

THÈSE

présentée pour obtenir

LE GRADE DE DOCTEUR EN SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS XI

par

Olivier DÉRUELLE

“Mise au point d'un système de spectroscopie pour mesurer des sections efficaces neutroniques applicables à un possible développement du nucléaire comme source d'énergie”

Soutenue le 9 septembre 2002 devant la commission :

J-L. BASDEVANT	Président
M. SPIRO	Directeur de thèse
B. HAAS	Rapporteur
J. MARTINO	Rapporteur
J-P. SCHAPIRA	
G. FIONI	

TABLE DES MATIÈRES

<i>Introduction</i>	1
<i>Chapitre I. De l'énergie et de l'environnement à l'aube du 21^e siècle</i>	5
I.A. Généralités sur l'énergie	6
1. Une société en évolution	6
2. Les sources d'énergie	7
3. Classification des filières énergétiques.....	8
4. Questions pertinentes	10
I.B. Les réactions nucléaires, la fusion	13
1. Introduction aux réactions nucléaires	13
2. Les réactions de fusion et le confinement.....	14
3. La recherche aujourd'hui	17
4. La fusion une source d'énergie ?	17
I.C. Les énergies renouvelables	19
1. Le solaire.....	19
2. La biomasse	21
3. L'éolien	23
4. La géothermie	26
5. L'hydraulique.....	27
6. Conclusion sur les énergies renouvelables	28
I.D. La fission et le nucléaire civil	28
1. Principes physiques.....	28
2. Les réacteurs	30
3. Aspects socio-économiques	32
I.E. Dangers du nucléaire et déchets	34
1. La radioactivité : effet sur l'être humain.....	35
2. Les déchets nucléaires.....	36
3. Stockage et transmutation	38
Conclusion	41
<i>Chapitre II. Déchets nucléaires et Mox thorium plutonium</i>	<i>42</i>
II.A. Déchets nucléaires et transmutation	43
1. Déchets nucléaires	43
2. La transmutation	46
3. La problématique des sections efficaces.....	48

II.B. Thorium et plutonium	51
1. Le plutonium.....	51
2. Le thorium.....	55
3. Mox thorium plutonium.....	58
II.C. Étude d'un combustible Thorium-Plutonium pour les REP	60
1. Hypothèses de simulations.....	60
2. Situations initiales.....	63
3. Évolution.....	64
4. Bilan matière et radiotoxicité.....	67
5. Sensibilité aux paramètres	69
6. Mise en perspective des simulations.....	71
Conclusion	72
<i>Chapitre III. Détermination expérimentale des sections efficaces, le projet Mini-Inca.....</i>	73
III.A. Incinération de l'américium 241 par neutrons thermiques	74
III.B. Le projet.....	76
1. Mesurer des sections efficaces.....	76
2. Le projet Mini-Inca	77
3. Présentation des irradiations dans H9	79
4. Plan de l'étude.....	80
III.C. Détecteurs et blindages.....	81
1. Détecter la radioactivité : quelques principes	81
2. Les familles de détecteurs.....	82
3. Les détecteurs à semi-conducteurs.....	82
4. Les systèmes de mesure α et γ	83
5. Nécessité d'un blindage	85
6. Lohengrin et microchambres	87
III.D. La mesure du flux	90
1. Le flux : définitions et précisions.....	90
2. Analyse et équations de la méthode utilisée	93
3. Perspective avec nos conditions expérimentales	97
4. Cas du cobalt.....	99
5. Les décisions techniques.....	99
III.E. Les cibles.....	101
1. Définitions, objectifs et problématiques	101
2. Le dépôt actif	101
3. Le support et la question des produits de fission.....	104

III.F. L'intégration des mesures : la chambre.....	108
1. Présentation, définition	108
2. Principales contraintes	108
3. Description de la chambre	109
Conclusions.....	112
Chapitre IV. Les expériences.....	113
IV.A. La spectroscopie dans la chambre, une trivialité théorique ?	114
1. Question d'angle solide.....	114
2. Question d'efficacité.....	119
3. Question de surface des raies.....	122
4. S'affranchir de l'angle solide ?	124
IV.B. Étalonnages et premières mesures	127
1. Dispositifs expérimentaux	127
2. Sources, étalonnages	129
3. Les premières irradiations.....	134
4. Exemple de détermination du flux.....	138
5. Conclusion des premières mesures	140
IV.C. Les expériences.....	142
1. Mesures avant irradiation.....	142
2. Irradiation.....	144
3. Les flux	146
4. La mesure gamma de l'américium 244.....	148
5. Mesure alpha de la cible d'américium 243	151
6. Mesure α de la cible de plutonium 242	155
7. Les sections efficaces.....	157
8. Conclusions techniques.....	161
Conclusion	163
Conclusion	165
Bibliographie.....	169
Annexe A : publication associée	175

AVANT-PROPOS

Une thèse n'est pas seulement une aventure professionnelle mais aussi et surtout une tranche de vie de 4 ans (puisque mon arrivée au CEA a précédé celle en DEA!). Dans ces traditionnelles pages de remerciement, dernières à être ajoutée à ce document, j'ai voulu mettre ce que je garde de cette thèse d'un point de vue personnel, et non professionnel. Ce point est très important et se reflète dans le style et le message transmis. Pour ceci, " *mina, gomen-nasai* ".

“Je commençais à envisager de rédiger ma thèse. C'était une entreprise que je redoutais, car le style obligatoirement employé dans ce cas est affecté à l'extrême, et comme cela faisait neuf ans déjà que je m'efforçais de bien écrire, j'avais tout simplement peur de ne pas savoir écrire assez mal pour être reçu.[...] L'idée me vint cependant que je pourrais écrire plutôt une fausse thèse de doctorat, histoire de me faire la main en m'exerçant à un style affecté. Et je lui donnais même le genre de titre à rallonge dont les chercheurs sont si friands”
Isaac Asimov, préface à *Thiotimoline*

“Les sujets de thèses m'ont toujours amusé et attendri : c'est mignon, ces étudiants qui, pour imiter les grands, écrivent des sottises dont les titres sont hypersophistiqués et dont les contenus sont la banalité même, comme ces restaurants prétentieux qui affublent les oeufs mayonnaises d'appellations grandioses”.

“Apprenez, petit avatar, que si la conjugaison n'existait pas, nous n'aurions même pas conscience d'être des individus distincts, et cette sublime conversation serait impossible”
Amélie Nothomb, *Hygiène de l'assassin*

“don't try, do - or do not! There is no try!”
Yoda

“To live is to change”
Evangéliste

REMERCIEMENTS

*“J’adore les illusions dont vous vous bercez pour préserver votre bonne conscience”
Amélie Nothomb, Hygiène de l’assassin*

Je souhaiterais avant tout remercier Michel Spiro qui m’a accompagné du début à la fin, de professeur à L’X à directeur de thèse. Bien que fort occupé il a toujours trouvé le temps que je lui réclamais et il est le seul à avoir su de manière constructive et avec compétence m’accompagner dans l’ensemble de ce travail. C’est sous l’influence de Jean-Louis Basdevant que mon intérêt pour les questions d’énergie et d’environnement s’est développé. Je le remercie du fond du cœur de m’avoir donné cette impulsion initiale, de m’avoir permis de la transmettre par mon enseignement à l’X et de la conclure en tant que président de jury.

Jean-Paul Schapira fut aussi parmi mes professeurs et je le remercie de m’avoir fait partager son enthousiasme pour le thorium et d’avoir accepté de faire partie de mon jury. Je remercie Bernard Haas pour ses nombreux commentaires, pour son attitude amicale et pour avoir été rapporteur de ce travail, sans même me connaître.

Un grand merci à Jacques Martino qui malgré ses responsabilités a accepté d’être membre de mon jury ainsi que rapporteur de cette thèse, après avoir été chef de service au DAPNIA. Nicolas Alamanos a poursuivi ce rôle en me prêtant une oreille disponible et à travers eux, je remercie ceux du service qui m’ont soutenu. Une pensée à Gille et surtout Danielle, sans qui le service ne serait plus lui-même. Un dernier mot pour les imprimantes et photocopieuses, et surtout à mon Phnpc01, avec qui j’ai tant partagé ;-). Tchao!

Bien sûr mes pensées vont plus particulièrement au groupe INCA du DAPNIA :

je remercie Danas pour ses compétences, son écoute et nos échanges (jamais rien pour rien). L’utilisation de MCNP et de Monteburns lui doit beaucoup ;

je remercie Stéphane, qui a accueilli avec quelque patience mes premiers balbutiements ; et Michel Cribier qui m’a aidé à les rédiger et conclure ;

je remercie Alain pour son expérience partagée et Gabriele pour ce rôle qu’il s’est donné et pour avoir “accepté” de faire partie du jury.

je soutiens Manssour, avec qui j’ai partagé un bout de galère (romaine, s’entend). Courage, je sais que c’est dur de travailler dans ces *conditions*

je remercie Frédéric, avec qui j’ai beaucoup partagé, du bureau à quelques passions. Ma cave s’en souvient, et j’espère que ton bridge se souviendra parfois de nos discussions...

Je veux aussi exprimer ma gratitude aux services techniques de Saclay ; à Christian Veysièrre, bien sûr qui a su avec compétence diriger ce projet, mais aussi à Thierry pour sa gentillesse, à Nathalie pour sa joie de vivre et tous ceux que j’ai croisés et qui ont participé à la construction de ma "chambre à réactions".

La partie expérimentale n'aurait pu avoir lieu sans la participation du personnel de l'ILL, en particulier Herbert, Dimitri, Norbert et Wayne, je les en remercie du fond du cœur ainsi que pour leur accueil. J'adresse aussi mes remerciements aux sponsors grenoblois du projet, restaurants et bar bien utiles pour le confort moral et à la préparation des nuits de mesures.

Bien sûr je veux remercier toute les thésardes, ...pardon ...doctorants du service et surtout ceux avec qui j'ai le plus partagé pendant ces 4 ans, Stéphanie bien sûr, Alexia, Béatriz, Carmen, Maud, Manssour, et les jeunots : Flore, Emmanuelle, Gaëlle, Audrey, Antonin, Yan et Éric. et les stagiaires qui sont passés, en particulier Élodie, Céline et Laurent.

J'adresse un amical salut à mes élèves de Khôlle et de l'École Polytechnique. Je dois avouer que la première partie de ce travail leur doit beaucoup à ces derniers. De plus ils m'ont permis d'entretenir mes compétences et capacités de raisonnement, parfois mises à rude épreuve, et de garder contact avec des sujets divers et variés. Maths de prépa, je penserai toujours à vous avec tendresse et Borel-Lebesgue sera toujours équivalent à Bolzano-Weierstrass.

*“une femme sans amour, c'est comme une fleur sans soleil, ça dépérit”
“C'est beau la vie. rigole gamin”
Le fabuleux destin d'Amélie Poulain*

*“Il est plus facile d'être des amants platoniques que de faux vrais amis qui n'osent plus se regarder en face[...] Tu préfères "virtuels"? va pour des amants virtuels!”
“Je t'aime de la plus équivoque amitié”
Ayerdhal, sexomorphose*

Dans ce paragraphe, je veux remercier mes amis qui m'ont écouté et/ou indirectement soutenu dans cette aventure qui a commencé devant les Cliffs of Mohers et un couché de soleil du joli mois de mai.

MERCI à tous les “sup2”, depuis de longues années partenaires de soirées, de vacances, de randonnée... J'y associe bien sûr les "nancéens" !. Je veux aussi remercier Juliette, qui a été avec moi de la première idée d'une thèse à la soutenance et qui sait régulièrement mieux que moi ce que je pense et ce dont j'ai besoin. J'exprime ma gratitude aux amis d'avant qui le sont resté, Tonio, Jean-Philippe, Maï et aux nouveau qui m'ont aidé à surmonter des moments difficiles : Steph', Laurence...

Je remercie mes partenaires d'une (de mes nombreuses) soirée ou d'un championnat de bridge. Grand fut leur rôle dans cette naissance au bridge que j'ai connu lors de cette thèse, des premières cartes, au premier titre et à l'équipe de France. En particulier je veux citer maître Jean-Paul, La Liste, la famille Aubonnet et les centraliens, Nathalie, Florence, Fred, Mélanie, Aude, les irlandaises...

Trésorier du TIBBO (salut présidentel!), je remercie les basketteurs et –euse de ce milieu universitaire, français, belge, hollandais et allemand que j’ai croisé un peu vite.

Je remercie tous les participants aux randonnées rollers des Friday Fever Night qui délassent le corps et l’esprit.

Je remercie aussi ma famille et tout particulièrement mes parents qui ont eu la joie d’accueillir mes premières proses.

Un merci général pour tous ceux qui m’ont aidé et j’ai une pensée particulière pour toutes celles qui d’un regard, un sourire ou plus m’ont aidé à vivre ces années.

Ce document n’aurait jamais été tel qu’il est sans l’influence de certaines personae et influences symbolisées par les Amélie :

- Amélie P. et autres Ally ;
- Amélie N., pour son délectable cynisme stylé, et les autres écrivains, cause de nuits blanches (en particulier les parents d’Aimline et des kineïres ; et de la famille Emerson);
- Amélie F. qui symbolise mes débuts au bridge.

Myu tous!

Octobre 2002,

Commencé à Mane Banhyang (Népal), après le Mera peak, le West Col, le East (Sherpani) Col en solo et en autonomie.

“Suivez mon conseil, Hari! Si vous parvenez un jour à mettre au point un système susceptible d’empêcher le pire, tâcher d’en imaginer deux, de telle sorte que, si le premier échoue, le second prenne le relais. L’Empire doit être stabilisé ou rebâti sur de nouvelles fondations. Qu’elles existent en deux exemplaires plutôt qu’en un seul, si c’est possible.”
de Daneel, Isaac Asimov, Prélude à Fondation

“That’s a question no gentleman should ask, much less answer,” Ramses said, in the same repressive tone his mother would have used”

“Er, hmph. Did you lock the door?”

Yes.

Good, said Emerson

[..]

Uh- you did lock the door, didn’t you?”

Yes my love

Good, said Ramses”

Elisabeth Petters, Amelia Peabody’s mysteries

Yane no ue de sora o aogu, hizashi wa uraraka
Miageru sora, karadajuu genki ga minagitteku
THAT'S SO WONDERFUL! Ikiterunda!
Yamerarenai, akirameru da nante
Tohou ni kureta kinou ni sayonara
Futsufutsu to wakiagaru kono kimochi
Nando demo yomigaeru, hana o sakaseyou
Omoi dewa itsumo amai nige basho
Dakedo tachi kire, asu o ikiru tame
Shukufuku no toki wa kuru, te o nobashite
Te o nobashite, ryoute agete

sakura saku, générique de LH

INTRODUCTION

*“La vérité n’est point ce qui se démontre, c’est ce qui se simplifie”
St-Exupéry, Terre des hommes*

Le nucléaire est aujourd’hui une source d’énergie très controversée. En effet, si elle est économiquement compétitive et si elle émet de faibles quantités de gaz à effet de serre, elle produit cependant des déchets nocifs à longue durée de vie. L’énergie nucléaire ne représente qu’une faible quantité de la consommation d’énergie primaire au niveau mondial et sa croissance est peu importante. Son futur reste incertain, et si certains veulent arrêter l’électronucléaire, nous pouvons aussi envisager son développement pour répondre à l’augmentation de la demande énergétique. Ce point dépend de l’utilisation des énergies fossiles qui sont actuellement la première source d’énergie, mais la baisse des ressources pétrolières et les risques climatiques liées au CO₂ sont réels. Les déchets nucléaires proviennent essentiellement des réacteurs industriels lors de la production d’électricité et leur nocivité à très long terme soulève de nombreuses questions sur la gestion des stocks existants et sur les options énergétiques pour le futur. Une réponse peut être justement de les transmuter dans un flux de neutrons. De plus, de nouveaux types de réacteurs et des combustibles innovants sont envisagés pour répondre à un possible développement de l’énergie nucléaire. Pour prévoir et optimiser le comportement du cœur de ces réacteurs, il est indispensable d’avoir des données nucléaires précises. Par définition, les sections efficaces des réactions de capture (n,γ) et de fission (n,f) traduisent l’évolution des noyaux dans le flux de neutrons du cœur. Mesurer précisément des sections efficaces mal connues s’inscrit alors dans le cadre de la gestion des déchets nucléaires et du développement de nouveaux réacteurs et de cycles du combustible originaux.

L’étude de ces questions fait partie des missions du commissariat à l’énergie atomique où notre travail de thèse a été effectué, au sein de la direction des sciences de la matière, au département d’astrophysique, de physique des particules, de physique nucléaire et d’instrumentation associée. Il s’inscrit à la suite de deux types d’études menées au centre de Saclay dans les services de physique nucléaire et de physique des particules (DSM/DAPNIA/SPhN et SPP). Les premières études consistaient à déterminer le potentiel de transmutation en spectre thermique de l’américium 241, le plus abondant des actinides mineurs et un programme expérimental a été lancé dès 1996 pour mesurer la section efficace de capture de l’américium 242. Le second aspect des recherches concernait l’étude de scénarios fondée sur des simulations informatiques. Elles ont été menées pour déterminer le meilleur spectre neutronique pour la transmutation des déchets nucléaires et ont débouché sur la thèse de F. Lelièvre soutenue en 1998 à Saclay et à laquelle nous ferons référence.

Cette double approche expérimentale et théorique a mis en évidence la sensibilité des scénarios globaux traitant des déchets nucléaires aux sections efficaces qu'ils utilisent comme paramètres. Or, ces sections efficaces ne sont pas des grandeurs très bien connues, les résultats expérimentaux sont souvent anciens ou dispersés et il existe parfois d'importantes incertitudes dans les domaines thermique, épithermique ou rapide. Ceci est particulièrement sensible dans le cadre de la transmutation des déchets avec la conception par exemple de réacteurs dédiés à leur incinération.

Les mesures neutroniques ont donc pour principaux intérêts (i) d'améliorer les connaissances sur les caractéristiques fondamentales des noyaux, (ii) de fournir des données expérimentales pour les études de transmutation et de fabrication de nouveaux combustibles. Ces domaines ont besoin de données très précises et de points de calibrations multiples, que ce soit pour préparer de nouvelles expériences (avec une méthode différentielle par exemple) et/ou des simulations (pour créer de nouveaux réacteurs et des scénarios de gestion des déchets).

Dans ce contexte, nous avons travaillé à partir de 1999 sur le sujet suivant : *“Mise au point d'un système de spectroscopie pour mesurer des sections efficaces neutroniques applicables à un possible développement du nucléaire comme source d'énergie”*. Ce sujet est à dominante expérimentale, mais s'inscrit dans le cadre d'un possible développement du nucléaire, ce qui justifie aussi une approche plus théorique.

La première facette de ce sujet est expérimentale et consiste à imaginer, à développer et à construire un nouvel instrument pour mesurer des sections efficaces intégrales. Les réactions concernées sont les réactions de capture et de fission sur des isotopes d'actinides. Pour ceci, nous voulons irradier des échantillons d'actinides dans le réacteur nucléaire expérimental de l'Institut Laue-Langevin à Grenoble et déterminer leur composition afin d'en déduire l'évolution sous flux neutronique des actinides par les réactions de capture et de fission. Les sections efficaces de ces réactions sont des fonctions continues de l'énergie des neutrons mais les méthodes expérimentales envisagées ne donnent accès qu'au nombre total de réactions (capture ou fission) au cours de l'irradiation. Cela signifie que nous avons accès à la seule intégrale produit section efficace-flux de neutrons. Les sections efficaces que nous cherchons à mesurer sont donc des moyennes sur l'énergie des neutrons pondérées par le flux, appelées sections efficaces intégrales. Les flux accessibles dans le cœur du réacteur sont très élevés et bien thermalisés ; nous pouvons utiliser des cibles de faible masse. Cela nous permet d'utiliser des techniques de spectroscopie pour déterminer la composition de la cible en mesurant quantitativement ses activités alpha et gamma. La première partie de notre travail a été de trouver des réponses techniques pour concevoir et installer un système expérimental dans le proche environnement du réacteur et effectuer des spectroscopies précises d'échantillons irradiés. Ces spectroscopies alpha et gamma doivent être effectuées juste après l'irradiation, pour minimiser les temps de décroissance et les manipulations de la cible.

La deuxième partie de notre réflexion est axée sur le cadre de l'énergie et de la gestion des déchets nucléaires. À partir de nos connaissances physiques, nous avons cherché à faire le point sur ces questions et à donner un cadre aux études sur le développement du nucléaire. Pour réaliser cette croissance comme pour détruire les déchets nucléaires, nous savons que les réacteurs actuels ne constituent pas une réponse adaptée. Cependant, de nombreux réacteurs thermiques à eau existent et nous permettent de faire dès aujourd'hui des études et des développements technologiques. Pour illustrer ce phénomène et souligner l'intérêt d'un nouveau cycle du combustible à partir de thorium, nous avons simulé le fonctionnement d'un réacteur à eau pressurisée REP avec un combustible MOX thorium-plutonium.

Ce mémoire commence par une brève description de la situation et des enjeux énergétiques actuels qui soulignent le besoin d'une structure en énergie plus équilibrée et plus respectueuse de l'environnement. Pour montrer la nécessité de trouver un arbitrage entre les énergies fossiles, renouvelables et nucléaires, nous présentons successivement les ressources énergétiques utilisables ainsi que leurs effets sur l'environnement .

La question de l'énergie nucléaire s'articule autour de l'utilisation du plutonium, de la gestion des déchets nucléaires et des ressources. Le second chapitre approfondit ces deux aspects et présente un nouveau combustible, le MOX thorium plutonium. Son utilisation en REP permettrait d'avoir une première expérience industrielle avec le cycle du thorium, de créer de l'uranium 233 pour débiter une nouvelle filière ou bien de gérer le plutonium existant.

La suite du document décrit le travail expérimental réalisé et le nouvel instrument que nous avons installé à Grenoble, dans l'enceinte du réacteur de L'ILL. Le troisième chapitre montre la démarche et les études préliminaires qui nous ont permis de construire une nouvelle chambre de spectroscopie alpha gamma. Nous y détaillons les choix techniques effectués pour nos détecteurs, pour la construction de nos cibles et pour mesurer le flux neutronique pendant l'irradiation.

Cet instrument a été installé à Grenoble et nous décrivons dans le quatrième chapitre les expériences réalisées pour valider notre travail et mesurer les sections efficaces thermiques de capture de l'américium 243 et du plutonium 242.

CHAPITRE I. DE L'ÉNERGIE ET DE L'ENVIRONNEMENT À L'AUBE DU 21^E SIÈCLE

Dans ce premier chapitre, nous allons présenter les questions que pose le contexte énergétique actuel. Ces questions sont d'une part, liées aux conséquences de la production énergétique sur l'environnement et d'autre part à la quantité de ressources aujourd'hui utilisables. Elles lient énergie, environnement et développement et se situent dans un contexte planétaire global et international. Cette problématique est le cadre dans lequel s'inscrit le travail que nous avons effectué et qui est développé dans les chapitres suivants.

La première partie est une introduction générale à la problématique de l'énergie. Nous avons choisi de ne pas privilégier un scénario d'évolution particulier, mais de fonder notre réflexion uniquement sur des bases indiscutables pour obtenir des encadrements de la consommation d'énergie et des ordres de grandeurs des ressources. Ensuite nous allons présenter les énergies faiblement productrices de CO₂ et alternatives aux combustibles fossiles qui sont majoritairement utilisés aujourd'hui : la fusion, les énergies renouvelables, et l'électronucléaire. Pour conclure ce chapitre, nous allons aborder la question des déchets nucléaires qui sont un des principaux inconvénients de cette dernière filière.

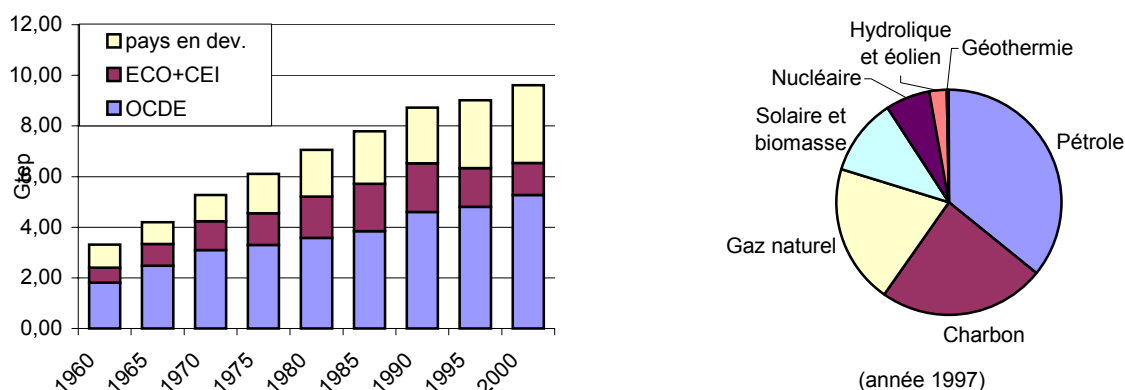
I.A. Généralités sur l'énergie

L'utilisation massive des énergies fossiles au cours du XX^e siècle a posé les premières questions de leurs effets sur l'environnement. L'évolution de la demande globale d'énergie soulève aussi de nombreuses inquiétudes et nous savons maintenant que la consommation énergétique est un des enjeux majeurs du siècle qui commence.

Après un bilan en quelques chiffres de la situation énergétique, nous allons montrer comment, par une approche physique, une démarche simple permet d'avoir une vision exhaustive des éléments de réponse. Nous pouvons alors définir les sources industrielles d'énergie avant de souligner la dépendance de la production d'énergie avec d'autres questions liées à l'évolution de la planète.

1. Une société en évolution

Le monde évolue et avec lui des caractéristiques comme l'augmentation de la population, de l'activité industrielle et le changement du style de vie sont indiscutables. La consommation énergétique mondiale augmente sans cesse depuis 40 ans et rien ne laisse présager un ralentissement de cette croissance, surtout dans les pays en voie de développement (cf. Figure 1). La demande d'énergie actuelle peut donc servir de référence et de minorant strict pour évaluer la consommation future.



Les extrapolations de l'évolution de la population sont sujettes à discussion, mais sa croissance est aujourd'hui indiscutable et les fourchettes de 8-14 milliards de personnes en 2050 et 9-20 milliards en 2100 en donnent un ordre de grandeur [1]. Même si la majorité de cette population aura pour priorité d'avoir des conditions de vie simplement décentes, un objectif humaniste peut viser à ce que chaque individu, en moyenne, ait une consommation annuelle d'énergie de 2,3Tep (cf. Figure 2). Nous obtenons alors un deuxième étalon pour la

consommation énergétique annuelle à moyen terme qui vaut 18 ou 32Gtep.an⁻¹ selon les estimations choisies.

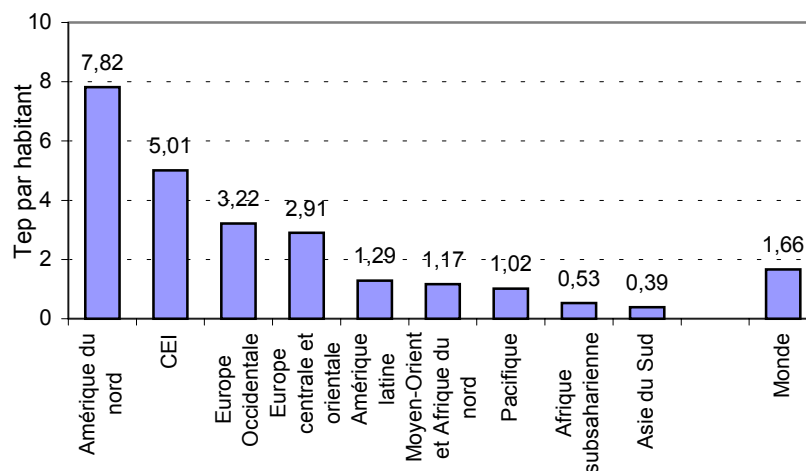


Figure 2 : consommation énergétique par habitant, selon leur origine géographique en 1998. Ces chiffres tiennent compte de la consommation énergétique totale de chaque zone et donc aussi de l'activité industrielle [1].

Au-delà d'une quelconque considération environnementale, il faut d'abord comparer aux ressources énergétiques ces nombres de 9Gtep.an⁻¹ à 18 ou 32Gtep.an⁻¹.

2. Les sources d'énergie

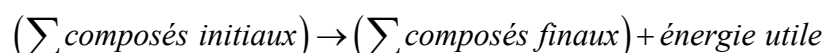
Pour comprendre les caractéristiques des systèmes fournissant de l'énergie, il nous semble utile de revenir aux origines et définitions physiques pour délimiter ce dont nous parlons.

Définitions du terme énergie :

- Littré [2] : « Terme de physique mathématique. Énergie dynamique, élément indestructible dans sa valeur numérique, mais capable de transmutations qui le font apparaître sous ses trois formes, travail, demi-force et calorie. »

- Petit Robert [3] : « 4. grandeur, dont l'unité est le joule, qui caractérise un système et qui exprime sa capacité à modifier l'état d'autres systèmes en interaction avec lui. 5. chacun des modes que peut présenter un tel système (énergie cinétique, énergie mécanique, énergie thermique...) »

Dans le langage courant, l'énergie est associée à une utilisation ou à une forme particulière : électricité, chaleur, énergie mécanique (moteur), énergie chimique (création de dihydrogène par exemple). L'expression sources d'énergie est aussi utilisée dans le sens "ensemble des matières premières ou des phénomènes naturels utilisés pour produire de l'énergie". En s'inspirant des notations classiques, toute réaction peut s'écrire :



Un des principes fondamentaux de la physique assure la conservation de l'énergie (avec l'équivalence masse-énergie, et au principe d'incertitude près) et justifie la notion d'énergie utile. Cette énergie est physiquement sous forme :

- d'énergie cinétique macroscopique ou microscopique avec l'énergie cinétique collective, appelée chaleur, ou bien l'énergie des photons ;

- d'énergie de liaison, aussi appelée dans certaines circonstances énergie potentielle. Il s'agit de l'énergie d'un corps en interaction avec un autre par une (ou plusieurs !) des 4 interactions fondamentales.

Des exemples d'énergies de liaisons sont celles de l'eau dans un barrage (gravitation), des nucléons dans un noyau (interaction forte) et des électrons dans une molécule de dihydrogène (interaction électromagnétique).

Les sources ultimes d'énergie aujourd'hui disponibles et connues sont l'énergie cinétique résiduelle du big-bang et les énergies de masse, comprenant celles de liaison. Les réactions fournissant de l'énergie transforment donc de l'énergie "potentielle" en une forme d'énergie "utilisable" : électricité, mouvement (voiture), chaleur (chauffage, cuisine), énergie chimique (carburant), lumière... En pratique, l'énergie que nous utilisons vient de la Terre elle-même (chaleur interne, champ électromagnétique, énergie cinétique, énergie de masse de ses constituants) et de ses interactions avec ses proches voisins, Soleil (rayonnement et gravitation) et Lune (gravitation). Le reste de l'univers a une influence négligeable, sauf peut être dans des cas très ponctuels : origine de la Lune, collision avec un astéroïde géant etc.

Cette approche très théorique n'est pas utilisée dans la classification des sources d'énergie, mais elle reste sous-jacente lorsqu'on parle d'utilisation industrielle comme nous allons le montrer dans la suite.

3. Classification des filières énergétiques

Avec le temps, les formes d'énergie originelle se transforment, avec ou sans intervention de l'Homme et selon leur environnement. Nous les connaissons et les utilisons aujourd'hui sous quelques formes principales que nous allons présenter.

3.a) *Les énergies fossiles*

On appelle énergies fossiles toutes les énergies dérivées du pétrole, du charbon et du gaz. Il s'agit d'énergie solaire reçue il y a des millions d'années, transformée par la biosphère et maintenant disponible sous forme chimique, essentiellement des liaisons C-C et C-H. Ces énergies ne sont donc pas renouvelables à l'échelle humaine et dégagent une grande quantité de CO₂ et de vapeur d'eau.

Les combustibles fossiles sont connus et utilisés depuis longtemps et même si elles ne cessent d'évoluer, les techniques d'exploitation sont matures à tous niveaux, recherche de gisement, exploitation, transformation et utilisation. Ils peuvent être utilisés pour les

transports ou pour produire chaleur ou électricité dans des unités de faible ou forte puissance. C'est la première source d'énergie mondiale (à hauteur de 80 % !) et elle est fondée sur des marchés de références dont les variations peuvent être extrêmes.

Énergie	En années ⁽¹⁾
Charbon	270
Uranium	100
Gaz	65
Pétrole	40

Réserves d'énergies fossiles et nucléaires dans le monde, (agence internationale de l'énergie, 1999)

(1) Réserves/consommation compte tenu des réserves connues et du rythme de consommation actuel)

Les données du tableau ci-dessus doivent être considérées avec précaution car elles se fondent sur les réserves connues. Les réserves totales pourraient être comprises entre deux et trois fois plus, mais, d'un autre côté, la consommation devrait aussi augmenter.

Les combustibles fossiles sont aujourd'hui la source d'énergie de référence. Ils dégagent beaucoup de CO₂ (cf. I.A.4), sont éminemment épuisables, mais les ressources sont encore grandes en gaz ou surtout en charbon et peuvent rapidement devenir critiques en pétrole.

3.b) Les énergies renouvelables

On appelle énergie renouvelable un ensemble de sources d'énergies qui sont inépuisables à l'échelle humaine, largement disponibles, essentiellement gratuites et sont compatibles avec un certain respect environnemental. Elles sont d'origine majoritairement solaire et pour les énergies des vents et des marées, elles sont aussi un peu dues à l'énergie cinétique terrestre et à l'énergie de liaison gravitationnelle.

- Le solaire est une utilisation directe des rayons du soleil pour produire chaleur ou électricité.
- La biomasse recoupe l'ensemble des énergies provenant de la dégradation de la matière organique. C'est de l'énergie solaire transformée par les plantes chlorophylliennes qui sont utilisées soit directement (bois de chauffage) soit après de nouvelles transformations chimiques (biogaz, biocarburant).
- L'éolien a une origine plus complexe, l'énergie du vent, qui est utilisée de manière mécanique.
- L'hydroélectrique vient de la transformation de l'énergie solaire en énergie potentielle de gravitation par évaporation de l'eau, puis par transformation en électricité.
- La géothermie est l'utilisation directe des gradients de température terrestre (énergie renouvelable) ou de sources chaudes (parfois non renouvelable).

Ces formes d'énergie sont détaillées au chapitre I.C et sont les plus importantes aujourd'hui, bien qu'il en existe d'autres, techniquement exploitables comme l'énergie des marées, ou non comme l'énergie des ouragans, des éclairs, des astroparticules...

Les énergies renouvelables sont souvent associées à la question du stockage et du transport de l'énergie et donc aussi à la question de l'hydrogène et de la pile à combustible. Ce chapitre traitera de la question des énergies primaires et nous ne détaillerons pas ici cette technologie qui consiste à utiliser la molécule de dihydrogène comme un vecteur entre une source d'énergie primaire et une "pile" qui génère de l'électricité avec de l'eau pour tout rejet.

3.c) *Le nucléaire*

On appelle énergie nucléaire celle obtenue par transformation de l'énergie de liaison des noyaux des atomes (interaction forte) en énergie cinétique fournie aux produits de la réaction. Les réactions de fusion ne sont pas encore industriellement maîtrisées alors que l'électronucléaire par fission est une industrie mature et, dans certaines conditions, compétitive d'un point de vue financier.

C'est une énergie de stock fondée sur l'utilisation de l'uranium et de ses deux isotopes de masse 235 et 238. Le principal combustible est aujourd'hui l'uranium 235 dont les réserves sont grandes devant la consommation (supérieures à un siècle). Ces réserves deviennent cent fois plus importantes si tout l'uranium est utilisé dans de nouvelles filières de réacteurs. En plus de la question sociologique de son acceptabilité, le nucléaire s'accompagne d'une nécessaire maîtrise des risques d'incident ou d'accident et surtout d'une gestion délicate des déchets nucléaires.

Les différentes formes d'énergie que nous venons de présenter ont chacune leurs avantages et inconvénients qui prennent leur signification dans des visions plus globales de l'énergie.

4. Questions pertinentes

Ce paragraphe a pour objectif de présenter un ensemble d'approches pour comparer les différentes sources d'énergie. Après avoir donné une liste des critères à prendre en compte, nous allons montrer deux démarches visant l'une à internaliser ces critères et l'autre à y inclure une vision plus globale du développement.

