiplification d'une Source Externe) qui se sont déroulées auprès du réacteur maquette MASURCA (CEN Cadarache) couplé dans la phase la plus récente (MUSE-4, 2000-2004) à une source pulsée de neutrons (GENEPI, GENérateur de NEutrons Pulsée Intense) conçue et construite par l'IN2P3. Ce programme, qui touche actuellement à sa fin, avait pour principe l'étude de la neutronique d'un système sous-critique avec une source parfaitement définie, afin de découpler la physique de la cible de spallation (étudiée par ailleurs) de celle du milieu multiplicateur. En particulier il s'est attaché à la mise au point de techniques permettant la mesure absolue du niveau de sous-criticité, paramètre crucial de la sûreté de ce type de réacteur et la validation d'outils de référence (codes de calcul, données,...).

La participation à ces expériences a permis de s'impliquer concrètement dans la problématique des réacteurs d'une part, et d'autre part de se familiariser avec l'environnement contraignant d'un réacteur, tant dans la mise en place des expériences que dans la R&D associée (construction de GENEPI et de détecteurs dédiés). Au fil de ces travaux les équipes technique et de recherche impliquées ont apporté leurs savoir-faire en physique des accélérateurs et une approche expérimentale issue de la physique nucléaire fondamentale, et ont acquis en retour une expérience solide de l'environnement réacteur (à l'échelle de la recherche), leur

permettant de produire des résultats tout à fait pertinents aux yeux de la communauté scientifique concernée. Forte de cette reconnaissance l'IN2P3 peut aujourd'hui envisager de prendre part ou de mener des projets plus ambitieux dans ce domaine. Nous allons décrire les points essentiels méritant des études à venir.

## **2. Thèmes à développer**

Les thèmes à développer s'organisent autour de trois systèmes de réacteur ayant un rôle potentiel dans la perspective d'un renouvellement ou d'un développement de la production d'énergie nucléaire et ou la réduction des déchets nucléaires induisant une grande radiotoxicité.

### ***2.1. Les ADSRR (Accelerator Driven Subcritical Reactor)***

S'ils ne font pas l'unanimité dans le domaine d'une future production d'énergie (complexité du système pour un exploitant à grande échelle, aspects de sûreté non décisifs...) les ADSR restent cependant de sérieux candidats dans le domaine de l'incinération des actinides mineurs. C'est pourquoi ils font l'objet de plusieurs programmes expérimentaux en préparation.

Les techniques de contrôle de réactivité pour des installations de puissance significative restent un thème majeur d'étude. Le programme MUSE-4 ayant passé en revue les principales techniques et méthodes d'analyse disponibles et proposé de nouvelles méthodes donnant pour certaines d'excellents résultats dans le réacteur de faible puissance MASURCA (quelques watts), il est maintenant intéressant de les confronter à des installations plus puissantes. C'est l'objectif de l'expérience TRADE (TRIGA Accelerator Driven Experiment), qui se déroulera auprès du réacteur TRIGA de l'ENEA (Casaccia, Italie), de démontrer le fonctionnement d'un ADSR à un niveau de puissance significatif (quelques centaines de kW). Cette expérience représente une étape importante vers la réalisation d'un ETD (European Transmutation Demonstrator) tel qu'il est envisagé dans le programme PDS-XADS du 5<sup>e</sup> PCRD.

Cette expérience permettra de développer une instrumentation, des techniques expérimentales et les modes opératoires destinés à contrôler et maîtriser la réactivité d'un cœur sous-critique couplé à une source externe. A cet effet, les techniques issues des expériences MUSE seront adaptées et testées. La mesure des propriétés statiques et dynamiques des neutrons à l'intérieur du cœur, dans différents états de sous-criticité et avec différentes sources, permettra de caractériser la neutronique d'un système sous-critique thermique et de la comparer avec celle d'un système rapide (MUSE) (2005-2006).

Avec la source de spallation, seront étudiées les transitions entre régimes dominés par la source externe de neutrons et régimes dominés par la contre-réaction du cœur thermique. L'interaction entre la puissance du cœur et l'intensité délivrée par l'accélérateur (300  $\mu$ A, 140 MeV) sera explorée en faisant varier l'intensité du faisceau de protons. Ces études aideront à l'élaboration des procédures de démarrage et d'arrêt d'un ADSR, l'utilisation de barres de contrôle avec le réacteur TRIGA facilitant leur mise au point. L'impact des interruptions de faisceau sur le fonctionnement du cœur sera également exploré (2008-2009).

Un certain nombre de ces techniques pourraient naturellement ensuite être testées dans une installation comme MYRRHA (projet IBA et SCK-CEN en collaboration avec d'autres laboratoires européens) à l'horizon 2012. Ce projet de réacteur hybride de puissance intermédiaire (80 MW) prévoit de coupler un milieu sous-critique rapide refroidi au plomb-bismuth liquide à un accélérateur de protons LINAC de 350 MeV (5 mA) par l'intermédiaire d'une cible de spallation sans fenêtre de Pb-Bi. Les études de conception réalisées à ce jour par le SCK-CEN permettent d'ores et déjà d'engager un travail de simulation neutronique de ce réacteur et de faire des études relatives à la faisabilité des expériences mentionnées ci-dessus (de nombreux autres aspects peuvent faire l'objet d'études prospectives mais nous nous limitons ici à la composante neutronique).

Outre l'opportunité de développer ces techniques dans ces installations plus puissantes, un certain nombre d'autres aspects, comme la caractérisation dynamique de cœur ou la mesure de la fraction de neutrons retardés pour des compositions variables du combustible, pourraient être développés dans un réacteur comme MASURCA dans des configurations qui permettent l'utilisation de la source externe, c'est à dire sous-critiques.