4.a) *Critères de jugement*

Le paragraphe I.A.1 a introduit la problématique des réserves en énergie, ce qui a une influence directe sur les coûts à court terme, moyen terme et long terme, mais ce n'est pas le seul critère à prendre en compte lorsqu'on parle de l'énergie.

Le prix de l'énergie produite est bien sûr très important dans une société à économie de marché et parler de l'énergie sans évoquer la question des coûts est donc utopique. De même les puissances caractéristiques de chaque forme d'énergie traduisent d'une part leur concentration (et donc les surfaces ou les masses mises en jeu) et d'autre part leurs emplois possibles. La manière d'utiliser l'énergie produite doit aussi être prise en compte. Dans les pays de l'OCDE, l'électricité est un vecteur universel sauf pour les transports et les besoins en chaleur. Même si les biocarburants peuvent avoir un rôle non négligeable, nous pensons que le pétrole devrait y rester irremplaçable jusqu'à ce que la pile à hydrogène comble cette lacune. L'utilisation de chaleur pour se chauffer ou pour produire de l'électricité avec ou sans cogénération doit être aussi différenciée.

L'effet sur l'environnement est un paramètre de plus en plus pris en compte par les pouvoirs publics et les populations. Il se traduit par l'émission de gaz à effet de serre, et notamment le CO₂, par la présence de déchets nucléaires, par un impact sur la géosphère locale (pollution et impact sur la faune par exemple) et par l'effet direct sur les individus (nuisances visuelles, sonores...). La structure de la consommation énergétique nationale joue aussi un rôle politique, que ce soit par une relative indépendance énergétique ou par l'effet d'accords internationaux comme ceux du protocole de Kyoto.

4.b) Les écobilans

Le principe de l'écobilan consiste à estimer quantitativement et financièrement les impacts d'un produit sur l'environnement, pendant tout son cycle de vie, de l'extraction des matières premières au traitement du produit usagé ou à son recyclage. Les principales variables à prendre en compte sont l'épuisement des matières premières, la consommation électrique, le rejet de gaz à effet de serre, les déchets solides, l'occupation des sols, les nuisances sonores ou visuelles... L'écobilan peut servir aux industriels pour améliorer l'impact écologique d'un produit, aux gouvernements pour sélectionner des options à long terme par des incitations économiques ou des marchés de droits à polluer et aux particuliers pour les responsabiliser et leur faire participer à un effort de préservation de l'environnement.

Les difficultés pour réaliser des écobilans sont d'ordre pratique pour suivre entièrement la vie du produit, et théorique pour estimer la nocivité d'un élément. Ce dernier point prend tout son sens quand on parle d'énergie où il faut mélanger des notions très sensibles que sont le coût d'une vie humaine, l'occupation des sols, les taux d'actualisation à moyen terme et à très long terme (taux intergénérationnel)... Il est par exemple délicat de comparer les rejets en gaz à effet de serre, par essence dilués dans l'atmosphère et ayant des répercussions à l'échelle de la planète, et les déchets nucléaires confinés dans un volume réduit, mais radiotoxiques pendant des millénaires.

La démarche des écobilans nous paraît nécessaire pour fournir des outils décisionnels et afin de contourner une partie des difficultés précitées, nous proposons une méthode originale à deux niveaux. Le premier niveau consiste à faire plusieurs bilans séparés pour la consommation en matière première énergétique, pour la production d'énergie nette, pour l'émission de gaz à effet de serre en équivalent tonnes de CO₂, pour la production de déchets nucléaires et à faire un écobilan standard pour le reste. Puis, dans un deuxième niveau seulement, on transforme ces impacts environnementaux en données monétaires. Nous pensons que cette façon de procéder autoriserait des réactualisations et des comparaisons simplifiées entre les différentes études tout en mettant en valeurs les hypothèses fondamentales effectivement prises.

4.c) *Développement durable*

Le développement durable se résume souvent en "trois E", que sont économie, énergie et environnement. D'une problématique plus large que la seule écologie, il cherche à apporter des réponses politiques à des questions scientifiques et environnementales. Les enjeux sont l'équité et l'équilibre du développement grâce à des réflexions de l'ensemble des acteurs économiques autour des choix technologiques et économiques de développement et de gestion de nouvelles technologies. Il concerne les gouvernements, les ONG, les entreprises, la communauté scientifique et les opérateurs économiques.

Le concept de développement durable est apparu avec les problèmes de changements climatiques [4] qui n'appartiennent plus au domaine du contrôle de la pollution ou de la préservation des ressources. C'est une question de gestion planétaire, puisant ses racines dans l'économie, au niveau national et global car les zones les plus touchées par les modifications climatiques en sont les moins responsables et les moins aptes à s'y adapter. La communauté scientifique a maintenant la certitude que le réchauffement climatique est une réalité, et qu'il va s'amplifier au cours du XXI^e siècle. La concentration atmosphérique en dioxyde de carbone (CO₂) a augmenté de 33 % en un siècle et celle de méthane a doublé. Des analyses isotopiques (carbone 14) confirment le rôle des combustibles fossiles dans cette augmentation des gaz à effet de serre. Des éléments de réponse à ce problème sont : réduire ou limiter les effets de la déforestation, accroître l'efficacité énergétique, utiliser des énergies à faible intensité carbonique, développer des technologies de séquestration de CO₂, avoir des politiques pour faire évoluer nos comportements et envisager des transferts de technologie vers les pays en voie de développement. La prise en compte de ces coûts environnementaux peut permettre de modifier les équilibres financiers et de faire évoluer les investissements grâce à des incitations économiques en plus des seules réglementations.

Pour conclure cette présentation sommaire des questions que posent la consommation mondiale d'énergie, il faut de nouveau souligner la double problématique des impacts sur l'environnement et des réserves. Une politique énergétique ne peut pas s'envisager à long terme sans en tenir compte, et les questions qui se posent sont d'ordre planétaire et non pas

nationale. Afin d'approfondir les solutions envisageables nous allons répertorier les filières de production d'énergie, celles d'aujourd'hui, et celles de demain. Nous commençons par la fusion car, de toutes les ressources énergétiques envisageables à moyen terme, c'est la plus prometteuse car elle ressemble un peu à un rêve que nous espérons atteindre, un jour.

I.B. Les réactions nucléaires, la fusion

L'interaction forte est la plus intense des quatre interactions fondamentales et les réactions nucléaires qui y sont liées sont donc des sources d'énergie très concentrées. La source d'énergie est la même pour les réactions de fusion et de fission, mais il n'existe pas encore aujourd'hui de réacteur industriel à fusion. Contrairement aux autres filières étudiées par la suite, la fusion ne peut pas apporter d'élément de réponse à moyen terme et certaines comparaisons ne seront pas possibles, en particulier d'un point de vue économique¹.

Il nous semble important d'évoquer les progrès de la fusion, l'énergie des étoiles, car ses possibilités sont immenses. Pour justifier ce point de vue, nous allons introduire l'origine physique de l'énergie nucléaire et montrer comment des projets expérimentaux cherchent à contrôler les réactions de fusion.

1. Introduction aux réactions nucléaires

Pour étudier le potentiel énergétique du noyau, nous allons présenter ce que sont les atomes qui seront notés dans tout ce document ${}^A_Z X$ ou ${}_Z^A X$ avec X , symbole chimique de l'élément, Z le nombre de charges du noyau et A son nombre de masses.

1.a) L'atome : carte d'identité

Aujourd'hui l'atome est défini comme la plus petite quantité d'un élément chimique susceptible de se combiner et il se compose d'un noyau et d'un nuage électronique.

Le noyau et les électrons sont liés par interaction coulombienne avec des tailles et des énergies caractéristiques de l'ordre de l'angström ($1\text{\AA}=10^{-10}\text{m}$) et de l'électron-volt ($1\text{eV}=1,60217733(49)\times 10^{-19}\text{ J}$ [5]). Le noyau est composé en première approche de nucléons liés entre eux par une interaction appelée "interaction forte" en raison de son intensité : les tailles et les énergies caractéristiques sont le femtomètre ($1\text{fm} = 10^{-15}\text{m}$) et le mégaélectronvolt ($1\text{MeV}= 10^6\text{eV}$). Les nucléons se dérivent en deux espèces de masse voisines : le neutron (sans charge) et le proton (charge +1).

Le noyau au repos est plus stable que ses constituants pris séparément, et ceci se traduit par un défaut de masse entre le noyau et la somme de ses nucléons aussi appelé

¹ En particulier, croissance du secteur, fiabilité, niveau d'investissement, profit attendu etc...

énergie de liaison (que nous prendrons conventionnellement positive). Par exemple pour l'oxygène 16 :

$$\text{Masse}(\text{noyau } ^{16}\text{O}) = 8 \times \text{Masse}(n) + 8 \times \text{Masse}(p) - E_{\text{liaison}}$$

1.b) L'énergie de liaison nucléaire

En se liant au noyau, chaque nucléon contribue à l'augmentation de l'énergie de liaison. Cette contribution d'énergie de liaison par nucléon (E/A) peut être représentée en fonction du nombre de masses du noyau, A.

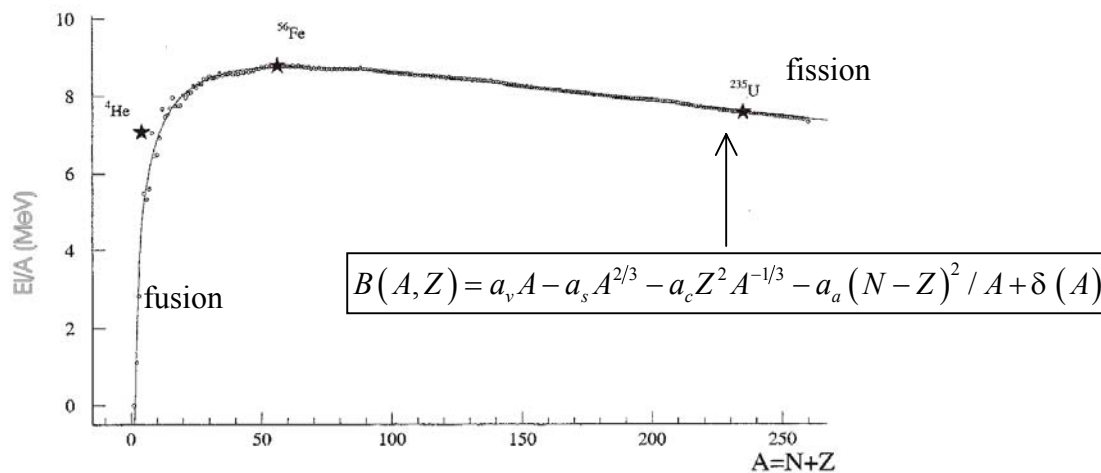


Figure 3 : Énergie de liaison par nucléon et formule Bethe-Weizsäker avec :
 $a_v=15,68\text{MeV}$ (terme de volume) ; $a_s=18,56\text{MeV}$ (tension superficielle de surface) ;
 $a_c=0,717\text{MeV}$ (répulsion coulombienne) ; $a_a=23,6\text{MeV}$ (terme de symétrie proton-neutron)
 $\delta(A)=34A^{-3/4}$ si N et Z sont pairs, $-34A^{-3/4}$ si N et Z sont impairs et 0 si A est impair (terme quantique d'appariement)

E/A augmente avec A pour les noyaux légers avant de redescendre après un long plateau centré sur le fer. Puisque plus l'énergie de liaison par nucléons est importante plus le noyau est comparativement stable, nous pouvons en conclure que la fusion de noyaux légers ainsi que la fission d'un noyau lourd produira un noyau plus stable et donc de l'énergie.

2. Les réactions de fusion et le confinement

L'énergie du Soleil vient d'un grand nombre de réactions de fusion mettant en jeu l'ensemble des éléments légers avec pour combustible principal l'hydrogène. Les masses, les énergies et les conditions des réactions y sont très différentes de ce que l'on peut réaliser sur Terre où il est nécessaire d'optimiser ces réactions de fusion.

2.a) Les réactions envisagées

Sur Terre, deux types de réactions de fusion sont envisagées pour la production d'énergie. Les premières utilisent au moins un isotope de l'hydrogène (deutérium ou tritium) pour combustible alors que les secondes produisent de l'hélium 4, noyau doublement magique très stable.

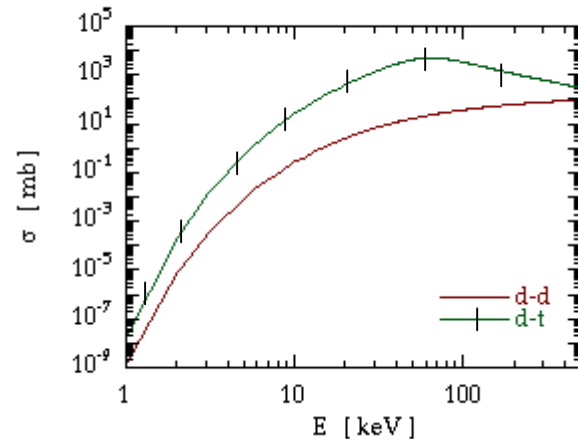
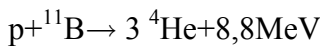
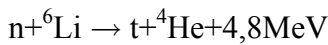
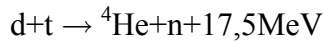
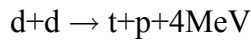
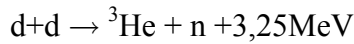


Figure 4 : section efficace des réactions d-d et d-t

2.b) Barrière coulombienne et confinement

Les réactions précédentes ont lieu si les noyaux sont assez proches pour que l'interaction forte prédomine sur la répulsion coulombienne. Si un mélange est porté à haute pression et haute température, il devient un plasma et l'agitation thermique des noyaux peut permettre de franchir cette barrière de potentiel. Les recherches visent à augmenter le nombre de fusions et la réaction deutérium-tritium est la plus étudiée car elle libère une grande quantité d'énergie, 17,5MeV, et c'est la plus probable des réactions ci-dessus.

Une fois la composition du plasma fixée, pour favoriser les réactions, il faut augmenter le couple température-pression ou le temps, appelé temps de "confinement", pendant lequel les réactifs sont en contact.

Une approche plus précise permet de d'affiner ces notions qualitatives pour dégager une condition minimale sous laquelle le mélange peut produire plus d'énergie qu'il n'en consomme : c'est le critère de Lawson cité ici pour information.

$$n\tau \geq \left(\frac{1}{\eta}\right) \frac{12 \cdot kt}{Q \langle \sigma v \rangle}$$

avec : n densité du plasma ; τ temps de confinement ; k constante de Boltzmann ;
 t température ; Q énergie dégagée par une réaction de fusion ; $\langle \sigma v \rangle$
 valeur moyenne en énergie du produit section efficace de réaction,
 vitesse des noyaux ; η dans le cas d'un réacteur, rendement tenant
 compte des pertes pour le chauffage du mélange et la récupération de
 d'énergie

Si dans le Soleil, le temps de confinement est presque infini (confinement gravitationnel) et si dans une bombe, les densités sont extrêmes, l'utilisation de la fusion comme source d'énergie nécessite d'optimiser ce produit, $n\tau$. Les deux options actuellement envisagées se caractérisent par leur principe de confinement, magnétique ou inertiel.

2.c) *Le confinement magnétique*

Le confinement magnétique est la première voie historique de recherche pour les réacteurs à fusion. Son principe consiste à maintenir en lévitation le combustible par des champs magnétiques et à le chauffer jusqu'au démarrage des réactions de fusion. Le cœur est ensuite alimenté en continu avec du combustible neuf, chauffé directement par les réactions nucléaires.

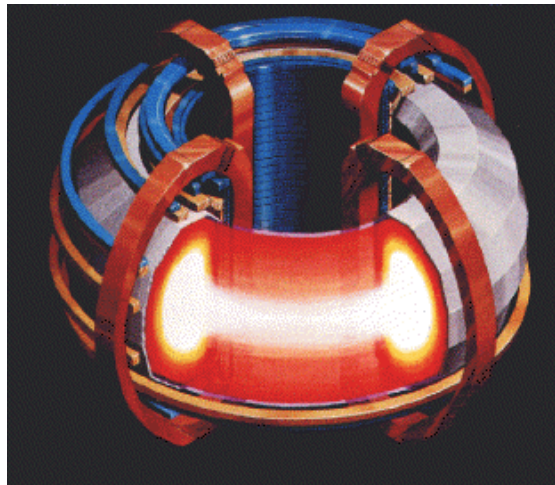


Figure 5 : Vue d'artiste d'un plasma confiné

Le plasma est confiné dans un tore par la combinaison de champs toroïdal et poloïdal. Il est chauffé par l'effet joule du courant interne au plasma, énergie fournie par les champs de confinement, par envoi de micro-ondes et de radiofréquences et par introduction de particules neutres (d'atomes) de haute énergie. La base des principes physiques mis en jeu semble bien comprise, mais la réalisation technique n'est pas encore maîtrisée. En effet, à chaque changement de puissance des machines, de nouveaux phénomènes apparaissent du fait de la nature non linéaire des équations gouvernant le transport des vecteurs de la réaction, deutérium et tritium. Cela signifie que, contrairement aux réacteurs à fission dont le comportement suit de simples lois d'échelles, un changement de taille du plasma peut créer de nouvelles difficultés techniques.

2.d) Le confinement inertiel

La méthode de confinement inertiel a d'abord été étudiée par les militaires avant d'avoir des retombées civiles. Son principe consiste à comprimer une bille de combustible par implosion pour réaliser des réactions de fusion courtes, mais répétées un grand nombre de fois par un réacteur.

L'implosion est obtenue par une irradiation homogène d'une bille de combustible par des lasers de haute puissance (directement ou indirectement avec une cavité réémettrice). En théorie, le recul dû à l'évaporation de la couche externe de la bille associée à une irradiation adéquate permet de comprimer et de chauffer son centre jusqu'à l'ignition. Les réactions de fusion se propagent alors dans le reste du mélange de la capsule. Un réacteur assurerait une irradiation de ces capsules à des taux de plusieurs hertz (voir dizaines de hertz) au minimum.

3. La recherche aujourd'hui

Si début 2002 la faisabilité des réactions de fusion est démontrée pour les deux types de confinement, un réacteur semble très lointain. Il existe encore de nombreux problèmes techniques sur les questions du gain des réactions, de la maîtrise des pertes, de la récupération de la chaleur, des matériaux, de la fiabilité de l'ensemble du système ...

La recherche sur le confinement inertiel par laser est dopée par les crédits militaires et deux gros projets sont en cours : Laser Mégajoule en France et National Ignition Facility (NIF) aux États-Unis. Le premier utilisera 240 faisceaux lasers pour délivrer une énergie de 1,8MJ en 18ns pour un coût d'un milliard d'euros et le second utilisera 192 faisceaux pour 1,8MJ en 1ns et 1,2 milliard de dollars. La mise en service de NIF est prévue pour 2003. Ces deux projets restent néanmoins très loin d'un réacteur. De nombreux progrès restent à faire dans le domaine des lasers, de la fabrication industrielle des cibles, dans la définition et la conception de la chambre de réaction et dans ses fonctions de confinement, de récupération de l'énergie et de régénération du tritium.

La prochaine étape de la recherche sur le confinement magnétique, le projet ITER [6], devrait être la dernière ou l'avant-dernière avant un prototype de réacteur industriel. Les objectifs d'ITER sont d'arriver à produire de l'énergie et de répondre aux enjeux techniques pour faire de la fusion une source d'énergie utilisable. Bien qu'il y ait une réelle volonté de la communauté scientifique, ce projet n'a pas pour l'instant été financièrement approuvé et n'est pas réellement lancé. Les possibilités techniques de faire des réacteurs à fusion en cinquante à cent ans semblent cependant bonnes.

4. La fusion une source d'énergie ?

La fusion n'est pas une énergie renouvelable, mais les réserves sont de plusieurs ordres de grandeur supérieures aux autres énergies et elles devraient suffire à la consommation de toute la planète pendant des millénaires. Par exemple, il y a environ 3g de

deutérium par tonne d'eau de mer et le tritium peut être fabriqué à partir de lithium directement dans les réacteurs eux-mêmes.

Les effets prévisibles de cette source d'énergie sur l'environnement sont faibles (cf. par exemple [7]) car les réactions en elles-même n'ont pas de rejet toxique. Les seules dégradations sont liées aux centrales elles-mêmes et à la construction de leurs matériaux à haute technologie. Dans le cœur des réacteurs, les fuites de neutrons vont activer les matériaux de structure mais la radioactivité induite n'est pas comparable à celle des réacteurs à fission en termes de nocivité car elle exclut les produits de fission et les transuraniens. Nous ne pensons pas que cela soit donc un réel problème.

L'aspect financier de la question ressemble à celui des énergies renouvelables par le faible coût du combustible qui est compensé par un investissement élevé. Les fortes puissances des réacteurs à fusion font que cet investissement sera peut-être prohibitif, mais il est encore tôt pour se poser cette question. Celle d'aujourd'hui reste : faut-il investir maintenant dans la recherche, et donc sans assurance de rentabilité, les sommes demandées ?

Plus énergétique, moins polluante que l'utilisation des combustibles fossiles, moins nocive que l'énergie nucléaire et ayant moins d'impact sur l'environnement que n'importe laquelle des énergies renouvelables, nous pensons que la fusion doit être l'énergie de demain. Les défis technologiques restent nombreux, et il n'est peut-être pas urgent de développer la fusion maintenant si la situation énergétique ne le nécessite pas. En conclusion, nous pensons que seule une forte coopération internationale avec tous les acteurs majeurs de la recherche sera en mesure de surmonter ce défi prometteur.

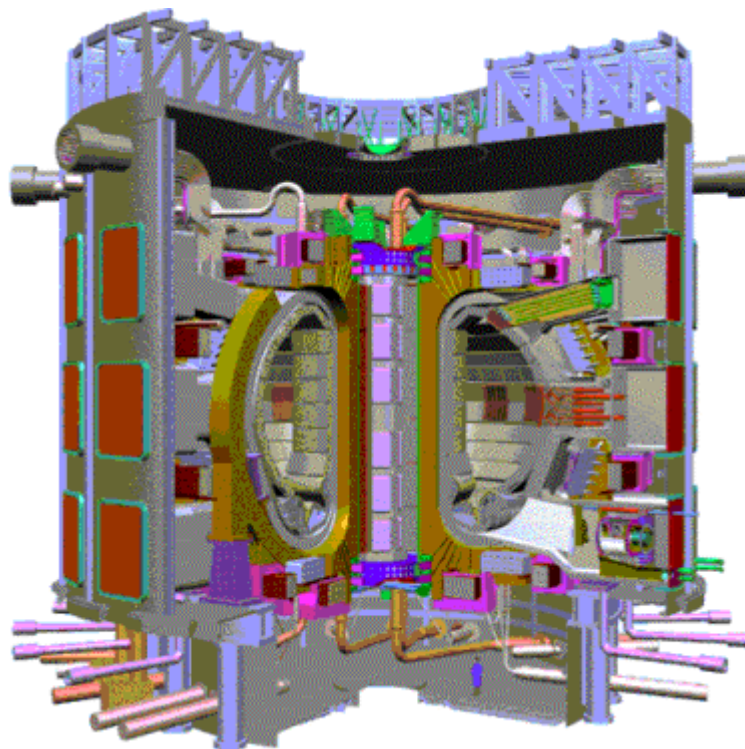


Figure 6 : Vue d'ITER

I.C. Les énergies renouvelables

Dans la première partie, les énergies renouvelables ont été présentées et classées selon leur origine physique. Les paragraphes suivants approfondissent les phénomènes mis en jeu et font, pour chaque forme d'énergie un rapide bilan des technologies existantes et futures. À travers cette présentation, énergie par énergie, nous insisterons sur la physique des réactions et nous aborderons les questions des ressources, des impacts environnementaux, des coûts, de l'évolution de la puissance installée dans le monde et de son évolution envisageable. L'objectif peut être de comparer ces données aux estimations des demandes (cf. A), mais il est aussi d'estimer la maturité économique de ces énergies, et donc de leur possible rôle de substitut aux énergies fossiles.

1. Le solaire

L'énergie solaire est la ressource énergétique la plus abondante sur terre. Elle est à l'origine de la majorité des autres énergies renouvelables, mais elle est très diluée. Bien qu'elle soit utilisable pour produire directement électricité ou chaleur, les faibles puissances unitaires, l'importance des surfaces immobilisées et le prix de certains composants font que cette source d'énergie reste finalement loin du seuil de rentabilité.

1.a) *D'immenses ressources*

Le rayonnement solaire apporte sur terre une énergie de l'ordre de 10^{20} kWh par an, ce qui est supérieur à la totalité des ressources fossiles jamais découvertes. Cette énergie est produite par les réactions de fusion dans le soleil et est filtrée par l'atmosphère.

La puissance reçue au niveau du sol est de 1000W par mètre carré en plein soleil et en tenant compte des effets jour/nuit, des nuages et de l'inclinaison des rayons, le nombre à prendre en compte est de $2,5 \text{ kWh} \cdot \text{j}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$ dans les zones tempérées. Contrairement aux idées reçues, cette donnée ne varie que d'un facteur 3 pour les zones les plus ensoleillées au monde (Sahara).

Les ressources sont donc extrêmement importantes, mais un simple calcul montre qu'une tranche de centrale nucléaire dégage sous forme de chaleur autant d'énergie par seconde, 3GJ, qu'en reçoivent une trentaine de km^2 . En supposant un rendement de 15 %, il faut environ $0,73 \text{ ha}$ pour avoir $1 \text{ GWh} \cdot \text{an}^{-1}$ et 2900 kilomètres carrés pour produire la consommation électrique de la France en 1999².

² Environ 500 TWh

1.b) Deux types d'utilisation

Les rayonnements solaires peuvent être utilisés soit pour produire directement de l'électricité à l'aide de semi-conducteurs –photovoltaïque–, soit de la chaleur –solaire thermique– pour le chauffage ou la production électrique.

Une photodiode semi-conductrice produit du courant par création de paires électron-trou dues à la photo-absorption dans une jonction p-n (cf. III.C). Le rendement est industriellement compris entre 23 % et 6 % selon la technique utilisée, silicium cristallin, poly-cristallin ou amorphe. L'électricité peut être produite et utilisée localement ou bien de manière centralisée pour alimenter le réseau.

Des capteurs thermiques peuvent aussi utiliser le rayonnement solaire pour des systèmes de chauffage individuel ou pour la production d'électricité. Dans ces centrales, les rayons sont concentrés sur un fluide pour créer une source chaude qui est utilisée comme dans les centrales thermiques classiques. Il est même possible de faire de la cogénération ou bien de coupler cette source de chaleur avec du gaz. Aujourd'hui le rendement solaire-électricité peut atteindre 21 % pour une puissance de 354MW^é avec des miroirs cylindro-paraboliques (pour l'ensemble des centrales de ce type en Californie). Il existe aussi des centrales à tour où les miroirs focalisent l'énergie sur un réservoir placé en haut d'une tour pour le porter à 500-1000°C. Toujours en Californie, Solar Two, une centrale de ce type de 10MW^é est capable de fonctionner jusqu'à 3h après le coucher du soleil.

1.c) Une énergie peu mature

Les principaux inconvénients de l'énergie solaire sont le coût élevé, les faibles puissances unitaires et les grandes surfaces utilisées. Le photovoltaïque reste aujourd'hui une source d'énergie primaire négligeable avec 392MW-crête³ en 1998, soit moins de 0,01 % de la production d'électricité. Malgré une forte croissance, il n'est intéressant que dans les endroits isolés et éloignés de tout réseau électrique.

À moyen terme, dans certains pays en voie de développement possédant un bon ensoleillement et de grandes surfaces disponibles, la création d'usines-pilotes par des entreprises privées peut y être subventionnée par des instances internationales. Cela a plusieurs avantages dont une mise au point industrielle avec une exploitation moins contraignante et finalement un investissement financier et technologique à faible risque et un intérêt certain à long terme.

Bien que la croissance devrait continuer à être forte à court terme, car portée par les programmes nationaux, européens et japonais en particulier, le solaire ne devrait pas jouer de rôle à court ou moyen terme dans la question énergétique. La création d'usines-pilotes à faibles risques reste par contre un atout certain pour son développement.

³ Un module d'un watt-crête fournit une puissance électrique de un watt en plein soleil. Le Watt-crête est donc un majorant de la production électrique.

2. La biomasse

Cette source d'énergie, la plus vieille utilisée par l'homme, est d'origine solaire sauf dans les cas exceptionnels de certaines fosses sous-marines. Il s'agit essentiellement de la transformation du rayonnement reçu par les plantes autotrophes chlorophylliennes pour fabriquer de la matière organique (= énergie chimique récupérable).

La biomasse se fonde sur l'utilisation du bois, des oléagineux (colza, tournesol), et de quelques plantes à sucre ou amidon (céréales, canne à sucre, betterave). La biomasse ne représente pas un marché commercial significatif bien qu'elle soit la quatrième source d'énergie primaire utilisée, derrière les énergies fossiles.

2.a) *Les formes énergétiques*

La biomasse se décompose en trois catégories distinctes que sont le bois-énergie, le biogaz et les biocarburants.

L'énergie chimique du bois est libérée par combustion sous forme de chaleur et utilisée directement ou pour produire de l'électricité. Le bois comme source de chauffage est utilisé à toute échelle, de la cheminée individuelle (à faible rendement) aux chaudières industrielles de "fortes" puissances (550MWth, centrale Alholmens Kraft en Finlande) en passant par de nombreuses chaufferies collectives (environ 300kW).

Les inconvénients du bois-énergie sont liés à la nature du combustible et sa faible capacité à être transporté, du moins à faible coût (poids et encombrement). L'utilisation de chaufferie de taille même modeste est donc toujours liée à un approvisionnement spécifique dû par exemple à la présence de scieries voisines.

On appelle biogaz les effluents gazeux, méthane essentiellement, issu de la fermentation des matières organiques contenues dans les décharges et les stations d'épuration. Le méthane est un puissant gaz à effet de serre et sa captation répondait à l'origine à des obligations réglementaires. Il commence à être considéré comme une ressource énergétique et aujourd'hui le biogaz est devenu un secteur industriel à part entière.

Les biocarburants sont composés de deux filières distinctes, biodiesel (+huiles) et éthanol. Ils sont issus de la transformation de différentes cultures : canne à sucre au Brésil, maïs aux États-Unis, colza en Europe etc. Comme l'indique leur nom les biocarburants sont majoritairement utilisés pour les transports mais aussi parfois pour produire chaleur ou électricité.

2.b) *Ressources et impact environnemental*

Si la dégradation de la biomasse pour produire de l'énergie dégage du CO₂, sa production en consomme autant⁴ et, sans tenir compte de la consommation d'énergie nécessaire à sa fabrication, le bilan carbonique est nul. Les impacts environnementaux sont

⁴ Le carbone des plantes autotrophes provient de la dégradation du CO₂ atmosphérique.

ceux d'une agriculture dédiée associée à une occupation des sols importante. Ce raisonnement est bien sûr valable dans le cas d'un cycle complet orienté vers la production d'énergie et non pas dans le cas de la déforestation.

Les ressources sont délicates à estimer et dépendent des conditions d'utilisation. En effet, à l'instar des énergies fossiles, le bois n'est qu'une énergie de stock dont les réserves sont faibles si les forêts ne sont pas renouvelées. La fabrication de biocarburants est une utilisation directe de l'énergie solaire avec un rendement donné et en tant que tel, ses ressources dépendent essentiellement de la surface immobilisée.

2.c) *Utilisation actuelle*

Il convient de traiter séparément l'utilisation de la biomasse dans les pays industrialisés et dans les pays émergents où elle est, avant tout, l'énergie la plus accessible. Elle est traditionnellement utilisée dans les seconds pour la cuisson et le chauffage et constitue souvent la première ressource énergétique des pays les plus pauvres. Elle ne peut être considérée comme renouvelable dans ces conditions et sa croissance n'est alors pas un signe favorable pour le développement de la planète. Dans les pays où l'accès à l'électricité et à d'autres formes d'énergies est répandu, la biomasse est une question de choix énergétique et une ressource renouvelable. Cependant, la production d'électricité à partir du bois ne semble cependant économiquement envisageable que dans des cas limités dépendant d'un approvisionnement local.

En 1999 la filière bois-énergie a produit en Europe 466000GWh sous forme de 31000GWh d'électricité et 435000GWh de chaleur [8]. Un développement industriel de cette filière nécessite des surfaces d'un ordre de grandeur égal à 154ha de forêt de saules pour 1,3GWh par an.

Les biocarburants sont en phase de développement avec une production européenne de 1Mt en 2000 et un objectif de 4,8Mt en 2003. Bruxelles ambitionne pour 2010 que 7 % des carburants soient d'origine renouvelable, ce qui représente une surface consacrée aux biocarburants d'environ 7,3 millions d'hectares. De plus, les monocultures spécifiques semblent encore risquées sur le plan économique et écologique car extensives, polluantes et dépendant des aléas climatiques.

À petite échelle, de manière rentable et non polluante le biogaz fournit en énergie quelques complexes producteurs pour un total de 22000GWh et l'on peut finalement considérer le biogaz plus comme une économie d'énergie qu'une ressource.

3. L'éolien

Dès le cinquième siècle av. J.C., les Égyptiens utilisaient l'énergie éolienne, l'énergie du vent, avec des moulins à axe horizontal et des vestiges de moulin à axe vertical ont aussi été retrouvés en Asie. Plus concentrée que le solaire, l'énergie éolienne a un grand potentiel qui commence à être utilisé pour alimenter le réseau. Après avoir expliqué les principes de fonctionnement d'une éolienne et ses caractéristiques nous allons présenter la situation actuelle en termes de puissance installée et de rentabilité.

3.a) Une éolienne technique et fonctionnement

Une éolienne se compose d'un pylône soutenant une nacelle à laquelle sont reliées une, 2, 3 ou 4 pales selon les modèles. Une éolienne de 600kW est haute d'environ 60m pour un diamètre de 40m.

Les premiers maillons de la chaîne mécanique sont les pales qui captent la puissance du vent par leur géométrie et un effet venturi de type portance des ailes d'avions. Cette puissance se transmet au moyeu central lié à l'arbre lent, puis à l'axe rapide qui alimente un générateur électrique de courant alternatif, synchrone ou non et redressé ou non par un onduleur. Une éolienne fonctionne pour une plage de vitesse du vent définie par sa géométrie, souvent entre 5 et $25\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$.

Les pales sont les parties les plus technique de l'éolienne et leur portance dépend de la vitesse (relative) du vent. Si cette vitesse devient trop grande il y a une perte de portance appelée décrochage et pour tenir compte de la rotation autour du moyeu (vitesse linéaire non constante) les pales sont vrillées, variant ainsi l'angle d'incidence absolu vent-pale. À cause de contraintes mécaniques, les éoliennes ne peuvent pas tourner trop vite et leur rotation doit être régulée. Par exemple une étude précise de la géométrie des pales autorise un contrôle aérodynamique combinant vitesse absolue du vent et vitesses linéaires des points de la pale. Si le vent devient trop fort, une partie de la pale "décroche" pour diminuer la portance totale et ce décrochage se propage avec la vitesse du vent. La majorité des éoliennes fonctionnent sur le principe précédent avec des vibrations supplémentaires pour seul inconvénient notable, mais il existe aussi des systèmes fondés sur des pales pivotantes.

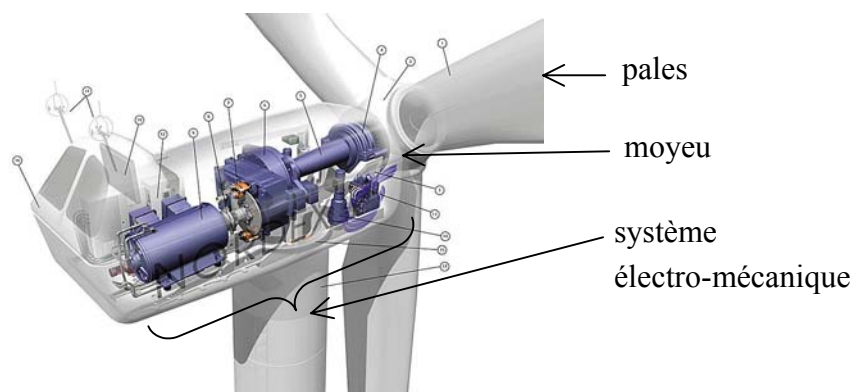


Figure 7 : Nacelle de l'éolienne Nordex N1000

La nacelle est tenue par un pilier dressé sur la terre ou sur les fonds marins pour les éoliennes "off-shore".

3.b) La ressource éolienne : le vent

La source d'énergie des éoliennes est le vent qui est essentiellement une manifestation de la chaleur déposée par le rayonnement solaire dans l'atmosphère. Elle crée des écarts de température donc des masses d'air de densités différentes qui se mettent en mouvement pour répondre aux variations de pression atmosphérique. Les spécialistes estiment à 2 % [9] l'énergie solaire incidente déposée sous forme d'énergie éolienne.

Les performances des machines dépendent de plusieurs caractéristiques du vent :

- sa distribution en vitesse : moyenne, facteur d'irrégularité, probabilité d'avoir une vitesse comprise dans l'intervalle ou la puissance est récupérable ;
- sa distribution en direction, essentielle dans les parcs où il existe des effets de traînées ;
- sa variation avec la hauteur.

Ces caractéristiques varient avec l'environnement de chaque site qu'il est donc essentiel d'étudier pour optimiser la conception, les emplacements et la puissance des éoliennes. La taille des éoliennes est un compromis entre l'énergie disponible et le coût de la structure. Il faut donc tenir compte du profil vertical des vitesses qui dépend du relief (collines de pentes douces ou abruptes, cols) et de la rugosité de la surface du sol (forêt, ville, mer, plaine).

La puissance du vent, P_{vent} , varie avec la puissance troisième de la vitesse, v , dont la distribution, $p(v)$, suit la loi phénoménologique de Weibull : $p(v) = \frac{k}{c} \cdot \left(\frac{v}{c}\right)^{k-1} \cdot e^{-(v/c)^k}$ avec c facteur d'échelle et k facteur de forme caractérisant respectivement l'intensité et la dissymétrie de la distribution. La transmission de la puissance du vent aux pales se fait avec un rendement théorique maximum de $16/27^{\circ}$ (loi de Betz). En pratique les éoliennes actuelles arrivent à 80 % de ce rendement, soit environ 20 % absolu [10]. Les courbes ci-dessous illustrent ces phénomènes.

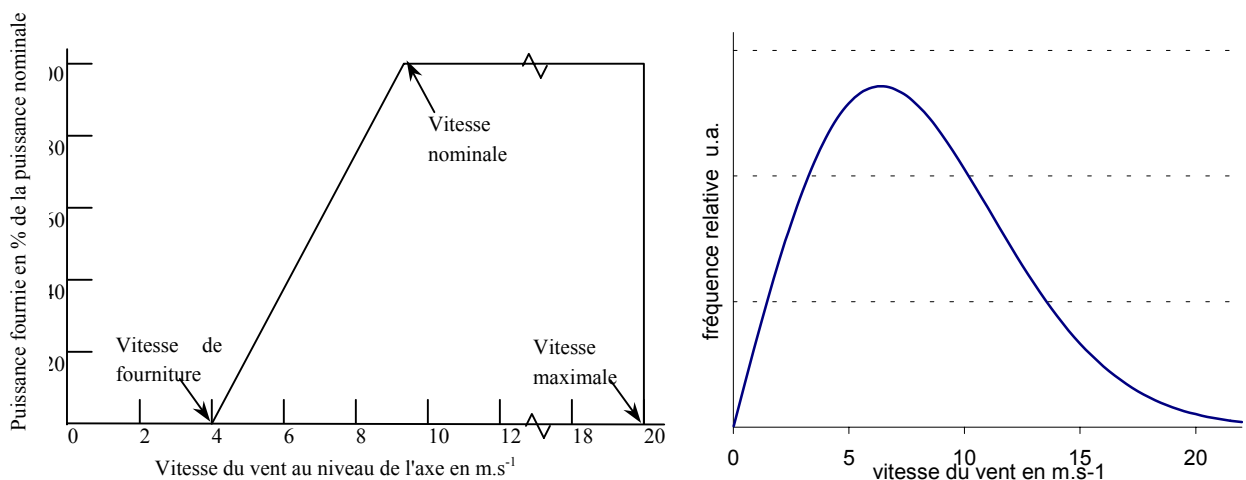


Figure 8 : Puissance fournie en fonction de la vitesse du vent et distribution de Weibull pour $k=2$ et $v_{moy}=7m.s^{-1}$

Les éoliennes actuelles ont des puissances de 600kW à 2,5MW et finalement, en moyenne sur un an entre 20 et 40 % de la puissance installée sont effectivement récupérés.

3.c) *Approche environnementale*

L'énergie éolienne est une énergie renouvelable et en possède les avantages caractéristiques. Les puissances individuelles relativement élevées et la possibilité de parc éolien rendent rentable la production d'électricité pour le raccordement au réseau et pas seulement pour une utilisation marginale dans des lieux isolés.

L'utilisation d'éoliennes apporte cependant aussi des nuisances, par exemple visuelles et sonores. De par leur principe de fonctionnement, les éoliennes sont placées dans des endroits dégagés et particulièrement exposés et leur grande taille les rend toujours très visibles. Le bruit émis par le mouvement des pales peut s'avérer gênant pour les populations avoisinantes mais les améliorations technologiques et l'adaptation des réglementations ont réduit ce phénomène. Maintenant, le bruit naturel du vent dans les feuilles des arbres et arbustes étouffe souvent celui de l'éolienne dès que l'on atteint une distance de quelques centaines de mètres. Enfin la question de l'effet des éoliennes sur la faune est régulièrement abordée et en particulier sur les oiseaux. En pratique il semblerait qu'une éolienne isolée ne soit pas un problème alors qu'un parc soit très gênant, comme un "mur", et est donc à éviter près des trajets de migration et des lieux de reproduction.

Le dioxyde de carbone émis pour la construction de l'éolienne ne suffit pas à dégrader le bilan résolument positif de cette source d'énergie sur l'environnement.

3.d) *Une énergie proche de la maturité*

Le marché de l'éolien est fortement croissant depuis 1990 comme le montrent les puissances installées dans le monde chaque année.

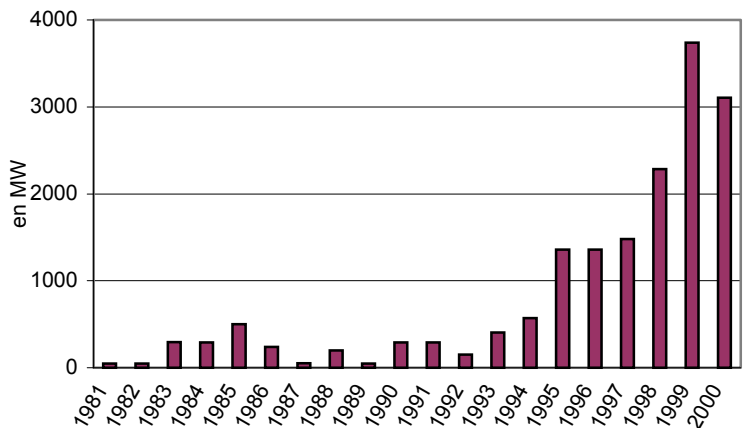


Figure 9 : Évolution des puissances installées annuellement dans le monde (en MW) [11]

Cette progression est majoritairement due à l'Amérique du Nord et à l'Union Européenne où l'Allemagne, le Danemark et l'Espagne sont les pays les plus équipés avec respectivement 5432, 2281, et 2235MW installés en 2000. Elle s'explique par les politiques volontaristes mises en place dans ces pays et les programmes nationaux de soutien à l'énergie éolienne avec un prix d'achat élevé du kilowattheure. Afin de diminuer les nuisances et de profiter de vents puissants et réguliers les industriels développent l'éolien off-shore, qui représentait 50MW début 2001 dont plus de 80 % au Danemark, mais des projets de parc de 100MW sont en à l'étude en Belgique et en Allemagne.

En conclusion, l'énergie éolienne apparaît comme respectueuse de l'environnement, fiable et relativement concentrée pour une énergie renouvelable. Son coût est encore plus élevé que les filières classiques, mais la R&D et l'augmentation du marché vont réduire cet écart. Cependant l'éolien ne représente seulement que 0,15 % de la production mondiale d'énergie et les marchés des pays les plus impliqués ne sont pas extensibles. Sans développements nouveaux importants, un tassement de la croissance est à prévoir dans les prochaines années.

4. La géothermie

Littéralement (en grec *Gê* : terre et *thermos* : chaud), la géothermie est la chaleur venant de la terre et, par assimilation, c'est l'utilisation de cette énergie qui trouve sa source dans la température de la croûte terrestre. Déjà utilisée par les romains, c'est une énergie régulière et mature qui a produit ses premiers kilowattheures en 1903 en Italie mais qui demande des investissements très lourds.

L'énergie géothermique a un taux de croissance beaucoup plus faible que l'éolien ou le solaire, mais c'est la troisième source mondiale d'énergie "renouvelable" derrière la biomasse et l'hydraulique. Le terme renouvelable est à placer entre guillemets car l'énergie géothermique est renouvelable uniquement à long terme comme le rappelle la baisse de la nappe des geysers aux États-Unis, néanmoins elle ne dégage pas de gaz à effet de serre et son épuisement est parfois insensible à échelle humaine.

4.a) *Le flux géothermique*

La différence de température entre le centre et la surface de la terre donne naissance à un flux de chaleur appelé flux géothermique. Cette chaleur interne provient surtout la radioactivité naturelle et un peu de la dissipation de l'énergie gravitationnelle due à la condensation de la terre et à la différenciation du noyau. Sa valeur varie très fortement selon les lieux et leurs caractéristiques locales (nature des roches) et régionales (tectonique). Le flux géothermique est en particulier élevé dans les endroits privilégiés que sont les zones de tectonique récente. En comparaison de l'intensité du flux géothermique, l'énergie mécanique de la tectonique des plaques est presque négligeable.

4.b) Exploitation, aspect technique

Bien qu'émergent de nouvelles techniques, exploiter l'énergie géothermique nécessite pour l'instant la présence d'eau, donc d'eau chaude, pour prélever la chaleur. Selon sa température, on distingue deux types d'exploitations géothermiques :

- entre 20 et 80°C la chaleur est utilisée directement, c'est la *basse énergie* ;
- entre 80 à 300°C, la *moyenne et haute énergie* permettent la production d'électricité.

La vapeur d'eau est soit utilisée directement pour faire tourner des turbines soit à l'aide d'un fluide secondaire se vaporisant à une température plus basse.

Une nouvelle technique d'exploitation de géothermie profonde dite de "roches chaudes sèches" est envisagée. Cette méthode prometteuse mais encore à l'étude consiste à injecter de l'eau en utilisant les fractures de roches profondes (3500-5000m) pour créer un échangeur thermique.

4.c) Une faible croissance

La géothermie est une source d'énergie qui se révèle bon marché mais qui a une croissance très nettement inférieure au solaire ou à l'éolien. La capacité installée dans le monde s'élevait à 5800Mwe en 1990 et 8000Mwe en 1999. De plus presque toutes les ressources de haute énergie sont exploitées tandis que la puissance des centrales binaires de moyenne énergie est de quelques mégawatts.

Si l'énergie géothermique n'est pas renouvelable, elle aide indiscutablement à l'économie des réserves et au respect de l'environnement. Elle est économiquement rentable sur le long terme avec des techniques matures sur les sites les plus facilement exploitables.

Cependant, et malgré les développements de la moyenne énergie, la géothermie n'est pas adaptée pour répondre à une forte demande. L'augmentation de l'utilisation de la basse énergie pour le chauffage est par contre envisageable et rentable dans de nombreux endroits

5. L'hydraulique

L'énergie hydraulique est l'énergie cinétique de l'eau que lui donne la pesanteur ou la mer. L'utilisation de l'énergie des vagues et des marées reste marginale alors que l'hydroélectricité est la deuxième forme d'énergie renouvelable derrière la biomasse. Cette industrie est mature depuis plusieurs décennies, rentable et aucune rupture technologique n'est attendue. Sa croissance se réduit à l'augmentation des sites exploités et l'utilisation de l'hydraulique est proche de son optimum dans les pays les plus industrialisés, sauf au Canada. La période d'équipement que traversent les pays d'Asie et d'Amérique du Sud, où le potentiel reste important, pose la question des impacts sur l'environnement de cette énergie. En effet, les bonnes performances environnementales des barrages ont pour contrepartie des terres inondées et des populations déplacées avec des investissements importants.

6. Conclusion sur les énergies renouvelables

Les enjeux majeurs de ces sources d'énergie sont d'abord la réduction des émissions polluantes et la réduction de la dépendance énergétique. L'énergie est un des secteurs industriels les plus polluants et le souci de préserver l'environnement croît avec sa dégradation donc le bilan environnemental des énergies renouvelables est leur principal atout. Cela soutient leur forte croissance actuelle qui est aussi une conséquence des politiques incitatives, en particulier en Europe. En effet, ces formes d'énergie sont généralement encore loin de la compétitivité. Mais cette situation dépend de deux facteurs qui sont l'industrialisation du secteur, qui permet de bénéficier d'économies d'échelle, et le cours du pétrole.

Finalement, les énergies renouvelables apparaissent comme respectueuses de l'environnement et connaissent un fort développement mais elles sont encore chères et majoritairement de faible puissance. Sauf dans le cas de l'hydraulique, elles ne semblent pas être une solution pour une production massive d'énergie à moyen terme, tant sont importants leurs inconvénients liés aux conditions économiques et à l'absence de garantie de puissance.

I.D. La fission et le nucléaire civil

L'électronucléaire représente 6,5 % de la consommation mondiale d'énergie primaire et se différencie des autres sources d'énergie par l'utilisation de l'énergie de liaison interne des noyaux, plus concentrée que celle des molécules. De par ses fortes puissances unitaires et sa maturité économique, le nucléaire a un rôle important dans les solutions à apporter aux scénarios les plus pessimistes de consommation d'énergie. Il dégage de plus peu de gaz à effet de serre, mais ses impacts réels sont encore mal connus et dépendent de la gestion de ses déchets.

Pour mieux comprendre cette filière et les questions qui y sont liées, nous allons partir des réactions physiques avant de donner les caractéristiques fondamentales du cœur d'un réacteur et de présenter la filière électronucléaire dans son ensemble.

1. Principes physiques

La courbe d'énergie de liaison du I.B.1 montre qu'il se libère de l'énergie lors de la fission d'un noyau lourd en deux noyaux plus légers. À l'état naturel, seuls deux éléments sur terre peuvent être exploités par fission : le thorium et l'uranium. Les isotopes considérés sont le thorium 232 et l'uranium 238 dits "fertiles", et l'uranium 235 dit "fissile". Le thorium naturel se compose de 100 % de thorium 232 alors que l'uranium naturel possède 99,3 % d'isotope de masse 238, puis 0,72 % d'isotope 235 et une quantité négligeable d'isotope 234. L'utilisation de ces noyaux repose sur les deux principes fondamentaux que sont le phénomène de fission et le principe de la réaction en chaîne.

1.a) La réaction de fission

La réaction de fission d'un noyau peut qualitativement se décrire comme le franchissement d'une barrière de potentiel de 6 à 7MeV due à la somme des forces nucléaires et coulombienne. L'une est attractive et forte, mais de courte portée et l'autre est répulsive, de plus faible intensité mais de portée plus longue. On parle de fission spontanée quand le noyau au repos franchit cette barrière par effet tunnel, et de fission induite lorsque cette énergie est fournie par l'interaction avec une autre particule. En pratique il s'agit d'une réaction de collision ou d'absorption avec un photon ou un neutron.

Les photons de haute énergie interagissent peu avec les noyaux et la photofission reste uniquement utilisée en recherche même si des études envisagent son utilisation pour le contrôle d'un réacteur électronucléaire [12]. La charge nulle du neutron, un nucléon, lui permet de s'approcher suffisamment près du noyau cible pour ressentir les effets de la force forte et être absorbé par le noyau cible. Si l'énergie de liaison libérée suite à la capture du neutron est suffisante, le noyau composé formé se désintègre rapidement en deux produits de fission plus légers (PF) accompagnés en moyenne de 2 à 3 neutrons. L'énergie cinétique des éléments produits se dissipe en chaleur et vaut environ 200MeV. En effet, la courbe de la Figure 3 (cf. I.B.1) donne :

$$200MeV \approx 230\text{nucléon} \times (8,5 - 7,6) MeV \cdot \text{nucléon}^{-1} - \nu \text{ neutron} \times 8,5 MeV \cdot \text{neutron}^{-1}$$

À cause de l'effet d'appariement des neutrons, les noyaux avec un nombre pair de neutrons sont plus stables que ceux qui en possèdent un nombre impair. Ils libèrent donc plus d'énergie, plusieurs centaines de keV, lors de leur formation. Les noyaux ayant une forte probabilité de fission par capture de neutrons lents sont dit fissiles et ont donc un nombre impair de neutrons. Les plus stables ont aussi un nombre pair de protons et nous retrouvons les trois noyaux fissiles les plus étudiés : le plutonium 239, l'uranium 235 et l'uranium 233. Les noyaux dits fertiles sont ceux qui produisent des noyaux fissiles par une capture neutronique, qui peut être associée à une décroissance β . Fondamental pour des neutrons lents, l'effet d'appariement a peu d'importance si les neutrons incidents apportent suffisamment (environ 1MeV) d'énergie cinétique.

1.b) La réaction en chaîne

Pour dégager une puissance importante, et donc avoir de nombreuses réactions, on utilise les neutrons émis lors de la fission pour entretenir une réaction en chaîne. Comme une fission émet en moyenne ν neutrons, avec $\nu > 1$, on peut imaginer que k de ces neutrons produiront effectivement une nouvelle fission. En régime sous-critique, $k < 1$, la réaction s'étouffe très vite, en régime surcritique, $k > 1$ la réaction diverge (augmentation de la puissance dégagée avec le temps). Le cas où $k=1$ caractérise le régime critique où le nombre

de neutrons, et donc au premier ordre la puissance, restent stables. Le temps caractéristique de cette multiplication des neutrons est lié à la durée de vie d'un neutron dans le milieu et est de l'ordre du dixième de milliseconde.

Dans un réacteur nucléaire, les ν neutrons émis par une fission peuvent (i) être capturés dans le cœur sans provoquer de fission, (ii) sortir du cœur sans être réfléchis ou (iii) provoquer une autre fission. Dans le cas particulier où ν est nettement supérieur à 2, il est envisageable de construire un réacteur pour qu'un neutron serve à entretenir la réaction en chaîne et qu'au moins un autre neutron régénère le combustible fissile par capture sur un isotope fertile : c'est le principe de la surgénération.

2. Les réacteurs

L'électronucléaire a connu un développement rapide et de nombreux types de réacteurs ont été imaginés.

2.a) Principe de fonctionnement d'un réacteur

La principale différence entre des centrales thermique et nucléaire réside dans la chaudière qui crée la source chaude. Cette chaleur peut-être utilisée pour produire de l'électricité avec un système thermodynamique classique composé d'échangeur de chaleur, de turboalternateur etc.

La partie du réacteur nucléaire qui crée de la chaleur est appelée cœur et ce cœur est le point commun des réacteurs nucléaires mais aussi ce qui les différencie entre eux. Ils sont tous le siège d'une réaction en chaîne qui crée de la chaleur dans le combustible, chaleur qui est évacuée par un caloporteur. Ces réactions nécessitent d'être maîtrisées sur plusieurs mois et ce contrôle se fait selon des principes standard : insertion de matériaux neutrophages (bore, cadmium, erbium...), utilisation des neutrons retardés et conception de la géométrie du cœur pour optimiser les situations accidentelles. Ce contrôle est facilité par la présence de neutrons émis à retardement par les produits de fission, après un délai d'au moins quelques secondes après la réaction de fission. Ce phénomène modifie fondamentalement les temps de multiplication de la réaction en chaîne et autorise de piloter la puissance en introduisant des "barres de contrôle" pendant ce délai.

Les différences entre les réacteurs tiennent à la nature et à la forme du combustible, à la géométrie du cœur, à l'énergie moyenne des neutrons, dépendante de la nature du caloporteur et à la présence facultative d'un modérateur.

2.b) Les filières de réacteurs

Les réacteurs à neutrons lents se caractérisent par la présence d'un modérateur qui ralentit les neutrons par collision élastique. Ce modérateur possède donc des noyaux légers et peu capturant ; ce peut être le carbone ou un matériau comme l'eau, riche en hydrogène, ^1H ou deutérium ^2H .

Les réacteurs à eau sont les plus répandus dans le monde et se déclinent en deux familles, les réacteurs à eau bouillante et à eau pressurisée tels les REP français. Ils utilisent pour combustible des oxydes d'uranium enrichi, UOX, ou bien des oxydes mixtes uranium-plutonium, MOX.

L'eau lourde D_2O a un coût de revient élevé, mais elle capture moins les neutrons que l'eau classique et autorise l'utilisation d'uranium naturel ou moins enrichi. C'est le choix pris par la filière canadienne CANDU.

Les réacteurs à graphite furent utilisés dans les années 60 (UNGG en France) et possédaient plusieurs inconvénients. L'utilisation de l'uranium métallique limitait les températures et donc le rendement. L'efficacité moyenne du graphite comme modérateur impliquait des volumes importants et limitait les puissances unitaires. Plusieurs projets envisagent de nouveau son utilisation fondée sur de nouvelles formes de combustible : sels fondus ou boulets.

Les réacteurs à neutrons rapides visent à une meilleure utilisation des neutrons (moins de captures parasites) et des ressources (part plus importante des fissions dues aux noyaux fertiles). Ils permettent de faire de la surgénération, mais nécessitent un caloporteur qui ne ralentisse pas les neutrons. Les caloporteurs envisagés sont l'hélium, peu réactif, ou les éléments lourds : le sodium, le plomb ou l'eutectique plomb-bismuth. Les probabilités de fission sont plus faibles avec des neutrons rapides donc les réactions sont plus difficiles à maintenir et elles nécessitent plus de matière fissile. Au début, celle-ci peut être fournie par des réacteurs à neutrons lents sous forme de plutonium et est ensuite régénérée.

Les réacteurs à haute température se caractérisent par un caloporteur sous forme de gaz qui permet d'avoir des températures plus importantes que dans les filières actuelles et donc de plus hauts rendements thermodynamiques. Ils se fondent sur l'utilisation de combustibles nouveaux qui doivent être conçus pour supporter ces conditions d'irradiation. Ces derniers sont actuellement envisagés sous la forme de petites billes ou boulets de carbone. Selon la géométrie et les structures du réacteur, les cœurs peuvent être thermiques ou rapides.

2.c) Autres réacteurs innovants

On appelle ainsi des filières de réacteurs, ou de cycles du combustible, qui ne sont pas encore au stade industriel mais qui restent du domaine de la recherche. Les deux principales voies sont les réacteurs à sel fondu et les réacteurs hybrides.

Dans les premiers, le combustible est dissous dans un sel liquide qui peut circuler dans le cœur du réacteur qui est plutôt thermique ou rapide selon la composition du sel et des matériaux de structure. Les avantages de ce type de réacteur sont la possibilité de traiter le combustible en temps réel avant de le réinjecter dans le cœur. En séparant par exemple les produits de fission, il semble possible d'avoir des taux de combustion élevés, c'est-à-dire de produire plus d'énergie pour une masse initiale équivalente de combustible. Les problèmes de composition du cœur, de retraitement et les difficultés techniques restent encore nombreux et font peser de lourdes incertitudes sur l'existence et l'avenir de ces réacteurs.

Les seconds associent un cœur sous-critique et une source de neutrons pour maintenir la réaction en chaîne. Bien que des sources exotiques de neutrons soient envisagées, la plus étudiée est composée d'un accélérateur de protons et d'une cible de spallation. L'arrêt de protons de haute énergie dans un matériau lourd tel le plomb provoque l'éclatement de noyaux cibles, leur spallation, et produit des neutrons. En condition de fonctionnement, le nombre de neutrons créés est environ égal à trente fois l'énergie en GeV du proton incident. Les avantages de ce type de réacteur sont surtout un meilleur contrôle des réactions par le pilotage de l'accélérateur et un plus grand nombre de neutrons disponibles. Cela peut permettre d'éviter tout risque d'emballement, de mieux utiliser les ressources naturelles et de produire moins de déchets, ou même de les brûler. Il existe néanmoins des difficultés d'ordre techniques, pour construire un accélérateur puissant et fiable et des structures résistant au flux de neutrons, et des difficultés d'ordre industriel pour démontrer la faisabilité et la rentabilité de tels réacteurs.

En conclusion si ces concepts innovants sont assez prometteurs la perspective de filières industrielles reste très lointaine, une trentaine d'années au grand minimum en cas de volonté politique et scientifique forte, ce qui n'est pas le cas aujourd'hui.

3. Aspects socio-économiques

L'énergie nucléaire est utilisée depuis plusieurs années, mais possède encore ses paradoxes propres que nous allons évoquer avant de présenter ses principales caractéristiques économiques.

3.a) Réserves et impacts environnementaux

Les réserves dépendent beaucoup de l'utilisation des ressources nucléaires. Dans les réacteurs actuels, l'uranium 235 est à l'origine de 57 % des fissions et l'uranium 238 de 43 %, ce qui donne pour les réserves les données du I.A.2. En utilisant au mieux l'uranium naturel, composé de 99,3 % d'uranium 238, ces réserves sont multipliées par 100 mais cela signifie développer une filière rapide ou hybride et son cycle de retraitement du combustible. L'utilisation du thorium augmente encore ces réserves en combustible nucléaire sans autres contraintes importantes. Cependant débiter ces nouvelles filières nécessite de la matière

fissile et seul le plutonium est économiquement envisageable. Finalement c'est de son statut de ressource ou de déchets que dépend l'évaluation des réserves nucléaires (cf. II.B.1).

Les impacts du nucléaire sur l'environnement sont très controversés car il n'émet que peu de gaz à effet de serre, peu de rejets en général, mais il produit aussi ce que l'on nomme les déchets nucléaires (cf. I.E). Leur coût économique et écologique est délicat à établir comme l'illustre la comparaison des différents rapports sur le sujet (cf. par exemple [7] et [13]) et l'approche pragmatique prise par les électriciens. Ces derniers placent de l'argent pendant toute la durée d'exploitation des centrales pour financer leur démantèlement et le "futur" de leurs déchets. La concentration en volume et en toxicité des déchets nucléaires rend à notre avis délicat toute comparaison avec par exemple une émission de CO₂ qui se dilue dans l'atmosphère et dont toute la Terre ressent les effets.

3.b) L'acceptabilité du nucléaire : une spécificité importante

Un des problèmes majeurs du nucléaire est la façon dont il est perçu et accepté par l'opinion publique, et donc par le pouvoir politique. Ceci peut se traduire sur la confiance des industriels, ou par de plus spectaculaires décisions comme en 1999 la décision d'abandonner la filière en Allemagne.

Il existe, en particulier en France, un réel climat de méfiance instauré par des mouvements d'opposants au nucléaire critiquant le manque de transparence et mélangeant allègrement nucléaire civil et militaire. L'affaire du Rainbow-Warrior, l'appréhension de l'accident de Tchernobyl et les immenses erreurs de communications ont jeté le doute dans de nombreux esprits, doutes que cultivent et exploitent les opposants au nucléaire en sous-entendant systématiquement dissimulation et mensonge. Cependant cette méfiance prend aussi ses origines dans les traumatismes militaires que sont Hiroshima et Nagasaki et dans les menaces qui ont pesé sur la planète au vingtième siècle. L'accident de Tchernobyl garde aussi une part importante de responsabilité dans la vision que le grand public peut avoir du nucléaire, même si les causes de l'accident et le fait qu'elles soient inapplicables à des réacteurs à eau pressurisée sont mal connues.

La question de l'impact du nucléaire sur l'environnement et les populations reste un sujet très polémique qui se nourrit essentiellement de l'incertitude concernant les déchets nucléaires. Elle continue de déchaîner les foudres des soit-disant protecteurs de l'environnement et des débats enflammés, mais la désinformation est loi dans ces batailles qui peuvent participer à la fermeture de réacteurs tel Superphénix.

3.c) Le marché du nucléaire

Il y avait en 2000 plus de quatre cents réacteurs civils dans le monde fournissant 15,9 % de la production d'électricité. Ils se situent essentiellement aux États-Unis (30 % de la production), en France (15,7 %) et au Japon (13 %).

L'électronucléaire est en général économiquement rentable et fournit d'après EDF un des kilowattheures les moins chers. L'industrie du nucléaire est régie par des temps caractéristiques très longs comme l'illustrent les réglementations aux États-Unis qui fixent la durée de vie d'une centrale jusqu'à 60 ans entre le début de sa construction et la fin de son exploitation. Le nucléaire est une énergie très concentrée et les puissances unitaires sont très élevées, de 600MWe à 1,3GWe par tranche, chaque centrale pouvant comporter jusqu'à quatre tranches. Cette puissance n'est que très faiblement modulable (une dizaine de pour-cent) sur la durée de fonctionnement du cœur, soit de l'ordre d'une année.

Le nucléaire est une industrie mature, peu polluante mis à part les déchets nucléaires, économiquement rentable mais fortement dépendante des politiques nationales. Au rythme d'exploitation actuelle, les réserves sont grandes et peuvent devenir encore plus importantes si le nucléaire se développe en utilisant de nouvelles technologies. Ces questions n'ont de sens économique et politique que s'il existe une volonté d'augmenter la part du nucléaire dans le bilan énergétique mondial. Dans ce dernier cas, il ne faut pas oublier les grandes constantes de temps de l'industrie nucléaire pour la recherche, le développement, la mise en œuvre et l'utilisation de nouveaux concepts.

Le nucléaire peut être une partie importante de réponse à la question de l'énergie, à ces restrictions temporelles près et si on répond de manière satisfaisante aux questions posées par les risques du nucléaire.

I.E. Dangers du nucléaire et déchets

Comme toute industrie énergétique, le nucléaire s'accompagne de risques et de dangers potentiels qu'il est nécessaire de prendre en compte. Comprendre leur spécificité permet de mieux appréhender les questions qu'ils posent et la manière de les gérer.

Les risques d'accidents majeurs sont systématiquement étudiés et minimisés par les acteurs du nucléaire, mais ne seront pas traités dans ce document. En effet, un tel accident, de type Tchernobyl par exemple, aurait des conséquences incalculables, presque infinies, mais sa probabilité est, elle aussi incalculable car proche de zéro⁵. Les mathématiciens reconnaîtront la classique forme indéterminée familièrement appelée du "zéro fois l'infini". De même nous ne parlerons pas des risques dus à une utilisation "malveillante" tel le détournement militaire ou les risques de terrorisme radioactif.

En conséquence, nous allons dans cette partie nous intéresser seulement à la question des déchets nucléaires pour d'abord en comprendre les risques, puis regarder les solutions qui sont aujourd'hui envisagées.

⁵ Du moins dans les pays occidentaux ; elle semble plus grande dans certains pays de l'Est par exemple...

1. La radioactivité : effet sur l'être humain

La radioactivité a été découverte en 1896 par Henri Becquerel (X 1872) qui la définit à juste titre comme "un nouvel ordre de phénomène" [14].

1.a) *La physique de la radioactivité*

Il existe trois types majeurs de radioactivité nommés α , β et γ . La radioactivité α est la désintégration d'un noyau ${}^Z_A X$ en une particule α , noyaux d'hélium doublement magique et très stable, et le noyau ${}^{Z-2}_{A-4} Y$. La radioactivité β est la transformation dans le noyau d'un proton en un neutron, un électron et un antineutrino, désintégration β^- , ou à l'inverse la transformation d'un neutron en un proton, un antiélectron et un neutrino, désintégration β^+ . La radioactivité γ fait suite à une réaction nucléaire, par exemple une désintégration α ou β , ayant excité le noyau qui se désexcite en émettant un photon de haute énergie (de l'ordre de quelques dizaines de keV à plusieurs MeV).

La radioactivité γ relève des mêmes phénomènes que les désexcitations des atomes ou des molécules. La radioactivité β est une expression directe de l'interaction faible et la désintégration α peut se percevoir comme le franchissement par effet tunnel d'une barrière de potentiel par une particule alpha virtuelle liée au noyau, un peu comme dans une fission.

En traversant la matière ce rayonnement⁶ $-\alpha$, β , ou γ y dépose de l'énergie essentiellement par ionisation, ce qui peut endommager les cellules vivantes. Les unités utilisées en radioactivité sont le becquerel, le gray, et le sievert. Un becquerel (Bq) correspond à une désintégration par seconde, et le gray (Gy) à un joule déposé par kilo de matière. Le sievert (Sv) est utilisé pour parler des effets biologiques des radiations. Il est de même dimension que le gray, mais avec des facteurs de pondération pour prendre en compte la nature des radiations et/ou la nature des organes irradiés. En particulier ces facteurs de pondération sont plus importants pour les particules alpha qui sont peu pénétrantes que pour les rayons gamma qui perdent leur énergie sur une plus grande distance. Le sievert est donc une mesure du risque liée aux faibles doses.

1.b) *Les faibles doses : une question ouverte*

Selon le niveau de dose absorbée, on distingue deux types d'effets des rayonnements ionisants. Les effets déterministes sont bien connus, ils s'expliquent par la mort massive de cellules et apparaissent systématiquement au-dessus de 0,5Sv environ. Les effets des faibles doses sont dit stochastiques et ils sont liés à des probabilités d'apparition d'effets à long

⁶ Cette double appellation particule et rayonnement date de l'origine de la radioactivité et a probablement influencé Louis de Broglie pour imaginer sa célèbre hypothèse sur le comportement ondulatoire de la matière.

terme, en particulier des cancers. Ces effets sont aléatoires et ne dépendent pas de la dose reçue ; seule la probabilité d'être atteint en dépend.

Pour donner des exemples :

- la dose létale est de quelques sieverts ;
- la dose naturelle est de quelques millisieverts (voir Figure 10) ;
- la législation européenne fixe la dose maximale admissible à 100mSv sur 5ans pour les travailleurs du nucléaire et à 1mSv.an⁻¹ pour le public (5mSv jusqu'en 1999) ;
- une radiographie des poumons, une radiographie dentaire, une mammographie et un vol Paris-Tokyo donnent des doses respectives de 0,14mSv, 70mSv, 1mSv et 0,1mSv [15].

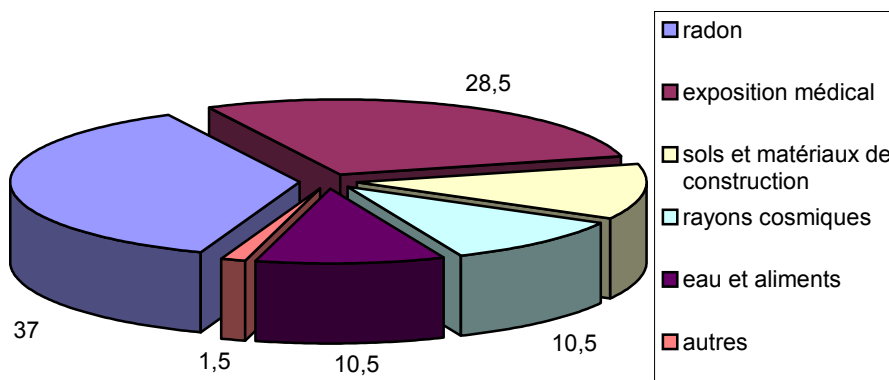


Figure 10 : répartition des différentes sources d'exposition aux rayonnements de la population française [16]. La dose totale est d'environ 4 à 5mSv.

La valeur des doses reçues "naturellement" par le public illustre la notion de norme et de dose maximale qui sont fondées sur le principe de précaution et les hypothèses les plus pessimistes. Les normes ne doivent pas être comprises comme les doses au-delà desquelles il existe des effets, mais plutôt comme celles sous lesquelles les effets sont presque certainement négligeables. Les effets biologiques des faibles doses sont encore mal compris, les controverses nombreuses et les preuves statistiques significatives (association de mots dangereuse !) sont rares et peu convaincantes. Il semble donc que tout ceci engage à une modération certaine et condamne les grandes exagérations parfois entendues pour parler des faibles doses.

2. Les déchets nucléaires

2.a) Définition

Est qualifié de déchet nucléaire toute "matière n'ayant pas d'utilisation ultérieure prévue comprenant des radionucléides naturels ou artificiels en concentration supérieure à des valeurs fixées par les autorités compétentes" [17]. La notion d'utilisation ultérieure s'avère parfois délicate à utiliser pour décider du caractère de déchet ou de ressource d'un corps et le cas du plutonium est en particulier discuté dans le chapitre II.