### ***2.2. Les GFR (Gas Fast Reactor)***

Parmi les différents types de systèmes de réacteur envisagés pour un parc futur à l'horizon 2030-2040 (les réacteurs de génération IV), les réacteurs rapides caloportés au gaz sont prioritairement étudiés par le CEA, entre autres pour leurs qualités régénératrices de combustible (cycle U-Pu) et d'incinérateur

d'actinides mineurs. Il est envisagé par la DEN à l'horizon 2014 la construction sur le site de Cadarache du REDT, Réacteur d'Essai et de Développement Technologique d'une puissance limitée à 20-50 MWth, afin d'évaluer et de développer les technologies de base nécessaires à la réalisation d'un prototype de GFR inférieur à 300 MWth. C'est pourquoi un programme expérimental dédié à la filière gaz se met actuellement en place autour du réacteur MASURCA. Etant donné la forte implication de l'IN2P3 dans les études systèmes/scénarios à spectres rapides (entre autres, cf. rapport prospectives scénarios), il est tout à fait pertinent d'y associer une composante expérimentale. Le programme expérimental sur MASURCA actuellement projeté par les services concernés du CEA est destiné à qualifier les outils de simulation sur certains aspects innovants comme par exemple la présence de nombreux canaux vides (pouvant générer des fuites privilégiées de neutrons), l'utilisation de matériaux réfractaires pour le combustible (carbures, nitrures) et les structures (matrices SiC), l'utilisation de nouveaux matériaux réflecteurs (tels que  $Zr_3Si_2$ ). Sur un certain nombre de ces questions, en particulier sur le rôle accru du réflecteur lors d'un caloportage par le gaz, il nous semble intéressant de confronter nos codes de calcul à l'expérience d'une part, et d'autre part de mettre à profit les techniques éprouvées au cours du programme MUSE-4 s'appuyant sur l'excitation neutronique par la source pulsée externe pour caractériser le cœur et l'impact de ces nouveaux matériaux (la source externe étant encore opérationnelle dans un futur proche). Pour cela des configurations sous-critiques du cœur sont nécessaires. Une demande a été formulée dans ce sens auprès de la DEN/DER/SPEX, malheureusement elle n'a pas été retenue pour la première courte phase de ce programme (planifiée pour 2006) en raison de travaux importants sur le réacteur. Il nous semble néanmoins important de soutenir ce programme sous-critique pour la phase expérimentale suivante planifiée vers 2008, ce qui pose la question de la disponibilité opérationnelle de la source GENEPI à cette date (maintenance, survie de l'installation au cours des travaux de jouvence de l'installation). En complément des études sur les propriétés neutroniques des matériaux réflecteurs pourront être réalisées sur la plateforme de recherche PEREN (Plateforme d'Etude et de Recherche pour l'ElectroNucléaire).

### **2.3. La filière thorium**

Dans le cas d'un déploiement massif et/ou durable de l'énergie nucléaire à l'échelle mondiale les filières basées sur l'utilisation de l'uranium enrichi conduiraient à un épuisement inéluctable des ressources. C'est pourquoi les filières envisagées pour une production durable sont basées sur l'utilisation de minerai fertile comme l'uranium 238 ou le thorium 232 dans un mode impliquant la régénération du combustible. Les intérêts majeurs de la filière thorium sont la possibilité d'atteindre la régénération en spectre thermique ainsi que la moindre production d'actinides mineurs en raison de sa masse atomique plus faible.

Ce combustible mérite d'être étudié dans un réacteur de recherche. Il pourrait l'être dans une maquette comme MASURCA où l'on pourrait proposer d'étudier un mélange de MOX et de thorium. Un programme de mesures (statiques et dynamiques) avec un cœur d'une telle composition paraît être une étape incontournable en matière d'innovation sur les combustibles et de validation des calculs et données associées.

L'utilisation de ce combustible, qui permet la régénération en spectre thermique, nécessite cependant l'extraction des poisons neutroniques qui empêcheraient rapidement la régénération : cette opération est rendue possible par le retraitement en ligne d'un combustible liquide sous forme de sels fluorures. Cela est envisagé dans les réacteurs à sels fondus (RSF) qui font l'objet de multiples études depuis quelques années. Le combustible circulant dans une matrice de graphite (cœur du réacteur) ainsi que dans les échangeurs de chaleur, environ un tiers du volume du combustible se situe en permanence hors du cœur. L'étude détaillée du couplage neutronique et thermohydraulique d'un tel réacteur, en particulier pour le pilotage et la sûreté du réacteur, est cruciale. Ce travail de simulation débuté récemment devra se poursuivre. Il pourrait également s'appuyer sur des grandeurs expérimentales tirées d'une installation dédiée aux sels fondus. La réalisation d'une boucle de sels fondus à échelle réduite permettrait aux chimistes et physiciens concernés de tester et quantifier les données des procédés d'extraction et les données thermohydrauliques nécessaires aux codes de calcul utilisés dans les études de scénarios. Une telle boucle pourrait être installée à Grenoble où un laboratoire de pyrochimie dédié à ces recherches est déjà en cours d'équipement dans le cadre de la plateforme PEREN.

### **3. Conclusions**

Ayant débuté par la physique expérimentale relative aux ADSR, les activités en matière de physique des réacteurs expérimentale ont déjà apporté un certain nombre de réponses à la problématique posée grâce,

entre autres, au programme MUSE-4 réalisé sur un réacteur de recherche. On comprend alors l'importance de participer aux programmes expérimentaux sur des installations plus puissantes en cours de réalisation (TRADE) ou en projet pour l'XADS (MYRRHA). Ils permettront non seulement de maîtriser les techniques de contrôle de réactivité, de mieux comprendre le comportement dynamique d'un cœur sous-critique couplé à des sources de spallation ainsi que ses régimes transitoires lors des démarrages et arrêts du faisceau de protons, et de quantifier les contre-réactions thermiques.

Il est important de pouvoir étendre les investigations expérimentales aux particularités (matériaux réflecteurs, modérateurs, caloporteurs) d'autres systèmes envisagés pour le futur comme les réacteurs rapides à gaz, aussi bien qu'aux procédés chimiques entrant en jeu dans le retraitement en ligne du combustible des réacteurs à sels fondus, et en particulier de s'intéresser très fortement aux caractéristiques de la filière thorium.