Les déchets nucléaires proviennent majoritairement de l'aval du cycle du combustible électronucléaire et ont pour origine physique les réactions de fission et les captures neutroniques, parfois associées à des décroissances radioactives. Dans le premier cas, ils sont nommés produits de fission, et dans le second cas produit d'activation, ou "actinides" selon le corps capturant. Les caractéristiques principales de ces résidus nucléaires sont :

- leur demi-vie très variable, allant jusqu'à plusieurs milliers ou millions d'années ;
- le type de rayonnements émis ;
- la composition spécifique, comprenant des éléments naturels (isotopes radioactifs des iode, césium...) ou non (technétium, curium...) ;
- le dégagement de chaleur.

Leurs propriétés chimiques ne dépendent, par définition, que de l'élément et donc essentiellement de la place dans le tableau périodique. Les actinides correspondant au remplissage de la couche *5f* et la toxicité chimique de nombreux radioisotopes (uranium-235 et 238, neptunium-237...) est souvent bien plus grande que leur toxicité radiologique. Les questions nées de l'utilisation militaire d'uranium appauvri en ont donné la démonstration, quoi qu'en disent certaines polémiques [18] [19].

Finalement, les masses considérées restent relativement faibles par comparaison aux autres types de déchets à cause de l'intensité de l'interaction forte et correspondent environ à 80t par réacteur pour 3 ans. Après séparation partielle, la masse cumulé en France en 2001 est d'une vingtaine de milliers de tonnes. En conclusion, le danger associé aux déchets nucléaires provient de la concentration d'une très grande radioactivité pendant très longtemps.

2.b) La gestion actuelle, les prévisions à court et moyen terme

Les déchets nucléaires sont classés en quatre catégories principales tenant compte de leur niveau d'activité et de leur période (voir ci-dessous). Contrairement à un certain nombre d'autres rejets, la réglementation internationale sur les déchets radioactifs est assez stricte. Il est par exemple interdit de procéder à d'importants rejets dans les eaux internationales, d'enfouir des colis dans les grands fonds sous-marins, d'"acheter" un endroit de stockage dans d'autres pays...

Il existe trois principales options de gestion des déchets : *(i)* la transmutation, *(ii)* la dilution et dispersion dans l'hydrosphère (DDH) et *(iii)* le conditionnement confinement dans la géosphère (CCG). La transmutation consiste à transformer les noyaux pour les rendre moins nocifs et est détaillée au chapitre suivant. La confiance dans la DDH repose simplement sur la Nature, tandis pour la CCG la bonne gestion repose aussi sur la Société (cf. *I.E.3.a*).

Catégorie	Définition
Déchets TFA	Déchets de très faible activité α et à longue durée de vie
Déchets A	Déchets de faible et moyenne activité ne renfermant que des émetteurs β et γ à vie courte et moyenne (< 30 ans) et une activité α inférieure à $0,01 \text{ Ci.t}^{-1}$
Déchets B	Déchets de faible et moyenne activité renfermant des émetteurs de longue période et une activité $\alpha > 0,01 \text{ Ci.t}^{-1}$
Déchets C	Déchets de haute activité contenant des quantités importantes de produits de fission, d'actinides et de produits d'activation

Classification des déchets nucléaires

La situation en France est gouvernée par la loi Bataille de 1991 [20] qui donne quinze ans à la recherche pour exploiter trois solutions de gestion des déchets nucléaires.

"La gestion des déchets radioactifs () doit être assurée dans le respect de la protection de la nature, de l'environnement et de la santé, en prenant en considération les droits des générations futures.

Des travaux seront menés sur :

- *La recherche de solutions permettant la séparation et la transmutation des éléments radioactifs () ;*
- *L'étude des possibilités de stockage réversible ou irréversible dans les formations géologiques profondes, notamment grâce à la réalisation de laboratoires souterrains ;*
- *L'étude de procédés de conditionnement et d'entreposage de longue durée en surface ().*
- *() Le Parlement aura à se prononcer en 2006."*

3. Stockage et transmutation

3.a) *Le stockage une solution de référence*

Le stockage des déchets nucléaires en couche géologique profonde reste la solution de référence dans le monde et les principaux pays ont prévu leur site expérimental. Ce consensus est justifié par :

- un système passif, qui ne présuppose en rien des sociétés futures dont la stabilité culturelle ne peut être présumée ;
- la profondeur qui fait un écran total pour les populations et minimise les risques d'intrusion accidentelle ;

- la grande variété de terrains possibles et les plus étudiés sont les roches de sel, les formations argileuses et différentes formations cristallines, comme le granite et le basalte ;
- une option techniquement réalisable aujourd'hui ;
- une solution parfois non irréversible, mais à un coût élevé.

Le stockage consiste à enfouir les déchets nucléaires en profondeur, à quelques centaines de mètres, dans des couches géologiques stables et faiblement irriguées. Le rôle de confinement et de dilution du stockage s'effectue par les quatre barrières présentées sur la Figure 11.

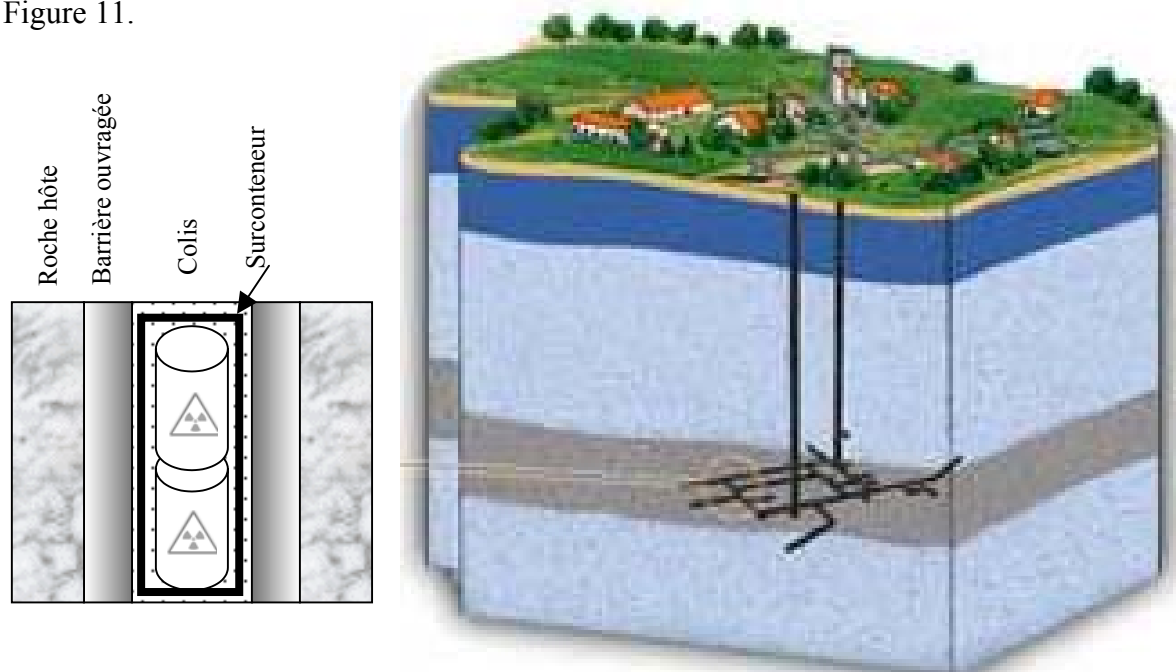


Figure 11 : Schéma de principe d'un site de stockage et ses quatre barrières

Dans un tel stockage, l'eau va progressivement altérer les différentes protections des déchets nucléaires pour faire migrer les radionucléides vers la surface. Pour des raisons éthiques on vise à ce que les doses libérées restent faibles pendant des centaines de milliers d'années. Les déchets sont conditionnés en colis comprenant souvent un conteneur métallique et un contenu qui doit être le plus confinant possible vis-à-vis des radionucléides. Ce contenu est constitué de déchets libres, incorporés dans un enrobé ou dans une matrice, par exemple verres R7T7 ou céramique SYNROC. Les études actuelles montrent que ce colis associé à une barrière ouvragée à base d'argile gonflante devrait assurer un confinement de l'ordre de plusieurs milliers ou dizaines de milliers d'années. Des recherches sont en cours pour évaluer le confinement de la roche hôte. Par exemple en France, le laboratoire de Bures est en cours de construction à 160m de profondeur dans l'argile des départements de la Meuse et de Haute-Marne.

3.b) *La transmutation principe*

Une autre solution consiste à transmuter les déchets, c'est-à-dire à les transformer en éléments moins radioactifs à long terme. Si en théorie plusieurs méthodes sont possibles, en pratique seule la transmutation des déchets par des neutrons semble réalisable à un coût non prohibitif. Comme les réacteurs nucléaires sont les sources de neutrons les plus intenses et les moins chères, la recherche s'est axée sur la transmutation des déchets nucléaire en réacteur.

En pratique, après les avoir séparés et conditionnés, cela revient à casser les éléments lourds, les actinides, en les fissionnant en éléments plus légers et plus stables, et à transmuter les produits de fission à vie longue en corps à durée de vie plus courte par capture neutronique et décroissance β .

Si le principe est simple, il n'est cependant pas facile de faire fonctionner en pratique des réacteurs qui consomment des déchets. Ces questions sont détaillées dans le deuxième chapitre, mais il est possible d'en faire un rapide résumé. Pour transmuter les déchets il faut d'abord avoir des neutrons disponibles, soit pour faire des fissions (actinides) qui entretiennent la réaction en chaîne, soit pour faire des captures "parasites" sur les produits de fissions. Ensuite, la présence des déchets dans le cœur du réacteur le rend plus difficile à contrôler car elle diminue la présence de neutrons retardés.

De nombreuses études sont menées à ce sujet et il faut en retenir à notre avis quelques caractéristiques communes :

- les spectres rapides sont meilleurs d'un point de vue nombre de neutrons, mais nécessitent de longs temps d'irradiation de plusieurs dizaines d'années ;
- il est quasiment impossible de transmuter l'ensemble des déchets, que ce soit à cause de la composition des cœurs ou à cause des pertes de retraitements ;
- la transmutation ne semble pas prête à être mise en place avant plusieurs dizaines d'années.

Finalement, cette transmutation n'est pas possible ni dans les réacteurs actuels, ni dans ceux qui sont envisagés pour la prochaine génération. Il faut développer de nouveaux types de réacteurs, par exemple des réacteurs hybrides ou rapides, et nous pouvons même envisager qu'ils soient dédiés uniquement à l'incinération des déchets nucléaires et non pas à la production d'électricité, ou au contraire qu'ils puissent faire les deux.

Les déchets nucléaires posent des questions d'autant plus graves qu'elles ont des enjeux à très longs termes, impliquant les générations futures. Fondées sur le principe de précaution, les études sur les faibles irradiations fournissent des doses minimales acceptables et aident à comparer les options possibles. Il faut cependant avouer que ces options restent très floues dans l'état actuel des connaissances et que peu de progrès importants sont attendus à court terme. Si le stockage ne semble pas avoir de réels inconvénients, il n'a aujourd'hui surtout, pas de vraies alternatives, sauf à imaginer des solutions originales comme l'envoi des déchets dans l'espace ou le soleil (dont le principal inconvénient n'est pas le coût, mais la sûreté du lancement)...

Conclusion

Les estimations de la consommation énergétique montrent la nécessité de trouver d'autres moyens de production que les énergies fossiles. Leurs réserves sont limitées et une utilisation massive de ces énergies semble écologiquement risquée. Nous avons posé cette question en terme d'énergie primaire, en sachant que des recherches sur le transport ou le stockage de l'énergie restent à effectuer (développement des piles à hydrogènes par exemple).

Les énergies renouvelables restent chères et peu adaptées à la production en masse d'énergie. Les ressources sont très grandes, mais les fortes croissances observées aujourd'hui ne devraient pas pouvoir se maintenir pendant 10 ou 20 ans et les énergies renouvelables ne peuvent pas encore remplacer les autres moyens de production énergétique.

Le nucléaire possède un grand potentiel : énergie concentrée, ressources abondantes et peu polluantes ; à condition de développer de nouvelles filières et de résoudre de manière convaincante les questions des déchets nucléaires et du retraitement des matières fissiles. Des réacteurs rapides, à sel fondu ou hybride permettent de mieux utiliser l'uranium naturel tandis que les réacteurs actuels produisent une énergie rentable, mais dont les ressources sont limitées à l'échelle du siècle. La fusion apparaît aussi comme une alternative possible dans cinquante ou cent ans, si elle est soutenue par une forte volonté politique et économique.

Nous pensons qu'il existe plusieurs solutions possibles pour répondre à la demande énergétique pour le siècle à venir mais que leurs mises en place restent complexes. Même si le marché de l'énergie est gouverné par des notions de rentabilité, nous pensons qu'une vision à long terme doit être apportée par les gouvernements nationaux et par des discussions supranationales.

CHAPITRE II. DÉCHETS NUCLÉAIRES ET MOX THORIUM PLUTONIUM

Le nucléaire apparaît comme une source d'énergie possédant un grand potentiel qui pose néanmoins deux questions majeures que sont les déchets et l'utilisation des ressources nucléaires. L'importance de ces problèmes va augmenter avec un probable développement de l'électronucléaire qui accompagnerait une forte augmentation de la consommation énergétique ou une substitution des énergies fossiles. Les déchets électronucléaires sont essentiellement constitués de produits de fission et d'actinides, et même si l'entreposage apparaît aujourd'hui la solution de référence, nous allons présenter les principes de leur transmutation.

Nous pouvons aussi remarquer que les questions du développement du nucléaire et des déchets sont liées par l'utilisation ou non du plutonium. En effet, ce dernier est considéré soit comme le déchet le plus abondant, soit comme la ressource permettant de débiter de nouvelles filières. Par exemple, une manière de développer une énergie nucléaire plus propre est d'utiliser le thorium à la place de l'uranium et de créer des actinides moins nocifs pour la même quantité d'énergie produite. Le plutonium peut alors servir de matière fissile pour débiter cette filière. Pour quantifier cette question, nous avons simulé un modèle de combustible MOX thorium-plutonium utilisé dans les réacteurs à eau pressurisée. Cette étude n'est pas à la base d'un scénario particulier de développement du nucléaire, mais propose un moyen rapide pour créer de l'uranium 233 et pour améliorer les connaissances industrielles sur le cycle du thorium tout en brûlant du plutonium.

Pour débiter ce chapitre, nous allons approfondir la question des déchets nucléaires et de leur transmutation abordée au *I.E.* Ensuite, nous allons présenter le MOX thorium-plutonium pour dans une troisième partie décrire les simulations effectuées sur un modèle de REP utilisant ce combustible.

II.A. Déchets nucléaires et transmutation

Les déchets nucléaires ont été présentés dans le chapitre précédent par leurs effets sur l'homme et leurs origines, la production d'électricité. Cette partie précise quantitativement et qualitativement ce que nous appelons déchets nucléaires afin de comprendre comment ils peuvent être transmutés dans le champ neutronique d'un réacteur. Nous précisons alors les notions de section efficace de réaction ainsi que leurs différentes expressions.

1. Déchets nucléaires

Les déchets nucléaires les plus actifs et dangereux à moyen et long terme sont les déchets C du tableau du I.E.2. Ils se divisent en deux catégories principales : les produits de fission à vie longue, d'une période supérieure à 30 ans, et les éléments lourds provenant des captures sur l'uranium. L'usage a consacré le terme générique d'actinide pour désigner ces derniers.

1.a) Caractéristiques

Le tableau suivant indique les principales caractéristiques des déchets formés et les quantités créées par les réacteurs actuels.

Produits de fission			Actinides		
Isotope	Période (ans)	Rendement (kg/an ⁻¹)	Isotope	Période (ans)	Rendement (kg/an ⁻¹)
Se ⁷⁹	7.10 ⁴	0,11	Np ²³⁷	2,1.10 ⁶	11
Zr ⁹³	1,5.10 ⁶	15,5	Pu ²³⁸	87,6	11
Tc ⁹⁹	2,1.10 ⁵	17,7	Pu ²³⁹	2,4.10 ⁴	135
Pd ¹⁰⁷	6,5.10 ⁶	4,4	Pu ²⁴⁰	6563	62
Sn ¹²⁶	1.10 ⁵	0,44	Pu ²⁴¹	14,35	33
I ¹²⁹	1,6.10 ⁷	3,9	Pu ²⁴²	3,7.10 ⁵	24
Cs ¹³⁵	2.10 ⁶	7,7	Am ²⁴¹	432,2	4
			Am ²⁴³	7370	3,3
			Cm ²⁴⁴	18,1	1,4

Rendement annuel en PFVL et en transuraniens d'un REP de 900 MWe (UOX 3,5% à 33GWj.t⁻¹) au déchargement. Les produits de fission et le plutonium 241 sont émetteurs β^- et les autres isotopes d'actinides sont émetteurs α [21] et [22]

Les actinides sont produits par les réactions de capture et l'inventaire massique à la sortie d'un REP est dominé par le plutonium (après l'uranium). L'utilisation de taux de combustion plus importants ou bien de combustibles MOX augmente la proportion relative des transuraniens lourds.

Quel que soit le corps qui fissionne, une réaction de fission dégage environ 200-250MeV et la quantité totale de produits de fission (PF) est donc directement proportionnelle à l'énergie thermique libérée par le cœur. La formation des produits de fission à vie longue (PFVL) ne dépend que peu du noyau qui fissionne et la seule manière de créer moins de PFVL est d'augmenter la proportion d'énergie effectivement utilisée et donc le rendement thermodynamique du système. Par exemple, faire de la cogénération ou des réacteurs hautes températures, produit moins de PF. Le gain réalisé peut être d'un facteur deux (rendements de 30 % dans le cas des REP et de 60 % pour les HTR) ce qui est sensible en termes de volume ou de masse, mais pas en termes de toxicité radiologique.

1.b) La radiotoxicité

Pour évaluer la nuisance liée aux déchets nucléaires, il existe de nombreux critères pertinents qui sont les conséquences directes de leurs principales caractéristiques (cf. I.E.1) : le volume, le dégagement de chaleur, la toxicité chimique, la radiotoxicité etc. La radiotoxicité est la traduction de l'effet biologique des faibles doses dues aux déchets nucléaires [23] [24]. Elle tient compte de rayonnements émis, nature et énergie, et des tissus humains et s'exprime donc en sieverts (cf. I.E.1).

La radiotoxicité d'un élément radioactif est définie par le produit de son activité avec un facteur de dose efficace. Ce coefficient est fixé par la CIPR [24] et vaut par exemple $2,0 \cdot 10^{-7} \text{Sv} \cdot \text{Bq}^{-1}$ pour l'américium 241 et $7,8 \cdot 10^{-10} \text{Sv} \cdot \text{Bq}^{-1}$ pour le technétium 99. La valeur de ces coefficients dépend de l'emplacement supposé de l'isotope radioactif, de l'énergie et de la nature du rayonnement émis et il augmente avec les densités d'énergie déposées. De par sa définition, la radiotoxicité est une quantité extensive, au sens thermodynamique du terme, donc la radiotoxicité d'un mélange est égale à la somme des radiotoxicités des éléments qui le composent. C'est de plus, une grandeur fondamentalement dépendante du temps, car associée à des corps radioactifs dont l'inventaire évolue [25].

Les PFVL se désintègrent en noyaux stables ou de faible période, et la radiotoxicité induite est proportionnelle à la quantité de l'élément et décroît exponentiellement selon sa période.

Les actinides suivent de longues chaînes de désintégration avant d'arriver à des isotopes stables et la radiotoxicité induite décroît aux rythmes des éléments majoritaires, sauf dans certains cas particuliers de fils particulièrement nocifs. La Figure 12 montre l'évolution de la radiotoxicité d'un kilogramme de technétium 99 et d'américium 241. La deuxième courbe décroît comme l'américium 241 initial jusqu'à 7000 ans puis elle remonte à cause du neptunium 237 et du thorium 229. Cette figure illustre le fait que les éléments lourds, émetteurs alpha sont en moyenne beaucoup plus radiotoxiques que les PFVL.

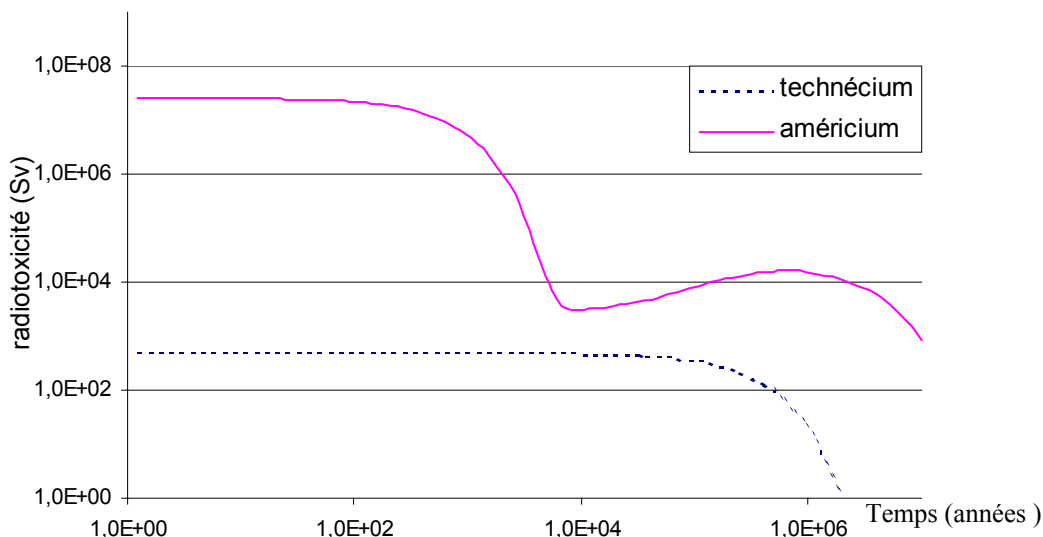


Figure 12 : évolution de la radiotoxicité d'un kilogramme de technétium 99 et d'américium 241. Nous pouvons remarquer la plus grande radiotoxicité de l'actinide, émetteur alpha, et la forme des courbes. La radioactivité du technétium décroît avec sa période ($2,1.10^5$ ans) alors que la radiotoxicité de l'américium suit la chaîne de décroissance de l'isotope. L'augmentation de la radiotoxicité après 10 000 ans est due au neptunium 237 et surtout au thorium 229.

La figure suivante compare les radiotoxicités induites par un kilogramme de différents actinides.

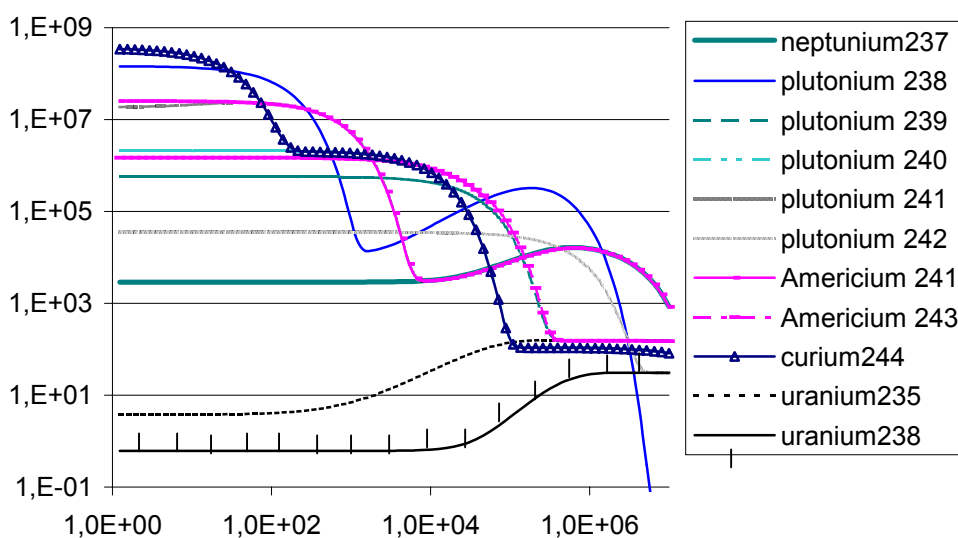


Figure 13 : radiotoxicité induite par 1 kg des principaux actinides présents au déchargement d'un REP. Nous pouvons remarquer qu'en moyenne, plus les noyaux sont lourds, plus ils sont radiotoxiques.

Si la radiotoxicité est retenue comme une mesure du risque lié aux déchets nucléaires, la priorité doit être donnée à la diminution de l'inventaire d'actinides, et en particulier en envisageant leur transmutation. Si l'on tient compte du mouvement des ions en conditions de stockage, la plupart des PFVL deviennent les plus potentiellement dangereux car leur mobilité est plus importante que celle des actinides [26].

2. La transmutation

2.a) Définition et contexte

Pour agir sur les déchets, il faut les extraire du combustible usé, et la transmutation s'accompagne toujours d'une étape préliminaire de retraitement. Les questions liées à cette étape devraient être résolues sous peu en laboratoire et les taux d'extraction industriels sont prévus de l'ordre de 99,9 % pour le plutonium et l'uranium et 99 % pour les autres éléments [28]. Les pertes totales sont donc liées au nombre de retraitements et constituent une limite inférieure au gain de la transmutation.

Nous nous plaçons dans le cadre de la transmutation par neutrons, justifiée par de nombreuses études (voir par exemple [27], [28] et [29]) et grâce à son rendement et son coût énergétique. Cette transmutation est complémentaire d'autres techniques, en particulier du stockage géologique, et elle vise à diminuer les risques ou les coûts dus aux déchets.

2.b) Les produits de fissions

On envisage la transmutation des PFVL et de certains PF à vie moyenne (technétium 99, strontium 90) par capture d'un neutron. Dans ce cas, le nombre de masse du noyau change, ainsi que sa période. Les noyaux considérés deviennent alors moins nocifs, comme le montre le tableau ci-dessous.

Isotope	Période (ans)	Isotope fils	Période
^{79}Se	7.10^4	^{80}Se	stable
^{93}Zr	$1,5.10^6$	^{94}Zr	stable
^{99}Tc	$2,1.10^5$	^{100}Tc puis ^{100}Ru	15,8s puis stable
^{107}Pd	$6,5.10^6$	^{108}Pd	stable
^{126}Sn	1.10^5	^{127}Sn puis ^{127}Sb et ^{127}Te	2h puis 3j et 9h
^{129}I	$1,6.10^7$	^{130}I puis ^{130}Xe	12,4h puis stable
^{135}Cs	2.10^6	^{136}Cs puis ^{136}Ba	13j puis stable

Périodes des produits de fission à vie longue et de leur fils obtenus par capture neutronique. Les PFVL forment tous des noyaux stables ou à faible durée de vie après une unique capture.

Cette méthode pour diminuer la toxicité des PFVL pose trois problèmes principaux :

- de nouvelles technologies de matrices doivent être développées pour les irradier (cf. par exemple les expériences du programme européen EFFTRA : Experimental Feasibility of Targets for TRAnsmutation) ;

- la réaction de capture consomme un neutron ce qui augmente les pertes du cœur avec un effet négatif sur la réaction en chaîne ;

- les PFVL sont mélangés à d'autres isotopes des mêmes éléments présents dans les déchets qui peuvent faire des captures parasites.

Pour optimiser le nombre de neutrons consommés, et pour ne pas former de nouveaux noyaux radioactifs à partir de corps stables, il faudrait une séparation isotopique qui n'est pas économiquement réaliste.

2.c) Les actinides

On étudie aujourd'hui la transmutation des actinides par deux approches différentes. La première vise d'abord à produire de l'énergie puis à détruire des déchets nucléaires, ou à en former moins. La seconde envisage la création de réacteurs dédiés à l'incinération, soit pour sortir du nucléaire, soit pour des scénarios à plusieurs niveaux de réacteurs.

La transmutation des actinides par les neutrons s'effectue principalement par réactions de capture ou de fission. Les captures conduisent à d'autres éléments lourds de radiotoxicité au moins comparable d'après le paragraphe précédent, donc seules les fissions permettent un véritable gain à long terme de radiotoxicité. Le rapport entre les nombres de fissions et de captures dépend de l'isotope et de l'énergie des neutrons. De ce point de vue, les spectres rapides sont plus efficaces car la proportion de fission est plus importante que pour les spectres thermiques [28]. Leurs plus faibles sections efficaces imposent cependant des inventaires plus importants et des temps caractéristiques de plusieurs dizaines d'années. Les sections efficaces sont plus grandes en spectres thermiques pour les isotopes fissiles, mais le bilan neutronique reste moins favorable.

La notion de consommation de neutrons par fission est souvent utilisée pour quantifier ces phénomènes [30] [31]. C'est une grandeur de nature additive qui permet de séparer les contributions de chaque corps et qui se définit pour le noyau i par la relation :

$$D_i = \sum_j P_{i \rightarrow j} \left\{ \Delta n_{i \rightarrow j} + \sum_k P_{j \rightarrow k} (\Delta n_{j \rightarrow k} + \dots) \right\}$$

avec $P_{i \rightarrow j}$: probabilité de passer des noyaux i à j , égale à $\lambda_{i \rightarrow j} / \lambda_i$ avec λ_i , respectivement $\lambda_{i \rightarrow j}$, constante de décroissance totale, respectivement partielle, de l'isotope i , respectivement de i vers j (avec des notations évidentes, $\lambda_{i \rightarrow j} = \langle \sigma_{i \rightarrow j} \rangle \phi$ ou bien $\ln(2) / T_{1/2}^{i \rightarrow j}$ et $\lambda_i = \sum_j \lambda_{i \rightarrow j}$)

$\Delta n_{i \rightarrow j}$: nombre de neutrons consommés du passage de i à j . $\Delta n_{i \rightarrow j}$ vaut 1 pour une capture, $1 - \nu_j$ pour une fission...

Pour imaginer et construire des réacteurs pour incinérer les actinides, des études cherchent à définir et déterminer le "meilleur" spectre de neutrons (voir [28] et [32] par

exemple). À notre avis, la conclusion la plus importante des études sur la transmutation est qu'il n'est pas raisonnablement possible de transmuter tous les déchets nucléaires. Quelle que soit la filière envisagée, il y aura toujours création d'éléments lourds dans le cœur et l'inventaire final reste important. La transmutation ne peut donc remplacer le stockage qui est aujourd'hui envisagé, mais peut être complémentaire.

La transmutation par neutrons implique que les déchets nucléaires soient dans le champ neutronique d'un réacteur nucléaire et ils modifient alors l'équilibre de la réaction en chaîne. Pour déterminer comment évolue le cœur, il est nécessaire d'effectuer des calculs de neutronique fondés sur la connaissance des sections efficaces de réaction.

3. La problématique des sections efficaces

Les sections efficaces de réaction sont les quantités physiques qui pilotent l'évolution des noyaux dans le réacteur. Il est indispensable de les connaître avec précision pour prévoir le comportement d'un réacteur.

3.a) Définitions

La section efficace d'une réaction entre un élément A et un élément B aboutissant à un état final est une grandeur statistique qui traduit la probabilité pour que cette réaction ait lieu. Pour un nombre N de particules cibles dans un flux ϕ de particules incidentes le taux de réaction, R , vaut, par définition de σ :

$$R = \sigma \cdot \phi \cdot N$$

En physique des réacteurs, les réactions qui interviennent sont la capture neutronique, la fission, la réaction (n,2n) et les collisions élastiques.

Ces probabilités de réactions varient avec l'énergie du neutron incident⁷, E , et les sections efficaces sont donc des fonctions $\sigma(E)$. À basse énergie, elles décroissent comme l'inverse de la vitesse des neutrons (longueur d'onde de De Broglie du neutron). À plus haute énergie, dans la zone dite épithermique, il existe souvent une zone comportant de nombreuses résonances qui disparaissent au-dessus du mégaelectronvolt. Il existe aussi des effets de seuil pour certaines réactions lorsque le neutron doit avoir une énergie minimale pour produire l'état final (cf. par exemple I.D.1). Les limites en énergies de ces zones dépend parfois des auteurs et nous pouvons en citer un [33]:

⁷ en fait il s'agit de la vitesse relative : noyau-neutron, donc les sections efficaces varient aussi avec la température des noyaux cibles, et ceci est d'autant plus sensible qu'ils sont légers. Ceci est aussi à l'origine de l'élargissement par effet Doppler des résonances, et en particulier de l'augmentation de la section efficace de capture de l'uranium 238 avec la température qui est si importante dans la stabilité des réactions nucléaires.

zone thermique : $E \simeq 0,025\text{eV}$;

zone épithermique : $E \sim 1\text{eV}$ ou 1keV ;

zone rapide : $E = 100\text{keV} - 10\text{MeV}$.

La Figure 14 donne des exemples de ces phénomènes.

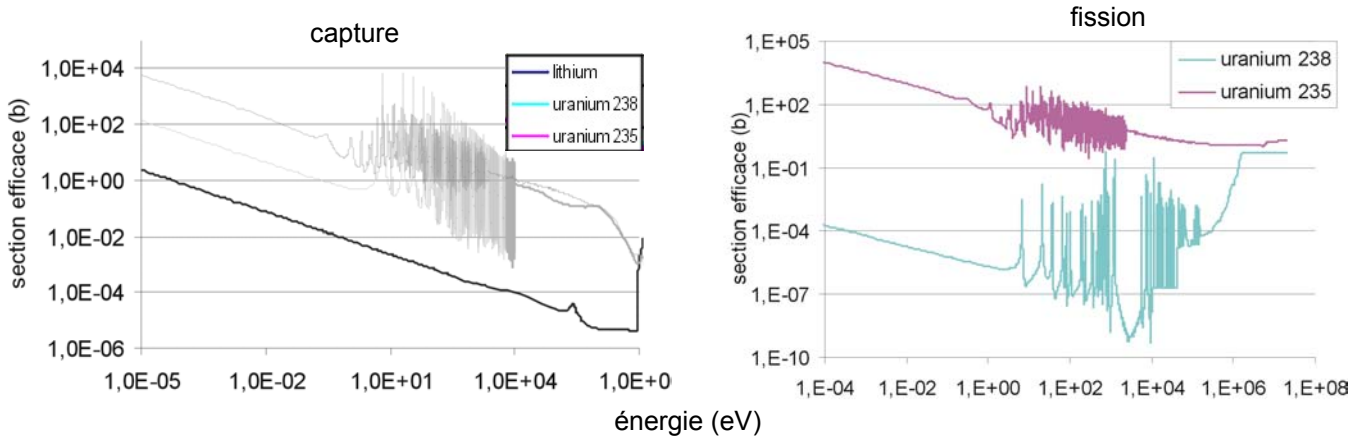


Figure 14 : sections efficaces de capture et de fission du lithium 7 et des uranium 235 et 238. On peut noter la décroissance en $1/v$ à basse énergie, la zone de résonance pour les noyaux lourds dans la zone épithermique et l'effet de seuil dans la zone "rapide" pour la fission de l'uranium 238 (cf. I.D.1)

Pour un spectre en énergie de neutrons, nous noterons $\langle \sigma \rangle_E$ la section efficace moyenne en énergie sur un domaine I (souvent \mathbb{R}) pondérée par le flux.

$$\langle \sigma \rangle_E = \frac{\int_I \sigma \phi}{\int_I \phi}$$

Si ce spectre dépend du temps, cette moyenne devient une fonction du temps et nous utiliserons les notations évidentes $\langle \sigma \rangle_E(t)$ et $\langle \sigma \rangle_{E,t}$. Dans un réacteur, ce sont ces deux valeurs moyennes, en énergie et en temps qui sont utilisées pour calculer l'évolution d'un noyau en fonction du flux du neutrons.

3.b) Interdépendance flux- sections efficaces

Les sections efficaces moyennes dépendent du flux neutronique. Lorsqu'il y a de grandes quantités de matière le flux se modifie selon les réactions produites, et cela est encore plus vrai quand une réaction en chaîne entretient une rétroaction totale des sections efficaces sur le flux.

Dans un réacteur nucléaire, les résonances d'absorption des éléments qui composent le cœur modifient le flux de manière ponctuelle en énergie. Il y a une dépression de neutrons autour de l'énergie de la résonance qui peut modifier notablement la valeur de la section

efficace moyenne du noyau considéré. Ce phénomène, appelé auto-absorption, est illustré par les simulations du II.C et se comprend en imaginant l'effet sur un flux constant, F , d'un noyau qui a une section efficace très grande, S , sur l'intervalle $I = [E-\Delta E, E+\Delta E]$.

$$\text{Avant absorption on a : } \begin{cases} \phi(E) = F \\ \langle \sigma \rangle = S \cdot F \cdot 2\Delta E \end{cases}$$

$$\text{Après absorption on a : } \begin{cases} \phi(E) = F \text{ pour } E \in \mathbb{R}^+ / I \\ = \varepsilon \text{ pour } E \in I, \varepsilon \text{ petit} \\ \langle \sigma \rangle = S \cdot \varepsilon \cdot 2\Delta E \end{cases}$$

3.c) Sections efficaces et simulations

Pour faire des simulations numériques et déterminer le comportement d'un système ou l'évolution des noyaux il est nécessaire d'évaluer qualitativement et quantitativement les réactions dans le système. D'après le paragraphe précédent, pour connaître les sections efficaces dans un réacteur, il faut connaître soit $\sigma(E)$ et l'énergie des neutrons, soit $\langle \sigma \rangle_E$ et $\langle \phi \rangle_E(t)$, soit $\langle \sigma \rangle_{E,t}$ et $\langle \phi \rangle_{E,t}$.

Ces expressions mettent en valeur deux approches pour aborder la question de l'importance et de l'évaluation des sections efficaces.

Les valeurs moyennes dépendent de la forme du spectre de neutrons dans le réacteur et donc de sa géométrie, de la composition du combustible, de son évolution... Finalement elles sont spécifiques pour chaque type de réacteur et chaque simulation et permettent donc de faire des comparaisons.

Depuis le début de l'ère nucléaire les grandeurs $\sigma(E)$ ont été mesurées et modélisées pour de nombreux noyaux par toute la communauté scientifique. L'état des connaissances sur ces grandeurs est supervisé par des organismes internationaux, telle l'agence pour l'énergie nucléaire de l'OCDE. Les données nucléaires sont regroupées sous forme de bibliothèques "évaluées"⁸ tels JEF [34], JENDL [35] et ENDF [36]. Les sections efficaces sont bien connues pour les isotopes importants du cycle du combustible actuel, mais les études entreprises sur la gestion des déchets nucléaires font intervenir des noyaux dont l'étude avait été négligée ou incomplète et il existe des incertitudes ou des désaccords entre ces bases de données. Ces incertitudes peuvent limiter la précision des simulations et l'exemple de la section efficace de capture de l'américium 242 est exemplaire à cet effet comme le montre la publication associée au projet expérimental (cf. III.A. et annexe A).

⁸ Ces bases de données sont déterminées, noyau par noyau, par un "évaluateur" à partir des résultats expérimentaux disponibles, des modèles et des calculs de minimisations entre toutes les données à sa disposition.

II.B. Thorium et plutonium

Le plutonium est probablement l'élément le plus redouté dans l'opinion publique. C'est l'élément artificiel le plus important en masse et en activité des déchets nucléaires, mais il est aussi considéré comme la ressource la plus importante pour démarrer de nouvelles filières.

Le thorium est le deuxième élément naturel, avec l'uranium, qui peut être utilisé comme combustible nucléaire. Le thorium produit moins de déchets nucléaires toxiques que l'uranium car c'est un élément est plus léger. En revanche, il est plus difficile à utiliser et un combustible fissile, le plutonium par exemple, est nécessaire pour démarrer une filière thorium.

Après avoir donné les caractéristiques de ces deux éléments, nous allons présenter un combustible plutonium-thorium afin de l'utiliser dans la partie suivante pour des simulations informatiques. L'objectif est à la fois de gérer le plutonium existant et de faire le premier pas vers une filière de production électrique produisant moins de déchets nucléaires.

1. Le plutonium

1.a) Le 94^{ème} élément

Le plutonium, de numéro atomique 94, a été isolé et identifié en 1940 par G. Seaborg⁹. L'atome comporte donc 94 électrons répartis dans l'état fondamental en $2.8.18.32.24.8.2$ ($[Rn].5f^6.7s^2$). Sa chimie est complexe, il existe sous 5 états d'oxydation en solution aqueuse, III, IV, V, VI, VII, dont tous, sauf le VII, peuvent coexister. La forme tétravalente est cependant la plus répandue. La forme d'oxyde (PuO_2) est la plus utilisée pour les transports et le stockage car elle est chimiquement inerte, et se liquéfie à une température importante, vers $2300^\circ C$. Les températures de fusion du métal et d'ébullition sont respectivement basse, $640^\circ C$, et très élevée, $3330^\circ C$. Comme l'eau, le plutonium est un des rares éléments qui augmentent de volume en se solidifiant et il existe sous 6 phases métalliques dont les changements de phase présentent des discontinuités de densité.

Contrairement à l'uranium naturel, le plutonium est un toxique radiologique plus que chimique par sa concentration dans les os [37]. Finement divisé, il est pyrophorique et doit se manipuler sous atmosphère inerte.

1.b) Origine

Le plutonium est un radioélément, il ne possède pas d'isotope stable, mais 7 isotopes ont une période supérieure à un an.

⁹ Le plutonium 238 a été pour la première fois créé et identifié en 1940 avec la réaction uranium 238 plus deutons ; le plutonium 239 a été découvert l'année suivante.

Isotope	Période (années)	Radioactivité principale
²³⁶ Pu	2,858	α
²³⁸ Pu	87,7	α
²³⁹ Pu	2,4.10 ⁴	α
²⁴⁰ Pu	6564	α
²⁴¹ Pu	14,4	β ⁻
²⁴² Pu	3,7.10 ⁵	α
²⁴⁴ Pu	8,0.10 ⁷	α

Période et type de désintégration principale (ils présentent tous de la fission spontanée) des isotopes de plutonium les plus stables

Ce tableau montre que le plutonium n'existe pas à l'état naturel en quantité pondérable. En effet, on pense actuellement que les éléments lourds ont été créés lors de la phase dite "rapide" de l'explosion d'une supernova, donc avant la formation de la terre il y a environ 4 milliards d'années. Ceci est à comparer à la période de l'isotope le plus stable, le plutonium 244 dont on a retrouvé de faibles quantités, période qui est de 8.10⁷ années. Il existe aussi à l'état de traces dans le minerai d'uranium à la suite de captures de neutrons provenant de fissions spontanées.

Le plutonium est donc d'origine artificielle et sa composition isotopique dépend du type de réacteur qui l'a produit et de son usage. Il est majoritairement composé de l'isotope 239 pour les usages militaires alors que le plutonium obtenu à la sortie d'un réacteur électronucléaire, dit "civil", contient les 5 isotopes de nombres de masse 238 239, 240, 241, et 242. Les plus grandes sources de plutonium libéré dans l'environnement sont les explosions aériennes d'engins avec 4,2t soit 12200TBq, et les restes des satellites dont les sources d'énergie sont des piles à plutonium 238 (émetteur alpha faible période utilisé comme source thermoélectrique).

Origine	Référence	²³⁸ Pu	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu	²⁴² Pu
REP 33GWj/t	[38]	1	59	21	14	5
REP 33GWj/t	[45]	0,1	56,5	21,4	16,4	5,6
REP 45GWj/t	[45]	2,6	51	26	12	8
REP 45GWj/t	[39]	2,6	52	27	10	8
MOX	[22]	2,8	53	25	11	7,9

Composition du plutonium à la sortie de REP selon différentes sources, en pourcentage de la masse totale de plutonium (environ 9,7kg par tonne U pour un REP 1GWe à 33GWj.t⁻¹)

1.c) La prolifération

La prolifération, dans le domaine du nucléaire, est la dissémination de matières nucléaires pouvant être utilisées à des fins militaires. Le plutonium 239 fut le premier combustible fissile pour les bombes nucléaires et le plutonium est la première source de prolifération. La qualité du matériel fissile est évaluée par trois facteurs qui diffèrent selon la composition isotopique : la masse critique, la dégradation du champ de l'arme et sa stabilité.

Isotope	²³⁸ Pu	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu	²⁴² Pu
Nombre de neutrons émis (t.s) ⁻¹	2600	0,022	910	0,049	1700
Chaleur spécifique par émission (watts.kg ⁻¹)	560	1,9	6,8	4,2	0,1

Les "qualités" des isotopes de plutonium pour l'utilisation militaire

La masse critique est la masse nécessaire (dans les conditions normales de pression et de température) pour que commence une réaction en chaîne divergente. Avec modérateur et une géométrie sphérique elle est d'environ 4,3kg pour le plutonium militaire métallique et de 5,5kg pour le plutonium civil.

La dégradation du champ de l'arme est due à la pré-initiation de la réaction. Les neutrons libérés par des fissions spontanées font débiter l'explosion trop tôt, avant la compression optimale, ce qui diminue la puissance de l'engin. Le tableau suivant donne le nombre de neutrons émis par isotope.

La stabilité de l'arme est directement liée à la durée de vie des isotopes qui la composent. Elle se traduit par la chaleur spécifique du combustible qui est aussi un inconvénient pour le fabriquer et le manipuler.

Il existe des risques de voir utiliser le plutonium civil à des fins militaires, malgré la présence pénalisante des isotopes 240 et 238. Afin de limiter les risques, on peut diminuer les stocks ou rendre leur utilisation plus difficile ou moins efficace.

1.d) Utilisation civile

Le plutonium d'origine civile ou militaire peut être utilisé dans des réacteurs pour produire de l'énergie. Actuellement, le plutonium créé par les réacteurs de production électrique est retraité ou bien reste dans le combustible usé, en vue d'être stocké. Il peut alors être utilisé comme matière fissile dans le combustible, par exemple dans les assemblages MOX comme c'est le cas en France.

Les avantages d'utiliser le plutonium comme combustible sont la bonne section efficace de fission des isotopes 239 et 241 et une augmentation des ressources fissiles. Le

tableau suivant donne les valeurs du nombre moyen de neutrons émis par fission, ν , et de la proportion de neutrons retardés, β_{eff} , pour les isotopes du plutonium civil.

Isotope	^{238}Pu	^{239}Pu	^{240}Pu	^{241}Pu	^{242}Pu	^{235}U
ν (neutron)	2,33	2,9	2,257	2,9	2,18	2,07
β_{eff} (%)		0,26		0,48		0,74

Caractéristiques nucléaires des isotopes de plutonium présents dans le combustible utilisé. On peut noter la plus faible quantité de neutrons retardés pour les plutoniums que pour l'uranium

Les inconvénients techniques de l'utilisation du plutonium sont liés à sa radioactivité et à son nombre de neutrons retardés. Le premier implique une fabrication du combustible en boîte à gant après retraitement, alors que le second rend plus difficile le pilotage du réacteur.

Le recyclage permet de faire une économie d'uranium enrichi au prix d'un surcoût de fabrication et son intérêt financier est aujourd'hui remis en question, vu la situation économique du marché de l'uranium. Sur le plan des déchets, l'utilisation du plutonium dans le MOX n'a pas un impact majeur car une partie du plutonium détruit est remplacée par des éléments plus lourds et plus radiotoxiques, surtout à court terme.

1.e) Ressource ou déchet ?

Le paragraphe précédent montre que le plutonium peut être utilisé comme combustible, par exemple pour démarrer d'autres filières de réacteurs, en particulier la filière rapide. À sa construction, le centre de retraitement de La Hague faisait partie d'un programme de développement du nucléaire et de surgénérateurs. Le plutonium est alors essentiel pour optimiser l'utilisation des ressources en uranium. Il permet de faire fonctionner des réacteurs qui consomment l'uranium 238 en le brûlant directement ou indirectement après transformation en plutonium.

D'un point de vue économique, l'utilisation du plutonium ne paraît pas rentable tant qu'il n'y a pas de filière rapide et tant que l'uranium enrichi n'est pas très cher. Mais si l'énergie nucléaire doit se développer pour répondre à une forte demande, ou bien quand les réserves en combustible deviendront critiques, cela peut changer (cf. I.A). Considérer le plutonium comme une ressource ou un déchet est une question qui prendra alors tout son sens et à notre avis, c'est la problématique principale quand on parle du plutonium. Certains projets [40] envisagent la destruction massive du plutonium, surtout d'origine militaire en considérant que c'est un déchet. Mais si le plutonium n'est pas une ressource économique aujourd'hui, nous pouvons remarquer que son stockage (vu que le stockage semble aujourd'hui indispensable) repousse cette décision au moins pour quelques dizaines d'années.

En conclusion, pour ne pas hypothéquer le futur développement énergétique, il nous semble raisonnable de conserver les stocks (cf. tableau ci-dessous) de plutonium au moins une cinquantaine d'années, même si ceux-ci se dégradent par désintégration radioactive. De plus, cela rejoint l'approche faite pour les déchets à durée de vie courte et moyenne et ne pose aucun problème technologique. Sur ces échelles de temps, les seuls risques pour l'environnement sont associés à la prolifération.

	Pu militaire	Pu civil ... dont séparé (en tonnes)	
Allemagne	0	75-105	17
Argentine	0	6	0
Belgique	0	23-31	0
Brésil	0	0,6	0
Chine	1,7-2,8t	1,2	0
Corée Du Nord	25-35kg	0	0
États-Unis	85t	257,2	14,5
France	67t	151-205	70
Inde	150-250t	6	1
Israël	300-500kg	0	0
Japon	0	119-262	21
Kazakhstan	23t	0	0
Pakistan	0 (!)	0,5	0
Royaume Unis	7,6	98,4	51
Russie	140-162t	65	30
Total	242-267t	802-1037t	203,5

Inventaire "officiel" du plutonium dans le monde en 1999, source Bulletin of Atomic Scientist (september/october 1999)

2. Le thorium

L'utilisation du thorium comme combustible nucléaire est périodiquement envisagée depuis les débuts du nucléaire, mais n'a jamais été mise en place malgré des avantages certains. Cette partie essaie de présenter pourquoi cette filière n'a pas encore été développée et si l'avenir pourrait être différent.

2.a) Le 90^{ème} élément

Le thorium a été identifié en 1821 et isolé en 1828 par J.J. Berzelius en Suède ; c'est le 82ème et avant dernier élément naturel. De numéro atomique 90, c'est un radioélément dont le seul isotope naturel à un nombre de masse de 232 et une durée de vie de 14 milliards

d'années. Son descendant, l'isotope 228 de 1,9 an de période existe aussi en très faibles quantités ainsi que les thoriums 230, 227 et 234 qui proviennent des uraniums 235 et 238. Le thorium est trois à quatre fois plus abondant que l'uranium et le minerai est souvent plus concentré et au moins aussi bien réparti sur le globe (cf. tableau ci-dessous).

La structure électronique de l'état fondamental de l'atome est 2.8.18.32.18.10.2 ([Rn].6d².7s²) et son principal degré d'oxydation en solution aqueuse est IV. La forme la plus répandue à l'état solide est le dioxyde de thorium ThO₂.

RRA (millier de tonnes)	Pays
606	Brésil
380	Turquie
319	Inde
137	États-Unis
132	Norvège

Principales "ressources raisonnablement assurées", RRA, en thorium estimées en 1992 pour le monde à économie de marché, d'après [47]

2.b) *Caractéristique nucléaire*

Le thorium 232 est fertile et crée de l'uranium 233 par capture neutronique suivie de deux décroissances de période 22,3min (thorium 233) et 27j (protactinium 233). L'uranium 233 a une très bonne économie de neutrons en spectre thermique et c'est le principal avantage de la filière thorium 232-uranium233 comparée à sa duale uranium 238-plutonium239.

La réactivité d'un noyau fissile peut se traduire par le nombre moyen de neutrons émis suite aux réactions de capture et de fission. Ce nombre, η , traduit le nombre de neutrons apporté par l'isotope pour la réaction en chaîne et vaut :

$$\eta = \frac{\nu}{1+\alpha}$$

avec : ν nombre moyen de neutrons émis par fission ;

α rapport des probabilités de capture et de fission.

Isotope	Spectre thermique		Spectre rapide	
	η	β_{eff} (%)	η	β_{eff} (%)
²³³ U	2,28	0,39	2,31	0,29
²³⁵ U	2,07	0,74	1,93	0,68
²³⁸ U	0		0,52	
²³⁹ Pu	2,11	0,26	2,49	0,2
²⁴¹ Pu	2,15	0,48	2,72	0,52

Nombre moyen de neutrons émis suite aux réactions de capture et de fission des principaux isotopes fissiles avec la proportion de neutrons retardés

Le cycle d'un combustible thorium nécessite de retraiter l'isotope fertile, l'uranium 233, et les protections nécessaires pour le manipuler sont le problème majeur du thorium

En conclusion, il apparaît qu'un combustible à base de thorium présente de nombreux avantages en ce qui concerne la neutronique et l'impact radiologique à court terme, mais que son cycle de vie est nettement plus complexe que celui de l'uranium, surtout sans retraitement. Les investissements nécessaires pour mettre au point cette filière restent lourds dans le contexte actuel où le combustible à base d'uranium est encore bon marché. De plus, démarrer la filière thorium nécessite un combustible fissile car il n'existe pas de réels stocks d'uranium 233. Plusieurs scénarios ont été envisagés (cf. [21] par exemple) et l'utilisation du plutonium y possède une place privilégiée.

3. Mox thorium plutonium

Les combustibles MOX (pour "mixed oxide") sont des mélanges d'oxydes de deux éléments. En France, l'usine Melox de Marcoule a une capacité de production annuelle de 250t de MOX uranium-plutonium. Ce MOX est actuellement enrichi à 5,3 ou 6,5 % en plutonium et est utilisé à hauteur de 30 % dans le cœur de certains REP. Ces proportions peuvent être augmentées à court terme sans difficulté technologique.

Si on remplace l'uranium par du thorium nous obtenons un combustible innovant où la création d'uranium 233 pendant l'irradiation compense la destruction de plutonium. Ce combustible ne pose pas de réel problème de fabrication et a déjà, par exemple, été utilisé à titre expérimental au BARC (Bhabha atomic research center), en Inde [41].

Les inconvénients de ce combustible sont ceux du plutonium et du thorium décrits dans les paragraphes précédents : β_{eff} plus faible, aval du cycle nécessitant d'importantes protections et nombre de neutrons insuffisant pour la surgénération en spectre thermique avec de l'eau légère.

Ses avantages découlent de l'utilisation du thorium accompagné d'une diminution et d'une dégradation des stocks de plutonium, ce qui est un avantage s'il est considéré comme un déchet. L'utilisation du plutonium économise les ressources en uranium 235 et le thorium crée moins de transuraniens que l'uranium 238.

Dans la suite de ce chapitre, nous avons réalisé des simulations avec un combustible MOX thorium-plutonium en spectre plutôt thermique. Pour justifier la possibilité d'employer ce combustible, nous citons ci-dessous une partie des études déjà menées sur ce sujet.

Le "Radkowsky thorium fuel project" au Brookhaven National Laboratory, États-Unis vise à réduire la production de plutonium dans les réacteurs actuels à eau légère de type soviétique et américain sans modification importante, que ce soit du point de vue du cœur, du système de contrôle ou des étapes du cycle du réacteur. D'après ces auteurs, ce projet est économiquement compétitif [38] [42].

L' "advanced heavy water reactor" est un réacteur à eau lourde en cours de développement en Inde pour utiliser du combustible thorium-plutonium et thorium-uranium 233. La première évaluation de faisabilité a été faite en 1997 et la conception de l'ensemble du système nucléaire est prévue pour 2002-2003 [43].

Dans le cadre du 4^e PCRD¹⁰ de la commission européenne, plusieurs équipes ont publié des études sur ce MOX. Elles se sont intéressées à la possibilité de brûler du plutonium dans les REP en utilisant des combustibles au thorium. Fondée sur des questions de réactivité ou sur des programmes de simulations déterministe et monte-carlo elles ont montré la possibilité d'utiliser le plutonium issu du retraitement des combustibles UOX dans un combustible thorium-plutonium pour des REP. Les durées des cycles et les proportions de plutonium transmuté dépendent alors de l'origine du plutonium, des choix des taux de combustions et de l'ensemble des paramètres habituels d'utilisation d'un réacteur nucléaire etc. ([39], [44], [45], [46], [47]).

Nous pouvons aussi citer en France les résultats obtenus par les groupes de l'IPN-orsay et de l'ISN grenoble sur les combustibles MOX en spectre rapide ou bien en réacteur à sel fondu ([48] [49]). Ces études visent à une production d'électricité à long terme sur des cycles thorium-uranium 233 et envisagent le MOX thorium-plutonium comme un combustible transitoire.

Afin d'étudier par nous-même les phénomènes mis en jeu dans ce type de combustible, nous nous sommes intéressés au cas du MOX thorium-plutonium utilisé dans les réacteurs à eau pressurisée installés en France. Les simulations de la partie suivante confirment que le MOX thorium-plutonium est assez semblable au MOX uranium-plutonium et qu'il permet de commencer une transition douce vers la filière thorium. Rappelons à ce sujet que l'un des inconvénients majeurs du projet "Rubbia" de réacteur hybride, d'après la commission européenne [50], est l'ensemble des nombreuses innovations et en particulier la nécessité de développer un cycle entièrement nouveau pour le thorium. Nous tenons à signaler que dans ce même rapport, la commission "encourage l'utilisation du thorium dans les réacteurs à eau légère". De plus, d'après les experts, ce combustible "devrait pouvoir supporter de hauts taux de combustion mais le démontrer implique de longs et coûteux développements industriels".

¹⁰Programme cadre de recherche et développement technologique

II.C. Étude d'un combustible Thorium-Plutonium pour les REP

Le combustible MOX thorium-plutonium a été présenté dans la partie précédente et des études ont montré qu'il pouvait être utilisé dans les réacteurs à eau légère. Utiliser ce combustible innovant dans les réacteurs existants a pour principaux avantages :

- d'utiliser les stocks de plutonium, s'il n'a pas d'autres emplois ;
- d'avoir de premières expériences industrielles avec un combustible à base de thorium sans avoir à développer un nouveau réacteur ;
- de pouvoir faire ces irradiations dans un avenir proche sans attendre une nouvelle filière de réacteurs ou une décision politique sur l'avenir du nucléaire ;
- de créer rapidement, grâce aux spectres thermiques, des quantités pondérables d'uranium 233.

Dans le cadre d'un développement rapide du nucléaire, ce dernier point est peut-être le plus important pour démarrer des filières surgénératrices au thorium qui semblent être les plus efficaces [51]. Les réacteurs étudiés ne sont pas régénérateurs et ne se situent donc pas dans le cadre d'un fort développement du nucléaire ou dans des scénarios à long terme. Il s'agit d'une filière transitoire essentiellement pour l'étude industrielle de combustible à base de thorium.

Sur ces hypothèses nous avons effectué des simulations monte-carlo MCNP [52] et MonteBurns [53] qui ont pour objectifs de quantifier les transferts de réactivité entre le plutonium et l'uranium 233, d'évaluer les quantités d'uranium 233 et d'actinides mineurs formés et la conséquence d'une telle étape pour le plutonium.

1. Hypothèses de simulations

1.a) Caractéristiques géométriques

La géométrie du cœur utilisée est celle d'un REP français de dernière génération de type N4 [47]. Le cœur se compose de 156 assemblages disposés en carré, chaque assemblage est constitué de 17×17 crayons de 4m de haut et de 0,417cm de rayon. Nous avons remplacé les barres de contrôle par 5 colonnes d'eau borée de volume identique. Le volume du combustible correspond à 264 crayons par assemblage, soit 9,03m³ et 76t pour le cœur. Chaque crayon de combustible est entouré d'une gaine en zirconium et l'espace entre les crayons est rempli par de l'eau contenant 2000 ppm de bore enrichi initialement à 70 % en bore 10. Le bore évolue au cours de l'irradiation et n'est pas renouvelé. Les autres caractéristiques géométriques sont données sur la Figure 16.

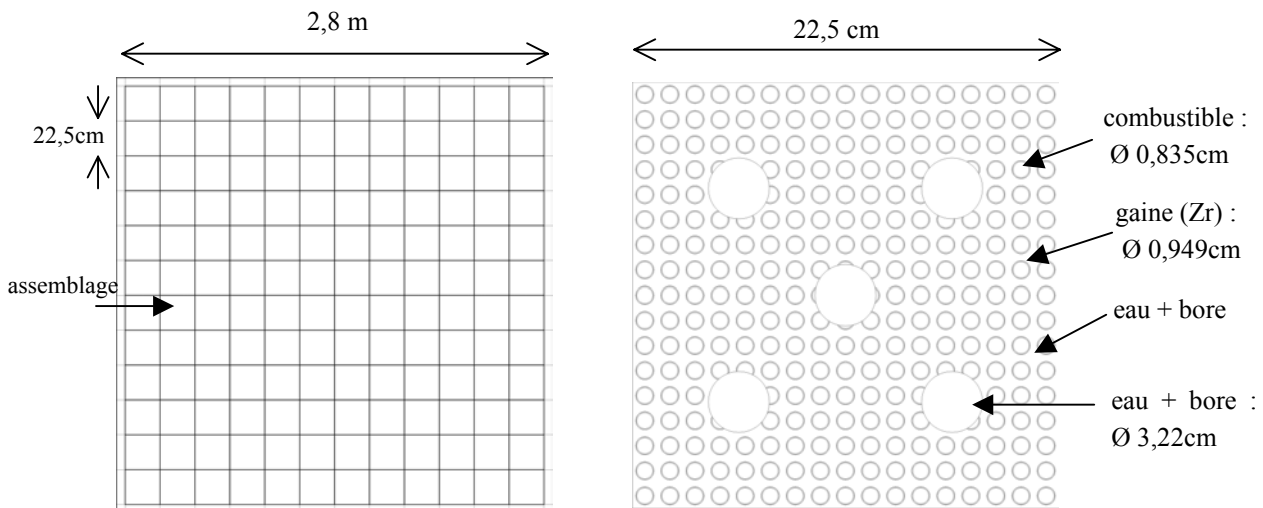


Figure 16 : coupe du réacteur simulé et détail d'un assemblage.

1.b) Les combustibles

Les combustibles utilisés dans les simulations sont à base de thorium 232, d'uranium 233 pur et de plutonium issu de REP ou de qualité militaire dont la composition isotopique est donnée dans le tableau suivant.

Origine du plutonium	^{238}Pu	^{239}Pu	^{240}Pu	^{241}Pu	^{242}Pu
REP-33GWj.t ⁻¹	0,15 %	56,5 %	21,4 %	16,4 %	5,6 %
Militaire	0,01 %	93,8 %	5,8 %	0,35 %	0,02 %

Composition isotopique des plutonium utilisés (cf. II.B.1)

Les compositions massiques des combustibles étudiés sont données dans le tableau suivant :

	thorium 232	plutonium		uranium 233
		REP	militaire	
Combustible n°1	90 %	10 %		
Combustible n°2	94 %		6 %	
Combustible n°3	94 %	3 %		3 %
Combustible n°4	95 %			5 %

Proportion des éléments dans les combustibles utilisés, en %

Pour faire référence à ces quatre combustibles nous emploierons une terminologie plus descriptive des combustibles : Th-Pu (10%), Th-Pu(m) (6%), Th-Pu(3%)-U(3%) et Th-U(5%). Ils sont choisis pour que le cœur soit critique et pour pouvoir comparer les impacts des isotopes de plutonium avec l'uranium 233. Le combustible est homogène dans les crayons de combustible et il n'est pas renouvelé au cours de l'évolution.

Les bibliothèques ENDF-VI et JENDL32 ont respectivement été utilisées pour les actinides et pour les produits de fission [54]. Le choix d'ENDF-VI est usuel avec MCNP tandis que la bibliothèque JENDL32 est la plus complète pour les produits de fission.

1.c) *Autres paramètres*

Les simulations sont effectuées en utilisant les logiciels MCNP [52] et Monterburns [53]. MCNP (Monte-Carlo N Particles) est un logiciel développé à Los Alamos (États-Unis) de transport de neutrons, d'électrons et de photons. Nous utilisons le seul module de transport des neutrons de la version 4B (février 1998) de ce programme reconnu et validé. Monterburns (Monte Carlo Burnup) a été créé pour coupler MCNP avec le logiciel d'évolution ORIGEN2 [55]. Ce dernier résout les équations d'évolution de Bateman (système d'équations différentielles du premier ordre, cf. III.C) par inversion de matrice.

La puissance du réacteur a été fixée arbitrairement à 3000MWthermique. Un exemple à la fin de l'étude montrera que les résultats obtenus sont extrapolables à d'autres puissances. Les incertitudes statistiques de calcul des monte-carlo sont systématiquement prises inférieures au pour-cent et ne sont jamais indiquées par la suite. Les évolutions se font de manière discrète par pas de 50j où le k_{eff} , le flux et les sections efficaces sont recalculées.

1.d) *Validation*

Les paramètres précédents et le programme d'évolution ont été testés en réalisant une première simulation avec un combustible d'uranium enrichi à 3,5 % en uranium 235. Les résultats obtenus (cf. tableau ci-dessous) sont cohérents avec les résultats connus (cf. [22] par exemple) que ce soit au niveau du k_{eff} ou de la composition du combustible final. Ils justifient donc les études suivantes et la validité des conclusions qui en seront tirées.

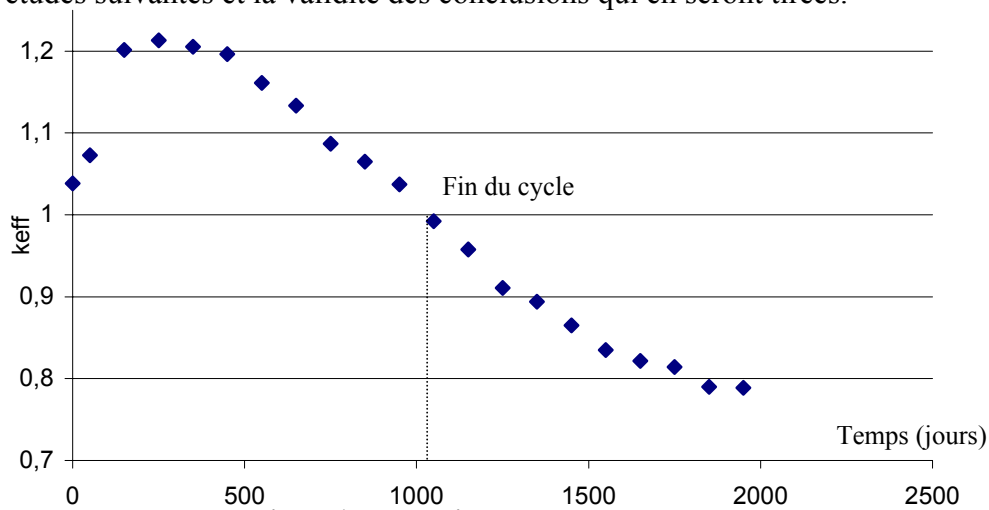


Figure 17 : évolution du k_{eff} au cours du cycle

Actinide	²³⁵ U	²³⁸ U	²³⁸ Pu	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu	²⁴² Pu	Actinides mineurs
Masses (kg)	696	73333	9,4	451	164	85	31	10
Proportion	22 % _(i)	97 % _(i)	1,3% _(Pu)	60% _(Pu)	22% _(Pu)	12% _(Pu)	4% _(Pu)	

Après 1100 jours de fonctionnement et sans refroidissement, composition du combustible et proportion par rapport soit aux quantités initiales %_(i), soit à la quantité de plutonium formé %_(Pu)

2. Situations initiales

Avant évolution, nous avons déterminé avec une simulation MCNP les caractéristiques initiales pour chaque combustible. Les résultats sont donnés dans les tableaux suivants.

Combustible	k _{eff} initial
Th-Pu (10%)	1,03
Th-Pu(m) (6%)	1,00
Th-Pu(3%)-U(3%)	1,01
Th-U(5%)	1,02

Coefficient de multiplication des neutrons, k_{eff}, initiaux obtenus par MCNP

Ces valeurs justifient la composition du combustible par des k_{eff} légèrement supérieurs à 1 au début du cycle qui permettent d'envisager une réaction en chaîne contrôlée.

Section efficace (b)	²³² Th		²³³ U		²³⁹ Pu		²⁴⁰ Pu		²⁴¹ Pu		²⁴² Pu	
	σ _c	σ _f	σ _c	σ _f	σ _c	σ _f	σ _c	σ _f	σ _c	σ _f	σ _c	σ _f
Th-Pu 10%	0,67	0,03	4	25	11	22	28	0,65	9	30	13,5	0,5
Th-Pu(m) 6%	0,71	0,03	4,6	30	14,1	27	74	0,65	12	38	34,5	0,5
Th-Pu(3%)-U(3%)	0,76	0,03	10	29	20	37	52	0,65	14,5	45	23,5	0,5
Th-U(5%)	0,83	0,03	4	35	33	59	180	0,7	22	64	33	0,5

Sections efficaces moyennes des principaux actinides obtenus par MCNP

Les formes générales des flux sont assez semblables, mais les sections efficaces montrent de nettes disparités selon la composition du combustible : elles peuvent changer d'un facteur 6. Ces résultats illustrent le phénomène d'auto-absorption des neutrons dans le combustible et la dépression du flux associé (cf. II.A.3.b). Les sections efficaces moyennes des isotopes de plutonium varient avec l'inverse de leur masse totale présente dans le cœur. Nous pouvons donc déjà prédire que ces sections efficaces devraient changer de la même manière avec la formation/disparition de matière.

3. Évolution

Les évolutions se font à puissance constante et sans renouvellement de combustible. La Figure 18 montre les évolutions des coefficients de multiplication au cours du cycle. Après quelques jours et la mise à l'équilibre du protactinium, le k_{eff} augmente et montre un maximum avant de redescendre. La fin du cycle est atteinte quand k_{eff} est égal à un. La durée des cycles varie de 1050 à 1550 jours à pleine puissance. Le combustible à base de plutonium civil possède le cycle le plus long car la présence de plutonium 240, fertile, agit comme une réserve de réactivité. Le bore 10 n'est pas renouvelé au cours du cycle et sa quantité dans le cœur décroît selon sa capture.

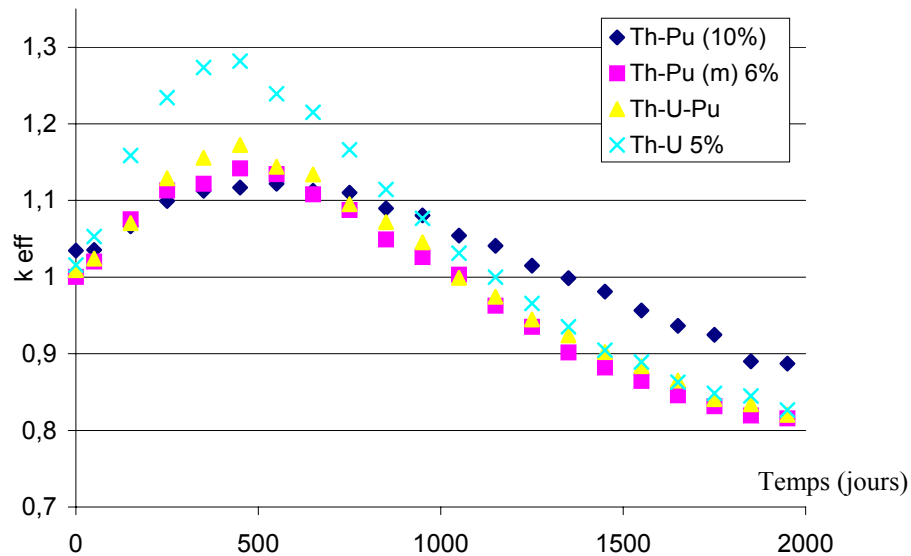


Figure 18 : évolution des k_{eff} aux cours du cycle pour les quatre combustibles

Combustible	Durée du cycle (j)	Énergie produite (TWh _{th})
Th-Pu 10%	1350	97,2
Th-Pu(m) 6%	1050	75,6
Th-Pu(3%)-U(3%)	1050	75,6
Th-U(5%)	1200	86,4

Durée du cycle et énergie produite pour chaque combustible avec une puissance de 3GW thermique

La Figure 19 représente les noyaux à l'origine des fissions et donc de la puissance dans le réacteur. Elle illustre quantitativement comment la création d'uranium 233 remplace au cours du cycle la disparition de plutonium 239 pour maintenir la réactivité. Le plutonium 241 se forme à partir du plutonium 240 au fur et à mesure de sa disparition.