Toutes ces études apportent non seulement une certaine expertise à notre communauté à la base non spécialiste de la physique des réacteurs, mais permettent aussi d'étayer les études systèmes et scénarios réalisées par simulation. Ces deux domaines doivent rester étroitement liés et en interaction permanente afin de définir les besoins physiques dans les domaines les plus innovants. De plus elles offrent l'opportunité aux personnels aussi bien scientifique que technique d'acquérir une « culture réacteur » qui permettra au CNRS de garder un rôle concret dans les futurs projets en matière de réacteurs nucléaires, en particulier si la construction d'un démonstrateur voit le jour. Il est donc nécessaire de garder un accès aux moyens expérimentaux à notre portée, et en particulier à un réacteur comme MASURCA dont la modularité et la possibilité de couplage à une source externe en font une installation expérimentale unique en Europe. Pour ce faire, la poursuite d'accords privilégiés entre le CEA et le CNRS est plus que souhaitable. Enfin, la réalisation des objectifs cités ci-dessus nécessitera des moyens humains et financiers plus importants que ce qu'ils étaient jusqu'alors. A ce jour, seules les équipes du LPSC et du LPC Caen sont directement impliquées dans les programmes expérimentaux. Il serait profitable que d'autres équipes engagées dans les études scénarios ou les mesures de données nucléaires directement liées aux systèmes, (IPNO, CENBG, SUBATECH...) se joignent à ces programmes.

# C- PHYSIQUE NUCLEAIRE POUR LES REACTEURS DU FUTUR ET AUTRES APPLICATIONS

## I. MESURES NEUTRONIQUES FONDAMENTALES

Les mesures neutroniques fondamentales concernent les réactions induites par des neutrons d'énergie comprise entre la région thermique (~25 meV) jusqu'à 20 MeV. Les processus qui nous intéressent sont : la diffusion élastique ou inélastique, la capture radiative, la fission ou bien si l'énergie est suffisante les réactions de type (n,xn).

La finalité de ces mesures s'inscrit dans la problématique des déchets nucléaires, ainsi que dans celle du nucléaire du futur. Les besoins en données nucléaires s'avèrent importants puisque ces problématiques mettent en jeu des matériaux et des domaines en énergie beaucoup plus vaste que ceux abordés jusqu'alors avec les réacteurs actuels.

### 1. Moyens disponibles : Techniques et Humains

Aucune machine ne permet encore à elle seule de produire des faisceaux de neutrons dans une gamme d'énergie qui s'étend de l'eV à plusieurs centaines de MeV. Les sources de production de neutrons peuvent être très nombreuses et variées quant à leur mode de production et des gammes d'énergie délivrées aux utilisateurs. Il s'agit d'un réacteur (ILL Grenoble) pour les neutrons thermiques ou d'un accélérateur d'électrons( IRMM-Geel) dont le rayonnement de freinage est utilisé pour produire (après ralentissement) des neutrons de résonance. Les accélérateurs du type Van deGraaff, Tandem ou cyclotron sont largement utilisés pour la production de neutrons rapides (de 0.1 MeV à plusieurs dizaines de MeV) .Depuis quelques années, les réactions de spallation induites par protons( 0.5 à1 GeV) permettent de produire des faisceaux intenses de neutrons dans une plage très étendue d'énergie (1eV à 400 MeV), c'est le cas de l'installation n\_TOF du CERN.

### 2. 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 sont coordonnées par le groupement de recherche GEDEPEON qui finance en partie la plupart des projets de recherche et dont certains font l'objet d'une vaste collaboration internationale ( Europe, USA et Russie). 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.

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

### 3. Les perspectives.

La poursuite des recherches concernant la transmutation des transuraniens et le développement des systèmes innovants (la filière Thorium, les réacteurs haute température,..)

nécessitent des données nucléaires : il s'agit d'améliorer les données existantes et d'en établir de nouvelles. Les besoins 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 (2005-2009). 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.

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,..)

## II. SPALLATION ET SYSTEMES HYBRIDES (ADSR)

L'objectif de ce sous-groupe est d'examiner les perspectives des études fondamentales et techniques concernant les cibles de spallation et leur environnement pour les réacteurs sous-critiques pilotés par accélérateur (ADSR).

## 1. Intérêt et perspectives des ADS

La poursuite du développement de l'énergie nucléaire nécessite de trouver une solution, acceptable par la société, pour la gestion des déchets nucléaires à vie longue. Dans le cadre de la loi Bataille de 1991, sont étudiés en parallèle le stockage, l'entreposage de longue durée et la transmutation des déchets en isotopes stables ou à vie courte. Les réacteurs sous-critiques pilotés par accélérateur (ADSR) constituent l'une des voies envisagées pour l'incinération des actinides mineurs. Ils font appel à un accélérateur de protons de haute intensité, bombardant une cible de spallation, généralement faite dans un matériau de numéro atomique élevé (W, Pb ou Pb-Bi). Les neutrons générés lors des réactions de spallation sont ensuite multipliés dans le réacteur sous-critique où ont lieu les réactions de transmutation. L'avantage principal de cette solution est de permettre l'utilisation de combustibles à haute teneur en actinides mineurs, assurant une incinération efficace, ce qui n'est pas possible dans des réacteurs critiques du fait de la dégradation des paramètres de sûreté (fraction de neutrons retardés, coefficients de température...) lorsque la concentration en plutonium ou d'actinides mineurs est importante. Quelques ADSR dédiés à l'incinération des actinides mineurs dans un parc de REPs et de RNRs pourraient suffire pour réduire de façon significative la radiotoxicité à long terme des déchets.

En Europe, est en train de se mettre en place le projet IP-EUROTRANS, dans le cadre du 6<sup>ième</sup> PCRD, dont l'objectif est la conception et l'étude de faisabilité d'un prototype d'ADSR. Ce projet réunit l'ensemble des acteurs européens dans les domaines des combustibles, matériaux, accélérateurs et données nucléaires pour les ADSR et vise une démonstration expérimentale de certaines composantes de l'ADSR afin de rassembler tous les éléments permettant de décider la construction éventuelle d'un démonstrateur européen lors du 7<sup>ième</sup> PCRD.

En ce qui concerne les études plus spécifiques liées au module de spallation, il s'agit d'évaluer et de démontrer la technologie des cibles de métal lourd liquide en termes de performances, de résistance aux dommages et de radioprotection, et d'estimer la tenue dans le temps des composants environnants comme la fenêtre ou le conteneur de la cible soumis à d'importants dommages ou à des problèmes de corrosion. Ceci nécessite un vaste ensemble d'études alliant la compréhension des mécanismes élémentaires des réactions de spallation, des tests de matériaux dans des conditions représentatives et des validations en vraie grandeur dans des cibles de spallation comme MEGAPIE.