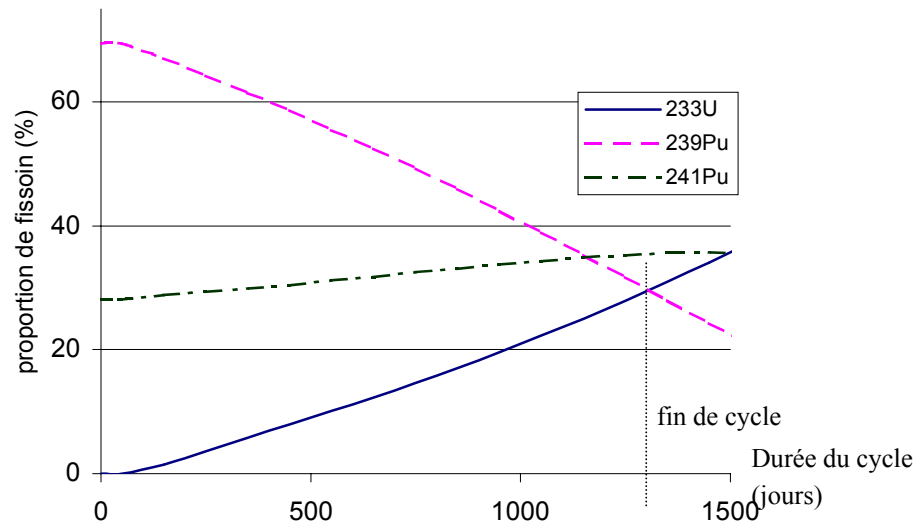


Figure 19 : Évolution de la proportion de fission due aux isotopes principaux (^{233}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu) dans le combustible thorium-plutonium (10%) en fonction du temps

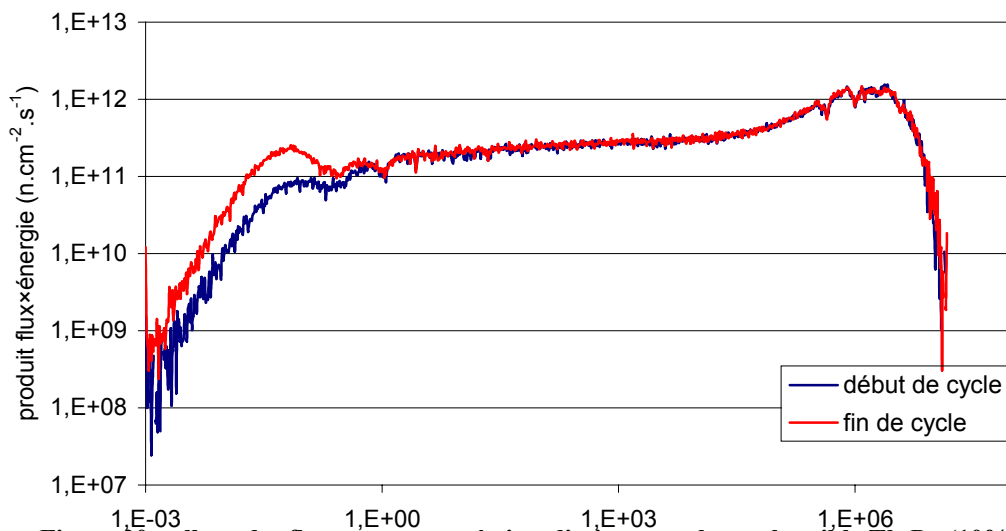


Figure 20 : allure des flux avant et après irradiation pour le combustible Th-Pu (10%)

L'allure des flux finaux est semblable à celle des flux initiaux, mais les sections efficaces se modifient avec le taux de combustion. Le tableau ci-dessous donne les sections efficaces moyennes, $\langle \sigma \rangle_E$, d'actinides dans le cœur à la fin du cycle et les valeurs moyennes pondérées par l'intensité du flux sur l'ensemble du cycle, $\langle \sigma \rangle_{E,t}$.

Section efficace (b)	^{232}Th		^{233}U		^{239}Pu		^{240}Pu		^{241}Pu		^{242}Pu	
	σ_c	σ_f	σ_c	σ_f	σ_c	σ_f	σ_c	σ_f	σ_c	σ_f	σ_c	σ_f
Th-Pu (10%)	0,9	0,03	5	37,5	27	52	40	0,65	20,5	62	13	0,5
Th-Pu(m) 6%	1	0,03	6	49,5	32,5	71,5	56	0,6	26,5	86	26,5	0,5
Th-Pu(3%)- U(3%)	1,15	0,03	7	59	47,5	95	93,5	0,6	37,5	110	20,5	0,5
Th-U(5%)	1,35	0,03	8,5	76	61	125	238	0,6	50,5	148	32,5	0,5

Sections efficaces moyennes à la fin du cycle : $\langle \sigma \rangle_E$ (fin de cycle)

Section efficace (b)	²³² Th		²³³ U		²³⁹ Pu		²⁴⁰ Pu		²⁴¹ Pu		²⁴² Pu	
	σc	σf	σc	σf	σc	σf	σc	σf	σc	σf	σc	σf
Th-Pu (10%)	0,8	0,03	4,5	31	18	35	33	0,65	14	44	13	0,5
Th-Pu(m) 6%	0,85	0,03	5,5	38,5	24	44,5	58,5	0,65	19,5	56,5	32	0,5
Th-Pu(3%)- U(3%)	0,95	0,03	5,5	44,5	34	66	66,5	0,6	26	78	22	0,5
Th-U(5%)	1,15	0,03	7	61	51	101	212	0,6	39,5	116	34,5	0,5

Sections efficaces moyennes pondérées sur l'ensemble du cycle : $\langle \sigma \rangle_{E,t}$

Intensité du flux (n.cm ⁻² .s ⁻¹)	Début de cycle	Fin de cycle	Moyennée
Th-Pu (10%)	3.10 ¹⁴	3,2.10 ¹⁴	3.10 ¹⁴
Th-Pu(m) 6%	3,2.10 ¹⁴	3,3.10 ¹⁴	3.10 ¹⁴
Th-Pu(3%)-U(3%)	3,1.10 ¹⁴	3,3.10 ¹⁴	3.10 ¹⁴
Th-U(5%)	3.10 ¹⁴	3,6.10 ¹⁴	3.10 ¹⁴

Valeur de l'intensité du flux neutronique pour les différents combustibles

Les flux varient assez fortement au cours de l'irradiation (une quinzaine de pour-cent) : ils diminuent avant de remonter, ce qui explique que la moyenne du flux sur la durée de vie du réacteur est inférieure aux flux initiaux et finaux. Ceci se justifie par le fonctionnement du programme de simulation où la puissance est constante et où l'intensité du flux varie donc de manière opposée au k_{eff} . Plus le cœur est réactif, plus le flux est faible. Nous remarquons aussi que les quatre combustibles ont des intensités de flux très semblables dues à la puissance unitaire et à la géométrie communes.

Les sections efficaces moyennes des isotopes de plutonium se modifient selon la tendance prévue, en augmentant avec leur disparition et la disparition du bore. Nous pouvons noter les très importantes variations des sections efficaces moyennes au cours du cycle, par exemple + 300 % et 200 % pour la fission des plutoniums 239 (combustible Th-Pu (m) et 241 (combustible Th-Pu (10%). Cela ne vient ni de la géométrie, ni des bibliothèques de données mais seulement de la composition du combustible et de la proportion de bore dans le cœur¹¹. L'ordre de grandeur de cet effet, très important, est à noter pour tout calcul fondé sur les sections efficaces moyennes. Au contraire, le rapport capture sur fission des isotopes fissiles ne varie que peu lors de l'évolution du combustible, une dizaine de pour-cent au maximum pour le plutonium 239.

Les sections efficaces moyennes à la fin du cycle servent à décrire l'état du réacteur lors de son arrêt et sont à prendre en compte, par exemple, pour l'augmentation de la réactivité par décroissance du protactinium. Les sections efficaces moyennées sur la durée de vie du réacteur décrivent le comportement global du noyau considéré sur toute la durée de vie

¹¹ Le bore capture les neutrons thermiques et durci un peu le spectre, ce qui diminue les sections efficaces

du réacteur. Associées au flux moyen et à la durée de vie du cycle, elles traduisent le bilan complet du réacteur en terme d'inventaire et de production énergétique.

4. Bilan matière et radiotoxicité

Le tableau suivant donne les inventaires à la fin des cycles. Pour le combustible à base de plutonium militaire, 84 % du plutonium 239 a été transformé dont 18 % en d'autres isotopes de plutonium et 1,1 % en actinides mineurs. Dans les autres cas, la disparition de plutonium est plus faible, mais il est très dégradé (cf.II.B.1) et la réactivité globale des isotopes du plutonium est diminuée d'environ 30 % (Figure 19).

Nous retrouvons l'avantage que le cycle thorium 232-uranium 233 ne crée presque pas de transplutoniens et une quantité de neptunium 237 comparable au MOX Th-Pu (10 %). Le gain net est donc égal à la masse finale de transplutoniens produite par les combustibles.

Actinide		²³³ Pa	²³³ U	U total	²³⁸ Pu	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu	²⁴² Pu	Np	tansplu- toniens
Th-Pu 10%	masse initiale	0	0	0	10	3810	1440	1110	376	0	0
	masse finale	53,5	856	972	43,7	675	1080	680	584	0,24	246
Th- Pu(m) 6%	masse initiale	0	0	0	0,5	3950	245	14,5	0,9	0	0
	masse finale	62,5	762	865	5	639	580	308	92	0,07	43
Th- Pu(3%)- U(3%)	masse initiale	0	2020	2020	3	1140	433	332	113	0	0
	masse finale	71	1350	1610	10	93	216	177	203	0,18	100
Th- U(5%)	masse initiale	0	3370	3370	0	0	0	0	0	0	0
	masse finale	92	1300	1730	$61 \cdot 10^{-3}$	$9 \cdot 10^{-3}$	$1,2 \cdot 10^{-3}$	$0,6 \cdot 10^{-3}$	$0,1 \cdot 10^{-3}$	0,36	$17 \cdot 10^{-6}$

Inventaire en début et en fin de cycle (sans refroidissement), en kg des actinides importants

Les radiotoxicités des inventaires en actinides en début et en fin de cycle sont données sur la Figure 21. Les compositions isotopiques de chaque combustible changent et les radiotoxicités ne sont pas exactement les mêmes avant et après le cycle. Cependant la figure suivante montre que ces différences restent majoritairement faibles, sauf pour le combustible Th-Pu(m) où la radiotoxicité est plutôt plus grande à la fin de cycle.

Pour une radiotoxicité comparable, on a produit de l'énergie correspondant à un cycle de fonctionnement du réacteur. Il existe donc un gain d'un cycle si la radiotoxicité est normalisée au kilowattheure produit. Cependant, ces radiotoxicités doivent être interprétées

avec précaution car les isotopes fissiles, plutonium 239, 241 et uranium 233, sont inclus dans les courbes. Les bilans ne reflètent pas l'utilisation ultérieure possible de ces isotopes. En particulier, la création d'uranium 233 a un effet négatif sur la radiotoxicité, mais positif en ce qui concerne l'augmentation des ressources et le développement du nucléaire. Les bilans de radiotoxicité sont donc importants pour avoir des ordres de grandeur de nocivité à long terme du combustible, mais il ne faut pas les utiliser comme seul critère d'évaluation.

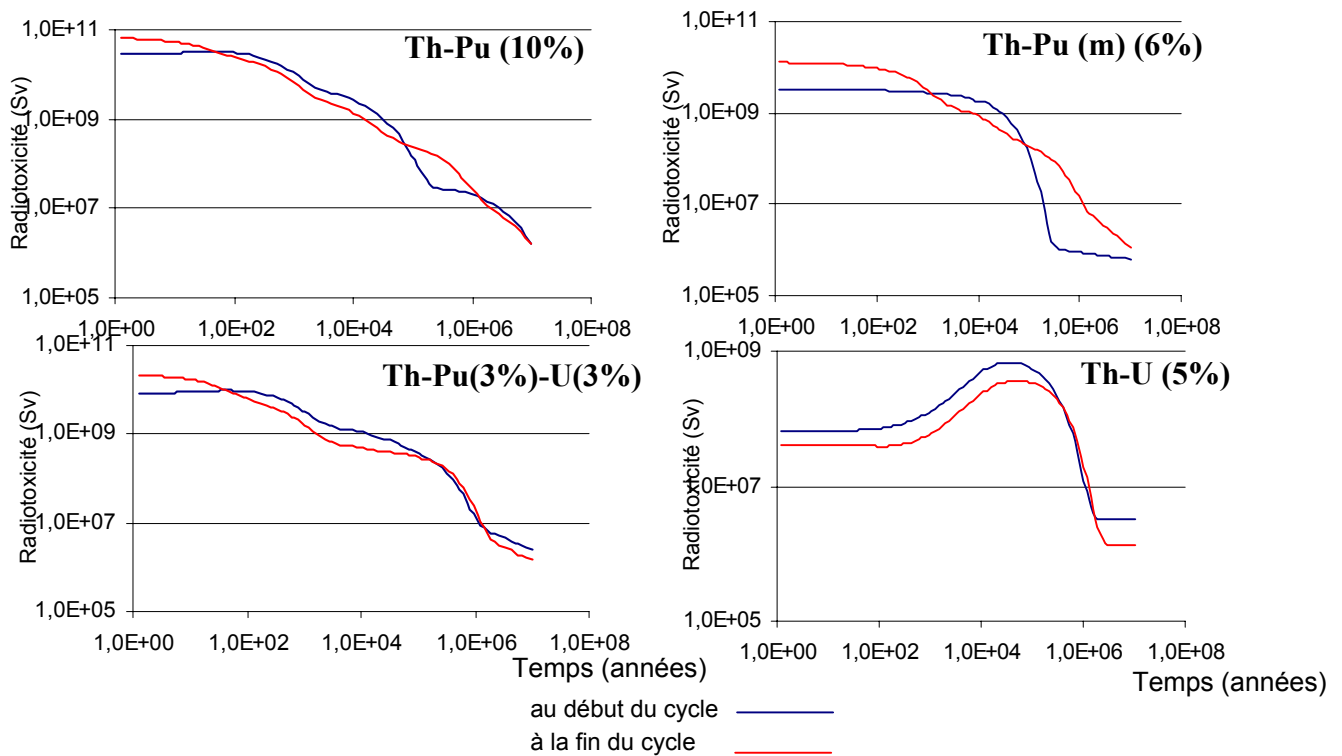


Figure 21 : radiotoxicité au début (combustible non irradié) et à la fin du cycle (combustible irradié) pour les inventaires en actinides pour les quatre combustibles en fonction du temps de refroidissement. Les produits de fission créés ne sont pas pris en compte.

Du point de vue des ressources et du développement du nucléaire, le bilan matière d'un cycle de fonctionnement est mitigé. Il est négatif, car il y a une destruction nette de matière première et le régime de fonctionnement n'est pas régénérateur. Mais il peut être considéré comme qualitativement positif car de l'uranium 233 a été créé à la place de plutonium, et une des motivations de ce combustible thorium-plutonium est de créer de l'uranium 233. Le combustible thorium-plutonium civil crée, après désintégration du protactinium 233, 900kg d'uranium 233 pour une perte nette de 3,6t de plutonium fissile et un investissement de 6,7t de plutonium dont 3,8t de plutonium 239 et 1,1t d'isotope 241. L'uranium 233 est environ deux fois plus réactif que le plutonium civil dans ces conditions de fonctionnement et le système global peut-être considéré comme régénérateur à 30 % en ayant fourni $97,2 \text{ TW}_{\text{th}} \cdot \text{h}$.

Le bilan est environ identique pour le plutonium militaire qui crée 865t d'uranium 233 pour une perte de 3000t de plutonium fissile (20 % de moins que le Th-Pu (10%), mais en ayant fourni seulement 75,6TW_{th}.h.

Les combustibles à base d'uranium 233 consomment de l'uranium 233 (et du plutonium pour le Th-Pu(3%)-U(3%). Ils ne présentent que peu d'intérêt, que ce soit d'un point de vue diminution des déchets ou création d'uranium 233. Ils illustrent la faible production d'actinides mineurs par la filière thorium et permettent de comparer directement la réactivité de l'uranium 233 par rapport au plutonium.

5. Sensibilité aux paramètres

Afin de pouvoir extrapoler les résultats obtenus si on change les paramètres initiaux, nous avons mené deux autres simulations sur la base des précédentes. Dans la première, la puissance du réacteur a été imposée à 4500MW_{th} et dans la seconde du plutonium militaire a été utilisé à 10 % en masse. Pour diminuer la réactivité et garder un k_{eff} proche de un au démarrage, la géométrie du cœur a été légèrement modifiée : 25 crayons de combustible par assemblage ont été remplacés par de l'eau borée. Ces deux combustibles seront comparés aux combustibles de références Th-Pu (10%) et Th-Pu(m) 6% et les différences sont données en pour-cent dans les tableaux ci-dessous pour les principaux paramètres.

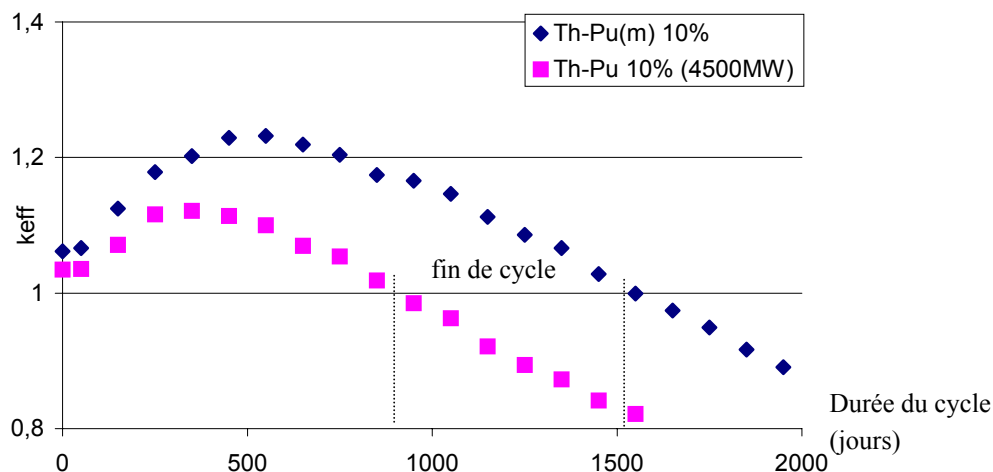


Figure 22 : évolution du k_{eff} pour les deux combustibles Th-Pu 10% (4500MW) et Th-Pu (mi) 10%. La durée du cycle est de 900 jours pour le premier et 1550 jours pour le second

Intensité du flux (n.cm ⁻² .s ⁻¹)	Début de cycle	Fin de cycle	Moyennée
Th-Pu 10% (4500 MWth)	4,5.10 ¹⁴	4,8.10 ¹⁴	4,46.10 ¹⁴
différence	50%	50%	50%
Th-Pu(m) 10%	2,98.10 ¹⁴	3,24.10 ¹⁴	2,8.10 ¹⁴
différence	-6%	-1,8%	-6,6%

Valeur de l'intensité du flux et différence par rapport aux combustibles Th-Pu 10% et Th-Pu (mi) 6%

Section efficace (b)	²³² Th		²³³ U		²³⁹ Pu		²⁴⁰ Pu		²⁴¹ Pu		²⁴² Pu	
	σc	σf	σc	σf	σc	σf	σc	σf	σc	σf	σc	σf
Th-Pu 10% (4500 MWth)	0,67	0,03	4	25	11	22	28	0,65	9	30	13,5	0,5
Th-Pu(m) 10%	0,68	0,03	4,1	26	10,5	20,5	54	0,7	9,6	31	36	0,5
variation	4%	/	11%	13%	25%	25%	27%	-8%	20%	18%	-4%	/

Sections efficaces initiales et différence par rapport aux combustibles Th-Pu (mi) 6%. Il n'y a pas de différence pour le combustible Th-Pu 10% car la géométrie initiale est la même

Section efficace (b)	²³² Th		²³³ U		²³⁹ Pu		²⁴⁰ Pu		²⁴¹ Pu		²⁴² Pu	
	σc	σf	σc	σf	σc	σf	σc	σf	σc	σf	σc	σf
Th-Pu 10% (4500 MWth)	0,7	0,03	4,2	31	16	34	30	0,6	12	46	14	0,5
variation	12,5%	/	7%	/	11%	3%	9%	8%	14%	-5%	-8%	/
Th-Pu(m) 10%	0,8	3.10 ⁻²	4,8	34	19,4	39	44	0,7	16,4	51	28	0,5
variation	6%	/	13%	12%	19%	12%	25%	-8%	16%	10%	12%	/

Sections efficaces moyennées sur le cycle du réacteur et variation par rapport aux combustibles Th-Pu 10% et Th-Pu (mi) 6%

Actinide		²³³ Pa	²³³ U	U total	²³⁸ Pu	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu	²⁴² Pu	Np	tansplu- toniens
Th-Pu 10% (4500 MWth)	masse initiale	0	0	0	10	3810	1440	1110	376	0	0
	masse finale	80	825	960	27	720	1100	705	575	0,18	250
Th-Pu(m) 10%	masse initiale	0	0	0	0,7	5700	354	21	1,34	0	0
	masse finale	51	791	920	12	730	830	410	140	0,17	76

Inventaire en début et en fin de cycle (sans refroidissement), en kg des actinides importants

L'évolution du réacteur avec le combustible Th-Pu 10% à 4500MW montre très peu de différences avec la simulation précédente à 3000MW ; les inventaires finaux sont comparables ainsi que les sections efficaces moyennes. Imposer une puissance de cinquante pour-cent supérieure modifie de manière presque linéaire le flux, environ une fois et demie plus grand, et la durée du cycle égale au deux tiers du cycle précédent. Les résultats obtenus au paragraphe précédent peuvent donc être extrapolés si les puissances réelles sont un peu différentes des puissances utilisées pour les simulations.

L'utilisation du combustible Th-Pu(m) 10% à 3000MW s'accompagne d'une légère diminution de flux, quelques pour-cent, et d'une augmentation sensible de la durée du cycle, plus 50%. Cela peut s'expliquer par le changement de géométrie du cœur où la plus grande quantité d'eau borée augmente la réserve de réactivité. La quantité de plutonium consommée est plus grande avec ce combustible que pour le combustible Th-Pu(m) 6% mais la masse d'uranium 233 créée est équivalente, environ 840kg. De plus, la quantité de transplutoniens et de neptunium créés est presque deux fois plus importante pour le combustible Th-Pu(m) 10%. En comparaison avec les résultats du paragraphe précédent ce combustible ne présente donc pas d'intérêt particulier.

6. Mise en perspective des simulations

La filière présentée n'a pas pour ambition de faire partie de scénarios de production d'énergie à moyen ou long terme car elle ne régénère pas son combustible et n'est optimisée ni pour la consommation de plutonium, ni pour la production d'uranium 233. Cependant elle peut être mise en place à court terme et doit être considérée comme une courte étape transitoire avec pour objectif de réaliser des études techniques, industrielles ou scientifiques sur le cycle du thorium.

Le combustible MOX thorium-plutonium étudié permet aussi de détruire et de dégrader le plutonium de manière plus efficace que le MOX uranium-plutonium. Néanmoins, cet objectif nous paraît d'une part, peu judicieux (cf. II.B.1.e), et d'autre part d'autres types de réacteur sont beaucoup plus efficace pour détruire le plutonium (réacteur à gaz et à haut taux de combustion par exemple [56])

Les résultats obtenus montrent qu'il est possible d'utiliser ce combustible en REP pour convertir un peu du plutonium en uranium 233. Même si le plutonium est plus efficacement utilisé en spectre rapide (cf. [48]), l'utilisation de REP à l'avantage de ne pas avoir à construire de nouveaux réacteurs.

Des études de scénarios proposent par exemple pour une croissance rapide de l'électronucléaire l'utilisation de réacteur à sels fondus avec un combustible thorium-uranium 233 [51]. Pour démarrer un RSF, il est nécessaire d'avoir 1,3t d'uranium 233 qui peut donc être fourni au bout de trois ans par 1,5 REP qui aura utilisé 5,4t de plutonium fissile et un investissement de 10t de plutonium. La comparaison de ces chiffres au stock français de 200t illustre que le prix à payer pour obtenir rapidement et "facilement" de l'uranium reste alors élevé.

Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons abordé la notion de radiotoxicité des déchets nucléaires et nous avons montré que la transmutation des actinides dans un champ de neutrons est une priorité pour réduire cette radiotoxicité. Le plutonium est le transuranien le plus important créé dans les réacteurs à combustible uranium et ses caractéristiques nucléaires en font une matière fissile nécessaire au développement de nouvelles filières nucléaires. Son statut de ressource ou de déchets a donc été évoqué et dans le cadre énergétique décrit au premier chapitre, il nous est apparu nécessaire de ne pas gaspiller irrémédiablement le plutonium du moins pour l'instant. Une manière d'utiliser le plutonium aujourd'hui est de se familiariser avec un combustible à base de thorium en utilisant un MOX thorium-plutonium.

L'utilisation du thorium est envisagée dans le cas d'un développement du nucléaire pour ses bonnes caractéristiques neutroniques en spectre thermique et sa faible production de déchets sous forme d'actinides. Même si une vision à plus long terme doit peut-être être envisagée, la création de nouveaux réacteurs fondés sur le thorium semble économiquement risquée aujourd'hui et l'industrie manque de repères sur les combustibles à base de thorium. Le MOX thorium-plutonium en REP permet de suivre dès aujourd'hui une transition en douceur vers une filière thorium et d'accumuler des expériences sur son comportement en réacteur. La création d'uranium 233 est assez rapide, 300kg par an et par réacteur, mais au prix d'une perte d'environ de quatre fois plus de plutonium fissile. La quantité d'uranium créée peut probablement être augmentée en modifiant la géométrie du réacteur qui n'a pas été optimisée. Un des avantages du combustible étudié est sa similitude avec le combustible actuel et nous pouvons envisager un "moxage" partiel du cœur.

Ces simulations ont montré la grande variation des sections efficaces moyennes en réacteur et donc l'importance de bien connaître ces sections efficaces. Cela n'est pas un problème dans le cas de combustible à base de plutonium, d'uranium ou de thorium, mais la situation est plus délicate pour d'autres combustibles. Par exemple, étudier la transmutation des actinides mineurs provenant des déchets nucléaires nécessite une bonne connaissance de leurs sections efficaces différentielles. De nouvelles mesures expérimentales sont parfois alors nécessaires pour valider ou compléter les informations des bases de données. Le chapitre suivant approfondit cette notion et nous allons y décrire le nouvel instrument de mesure de sections efficaces que nous avons développé.

CHAPITRE III. DÉTERMINATION EXPÉRIMENTALE DES SECTIONS EFFICACES, LE PROJET MINI-INCA

Après une première approche de la problématique de l'énergie en général et de l'énergie nucléaire en particulier, nous avons abordé ses deux défis que sont les déchets nucléaires et les ressources. À travers l'étude d'un système précis, MOX thorium-plutonium utilisé en REP, nous avons illustré les notions de ressources, de transmutation et de simulations informatiques de réacteurs. Cela nous a conduit à rappeler la définition des sections efficaces de réactions neutroniques et à montrer leurs rôles dans les simulations informatiques de nouveaux réacteurs et dans les études de scénarios.

Afin de réduire les incertitudes existantes sur ces sections efficaces, en particulier pour certains actinides mineurs, le projet Mini-Inca¹² a été mis en place au service de physique nucléaire du DSM/DAPNIA au CEA-Saclay. Dans le cadre de ce projet nous avons développé, construit et testé un nouvel instrument pour mesurer des sections efficaces intégrales en utilisant des méthodes de spectroscopie alpha-gamma. Ce travail expérimental est la partie centrale de notre travail de thèse. Nous avons suivi ce projet depuis son commencement et l'essentiel de ce travail n'a pas été de mesurer de nouvelles grandeurs, inconnues, mais de concevoir la procédure expérimentale, et de construire les instruments nécessaires aux mesures envisagées.

Dans un premier temps, nous allons présenter le projet Mini-Inca et sa partie expérimentale, avant d'exposer le choix des détecteurs que nous avons effectué. Ensuite nous détaillerons la méthode choisie pour la mesure du flux neutronique, puis les cibles que nous avons conçues pour nos expériences et enfin la chambre de mesure que nous avons développée et fabriquée.

Le chapitre suivant décrira les premières expériences réalisées pour valider les concepts et la construction de la chambre.

¹² le nom de Mini-Inca est dérivé du groupe INCA ("INCinération d'Actinide" ou bien "à l'aide d'Accélérateur") du DAPNIA, qui a précédé les études Mini-Inca

III.A. Incinération de l'américium 241 par neutrons thermiques

Résumé de la publication sur la transmutation de l'américium 241 donnée en annexe A

Pour une incinération poussée des déchets nucléaires et une réduction de leur radiotoxicité, la transmutation de l'américium 241 est une étape importante car c'est le premier actinide mineur formé à partir du plutonium. Pour avoir une bonne évaluation des schémas d'irradiation de l'américium 241, il est essentiel de connaître précisément les paramètres des réactions nucléaires mises en jeu. Or il existe un facteur 20 entre les bibliothèques JEF-2,2 (5511b) et ENDF-B/VI (252b) pour la section efficace de capture de l'américium 242 dans son état fondamental. Ces valeurs proviennent d'évaluations théoriques car il n'y a pas de données expérimentales pour cette réaction à cause de la faible demi-vie, (16 heures) du corps considéré.

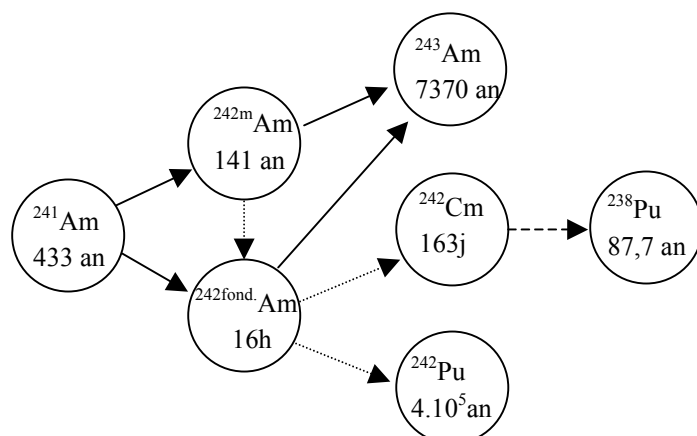


Figure 23 : Schéma de l'évolution d'un noyau d'américium 241 dans un flux de neutrons avec les périodes des isotopes concernés

Une étude expérimentale complète de l'incinération de l'américium 241 dans un haut flux neutronique a été conduite dans le réacteur de l'ILL à Grenoble. Des échantillons d'environ 30 μ g d'oxyde d'américium 241 ont été irradiés sous des flux neutroniques dont les intensités de $5,6 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ et $2 \cdot 10^{13} \text{ n.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ont été mesurées par activation de moniteurs de fer.

Par l'utilisation combinée d'une méthode de spectroscopie gamma et de spectrométrie de masse nous avons déterminé qu'en 19 jours $(46,4 \pm 4,5)$ % de l'américium 241 initial a été transmuté par des captures neutroniques dont (22 ± 8) % a été incinéré par des fissions. La valeur de la section efficace de capture de l'américium 242 dans son état fondamental a été expérimentalement mesurée et est égale à (330 ± 50) b. Cette section efficace joue un rôle important pour la transmutation de l'américium par des neutrons thermiques et la valeur obtenue permet d'envisager une incinération efficace de l'américium 241 par des flux de spectre modéré en énergie mais de haute intensité.

Les mesures par spectroscopie gamma et par spectrométrie de masse ont été effectuées après un temps de refroidissement long devant les 16 heures de durée de vie de l'américium 242 et les mesures sont donc indirectes. Cette expérience met alors en évidence l'intérêt que peut avoir un système de spectroscopie pour faire des mesures rapides après irradiation. C'est dans cette optique que le projet expérimental Mini-Inca a été créé pour développer la chambre de mesure décrite dans ce chapitre.

III.B. Le projet

Le chapitre précédent montre que le potentiel de transmutation de chaque réacteur nucléaire est directement relié à son spectre neutronique et aux données nucléaires des isotopes majoritaires, en particulier leurs sections efficaces. Ces deux paramètres sont essentiels pour juger de la faisabilité, de la viabilité économique de la transmutation et des mérites comparés des différents systèmes [28].

Or, pour certains isotopes d'actinides, les bases de données les plus complètes, [34], [35] et [36] présentent des différences qui peuvent se révéler importantes (cf. annexe A). Les noyaux concernés par ces imprécisions jouent un rôle négligeable dans le cycle du combustible actuel, mais ils peuvent jouer un rôle important dans un système de transmutation où le combustible est fondamentalement différent. Mesurer ces sections efficaces s'avère donc nécessaire pour faire des simulations de réacteurs ou de combustibles innovants.

Après avoir présenté les méthodes existantes pour mesurer des sections efficaces nous décrivons le projet Mini-Inca, dans lequel s'inscrit notre travail expérimental, et les principes retenus pour nos expériences.

1. Mesurer des sections efficaces

Les sections efficaces de capture ou de fission des noyaux sont des grandeurs dépendantes de l'énergie du neutron incident (cf. II.A.3). Mesurer une section efficace avec des neutrons d'énergie fixe revient à mesurer un point de la courbe $\sigma(E)$ et l'on parle alors de mesure différentielle. Il est aussi possible de mesurer la section efficace totale correspondant à un flux neutronique, on parle dans ce cas de mesure intégrale car on mesure la valeur moyenne en E de $\sigma(E)$. Cependant les mesures intégrales en spectres thermiques sont parfois improprement considérées comme des mesures différentielles vu qu'il est possible de déduire la valeur de $\sigma(E)$ en supposant le flux de neutrons maxwellien et la section efficace en " $1/v$ ". Voir par exemple la Figure 14 du chapitre II.

Les mesures différentielles consistent à bombarder une cible avec des "paquets" de neutrons dont l'énergie peut être déterminée par une méthode de temps de vol. Cette dernière permet de déduire la vitesse, et donc l'énergie des neutrons d'un spectre donné en mesurant le temps nécessaire pour parcourir une distance connue entre la source et la cible. Pour séparer les neutrons, il est alors nécessaire d'avoir des sources pulsées et le flux de neutrons reste assez faible dans ce type d'expérience. Voir par exemple des descriptions de l'installation n_tof au CERN [57], [58] et celle de GEEL [59]. Les énergies de neutrons disponibles dépendent des caractéristiques de la source pulsée et vont environ de 1 eV à 250MeV pour n_tof.

Il existe deux types de mesures intégrales suivant que l'on utilise de grandes ou de petites quantités de matière. Dans les premières, l'échantillon fait partie intégrante du combustible à l'origine des neutrons (crayon dans un réacteur de puissance par exemple) alors que, dans les secondes, l'échantillon est simplement plongé dans un flux d'origine externe. Dans les premières, le flux évolue au cours de l'irradiation et les sections efficaces moyennes changent comme le démontre le II.C. De plus, l'échantillon perturbe sensiblement le flux et l'exploitation de ces données demande une analyse fine prenant en compte ces rétroactions. Les expériences présentées ici suivent la seconde approche qui est plus précise et facilement exploitable.

2. Le projet Mini-Inca

Le projet Mini-Inca a pour objectif de développer de nouveaux outils expérimentaux et des méthodes de simulation pour mener à bien des mesures intégrales de transmutation d'actinides dans des conditions d'irradiation données. Des programmes de simulations ont été implémentés pour modéliser les flux de neutrons utilisés expérimentalement, ceux de réacteurs nucléaires innovants et des sources de neutrons fondées sur la spallation ou sur des réactions photonucléaires [60]. La partie expérimentale du projet consiste en la détermination de paramètres nucléaires, en particulier de sections efficaces de capture et de fission, et des mesures de potentiels de transmutation dans un spectre neutronique donné. Des mesures intégrales sont effectuées après des irradiations caractérisées par :

- des faibles masses pour :
 - ◆ être non perturbateur pour le flux de neutrons ;
 - ◆ manipuler de faibles activités ;
 - ◆ pouvoir avoir des échantillons de grande pureté d'isotopes rares ;
- un ensemble de méthodes pour déterminer la composition de l'échantillon :
 - ◆ spectroscopie alpha-gamma pratiquement "en ligne" ;
 - ◆ spectrométrie de masse après refroidissement ;
 - ◆ spectroscopie alpha pendant irradiation ;
 - ◆ des micro-chambres à fission à double corps (cf. III.C.6) ;
- plusieurs flux de neutrons de haute intensité :
 - ◆ pour être représentatif des futurs systèmes de transmutations ;
 - ◆ pour avoir accès à des corps à vie courte et /ou à faibles sections efficaces de formation ;
- des moniteurs d'activation et des nouveaux détecteurs "en ligne" pour mesurer le flux de neutrons.