Il est important de noter que les sources de spallation ont aussi beaucoup d'autres applications potentielles (caractérisation de matériaux pour l'industrie et la biologie, irradiation pour les réacteurs du futur, la fusion, l'industrie spatiale, production de faisceaux radioactifs, ...) qui pourraient bénéficier de ces études. Soulignons en particulier que des sources de spallation sont actuellement en construction aux USA (SNS) et au Japon (JPARC).

## 2. Etudes de base sur la spallation

L'objectif général est d'atteindre une compréhension détaillée du mécanisme physique de la spallation de façon à pouvoir prédire avec une précision suffisante et quantifiée toute quantité relative aux réactions de haute énergie (>20 MeV) dans un ADSR. En particulier, il est nécessaire de pouvoir déterminer les performances de la cible en terme de production de neutrons et d'estimer les problèmes spécifiques liés aux réactions de spallation comme par exemple les fuites de neutrons de haute énergie, les dommages aux matériaux dans la fenêtre et le conteneur de la cible, la radioactivité induite ou les modifications de composition chimique qui peuvent entraîner des problèmes de corrosion.

Ceci nécessite des outils de simulation fiables et validés. À cette fin il faut à la fois des mesures expérimentales de qualité qui permettent de comprendre les mécanismes et de contraindre les modèles de physique décrivant les réactions et des développements théoriques permettant d'améliorer ces modèles puis de les valider. Pour les énergies intermédiaires (20 -200 MeV), ces modèles servent à générer des bases de données évaluées tandis qu'aux énergies supérieures à 200 MeV, ils sont directement inclus dans les codes de transport utilisés par les concepteurs de sources de spallation.

### 2.1 Etat des lieux

Des progrès importants ont été faits au cours des dernières années grâce aux mesures et au travail sur les modèles réalisés dans le cadre du projet européen HINDAS et de GEDE(PE)ON, surtout en ce qui concerne la prédiction des neutrons et des résidus. Ces avancées importantes ont été accomplies grâce, notamment, à

l'approche globale développée au DAPNIA, alliant expérience, théorie et validation. Cependant, ces études ont aussi mis en évidence des domaines où les données expérimentales sont insuffisantes ou contradictoires ou que les modèles échouent à reproduire, domaines qui sont fondamentaux pour les applications, en particulier les dommages aux matériaux. C'est le cas des particules légères chargées (LCP), des fragments de masse intermédiaires (IMF), des résidus les plus légers et de la fission dans certains cas. La situation ne pourra être améliorée que grâce à des expériences plus exclusives de coïncidence entre différents types de particules qui devraient permettre de mieux comprendre les mécanismes manquants et de contraindre efficacement les modèles. Aux énergies intermédiaires, les modèles permettant de générer les bases de données ont aussi été améliorés grâce aux mesures expérimentales. La faisabilité des mesures en faisceau de neutrons incidents a été prouvée ce qui ouvre la voie à des mesures plus directement utiles pour les ADSR, les particules secondaires créées par les réactions de haute énergie étant essentiellement des neutrons.

### ***2.2 Perspectives à court et moyen termes (NUDATRA)***

Les expériences des équipes françaises en cours ou en projet à court terme se situent essentiellement à GSI-Darmstadt pour les hautes énergies et à Uppsala pour les énergies intermédiaires. Elle vise à répondre aux questions soulevées dans HINDAS : mesures de LCP et IMF, mesures de sections efficaces de fission, mesures en coïncidence plus contraignantes pour les modèles (systèmes légers seulement), mesures avec faisceaux de neutrons aux énergies intermédiaires de l'ensemble des voies de réaction sur les principaux éléments utilisés dans un ADSR afin de compléter les bases de données. Parallèlement, les développements théoriques sont poursuivis : prise en compte de la production de composites et IMF dans les modèles, amélioration de l'évaporation et de la fission. Ce travail se fera, partiellement étant donné les faibles ressources allouées, dans le cadre du sous-projet NUDATRA (Domain 5) du projet IP-EUROTRANS qui est un programme sur 4 ans. Il devrait permettre une prédiction plus fiable des performances et problèmes spécifiques de MEGAPIE, TRADE et autres projets de démonstrateurs.

### ***2.3 Perspectives à plus long terme***

Les dispositifs expérimentaux actuels ne permettent pas de réaliser des expériences complètement exclusives pour les systèmes lourds. Actuellement est à l'étude un dispositif alliant un aimant de grande acceptance (GLAD) et des détecteurs de traces (pour les particules chargées) de grande granularité qui permettrait ces expériences à GSI. Cet ensemble, qui intéresse aussi les physiciens de structure et dynamique nucléaire (collaboration R<sup>3</sup>B, voir sous-groupe "réactions nucléaires"), devrait être opérationnel en 2008-2009.

Les mesures en coïncidence avec cet ensemble à GSI devraient permettre de résoudre les problèmes spécifiques des noyaux lourds et d'aboutir à une compréhension complète des réactions de spallation. A cette date, on aura par ailleurs le retour des expériences MEGAPIE et TRADE qui auront permis de tester en vraie grandeur les prédictions des codes de simulation. Ceci devrait constituer une validation finale des modèles qui seront mis à la disposition d'outils de simulation comme MCNPX ou GEANT4 afin d'assurer une prédiction fiable des performances et problèmes spécifiques des réactions de spallation dans un futur ADS.

Par ailleurs, les expériences réalisées et les modèles développés seront aussi très importants pour la physique des mécanismes de réaction en général (synergie avec les sous-groupes "Réactions nucléaires" et "Matière, noyau, transport et transition" du groupe "Structure et Dynamique Nucléaire"), d'autres applications de la spallation comme l'astrophysique ou le spatial.

## **3. Développement des cibles de spallation:**

Objectif général: maîtriser la réalisation des cibles de spallation pour de futurs ADSR et d'autres domaines en recherche fondamentale ou applications industrielles nécessitant des sources de neutrons intenses.

L'approche pour atteindre cet objectif est une approche par étapes reflétées par les projets en cours et en préparation. Il s'agit de MEGAPIE et de la cible de spallation de TRADE avec, respectivement, la réalisation d'une première cible de spallation liquide et la caractérisation d'une cible de spallation au sein d'un cœur de réacteur à faible puissance.

L'étape suivante est le développement des cibles de spallation pour les XADS, notamment pour MYRRHA (XADS de max. 100kW(th)) et le ETD (European Transmutation Demonstrator de ~ 300kW(th)) de EUROTRANS du 6<sup>e</sup> PCRD.

### **3.1 La cible de spallation MEGAPIE**

MEGAPIE sera la première réalisation d'une cible de spallation en plomb - bismuth liquide. L'irradiation de la cible est prévue pour 2006 et l'analyse post irradiation (après une période de refroidissement) durera jusqu'en 2009.

A court terme jusqu'en 2006 la priorité des activités en physique nucléaire s'articulent autour de l'étude de sûreté menée pour et avec les autorités suisses. Un certain nombre de résultats de simulations (obtenus par FLUKA et MCNPX) sont à valider par des expériences spécifiques (par exemple, l'étude de la production des gaz volatiles avec l'expérience ISOLDE ...).

Pendant l'irradiation les caractéristiques neutroniques seront étudiées (ex. via les micro-chambres à fission à l'intérieur de la cible). L'analyse de la cible après irradiation permettra de tirer des enseignements sur les performances générales de la cible et de les comparer avec les prédictions initiales, concernant le comportement des matériaux, l'activation de la cible, le vieillissement, la production des résidus de spallation ...

### **3.2 La cible de spallation pour TRADE**

La recherche qui s'articule autour de la cible de spallation pour TRADE a pour objectif la caractérisation et le monitoring de la source de neutrons (l'IN2P3 est responsable du work-package correspondant dans EUROTRANS).

A court terme il s'agit de mener une campagne expérimentale réalisée auprès du réacteur TRIGA (sans cible de spallation), campagne qui s'arrêtera à la fin de l'année 2004. Ces mesures permettent d'établir la distribution du flux de neutrons dans différentes configurations du réacteur, comme point de référence pour la suite du développement.

Ces mesures reprendront en 2007 après la construction de TRADE, avec le faisceau et un "mock-up" de la cible de spallation, puis en 2008 avec la vraie cible dans le cœur du réacteur.

Ce travail est mené en parallèle avec une forte implication dans le domaine de la physique des réacteurs, comme participer à la mise au point de procédures de contrôle, à la maîtrise du couplage accélérateur - cœur, ...

### **3.3 Les cibles de spallation pour MYRRHA et ETD**

A partir du retour d'expérience des projets MEGAPIE et TRADE, différents concepts de cible de spallation sont à étudier pour les futures XADS. Un ensemble de simulations nucléaires sera nécessaire pour déterminer les grandeurs physiques pertinentes qui serviront à la conception de la cible, à l'étude de sûreté, à l'estimation de la durée de vie de la cible, à l'étude d'impact sur les caractéristiques du cœur, ...

Le travail de simulation doit être fortement soutenu par un programme de recherche expérimentale et un développement théorique des codes de simulation pour identifier et, si possible, minimiser les incertitudes.

### **3.4 Conclusion**

Ces travaux de développement, avec comme objectif final la réalisation des cibles de spallation, nécessitent de réunir les compétences au sein des organismes, à la fois des équipes de chercheurs et des ingénieurs en bureau d'études. Par ailleurs cette recherche ne peut se faire qu'en étroite collaboration avec nos autres partenaires nationaux (CEA, CNRS, Framatome...) et internationaux (6<sup>e</sup> PCRD, accords bilatéraux ...)

## **4. Conclusions**

L'ensemble des études évoquées dans ce document sont faites dans le cadre de collaborations Européennes dans lesquelles les laboratoires du DAPNIA et de l'IN2P3 sont parfaitement intégrés et ont chacun leur spécificité reconnue. Ces collaborations réunissent d'ailleurs beaucoup plus largement aussi des physiciens, chimistes et ingénieurs d'autres directions du CEA, d'autres départements du CNRS ou de l'industrie.

Il paraît par contre important de veiller à ce que les moyens expérimentaux nécessaires à ces études qui se trouvent tous à l'étranger soient disponibles: faisceaux de neutrons (Uppsala, Louvain), machines de haute énergie (GSI, COSY) avec systèmes de détection appropriés, éléments de démonstration ou de qualification comme MEGAPIE ou TRADE. Ceci nécessite une implication claire et pérenne des équipes françaises. En particulier, il est important de se positionner rapidement et fortement (en partenariat avec les groupes de structure et dynamique nucléaire) dans le projet du futur GSI.

L'ensemble de ces études ne pourra se faire et les équipes n'auront d'impact au niveau international que si les groupes impliqués ont des moyens humains et financiers suffisants.

### III. PHOTOFISSION ET AUTRES NOUVELLES APPLICATIONS

Les nouvelles possibilités offertes par la photofission ainsi que toutes les autres méthodes innovantes d'interrogation à distance, telles que la détection de neutrinos, suscitent depuis plusieurs mois un engouement certain chez beaucoup de chercheurs et un regain d'intérêt largement motivé par un contexte international tendu. Et il nous appartient, en tant qu'organismes publics scientifiques et technologiques, de répondre à ces questions sociétales. Parmi les différents acteurs se préoccupant de cette thématique (CEA/DRT, CEA/DAM, DGA), le DAPNIA apparaît déjà très bien armé pour apporter sa pierre à l'édifice de recherche, grâce aux méthodes éprouvées et aux outils de détection performants empruntés à la recherche fondamentale. Aussi, l'approfondissement des connaissances des processus de la photofission (tels que les produits de fission ou les spectres d'émission des neutrons retardés) sera un atout majeur pour améliorer les systèmes de détections actuels. Ce résumé fournit une vue globale et succincte des perspectives offertes par des études de recherche fondamentale sur la photofission. Il y est notamment montré la nécessité d'expériences de base spécifiques sur le sujet. Ensuite, des applications directes existantes ou potentielles sont décrites, essayant à chaque fois de faire ressortir le lien fort reliant les axes d'études aux besoins des différentes applications. Enfin nous évoquerons les potentialités des mesures des anti-neutrinos pour la détection des matières nucléaires dites « sensibles ».