Les incertitudes recherchées sont de l'ordre de 5 % sur ces mesures.

Les irradiations ainsi que les mesures de spectroscopie sont menées à l'institut international Laue-Langevin (ILL) de Grenoble. C'est un institut de recherche fondamentale

possédant un réacteur à haut flux et de nombreux équipements expérimentaux disponibles pour les chercheurs des pays collaborateurs : France, Grande-Bretagne, Allemagne, Espagne, République tchèque, Suisse, Autriche, Russie et Italie. L'ILL comporte près de 70 scientifiques et plus de 300 autres employés. Pendant les 225 jours annuels de fonctionnement du réacteur, près de 1500 chercheurs y mènent plus de 800 expériences débouchant sur quatre à cinq cents publications. Le réacteur à haut flux fonctionne à une puissance de 58 MW thermique sur un cycle d'environ 50 jours. Il brûle un unique élément de combustible de 9kg d'uranium enrichi à 93 % disposé au centre d'une piscine d'eau lourde de deux mètres et demi de diamètre. L'eau lourde sert de caloporteur –sa température à la sortie du cœur est de 50°C– et aussi de modérateur par diffusion des neutrons vers l'élément de combustible. Les spectres neutroniques sont donc très thermiques et peuvent aller jusqu'à quelques 10^{15} n.cm⁻².s⁻¹ dans l'élément de combustible, ce qui est parmi les plus hauts flux au monde.

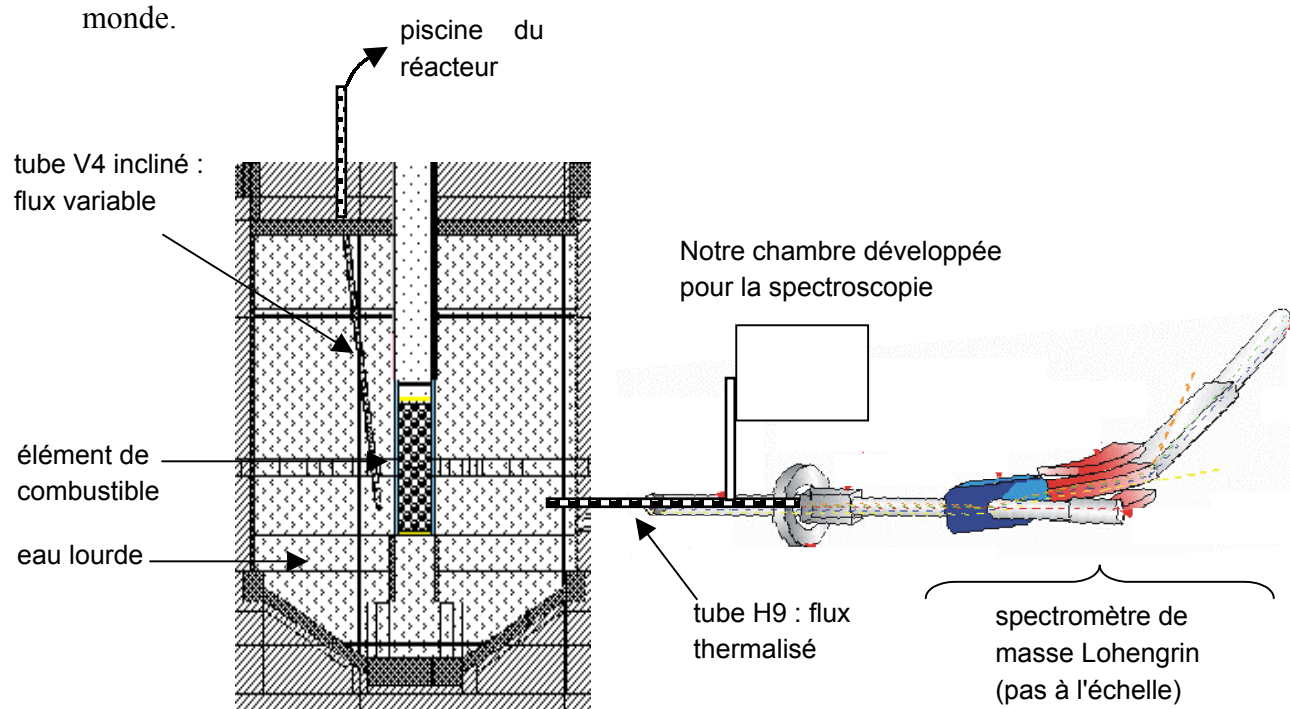


Figure 24 : schéma du réacteur de l'ILL avec nos dispositifs expérimentaux

Pour les expériences, le groupe Mini-Inca utilise deux canaux nommé H9 et V4 (cf. Figure 24). Le canal H9 est sous vide et s'approche à environ 50cm de l'élément de combustible et donne accès à un flux thermalisé de $5 \cdot 10^{14}$ n.cm⁻².s⁻¹. Un système de "chariot" déjà existant permet de mettre en irradiation et d'enlever des cibles pendant le fonctionnement du réacteur. À l'arrière de H9 se trouve le spectromètre Lohengrin [61] (cf. III.C.6) qui pourrait nous donner des informations en regardant "en ligne" les produits de fissions ou les alpha émis par la cible. Le tube V4 s'approche à 12 cm du combustible et est incliné de 8° sur une hauteur utilisable de 1m. Il donne ainsi accès à un flux variable en intensité et en spectre (plus on s'éloigne du centre plus le flux est thermique) qui peut atteindre $1,5 \cdot 10^{15}$ n.cm⁻².s⁻¹.

Ces deux canaux d'irradiation peuvent valider des simulations numériques mais le tube H9 est principalement utilisé pour faire de courtes irradiations alors que le tube V4 peut servir à des irradiations courtes ou longues, sachant que le cycle du réacteur est de 50 jours.

3. Présentation des irradiations dans H9

L'utilisation du canal H9 a pour but de mesurer des sections efficaces intégrales par spectroscopie alpha-gamma après irradiation dans un flux thermique à 50°C. Pour cela, une cible de composition initiale connue est irradiée dans H9 et la composition finale est analysée par la mesure des rayonnements alpha et gamma émis. La mesure de l'évolution de la cible permet alors de déterminer quantitativement les réactions qui ont eu lieu et les sections efficaces associées. Si les sections efficaces thermiques sont bien connues pour de nombreux éléments, ces expériences ont deux intérêts principaux. D'une part une nouvelle mesure indépendante pour des corps peu étudiés permet de confirmer ou infirmer les données existantes. D'autre part l'objectif principal de ces expériences est de valider la méthode expérimentale et les outils d'analyses sur des isotopes connus pour ensuite comparer les flux de différents réacteurs. Nous pouvons aussi souligner l'importance de la valeur de la section efficace *thermique* d'un noyau, c'est-à-dire la valeur à 0,0253eV, soit 20,4°C. En effet, cette section efficace thermique est souvent utilisée pour normaliser entre elles les données expérimentales et théorique lors du processus d'évaluation et de construction des bases de données.

Afin de décider des expériences à réaliser dans le flux thermique de H9 nous avons mené des études pour simuler l'évolution sous un flux de $5 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ d'une dizaine de microgrammes de différents noyaux et déterminer les activités obtenues et les rayonnements émis [62]. Les noyaux dont l'évolution a été étudiée sont ^{237}Np , $^{239-242}\text{Pu}$, ^{243}Am , $^{243-244-247}\text{Cm}$ et les temps d'irradiation vont de 4 heures à 20 jours. Les activités à mesurer en gamma et en alpha sont comprises entre quelques dizaines à quelques milliards de becquerels avec des temps de refroidissement maximum qui sont toujours très grands, sauf dans le cas particulier de la mesure gamma des noyaux plutonium 243 ($T_{1/2} = 4,96\text{h}$) et américium 244 ($T_{1/2} = 26\text{min}$ ou 10h).

Cette première approche a mis en évidence la très grande sensibilité des expériences aux caractéristiques techniques du système de mesure : pouvoir de séparation des raies alpha, taux de comptage obtenus et mesurables... Ainsi pour mesurer la section efficace de capture du curium 243, il faut pouvoir distinguer les quatre principales raies alpha des isotopes 243 et 244 comprises en 80keV (cf. tableau ci-dessous). Si les détecteurs ne permettent pas une telle séparation, l'expérience est irréalisable. Si la résolution en énergie du système est meilleure que 5keV, les raies sont complètement séparées et de ce point de vue, la mesure ne présente pas de difficultés.

Isotope	Principales raies d'émission alpha			
	Énergie (keV)	Intensité (%)	Énergie (keV)	Intensité (%)
Curium 243	5742	10,6	5785	73,5
Curium 244	5763	23	5805	77

Principales raies d'émission alpha des isotopes 243 et 244 du curium

Nous nous intéresserons dans la suite aux irradiations particulières d'une cible de plutonium 242 et d'américium 243 (cf. IV.C).

4. Plan de l'étude

La suite de ce chapitre présente les études préliminaires qui nous ont amené à construire un nouveau système de mesure pour faire de la spectroscopie alpha-gamma à la sortie du canal H9 de l'ILL. Cette chambre de mesure doit nous permettre d'une part de déterminer la composition d'une cible donnée avant et après irradiation et d'autre part de mesurer le flux de neutrons vu par la cible.

Afin de souligner la démarche suivie pour la conception du système expérimental nous avons décrit successivement :

- le choix des détecteurs utilisés pour la spectroscopie, ce qui est un préliminaire indispensable aux autres études ;
- la problématique de la mesure du flux, pour montrer comment, d'une vision globale et donc abstraite du problème de mesure d'un flux neutronique nous avons choisi une méthode et défini concrètement les pièces à utiliser ;
- les cibles d'irradiation qui se caractérisent par leur dépôt d'actinide et par les contraintes géométrique et mécaniques dues au système d'irradiation de H9 ;
- la chambre de mesure qui intègre l'ensemble des résultats précédents et qui sera utilisée dans le chapitre suivant.

III.C. Détecteurs et blindages

Dans tout projet expérimental, les appareils de mesure, ou détecteurs, sont des éléments centraux d'importance capitale car leurs caractéristiques commandent souvent à l'agencement de toute l'expérience. Nos expériences consistent à effectuer des spectroscopies de haute résolution sur des cibles de faible masse peu de temps après irradiation, et donc avec des taux de comptage parfois élevés. Dans le proche environnement du réacteur des mesures quantitatives doivent donc être faites avec de très faibles incertitudes. Un grand pouvoir de séparation des raies est alors nécessaire malgré des activités élevées. Pour justifier les choix techniques faits pour les spectroscopies alpha et gamma nous allons présenter un rapide inventaire des détecteurs et de leur principe de fonctionnement, avant de nous étendre plus longuement sur les détecteurs à semi-conducteur effectivement utilisés.

1. Détecter la radioactivité : quelques principes

L'objectif de tout détecteur de radioactivité est d'interagir avec le rayonnement de telle façon qu'il soit identifié ou que son énergie soit mesurée. Ils fonctionnent en détectant le passage des particules chargées dans la matière et les détecteurs de particules neutres s'y ramènent par une première étape de conversion. Les particules chargées ionisent ou excitent la matière le long de leur parcours et lorsque les compteurs ont pour seul but de compter le nombre de particules, les détecteurs visent à mesurer cette énergie déposée. La précision avec laquelle cette énergie est mesurée est la résolution du système de détection, et la proportion de rayonnement correctement détecté est son efficacité intrinsèque. Lors d'une mesure, le détecteur est en général inutilisable pendant de courtes périodes de temps car il doit revenir à son état initial pour être opérationnel. De même, la chaîne électronique d'acquisition a besoin d'un temps non nul pour traiter et enregistrer le signal et n'est alors pas disponible pour un autre événement. En condition normale de fonctionnement, l'électronique actuelle est capable de fournir cette donnée qui doit être retranchée au temps réel de mesure et qui est appelée *temps mort* du système de détection.

En spectroscopie gamma, on utilise les principales interactions du rayonnement électromagnétique avec la matière qui sont au nombre de trois dans nos gammes d'énergie (d'une dizaine de keV à quelques MeV).

- Par effet photoélectrique un photon est complètement absorbé par un électron lié et lui transmet donc toute son énergie.

- Par diffusion Compton (diffusion incohérente d'un photon sur un électron), le photon transmet seulement une partie de son énergie pour qu'il y ait conservation de la quantité de mouvement.

- Par création de paire, le photon dépose son énergie sous la forme d'un électron et d'un positron en présence d'un centre de collision, très souvent un noyau. La perte d'énergie est égale à deux fois la masse de l'électron, 511keV, plus les énergies de recul nécessaires.

2. Les familles de détecteurs

Les principes exposés ci-dessus sont communs à tous les détecteurs, mais il existe plusieurs méthodes pour mesurer l'énergie déposée conduisant à différencier trois grandes familles de détecteurs. Les premiers utilisent l'excitation produite par les particules chargées, les seconds l'ionisation d'un milieu, souvent un gaz, et les troisièmes sont à base de semi-conducteurs.

Les scintillateurs appartiennent à la première catégorie et sont composés d'un matériau qui se désexcite en émettant de la lumière après le passage d'une particule chargée. Les tubes photomultiplicateurs captent cette lumière pour la convertir en un signal électrique qui est amplifié. Les scintillateurs, solides ou liquides, ont l'avantage d'une grande efficacité (grand pouvoir d'arrêt des gamma) mais ont une mauvaise résolution, typiquement une cinquantaine de keV à 1MeV, due aux performances des photomultiplicateurs et à une longue chaîne de détection.

D'autres détecteurs, du type compteur proportionnel, utilisent le phénomène d'ionisation, souvent dans les gaz. Les particules chargées traversent un milieu ionisant et y créent un grand nombre de paires électron-ion. Les électrons migrent vers une anode où ils sont collectés grâce à un champ électrique. Leur résolution en énergie est modeste, quelques dizaines de keV, due au faible pouvoir d'arrêt des gaz et donc au faible nombre de porteurs de charges créés par unité de volume.

Les expériences envisagées nécessitent des spectroscopies de haute résolution donc nous nous sommes intéressés aux détecteurs à semi-conducteurs.

3. Les détecteurs à semi-conducteurs

Les premières utilisations des semi-conducteurs en physique nucléaire datent des années 60, d'abord pour la spectroscopie alpha puis, quand des matériaux de pureté suffisante ont commencé à être produits, pour la spectroscopie gamma à haute résolution.

Leur principe de fonctionnement est semblable à celui d'un détecteur à gaz : les paires électron-trou créées par la particule sont collectées par un champ électrique de haute intensité qui justifie l'emploi des semi-conducteurs. Dans un isolant, les charges ne peuvent se déplacer et un métal ou un bon conducteur ne peut être soumis à une tension élevée sans créer un courant de fuite très important (Loi d'Ohm).

Une jonction p-n polarisée par une haute tension présente une grande zone de déplétion où la densité de porteur de charge libre est très faible et le champ électrostatique important. Une particule chargée traversant cette zone de déplétion perd de l'énergie en y créant des paires électron-trou qui sont immédiatement entraînées par le fort potentiel et collectées aux bornes de la jonction. L'énergie fournie à cette paire électron-trou est de l'ordre de la largeur de la bande interdite, du "gap" du semi conducteur utilisé qui vaut 1,17eV pour le Germanium et 0,67eV pour le silicium.

Pour les particules alpha, une fenêtre très mince est nécessaire et une fine jonction dite "de surface" suffit à les arrêter complètement. Pour les gamma, mesurés par l'intermédiaire des photoélectrons créés, un volume plus important est nécessaire et il faut augmenter la taille de la zone de déplétion en utilisant par exemple un cristal n-i-p (pour semi-conducteur dopé n-intrinsèque-dopé p). Ces faibles volumes et le peu d'énergie nécessaire à la création d'une paire électron-trou font que les détecteurs à semi-conducteurs ont une bonne résolution. Elle peut être de l'ordre du keV comme pour les détecteurs que nous avons utilisés et que décrit le paragraphe suivant.

4. Les systèmes de mesure α et γ

Dans un souci de concision, nous emploierons souvent le mot "détecteur" pour l'expression plus juste de "système de mesure" qui comprend le détecteur proprement dit et les modules électroniques de traitement du signal associés. Toute l'électronique utilisée pour nos expériences est d'origine commerciale et ses références sont données dans les paragraphes suivants [63]. Elle est de conception récente et ses caractéristiques doivent répondre aux difficiles conditions de nos expériences, en termes de taux de comptage et de résolution.

4.a) *La spectroscopie α*

Le détecteur alpha est un PIPS (passivated implanted planar silicium) qui s'utilise dans le vide et à l'abri de la lumière. Il s'agit d'une jonction au silicium de surface active circulaire de 100mm^2 polarisée à 60V et possédant un courant de fuite de 15nA pour une profondeur de déplétion de $300\mu\text{m}$ (à comparer au parcours de $25\mu\text{m}$ des alpha de 5,5MeV dans le silicium). Son signal de sortie est mis en forme par un préamplificateur 2003BT puis par un amplificateur modèle 2024 de chez Canberra. Après calibration, le temps de mise en forme est choisi à $2\mu\text{s}$ avec un gain de l'ordre de 120. Le signal est ensuite converti en numérique sur 8192 canaux par un classique convertisseur analogique numérique (modèle 8175) avec une fréquence d'échantillonnage de 100MHz et finalement transmis à une carte d'acquisition multi paramètres Fast. Le système complet doit ainsi fonctionner jusqu'à des taux de comptage de 50kHz environ. La résolution intrinsèque du détecteur est de l'ordre de quelques keV et, couplé à notre système électronique, nous avons au mieux obtenu 14keV à 5486keV avec une source fine d'américium 241 (cf. IV.B.2).

4.b) *La spectroscopie γ*

Le détecteur γ est un germanium de type coaxial GX1518 de Canberra avec un préamplificateur 2101P intégré [64]. Le cristal (n-i-p refroidi à l'azote liquide) a un diamètre de 51mm pour une longueur de 38mm. Les tensions de déplétion et d'utilisation sont

respectivement de 3000V et de 3500V pour un courant de saturation de l'ordre de 0,01 nA. Le préamplificateur met en forme le signal chargé par un transistor à effet de champ à décharge pulsée dit "transistor reset". Ce dernier permet de décharger l'intégrateur du préamplificateur et est commercialisé pour améliorer le fonctionnement du détecteur à hauts taux de comptage [64]. La fenêtre d'entrée est formée de 0,5mm d'un composite nommé carbone époxy permet au détecteur germanium de détecter des photons d'énergie comprise entre une vingtaine de keV et plusieurs MeV. Il possède une résolution de 0,825keV (FWHM) à 122keV et 1,8keV à 1,33MeV (FWTM de 3,14keV) avec, à cette énergie, un rapport pic/Compton de 50:1 et une efficacité relative de 16,5%. La courbe d'efficacité en fonction de l'énergie calculée par le programme monte-carlo Géant [65] pour ce détecteur est donnée sur la Figure 25 (cf. IV.A.2).

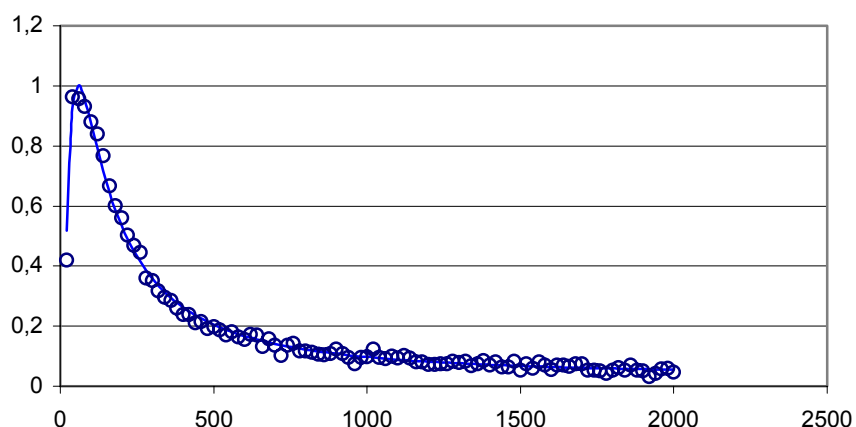


Figure 25 : efficacité du détecteur germanium en fonction de l'énergie (en keV). Points monte-carlo et formule empirique (cf. IV.A.2.)

Ce détecteur est utilisé avec un module DSP (pour Digital Signal Processing) qui joue le rôle des classiques amplificateur et convertisseur analogique-numérique en numérisant le signal dès son entrée (cf. Figure 26).

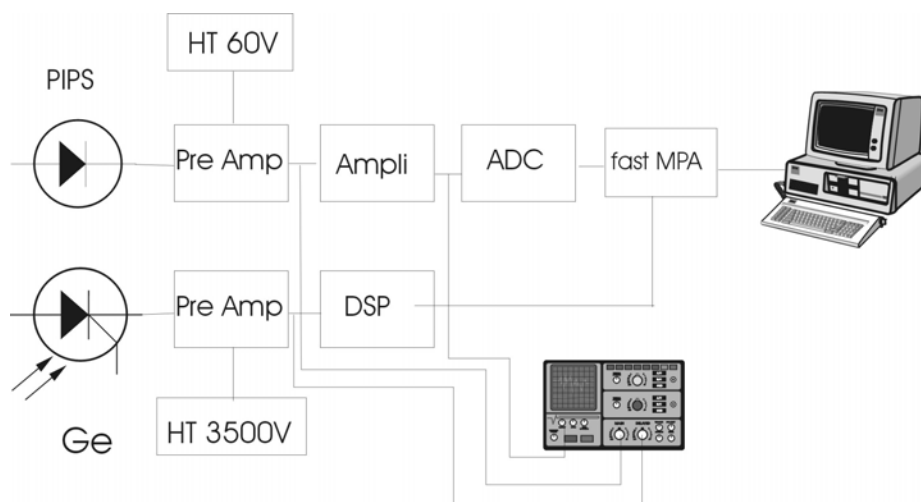


Figure 26 : schéma du dispositif électronique expérimental

La sortie numérique du DSP est ensuite dirigée vers la même carte d'acquisition multi-paramètres que celle contrôlant le détecteur α . Associé à notre détecteur, ce module peut fonctionner en mode anti-empilement (*pile-up rejection*, en anglais) et possède des caractéristiques devant lui permettre de fonctionner avec une très haute résolution (quelques keV) jusqu'à des taux de comptage d'environ 100kHz.

Les détecteurs au germanium sont sensibles à d'autres types de rayonnements et peuvent en particulier être détériorés par les neutrons. La présence du cœur du réacteur à quelques mètres seulement de l'emplacement prévu pour nos mesures nous a donc conduit à étudier la question des blindages.

5. Nécessité d'un blindage

Faire des expériences d'irradiation à proximité immédiate d'un réacteur nucléaire nécessite de concevoir les expériences en termes de protection radiologique des expérimentateurs (principe ALARA¹³), mais aussi en termes de protection des détecteurs et du matériel électronique. Le bruit de fond ambiant n'est pas négligeable même si nos échantillons sont, après irradiation, une source assez importante de rayonnements, jusqu'à quelques gigabecquerels. Un blindage est donc nécessaire d'une part pour protéger les utilisateurs des rayonnements que nous voulons mesurer, et d'autre part pour protéger nos détecteurs du bruit de fond ambiant composé de neutrons et de photons.

5.a) Les neutrons

Le canal H9 aboutit dans la piscine du réacteur et si l'essentiel des neutrons sont arrêtés par la paroi délimitant le cœur, certains peuvent emprunter le canal et ensuite être diffusés vers la chambre de mesure juste au-dessus (cf. Figure 24). Les détecteurs se trouvent à environ 6m du cœur du réacteur. Les neutrons détruisent progressivement les éléments électroniques, surtout le détecteur germanium, et les γ émis par capture perturbent les expériences.

5.b) Les photons

Nous avons procédé à des mesures à Grenoble pour quantifier le bruit de fond dans le hall d'expérimentation. Ces mesures préliminaires ont mis en évidence un fort bruit de fond γ qui vient non seulement des réactions du cœur mais aussi de l'activation neutronique des structures du réacteur (γ prompts et retardés des réactions (n,γ)). Nous avons vérifié expérimentalement que les taux de comptage dépendent beaucoup, un facteur 10, des conditions de fonctionnement du réacteur et des canaux et sont de l'ordre de plusieurs milliers de coups par seconde dans notre détecteur. Afin de diminuer ce bruit de fond qui peut

¹³ As low as reasonably achievable

s'avérer gênant pour les expériences nous avons cherché à blinder les détecteurs. Nous avons constaté l'efficacité d'un blindage multicouche constitué de 5cm de nylon, pour ralentir les neutrons, de 5mm de carbure de bore B_4C , pour les capturer avant le plomb, puis de 5cm de plomb, pour arrêter les γ en partie produits par les capture du bore. La Figure 27 illustre que le gain réalisé peut être d'un facteur 50 sur le taux de comptage global. Le service de radioprotection de l'ILL a considéré que ce blindage était suffisant comme protection biologique et une boîte d'environ $2,5m \times 2m \times 70cm$ a été construite pour enfermer totalement la chambre de spectroscopie. Le nylon inflammable a été remplacé par du permaliboré et la plus grande difficulté technique fut de poser une masse de plusieurs tonnes sur la dalle de béton de H9.

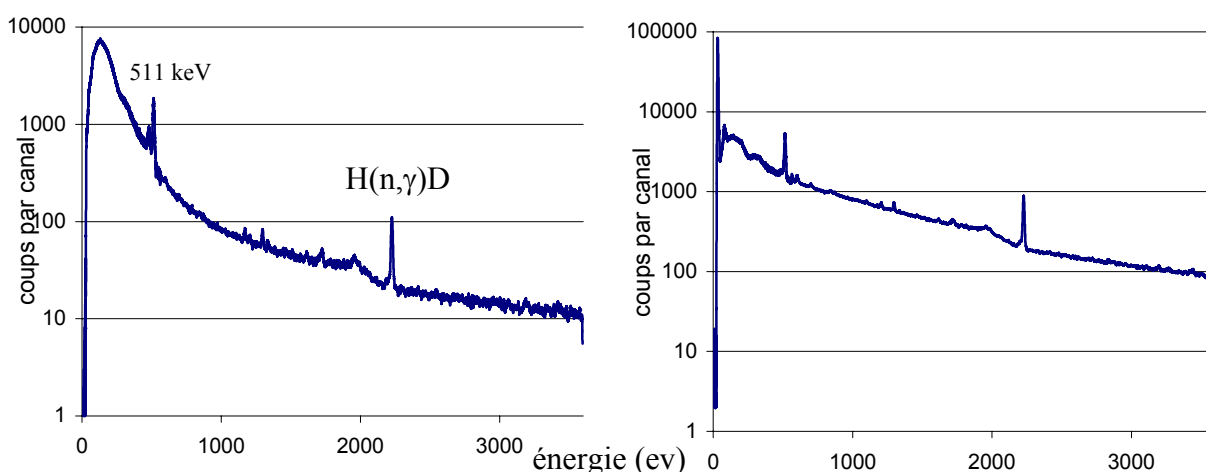


Figure 27 : spectres de bruit de fond acquis avec le détecteur germanium à l'aplomb du canal H9 avec (à droite) et sans (à gauche) blindage. Les temps effectifs de mesure sont de 35000s et 300s. Les taux de comptage sont de $446cp.s^{-1}$ et $23kcp.s^{-1}$ pour des temps morts de 0,8 et 18 %



Figure 28 : photographie du blindage multicouche : plomb, carbure de bore, permaliboré

5.c) Un blindage interne ?

Des expériences préliminaires ont montré que les cibles s'activent et se contaminent pendant les irradiations, ce qui crée une nouvelle source de bruit de fond. L'activation est due

aux neutrons nécessaires aux expériences alors que la contamination provient de la présence accidentelle d'actinides dans le canal d'irradiation qui se déposent sur la cible. Se pose alors la question de protéger les détecteurs tout en gardant la partie active de la cible en visée directe. Il n'est plus question de blindage mais de collimateur qui dissimule juste une partie de la cible. Le PIPS est sensible au bruit de fond β et γ (cf. III.C.3) et doit s'approcher à quelques millimètres de la cible pour les mesures alpha. Un collimateur pour les γ ne semble donc pas réalisable tandis que les 3mm d'acier inoxydable que nous avons installés suffisent pour arrêter des β de quelques MeV. La forme de ce blindage est étudiée pour dissimuler le porte-échantillon (cf. III.E) mais pas le dépôt actif.

Le détecteur germanium est sensible aux rayons gamma provenant du porte-échantillon. Pour arrêter 99% des gamma de 1MeV, nous avons intercalé 6cm de plomb devant le cristal du détecteur. Le "collimateur" a été dessiné de forme intérieure conique et extérieure cylindrique pour mieux s'intégrer dans la chambre à vide.

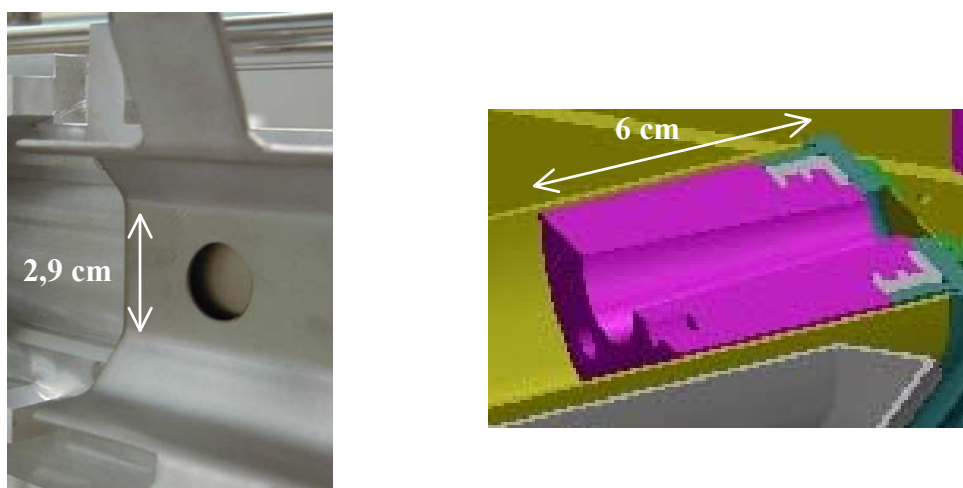


Figure 29 : dessin des "collimateurs" alpha (à gauche) et gamma (à droite). Le premier est fait de 3mm d'acier et le second de 6 cm de plomb. On peut noter les ouvertures, suffisantes pour que le signal à mesurer ne soit aucunement perturbé par ces pièces mécaniques qui écrantent seulement les structure du porte échantillon

6. Lohengrin et microchambres

Afin d'être complet sur l'ensemble du projet expérimental, nous présentons deux autres détecteurs : les microchambres à fission et le spectromètre de masse Lohengrin. Ils ne font pas partie de notre système de spectroscopie et nous n'en parlerons plus dans la suite de ce travail. Les microchambres ont été développées par le groupe Mini-Inca mais ne peuvent être utilisées dans H9 pour des questions techniques ; le spectromètre de masse Lohengrin ne peut pas nous donner d'information sur l'évolution de nos échantillons particuliers.

Les microchambres à fission sont des détecteurs de petites dimensions (4mm de rayon sur 3cm de longueur) pour la mesure du flux neutronique qui peuvent aussi mesurer directement des sections efficaces. Elles fonctionnent selon le principe des chambres à

ionisation en mode saturation et réagissent principalement au produit de fission. Elles contiennent donc leur propre matière fissile et permettent une mesure relative et instantanée du flux. Après calibration, une mesure absolue semble possible puisqu'elles permettent de mesurer l'évolution du taux de fission d'un noyau bien connu, comme l'uranium 235 par exemple. Cependant pour relier ce taux de fission au flux neutronique il est nécessaire d'avoir une forme de flux, la dépendance en énergie $\phi(E)$, connue et constante (cf. II.A.3).

Des mesures directes de sections efficaces de fission sont envisagées en remplaçant la matière fissile par le dépôt à étudier. Enfin une même microchambre peut contenir deux compartiments, l'un contenant un isotope connu et l'autre un mélange à étudier. Il semble alors possible de faire une comparaison directe des taux de fission, en s'affranchissant de l'intensité du flux, sa forme restant un paramètre essentiel. Pour plus de détail sur ces détecteurs, voir [66].

À l'arrière du tube H9, le spectromètre à parabole Lohengrin [61] sépare les ions émis par la cible (PF, particules α , tritons...) selon leur vitesse, \vec{v} , et leur rapport masse/charge ionique (m/q). Leur trajectoire est courbée d'abord par un champ magnétique homogène, B , (rayon de courbure $R_m(m/q)$ d'environ 4m), puis par un champ électrique, E , créé par une tension U ($R_{el}(mv^2) \sim 5,3m$). Le condensateur à l'origine de ce champ électrique est de forme cylindrique à faces parallèles sur plus de 3m et est unique en son genre. L'énergie des ions est de l'ordre du MeV/A donc en négligeant les effets relativistes nous obtenons pour la trajectoire centrale (et en approximation sur les voisinages permis par le faible angle solide d'entrée) les équations suivantes :

$$\text{Pour le champ magnétique : } \frac{mv}{q} = B \cdot R_m$$

$$\text{Pour le champ électrique : } q \cdot E = \frac{mv^2}{R_{el}}$$

Soit :

$$\begin{cases} \frac{m}{q} = \frac{B^2 \cdot R_m^2}{U \cdot R_{el}} \\ v = \frac{U \cdot R_{el}}{B \cdot R_m} \end{cases}$$

Finalement les particules de rapport m/q identique mais de vitesse différente sont focalisées sur une même parabole et ensuite détectées par un PIPS ou une chambre à ionisation. Les dispersions en énergie et en masse sont pour une variation de 1% respectivement d'environ 7cm et 3,2cm.

Angle solide	$3,2 \cdot 10^{-5}$ sr		
Distance de vol	23 m	Temps de vol	$\sim 2\mu\text{s}$
Distance source- premier aimant	8 m	Distance sortie aimant-entrée du champ électrique	2,31 m
Rayon de déflexion dans le champ magnétique	4 m	Rayon de déflexion dans le champ électrique	5,6 m
Angle de déflexion dans le champ magnétique	45°	Angle de déflexion dans le champ électrique	$35,35^\circ$

Caractéristiques du spectromètre de masse Lohengrin

Initialement, nous avons cherché à savoir si le spectromètre Lohengrin pouvait nous donner des informations sur notre cible pendant l'irradiation en observant soit les particules alpha, soit les produits de fissions émis par la cible. Cela n'a pas été possible dans les expériences présentées au chapitre suivant pour plusieurs raisons. Premièrement, les isotopes que nous avons irradiés, américium 243 et plutonium 242, ont une section efficace de fission inférieure à 1 barn et n'émettent pas assez de produits de fission pour être analysés. Ensuite une expérience préliminaire nous a montré que les caractéristiques du spectromètre ne permettent pas de détecter, ou de discerner par rapport au bruit de fond, les particules alpha émises par un dépôt d'actinide excentré par rapport au centre de la cible (cf. III.E).

Les expériences présentées ainsi que notre projet expérimental se fondent sur les mesures alpha et gamma des échantillons suivant une irradiation. Le rappel des principes de détection de ces rayonnements a permis de justifier le choix d'un PIPS et d'un détecteur germanium et d'en comprendre le fonctionnement pour la spectroscopie. La connaissance, même approximative, des caractéristiques des détecteurs utilisés permet de conduire efficacement les études suivantes sur la mesure du flux de neutrons et la conception des cibles et de la chambre de mesure. Elles sont nécessaires pour la conception et la construction du système expérimental qui est l'objectif dans ce chapitre.