#### 1. Amélioration des connaissances en physique fondamentale

Le mécanisme de la photofission (fission induite par des photons énergétiques) a été longuement étudié dans les années 60-80 grâce aux accélérateurs de particules (notamment à l'ALS – Accélérateur Linéaire d'électrons de Saclay). L'excitation de la Résonance Géante Dipolaire (RGD) dans quasiment tous les noyaux atomiques peut entraîner des réactions photo nucléaires avec des sections efficaces importantes pouvant atteindre jusqu'à plusieurs centaines de millibarns. En particulier, tous les actinides, y compris ceux qui ne sont pas fissiles, peuvent fissionner sous l'impact de photons d'énergie suffisante. Le seuil de la photofission est typiquement compris entre 5 et 7 MeV. Il subsiste cependant à l'heure actuelle plusieurs aspects fondamentaux qui n'ont pas été étudiés ou mesurés. Par exemple, le nombre de neutrons (prompts) émis par photofission n'a été mesuré que pour quelques noyaux ( $^{238}\text{U}$  ou  $^{239}\text{Pu}$ ). Bien davantage, n'a été mesuré le plus souvent que le nombre total de neutrons par réaction photo nucléaire sans séparer les contributions du type  $(\gamma, n)$  et  $(\gamma, 2n)$  de la photofission pour laquelle l'on attend a priori une émission de neutrons répartie de manière isotrope. Il est donc important pour l'analyse et la compréhension des phénomènes physiques (mais aussi, comme nous le verrons plus loin, pour certaines applications) de pouvoir correctement caractériser les neutrons émis avec une mesure à la fois angulaire et énergétique. Il faudra pour cela tenter de développer un détecteur de neutrons spécifique qui permettrait non seulement le comptage des neutrons dans une direction donnée mais aussi de fournir simultanément son énergie. Il serait également souhaitable de connaître les produits de fission générés par photofission. Ceci est d'autant plus important pour deux des applications décrites plus loin. En effet, non seulement les produits de fission par photofission peuvent être différents de ceux obtenus par fission classique, mais pour certains d'entre eux, la différence peut être très importante. Ce sera le cas par exemple des noyaux formés très loin de la stabilité (généralement des noyaux très riches en neutrons et très exotiques) et de certains produits de fission émetteurs de neutrons. Or ce sont précisément ceux-là mêmes qui sont à l'origine des neutrons retardés utilisés pour la caractérisation des déchets nucléaires. Afin de recouper les informations, il faudra donc se baser sur des modèles théoriques. Des collaborations sont en cours d'élaboration avec des groupes de physique (GSI, LANL) pour la partie théorique ainsi qu'avec des laboratoires disposant d'un accélérateur d'électrons et des installations adaptées aux mesures de la photofission (CEA/DAM, Dresde).

#### 2. Applications présentes ou futures

Une très grande variété d'applications directes utilisant la photofission sont soit d'ores et déjà en application soit envisagées dans un futur proche. Elles peuvent être regroupées en trois grandes familles distinctes : la caractérisation de matières nucléaires, les générateurs de neutrons et la production d'isotopes radioactifs.

## 2.1 La caractérisation

La photofission est mise à profit pour le contrôle non destructif de blocs de déchets nucléaires. En effet, en utilisant un faisceau d'électrons, on peut aisément créer des gammas de bremsstrahlung dans un matériau de Z élevé (par exemple du tungstène). Ce flux de gamma servira de sonde non destructive pour tester un colis renfermant des déchets nucléaires. En mesurant la quantité de neutrons retardés émis par le colis après le bombardement du faisceau, on pourra estimer la quantité d'actinides présents dans le colis sans le détruire. C'est une application qui nécessite la connaissance des produits de fission générés par photofission. L'utilisation actuelle souffre d'un manque de sensibilité pour pouvoir accéder aux limites faible activité (FA) et très faible activité (TFA) pouvant orienter les colis sur les sites de l'ANDRA (Centre de stockage de l'Aube ou OMEGATECH). En conséquence, la DSM a proposé, en collaboration avec une autre direction du CEA (la DRT), une étude détaillée devant permettre d'abaisser significativement les seuils de sensibilité afin d'atteindre les objectifs ci-dessus. Cette application est très importante car il a été établi qu'elle est susceptible de générer des économies déjà substantielles sur les seuls déchets B du CEA. Bien entendu, elle pourrait être applicable à tout type de colis de déchet nucléaire contenant des actinides soit ne pouvant être testé par d'autres méthodes (comme la spectrométrie gamma) soit venant en complément et en appui de celles-ci. De plus, dans le cas où les études sur les isotopes se révéleraient positives, elles ouvriraient alors la voie à une identification isotopique du déchet (composition du noyau actinide), ce qui décuplerait fort probablement la puissance, l'utilité et l'emploi de cette technique dans le futur.

Une autre application pouvant relever de la même rubrique de caractérisation et de contrôle non destructif est la détection de matières nucléaires sensibles. En effet, les exigences actuelles de non-prolifération nucléaire et les craintes liées au contexte politique international sont de plus en plus orientées vers la nécessité de disposer d'outils pouvant permettre la détection fine de matières nucléaires. Certes, certains isotopes peuvent être aisément identifiables par spectrométrie gamma, notamment ceux qui sont émetteurs de photons énergétiques. Mais quid des noyaux uniquement émetteurs  $\alpha$  ou de  $\beta$  très peu énergétiques? Ils peuvent être aisément blindés et quasiment indétectables dans un colis à grand contenu de matière. Or il est essentiel de contrôler et de limiter le trafic de ces matières. La photofission, qui est une interrogation active pourrait fournir une solution à cette détection.

## 2.2 Les sources de neutrons

Les réactions photo nucléaires, particulièrement sur les noyaux lourds et les actinides, présentent des sections efficaces suffisamment intéressantes au niveau de la RGD pour pouvoir les envisager comme sources de neutrons potentielles. A titre d'exemple, chaque photofission sur l' $^{238}\text{U}$  produira environ 3.6 neutrons pour un gamma incident de 15 MeV). Les neutrons émis sont contrôlés en quantité (et en énergie) par le courant (et l'énergie) de l'accélérateur d'électrons utilisé. C'est donc une source qui peut être très facile d'utilisation et d'autant plus intéressante qu'elle ne requiert ni l'utilisation d'une grande quantité de matière, ni même l'utilisation de matière réellement fissile. Une utilisation possible d'une source de neutrons basée sur la photofission serait un petit irradiateur baptisé "mini-irradiateur". Ce concept a été proposé par le DAPNIA/SPhN en collaboration avec le SERMA. L'objectif du mini-irradiateur est de pouvoir disposer d'un outil pour tester les matériaux pouvant entrer dans la composition des réacteurs du futur. Cet outil, d'un coût nettement réduit comparativement à un véritable réacteur d'irradiation (RJH), pourra être très utile pour défricher les différentes voies d'études des futurs réacteurs à haute température.

Une autre application possible est illustrée par le Réacteur dit à Bêta Compensé (RBC). Cette idée originale, également proposée par le DAPNIA/SPhN en collaboration avec le service DER/SERI à Cadarache, consiste à utiliser les neutrons générés par photofission en lieu et place des neutrons retardés d'un réacteur nucléaire. En effet, le pilotage d'un réacteur nucléaire critique se fait réellement grâce aux neutrons retardés de l'uranium (jusqu'à 650 pcm dans un REP). Cependant l'ajout d'une grande quantité de plutonium ou d'actinides mineurs réduit dangereusement ce nombre de neutrons retardés. Cela rend d'autant plus délicat le pilotage d'un réacteur principalement chargé en actinides mineurs. Par contre, si les neutrons additionnels sont fournis par une source extérieure, le pilotage devient immédiatement aisé, même en l'absence totale de neutrons retardés. Nous avons montré qu'un accélérateur d'électrons frappant une cible centrale en uranium pouvait fournir le nombre adéquat de neutrons retardés et cela pour un surcoût du prix de construction du réacteur très modique (de l'ordre de 2%). Bien que le coût de revient d'un neutron de photofission soit plus élevé qu'un neutron de spallation, le fait qu'un accélérateur d'électrons soit nettement plus souple et moins

onéreux qu'un accélérateur de protons de forte puissance rend la solution photofission attractive pour les faibles sous-criticités.

### 2.3 La production d'isotopes

La génération d'isotopes radioactifs est recherchée tant pour la physique nucléaire fondamentale que pour des applications diverses et multiples (l'application la plus connue étant l'utilisation médicale des radio-isotopes). La physique nucléaire cherche à produire, identifier puis étudier les noyaux situés de plus en plus loin de la vallée de stabilité. Nous avons donc suggéré l'utilisation de la photofission pour la production d'ions très exotiques. Un avant-projet sommaire qui a très clairement démontré la faisabilité technique du projet a été établi en collaboration avec le GANIL dans le cadre du projet SPIRAL II. Cependant, même si le comité de direction de GANIL a finalement préféré choisir l'option d'un accélérateur de deutons pour le projet SPIRAL II, d'autres laboratoires dans le monde (citons Oakridge aux USA, Rossendorf en Allemagne ou Dubna en Russie) envisagent sérieusement à présent de recourir à la photofission pour la production d'ions exotiques. De même, le laboratoire de l'IPN d'Orsay a décidé de choisir très précisément la technique de la photofission dans le cadre du projet ALTO pour la génération et l'étude d'ions radioactifs.

### 3 Le contrôle des installations nucléaires par la mesure des anti-neutrinos

L'AIEA a récemment organisé un colloque à Vienne sur les *possibilités offertes par les antineutrinos pour contrôler les installations nucléaires*. Les conclusions de ce colloque font clairement ressortir les bénéfices que ces particules pourraient offrir en termes de nouvelle méthode de détection et de contrôle. Il se trouve en effet que le spectre des antineutrinos émis (par désintégrations  $\beta$ ) à l'issue de la fission d'un noyau de plutonium 239 est moins énergétique que celui de ceux émis à l'issue de la fission d'un noyau d'uranium 235. Le nombre moyen d'antineutrinos est lui aussi différent, de sorte qu'un simple comptage permettrait en outre de remonter à la puissance du réacteur. Il y aurait donc là un moyen permettant *en principe* de discriminer entre un fonctionnement fortement plutonigène et un autre qui ne le serait pas. L'AIEA a fait l'inventaire des scénarios malveillants permettant la production « discrète » de plutonium dans une centrale nucléaire. À chacun correspond une *signature* en termes d'antineutrinos bien précise (flux, spectres énergétiques, évolution temporelle). Un détecteur efficace d'antineutrinos permettrait donc de repérer les situations litigieuses ou mensongères.

Afin de répondre à ces questions, les acteurs de la recherche fondamentale française ont été sollicités. L'expertise acquise par plusieurs groupes (« mesures neutrino » au DAPNIA/SPP, « mesures neutroniques » au DAPNIA/SPhN et « aval du cycle » à SUBATECH/Nantes), permet d'envisager sérieusement une participation de nos deux organismes à cette thématique de recherche et notamment à la collaboration internationale « Double Chooz ». Cette expérience, qui vise à améliorer la connaissance de l'angle de mélange  $\theta_{13}$ , requière une connaissance très précise des flux de neutrinos émis par les cœurs des réacteurs et exige un suivi précis du taux de combustion tout au long de l'expérience. Des modélisations de l'évolution du combustible seront entreprises pour connaître les parts respectives de l' $^{235}\text{U}$  et du  $^{239}\text{Pu}$ , mais aussi de l' $^{238}\text{U}$ , dans les fissions. Des simulations seront également menées permettant de voir la faisabilité d'une détection – à des fins de contrôle de la non-prolifération – des antineutrinos au voisinage des réacteurs nucléaires. À partir de quelques scénarios typiques proposés par l'AIEA, on pourrait par exemple estimer le pouvoir discriminant de cette technique et dimensionner les détecteurs de neutrinos qu'il faudrait utiliser à l'avenir.

D'un point de vue expérimental, il faudra améliorer notre connaissance des spectres d'émission des antineutrinos. Pour cela, un programme expérimental est proposé à l'ILL, qui consiste à mener des mesures intégrales de spectres  $\beta$  pour différents isotopes fissiles et pour différents temps de refroidissements. En s'appuyant sur le dispositif expérimental de Mini-INCA (spectroscopie  $\gamma$  et  $\alpha$  d'échantillons irradiés), il est proposé de développer un spectromètre  $\beta$ . En déconvoluant les spectres  $\beta$  individuels de chaque PF à la distribution intégrale on pourra ainsi étudier les différentes sensibilités du spectre neutrino aux caractéristiques et à l'historique du combustible.

### 4. Perspectives

Les actions de recherches finalisées concernant le thème de la non-prolifération des matières nucléaires, tout comme celui de la sécurité nucléaire en général, vont prendre de plus en plus d'importance dans les années à venir. Il nous est donc demandé, à nous, acteurs de la recherche fondamentale française, de répondre aux préoccupations légitimes de nos concitoyens et de nos autorités. En collaboration étroite avec les autres

directions technologiques du CEA (DRT et DAM), le DAPNIA et l'IN2P3 devront prendre une place active dans les recherches amont sur ces thématiques par le développement de nouveaux détecteurs et de techniques expérimentales innovantes, et l'approfondissant nécessaire des connaissances des processus physiques mis en jeu.

### Moyens financiers (hors salaires et contrats extérieurs)

F = soutien de base en k€/an

I = investissement en k€ intégré sur la durée

C = contrats extérieurs, \* hors salaires

Thématique	DAPNIA	IN2P3							
		CENBG	CSNSM	IReS	IPNL	IPNO	LPC	LPSC	Subatech
Etudes de scénarios	Actuel	F10				F30		F10	F0
	<b>Souhaité</b>	<b>F20</b>	<b>F10+110</b>			<b>F30</b>		<b>F10</b>	<b>F20</b>
Physique des réacteurs	Actuel		0					F25	
	<b>Souhaité</b>		<b>F20</b>			<b>F20+I?</b>		<b>F15+140</b>	<b>F20</b>
XADS/Spallation	Actuel	F75				F4 + 111			F15
	<b>Souhaité</b>	<b>F80+11100</b>				<b>F10+ 1500</b>		<b>F15+140</b>	<b>F50+1100</b>
Données nucléaires	Actuel	F110	F50			F20+C60+1145	F25	F5	F0
	<b>Souhaité</b>	<b>F80+1200</b>	<b>F50</b>			<b>F20</b>	<b>F25+150</b>	<b>F10</b>	<b>F10</b>
Photofission et autres applications	Actuel	F10							
	<b>Souhaité</b>	<b>F30+160</b>							
Radiochimie	Actuel		F24+C50+125	F55+C38+174	F20+C30+130	F55+C115+170			F25+C265+140
	<b>Souhaité</b>		<b>F40+1150</b>	<b>F85+1300</b>	<b>F60+1200</b>	<b>F100+1250</b>			<b>F60+ 1390</b>
Métrologie- environnement	Actuel			F10+C45+1200		F30+160	F3+C3		F20+C*120+175
	<b>Souhaité</b>			<b>F20+C90+150</b>		<b>Accréditation?</b>	<b>F10+150</b>		<b>F30+C*200+150</b>
<b>TOTAL</b>	Actuel		F50				F50		
	<b>Souhaité</b>		<b>F80+110</b>				<b>F55+1120</b>	<b>F50+11000</b>	

## Moyens humains

		ic = chercheurs CEA (hors services techniques)				ce = chercheurs CNRS + enseignants/chercheurs université				it = ITA CNRS		np =	
		non permanents (thésards+postdocs+visiteurs)											
Thématique		IN2P3										Tot IN2P3	
		DAPNIA	CENBG	CSNSM	IReS	IPNL	IPNO	LPC	LPSC	Subatech			
Etudes de scénarios	Actuel	1ic + 2np	0				3ce+3np			5ce+2np		0,5ce	8,5ce+5np
	<b>Souhaité</b>	<b>2ic + 4np</b>	<b>1ce</b>				<b>3ce+3np</b>		<b>2ce+1np</b>	<b>4ce+2np</b>		<b>0,5ce+1np</b>	<b>10,5ce+7np</b>
Physique des réacteurs	Actuel		0					2,5ce		3ce+1np			5,5ce+1np
	<b>Souhaité</b>		<b>2ce+1np</b>				<b>2,5ce+1np</b>		<b>2ce+1np</b>	<b>4ce+1np+1it</b>			<b>13,5ce+5np+1it</b>
XADS/Spallation	Actuel	5ic + 2np					1ce + 1,5np					1ce+0,5np+3it	2ce+2np+3it
	<b>Souhaité</b>	<b>7ic + 4np</b>					<b>3ce + 1 it + 2np</b>		<b>2ce+0,5np</b>			<b>2ce+1np+4it</b>	<b>7ce+3,5np+5it</b>
Données nucléaires	Actuel	4ic + 3np	5ce+2np				3ce+1np			2ce+1np	1ce+1np	0,5np	13,5ce+6,5np
	<b>Souhaité</b>	<b>5ic + 6np</b>	<b>4ce+1np+1it</b>				<b>2,5ce+1np</b>			<b>1ce+0,5np</b>	<b>2ce+1np+1it</b>	<b>1ce+1np</b>	<b>12,5ce+5,5np+2it</b>
Photofission et autres applications	Actuel	2ic + 2np											
	<b>Souhaité</b>	<b>5ic + 9np</b>											
Radiochimie	Actuel			4ce+1it+2np	8ce+4it+4np	5ce+2it+4np	10ce+2it+10np					4ce+4it+11np	31+13it+31np
	<b>Souhaité</b>			<b>7ce+2it</b>	<b>10ce+6it+6np</b>	<b>6ce+2it+5np</b>	<b>11ce+4it+10np</b>					<b>7ce+9it</b>	<b>40ce+14it+21np</b>
Metrologie-environnement	Actuel				1ce+8it+2np		8it		1ce+1it			10it+1np	2ce+27it+3np
	<b>Souhaité</b>				<b>3ce+12it+6np</b>		<b>8it</b>		<b>1ce+1it+1np</b>			<b>1ce+13it</b>	<b>5ce+34it+7np</b>
<b>TOTAL</b>	Actuel	12ic + 11np	5ce+2np	4ce+1it+2np	9ce+12it+6np	5ce+2it+4np	16ce+3it+15,5np	6ce+1it+1np	9ce+4np	5,5ce+17it+13np	62,5ce+48,5np+53it		
	<b>Souhaité</b>	<b>19ic + 25np</b>	<b>7ce+2np+1it</b>	<b>7ce+2it</b>	<b>13ce+18it+12np</b>	<b>6ce+2it+5np</b>	<b>22ce+5it+18np</b>	<b>8ce+1it+4np</b>	<b>10ce+2it+4np</b>	<b>11,5ce+26it+3np</b>	<b>88,5ce+49np+56it</b>		