III.D. La mesure du flux

Mesurer le flux neutronique qui irradie les échantillons, est une étape essentielle des études envisagées à l'ILL à Grenoble. Les paragraphes II.A-C montrent l'importance de la forme du flux pour les sections efficaces intégrales et la valeur de son intensité. Le flux est essentiellement thermique dans le canal H9 et nous sommes amenés à mesurer le nombre total de neutrons qui ont été vus par les échantillons, c'est-à-dire la valeur du flux intégrée sur toute la durée de l'irradiation. Nous recherchons une précision au moins inférieure à 5 %. Cela peut-être obtenu par l'irradiation conjointe de moniteurs de flux avec les échantillons, une spectroscopie gamma permettant alors de déterminer le flux intégré lors de l'irradiation par le moniteur.

Après un rappel des caractéristiques fondamentales du flux et des principes physiques des méthodes envisagées pour le mesurer, nous allons voir comment elles peuvent être mises en place dans nos conditions expérimentales et ainsi justifier les choix techniques retenus.

1. Le flux : définitions et précisions

Après avoir délimité le cadre, très général, de la mesure d'un flux de neutrons et, plus particulièrement, d'un flux de haute intensité, cette partie présente la méthode retenue d'analyse par activation neutronique.

1.a) Le flux intégré

Pour observer l'évolution d'un actinide sous un flux neutronique nous n'avons accès qu'aux noyaux formés et donc à l'intégrale en énergie et en temps du produit $\sigma \cdot \phi \cdot t$ qui peut se réécrire $\langle \sigma \cdot \phi \rangle_t \cdot t_{irr}$ voire $\langle \sigma \rangle \cdot \langle \phi \rangle_{E,t} \cdot t_{irr}$ (cf. II.A.3 avec des notations évidentes). Si le temps d'irradiation est connu, pour mesurer la section efficace moyenne, $\langle \sigma \rangle$, il faut donc déterminer $\langle \phi \rangle_{E,t}$ qui est la moyenne en temps et en énergie du flux.

En fait, réécrire les équations d'évolutions avec un flux intégré (cf. IV.C.2 par exemple) n'est pas totalement transparent car utiliser une moyenne temporelle sans faire les calculs exacts revient à considérer soit le flux constant en temps, soit que les phénomènes mis en jeu sont linéaires, ou non-corrélés en flux. Concrètement, si le flux varie beaucoup, cette méthode d'analyse reste valable si les réactions étudiées sont du premier ordre en ϕ (pas de double capture) ou si les sections efficaces sont faibles ($\sigma \phi t_{irr} \ll 1$ permet de linéariser toutes les équations par un développement limité au premier ordre). Cela s'applique en particulier dans les expériences présentées au III.A-B où nous avons montré que le flux du réacteur de l'ILL peut varier au cours du cycle.

D'un autre côté, comme toute grandeur physique statistique, le flux varie de manière pseudo-aléatoire pendant de courts instants et ceci de manière spatialement inhomogène ; si l'on irradie deux échantillons distants de quelques dizaines de centimètres, les flux vus peuvent être différents pendant de courtes périodes de temps. Ces phénomènes statistiques ne peuvent pas, pour l'instant, être modélisés et simulés de manière fiable, mais moyenner sur un temps assez long le nombre de neutrons qui traversent la surface de la cible permet de s'affranchir complètement de ces problèmes (cf. IV.B.4). Pour des irradiations de quelques heures à quelques jours, nous négligerons ces questions dans la suite.

1.b) Déterminer un flux de haute intensité

Il est possible de déterminer un flux de neutrons par le calcul, mais en pratique cela présente de nombreux inconvénients, en particulier en ce qui concerne les incertitudes sur les résultats obtenus. En effet, une simulation ne peut rendre compte exactement (au pour-cent près) ni de l'évolution exacte du combustible spécifique utilisé lors de l'expérience, ni de la géométrie complète du réacteur dans son évolution réelle. Un réacteur est un système qui dépend de nombreux facteurs variables et qui est trop complexe pour en donner une image exacte¹⁴. Il est plus usuel de déterminer expérimentalement le flux.

On peut penser soit à le mesurer à chaque instant et sommer, soit à faire directement une mesure intégrée. Dans le premier cas, il faut pouvoir faire des mesures *in situ* sans perturber le flux et transmettre l'information par des fils ou un système de mémoire. Le canal H9, déjà existant et dont la principale utilisation est la spectroscopie des produits de fission, ne se prête pas à ce genre de mesure de par sa conception. Cela reste cependant possible pour le canal V4. Il est par exemple envisageable d'utiliser la réaction de fission pour ses spécificités et l'émission de deux produits de fission de grande énergie qui peuvent être détectés directement. Ce principe est même en cours de développement dans les microchambres à fission (cf. III.C.6). Il est aussi possible d'utiliser la réaction de capture neutronique et mesurer le nombre de noyaux formés, en détectant un rayonnement émis (immédiat ou différé) ou par séparation chimique, ou par des techniques d'analyse de masse tels ICPMS et TIMS...

En conclusion, nous avons décidé d'utiliser l'Analyse par Activation Neutronique qui consiste à irradier un élément bien connu, le moniteur, à côté de celui dont on veut mesurer le comportement. Les deux cibles voient alors le même flux que l'analyse du moniteur par spectrométrie γ permet de déterminer.

¹⁴ Attention, ceci est valable aujourd'hui et changera peut-être dans le futur, avec des puissances de calcul augmentées, des algorithmes plus efficaces et validés dans les conditions adéquates par de nombreuses expériences soigneusement choisies et effectuées. Mais ce futur semble bien loin.

1.c) La méthode d'analyse par activation neutronique : AAN

Découverte juste après le neutron, en 1936, c'est une technique de pointe en analyse quantitative, multiélément et non destructive, des éléments majeurs, mineurs ou traces. Elle peut être appliquée à un grand nombre de matrices¹⁵ et est fondée sur la mesure de rayons γ caractéristiques de chaque élément et émis après irradiation neutronique de l'échantillon. L'analyse quantitative est faite par comptage des gammas caractéristiques des éléments et comparaison avec des standards de composition connue.

Le grand pouvoir de pénétration des neutrons et des gamma dans la matière permet une analyse en masse non destructive où la relation concentration/signal est approximativement indépendante de la matrice et de la forme chimique ou thermodynamique de l'élément. Les échantillons peuvent être liquides, solides ou gazeux. Ils n'ont pas à être mis en solution ou vaporisés donc les risques de contamination de l'échantillon et/ou de perte de masse sont faibles. C'est de plus une méthode économe en temps d'analyse, et donc assez peu coûteuse en main d'œuvre.

Cette méthode présente une très grande sensibilité à de nombreux éléments mais pas tous, même sous forme de trace : de l'ordre du ppm, ppb voire ppt suivant les éléments et l'*activabilité* de la matrice. Aujourd'hui elle est utilisée en archéologie, géologie, biologie, botanique, chimie, médecine, océanographie, lichénologie, ingénierie électronique, industries nucléaire, textiles etc. Voir en particulier [67], [68].

Cette méthode se fonde sur la connaissance de la section efficace de capture du moniteur moyennée sur le spectre en énergie des neutrons, et donc sur la connaissance de la forme du spectre neutronique pour en déduire son intensité. Elle est essentiellement utilisée en spectre thermique où les sections efficaces sont bien connues et où la forme de spectre est assez bien modélisée. En effet, lorsqu'il n'est pas complètement thermalisé, le spectre se décompose souvent en une maxwellienne et en une traîne à haute énergie selon une loi en $1/E^\alpha$ [67] [69]. Le coefficient α dépend des réacteurs, mais il peut être déterminé expérimentalement, par la méthode du "cadmium ratio" par exemple [70] [71]. Pour cette raison, l'utilisation de l'AAN dans un flux à composante épithermique non minoritaire est très délicate, moins précise et doit être systématiquement validée par plusieurs mesures indépendantes ; c'est en particulier vrai dans le canal V4 de l'ILL.

1.d) Conditions expérimentales

Dans notre cas particulier, les neutrons sont créés par le réacteur de l'ILL et mesurés dans les canaux H9 et V4 qui sont à 30 et 60 cm de l'élément de combustible (cf. la géométrie du réacteur décrite au III.B.2). Une simulation monte carlo [52] du réacteur de l'ILL permet de prédire le spectre en énergie dans les canaux H9 et V4. Les flux dans V4

¹⁵ nom usuel pour désigner l'ensemble chimique et physique contenant, parfois à l'état de trace, les éléments à mesurer.

sont donnés à deux positions d'irradiations (cf. Figure 24) : à 30 cm de l'extrémité du tube en position "basse", et à 70 cm en position "haute".

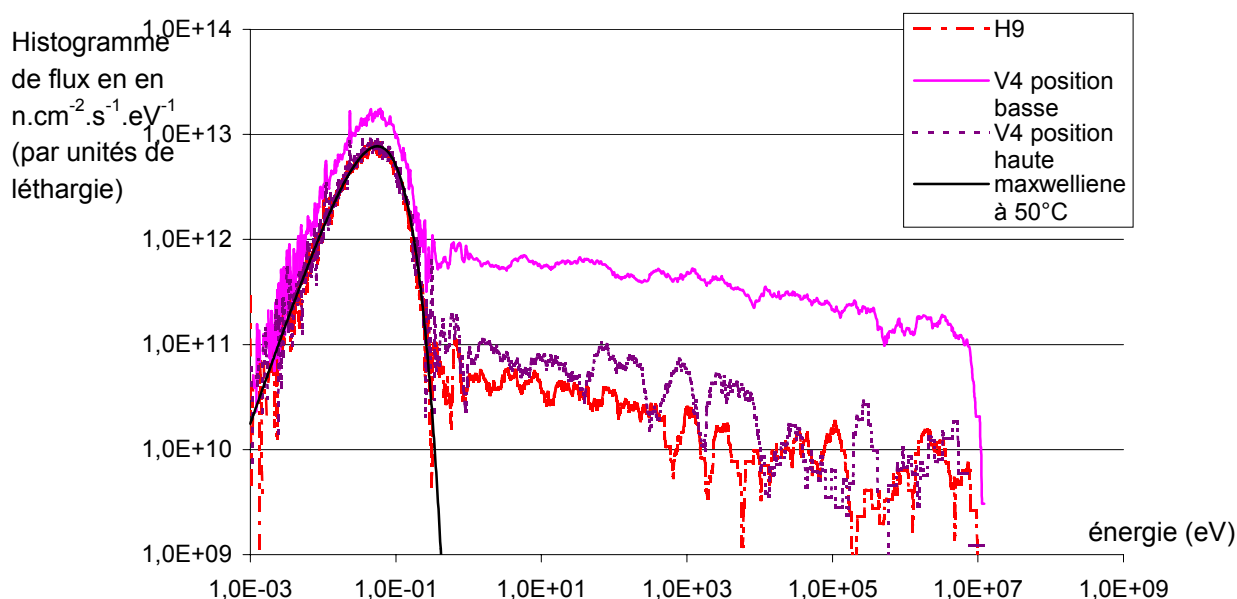


Figure 30 : flux obtenus par MCNP dans les canaux H9 et V4 de l'ILL et maxwellienne à 50°C. On constate la bonne adéquation en dessous de 1eV entre la formule et le flux de H9. Les flux de V4 ont une forte composante thermique (84 % des neutrons ont une énergie inférieure à l'électronvolt en position la moins thermalisée)

L'objectif fixé pour H9 est de déterminer l'intensité du flux vu par les échantillons pendant des irradiations supérieures à quelques heures (ce qui correspond à une fluence d'environ 10^{19} n.cm⁻²) dans des conditions normales de fonctionnement du réacteur. Ce flux sera considéré comme constant. Les incertitudes provenant de ces approximations seront considérées comme négligeables et des expériences seront faites pour le vérifier (cf. IV.B.3). Une fois ces hypothèses données, nous pouvons exposer plus en détail la manière dont nous mesurons le flux.

2. Analyse et équations de la méthode utilisée

Comme l'analyse par activation neutronique, la mesure du flux repose sur deux principes, l'un théorique, l'évolution d'un ensemble de noyaux sous un flux de neutrons, et l'autre expérimental, l'exploitation des données obtenues par les détecteurs. Ces phénomènes sont souvent utilisés en physique nucléaire et nous allons successivement présenter les principes de l'activation neutronique, puis de la spectroscopie. Cela permet d'une part d'exposer l'ensemble de la physique utilisée dans nos expériences et d'autre part de donner des définitions rigoureuses de tous les termes utilisés en y incluant l'effet des imperfections des systèmes réels.

2.a) L'activation neutronique

L'évolution d'un corps dans un flux de neutrons constant et stationnaire se traduit par un ensemble d'équations différentielles du premier ordre, appelées équations de Bateman. Pour les réactions de capture, le nombre de réactions instantanées est proportionnel aux nombres de neutrons incidents et d'atomes cibles, N_p . Puisque, à chaque réaction, un atome "père" disparaît et un atome "fils" est créé, nous pouvons écrire :

$$dN_p = -\sigma \cdot \phi \cdot N_p \cdot dt \quad \text{et} \quad dN_f = +\sigma \cdot \phi \cdot N_p \cdot dt$$

Disparition et apparition sont donc des phénomènes infinitésimaux linéaires et, pour tenir compte de plusieurs voies de disparition-crédation, il suffit de sommer les contributions des phénomènes considérés pour obtenir un système linéaire du premier ordre à coefficients constants (d'après les hypothèses sur le flux au paragraphe III.1.a qui se résout analytiquement [72] [73], comme sur l'exemple du cobalt ci-dessous. Si le "fils" est radioactif, de constante de décroissance radioactive λ , la compétition entre sa création par irradiation et sa disparition par désintégration s'écrit : $dN_f = \sigma \cdot \phi \cdot N_p \cdot dt - \lambda \cdot N_f \cdot dt$

La connaissance de l'activité finale de l'élément, donc de N_f , des sections efficaces des réactions majoritaires et du temps d'irradiation permet d'en déduire ϕ . Dans le cas général, nous sommes donc ramenés à mesurer des activités, ce qui est fait par spectroscopie pour les mesures envisagées à Grenoble.

2.b) La spectroscopie

La spectroscopie est la théorie des spectres, et les techniques qui s'y rapportent ; c'est aussi la méthode de mesure sur laquelle se fondent nos expériences. Dans un souci de simplicité, cette partie traite de la spectroscopie gamma mais l'ensemble des résultats est transposable directement à la spectroscopie alpha. De plus, l'échantillon est considéré comme composé d'un unique élément radioactif, le cas réel étant une superposition plus ou moins simple de cas élémentaires.

L'utilisation d'un système de mesure pour la spectroscopie a pour objectif de déterminer, à un temps, t , donné, l'activité, A , de l'échantillon, c'est-à-dire le nombre de désintégrations par unité de temps. Le nombre de coups dans une raie, dN , mesuré pendant un temps dt par le système d'acquisition est, par définition de ε_{sys} , l'efficacité du système de détection, égal à :

$$dN = A \cdot I \cdot \left(\frac{\Omega}{4\pi} \right) \cdot \varepsilon_{\text{sys}} \cdot dt$$

avec :

I : intensité d'émission de la raie ;

$\Omega/4\pi$: fraction d'angle solide (probabilité qu'un rayonnement émis par la cible de manière aléatoire et isotrope rentre dans la zone active du détecteur) ;

$\varepsilon_{\text{syst}}$: *efficacité du système*, souvent réécrit comme le produit de l'*efficacité intrinsèque* par l'*efficacité électronique*, avec $\varepsilon_{\text{elec}} \times t =$ temps de mesure effectif

Cette formule se lit par : le nombre de coups vu sur le spectre est égal au produit du nombre total de particules émises par la probabilité qu'elles arrivent sur le détecteur et que le système électronique les transmette sur le spectre observé.

Si le corps formé peut-être considéré comme stable (*i.e.* son activité change peu) pendant la mesure, nous obtenons immédiatement la relation :

$$N = A \cdot I \cdot \left(\frac{\Omega}{4\pi} \right) \cdot \varepsilon_{\text{syst}} \cdot t_c \quad (\text{III.1})$$

avec t_c , temps de comptage.

Sinon il faut prendre en compte la décroissance, ce qui revient à la même expression en attribuant l'activité mesurée à un instant précis, t_{moy} , de la mesure. Avec λ constante de décroissance radioactive de l'élément mesuré et en supposant le temps mort nul (cf. ci-dessous), on obtient :

$$t_{\text{moy}} = \frac{\ln(\lambda t_c) - \ln(1 - e^{-\lambda t_c})}{\lambda} \quad (\text{III.2})$$

2.c) Du monde idéal au monde réel

Dans toute utilisation, chaque grandeur des équations précédentes doit être considérée avec précaution car les sources d'erreurs ou d'incertitudes sont nombreuses. Ce paragraphe a pour but de rapprocher les formules précédentes avec celles que nous utiliserons en pratique et de mettre en évidence les sources d'incertitudes que sont les approximations faites.

-incertitudes statistiques

La désintégration des noyaux c'est-à-dire la radioactivité, est un phénomène quantique, aléatoire, et donc probabiliste. Le grand nombre d'atomes mis en jeu (nombre d'Avogadro $\approx 6,02 \cdot 10^{23}$) rend son observation statistique et il faut prendre en compte les incertitudes statistiques qui dépendent du nombre d'événements observés.

- notion d'efficacité

La définition que nous avons donnée de l'efficacité du système est purement théorique et bien sûr inutilisable en pratique pour déterminer l'activité. Pour se ramener à des grandeurs mesurables en pratique, les notions d'efficacité intrinsèque et de temps mort sont souvent utilisées bien qu'elles soient sources de nombreuses confusions. L'efficacité du détecteur est déterminée par des mesures préliminaires et le temps mort est calculé pendant la mesure

Définition : l'efficacité intrinsèque ou $\varepsilon_{\text{détéc}}$, est la probabilité pour qu'un rayon d'une énergie E arrivant sur le détecteur au repos soit reconnu comme tel sur le spectre.

Avec une électronique idéale cela signifie que ce rayonnement est traduit par un événement d'énergie E_{ray} sur le spectre. En pratique, avec de faibles taux de comptage et une électronique au repos ε_{sys} est environ égale à $\varepsilon_{\text{détéc}}$.

Définition : une première approche du temps mort est phénoménologique, comme celle de ε_{sys} , et la *fraction de temps mort* est définie par $1 - \varepsilon_{\text{sys}} / \varepsilon_{\text{détéc}}$.

En y associant un phénomène physique, du moins celui qui compte le plus au premier ordre, nous obtenons la définition usuelle : le "temps mort" du système de mesure est la partie du temps où il est bloqué et où il ne peut transmettre de signal. Ce sont par exemple les moments où le détecteur revient au repos après un signal, ceux qui sont dus au traitement des signaux par l'électronique, aux signaux en coïncidences rejetés par l'électronique etc. La fraction de temps mort est alors égale au rapport temps mort sur temps de mesure.

Le temps de mesure est souvent remplacé dans les équations par un temps de comptage effectif¹⁶ prenant en compte le temps mort par $t_{\text{eff}} = t_{\text{réel}} - t_{\text{mort}}$. De par la nature macroscopique du temps mort (c'est une moyenne), les intégrations précédentes ne sont plus justifiées s'il varie pendant la durée de la mesure comme l'illustre la Figure 31.

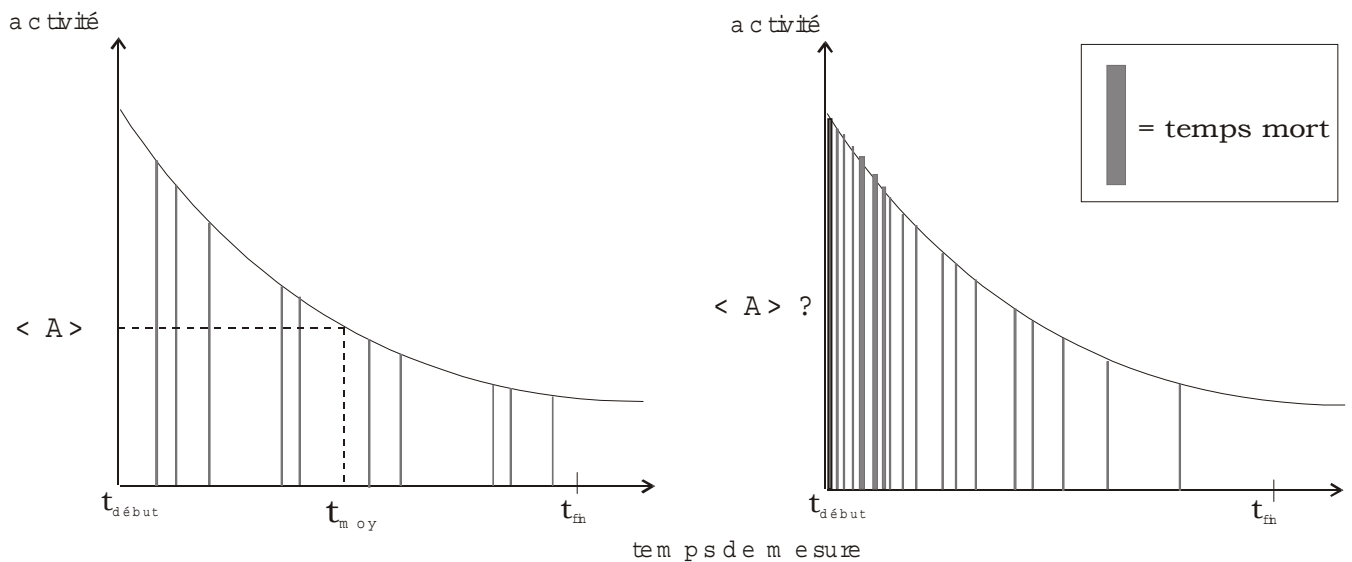


Figure 31 : Évolution de l'activité et du temps mort au cours d'une mesure avec un temps de mesure $t_{\text{fin}} - t_{\text{début}}$ qui n'est pas négligeable devant le temps de décroissance de l'activité mesurée. L'équation (III.2) s'applique sur la figure de gauche car le temps mort est faible et aléatoirement réparti, mais pas sur la figure de droite où le temps mort décroît lors de la mesure.

¹⁶ "live time" en anglais

En conclusion, pour utiliser l'équation (III.1), respectivement (III.2), les temps de comptages doivent être faibles devant la période du corps mesuré et, respectivement ou, devant le temps caractéristique de décroissance du temps mort.

3. Perspective avec nos conditions expérimentales

Pour les expériences envisagées à Grenoble, les moniteurs de flux doivent vérifier certaines conditions. L'élément doit être manipulable dans les conditions usuelles de H9 et un liquide par exemple n'est pas adapté. La fraction massique de l'isotope "activable" doit être précisément déterminée et sa section efficace de capture précisément connue. Le corps formé par capture doit être émetteur gamma, d'intensité I_γ connue, et les activités obtenues après des irradiations de quelques heures à une vingtaine de jours doivent être compatibles avec notre système de mesure (cf. III.C.4). Enfin, l'incertitude finale sur le flux doit être la plus faible possible et cette étude permet de la quantifier.

Nous avons effectué des simulations pour avoir des données précises sur les trois isotopes que nous a fournis une étude de la table des isotopes : l'or, le cobalt et le fer. Les caractéristiques principales des noyaux considérés sont reportées dans le tableau ci-dessous.

Noyau père	σ capture		Noyau fils	T _{1/2} (j)	σ capture fils (b)	Énergie γ (keV)	Intensité γ (%)	ε _{syst} (Eγ) (%)
	(b)	Inc. %						
¹⁹⁷ Au	98,8	0,665	¹⁹⁸ Au	2,694	25000	412	95,56	40
⁵⁹ Co	19	~ 1	^{60m} Co	7,3·10 ⁻³	58	X	X	X
	37,2	0,64	^{60 et 60m} Co	1925,6	2	1173	99,98	10
⁵⁸ Fe	1,15	~ 4	⁵⁹ Fe	44,50	<10	1099	56,3	12

Caractéristiques nécessaires et suffisantes pour étudier la pertinence de trois isotopes pour une analyse par activation neutronique. Les valeurs des sections efficaces sont données à 0,025 eV (cf. [74]), les efficacités ε_{syst} (Eγ) sont approchées d'après notre détecteur germanium et les incertitudes, Inc. sont égales à Δσ/σ, en %. L'incertitude sur les intensités absolues d'émission gamma I_γ, sont négligeables pour l'or et le cobalt et d'environ 1,8% pour le fer.

A priori, nous pouvons dire que :

- l'or ne pourra pas être utilisé dans des irradiations longues (fils de faible période et surtout très forte section efficace de capture correspondant à une "période" d'environ 2 jours à 5·10¹⁴ n.cm⁻².s⁻¹) ;

- l'utilisation du fer est limitée par la précision sur la section efficace de capture ;

- la présence du cobalt 60 métastable ne semble pas avoir de conséquence, car les incertitudes sur la section efficace totale de capture et la période du métastable sont faibles.

Vu leur demi-vie, les produits d'activation du fer et cobalt peuvent être considérés comme stables à l'échelle de nos mesures.

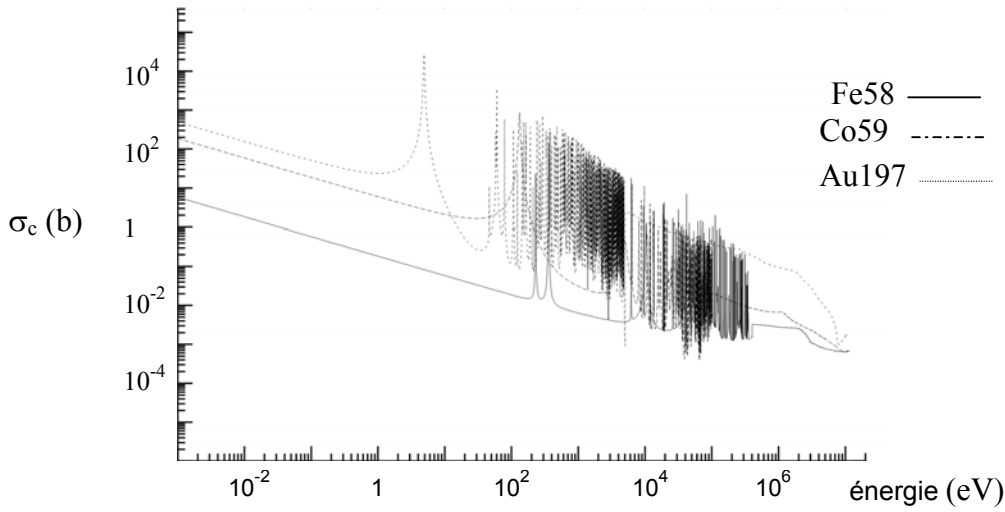


Figure 32 : sections efficaces de capture des trois isotopes étudiés : σ_{Fe57} ; $\sigma_{\rightarrow\text{Co60}} + \sigma_{\rightarrow\text{Co60}_m}$; σ_{Au197} d'après ENDF

La résolution des équations d'évolution (cf.III.D.2.a) obtenues pour l'or 197, le cobalt 59 et le fer 58 dans un flux stationnaire ϕ pendant un temps t conduit aux résultats suivants¹⁷ :

-pour l'or

$$N_{\text{Au197}}(t) = N_{\text{Au197}}^0 e^{-\sigma_{\text{Au197}}\phi \cdot t}$$

$$N_{\text{Au198}}(t) = N_{\text{Au197}}^0 \frac{\sigma_{\text{Au197}}\phi}{\lambda_{\text{Au198}} + \sigma_{\text{Au198}}\phi - \sigma_{\text{Au197}}\phi} \left[e^{-\sigma_{\text{Au197}}\phi \cdot t} - e^{-(\lambda_{\text{Au198}} + \sigma_{\text{Au198}}\phi)t} \right]$$

$$N_{\text{Au199}}(t) = N_{\text{Au197}}^0 \frac{\sigma_{\text{Au197}}\sigma_{\text{Au198}}\phi^2}{\lambda_{\text{Au198}} + \sigma_{\text{Au198}}\phi - \sigma_{\text{Au197}}\phi} \left[\frac{e^{-\sigma_{\text{Au197}}\phi \cdot t}}{\lambda_{\text{Au199}} - \sigma_{\text{Au197}}\phi} - \frac{e^{-(\lambda_{\text{Au198}} + \sigma_{\text{Au198}}\phi)t}}{\lambda_{\text{Au199}} - (\lambda_{\text{Au198}} + \sigma_{\text{Au198}}\phi)} \right] + \alpha \cdot e^{-\lambda_{\text{Au199}} \cdot t}$$

$\alpha \in \mathbb{R} / N_{\text{Au199}}(0) = 0$

-Pour le Cobalt

$$N_{\text{Co60}}(t) = N_{\text{Co59}}^0 - \frac{N_{\text{Co59}}^0 \phi}{\sigma_{\rightarrow\text{Co60}} + \sigma_{\rightarrow\text{Co60}_m}} e^{-(\sigma_{\rightarrow\text{Co60}} + \sigma_{\rightarrow\text{Co60}_m})\phi \cdot t} \left(\sigma_{\rightarrow\text{Co60}} + \frac{\lambda_{\text{Co60}_m \rightarrow \text{Co60}} \cdot \sigma_{\rightarrow\text{Co60}}}{\lambda_{\text{Co60}_m \rightarrow \text{Co60}} - (\sigma_{\rightarrow\text{Co60}} + \sigma_{\rightarrow\text{Co60}_m})\phi} \right)$$

$$+ N_{\text{Co59}}^0 \frac{\sigma_{\rightarrow\text{Co60}} \cdot \phi}{\lambda_{\text{Co60}_m \rightarrow \text{Co60}} - (\sigma_{\rightarrow\text{Co60}} + \sigma_{\rightarrow\text{Co60}_m})\phi} e^{-\lambda_{\text{Co60}_m \rightarrow \text{Co60}} \cdot t}$$

- Pour le fer

$$N_{\text{Fe59}}(t) = N_{\text{Fe58}}^0 \cdot (1 - e^{-\sigma_{\text{Fe58}}\phi \cdot t})$$

¹⁷ Avec les approximations dues à nos conditions expérimentales : flux d'environ $5.10^{14} \text{ n.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ et $t \in [4\text{h}; 50\text{j}]$

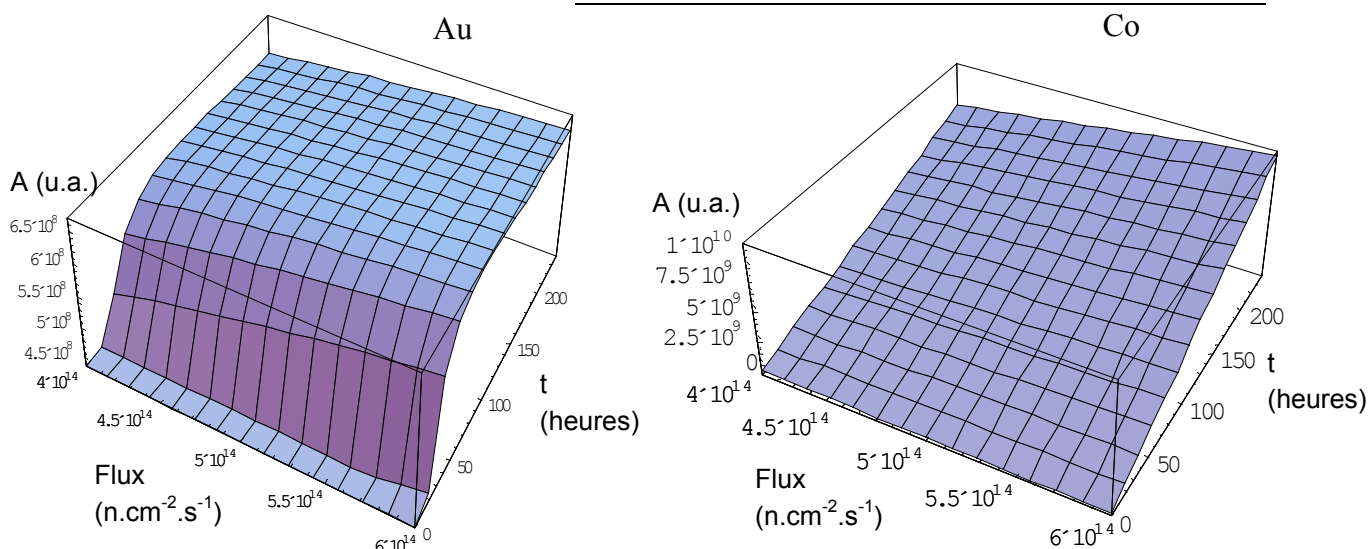


Figure 33 : évolution de l'activité d'or (à gauche) et de cobalt (à droite) en fonction du temps d'irradiation (en heures) et du flux (en $n.cm^{-2}.s^{-1}$). Le fer évolue de manière linéaire, comme le cobalt, et n'est donc pas représenté

4. Cas du cobalt

La complexité de la formule précédente pour le cobalt est due à la capture du cobalt 59 vers le cobalt 60 dans un état métastable. La durée de vie de ce dernier (10,5 minutes) est négligeable devant la durée de vie du cobalt 60 dans son état fondamental (5,3 ans) et devant le temps caractéristique de capture du cobalt 60 (environ 270 jours). Si on attend quelques heures et la décroissance du cobalt 60 métastable, l'équation précédente se simplifie et nous obtenons :

$$N_{Co60}(t) = N_{Co59}^0 \cdot \left(1 - e^{-(\sigma_{\rightarrow Co60} + \sigma_{\rightarrow Co60_m}) \cdot \phi \cdot t}\right)$$

Soit :

$$\phi = \frac{\ln(1 - N_{Co60}(t)/N_{Co59}^0)}{(\sigma_{\rightarrow Co60} + \sigma_{\rightarrow Co60_m}) \cdot t}$$

Une évaluation de l'erreur sur le flux est alors donnée par :

$$\Delta\phi^2 = \sum_i \left(\frac{\partial\phi}{\partial x_i} \right)^2 \Delta x_i^2$$

avec $x_i \in [N_{Co60}(t) ; N_{Co59}^0 ; t ; \sigma_{\rightarrow Co60} + \sigma_{\rightarrow Co60_m}]$

5. Les décisions techniques

Afin de déterminer le corps à utiliser, sa masse et ses caractéristiques géométriques en fonction de ce qui existe dans les laboratoires, les équations précédentes ont été traduites dans quelques cas particuliers correspondants aux conditions extrêmes de fonctionnement de notre

système de mesure. Nous cherchons à prévoir la masse de moniteur dont l'activité sera mesurable par notre système de mesure au bout de 4h, 6h, 2j et 20j d'irradiation.

Pour avoir un bon rapport signal sur bruit et pour avoir de bonnes précisions statistiques nous voulons des taux de comptage élevés. Cependant pour ne pas saturer l'électronique, pour diminuer les phénomènes de non-linéarité et pour éviter des corrections de temps mort nous devons avoir des taux de comptage le plus bas possible. Ainsi nous restreignons cette étude à un nombre de coups par seconde dans le pic photoélectrique entre 300 et 5000 coups par seconde. Les masses que nous pouvons peser et utiliser sont de quelques milligrammes à un gramme. Le fer naturel peut donc être utilisé (0,282 % d'abondance isotopique du fer 57) mais nous devons utiliser des alliages comportant 1 % ou 0,1 % d'isotope "actif" pour l'or et le cobalt.

Élément		Cobalt (1%)			Or (0,1%)		Fer (100%)	
Taux de comptage (cp.s ⁻¹)	$\Omega/4\pi=3.10^{-4}$	50	500	5000	500	5000	500	5000
	$\Omega/4\pi=1,8.10^{-3}$	300	3000	/	3000	/	3000	/
Temps d'irradiation	4h	16,1mg	161 mg	1,61 g	0,68 mg	6,8 mg	4,2mg	42mg
	6h	10,7mg	107mg	1,07g	0,48mg	4,8mg	2,8mg	28mg
	2j	1,3mg	13 mg	130 mg	X	X	0,35mg	3,5mg
	20j	0,14mg	1,14mg	11,4 mg	X	X	0,035mg	0,35mg

Ce tableau donne les masses d'alliage correspondant aux taux de comptage dans le pic photoélectrique après un temps d'irradiation donné à un flux de $5 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ pour notre détecteur germanium placé à 30cm et à 80cm. Cette masse est proportionnelle au taux de comptage et à l'inverse de l'angle solide, de la fraction massique, et du temps d'irradiation pour le cobalt et le fer. Les données utilisées sont celles du tableau précédent.

De l'étude résumée dans le tableau ci-dessus nous pouvons tirer les conclusions suivantes :

- l'or peut être utilisé pour des irradiations de quelques heures mais pas plus ;
- le fer peut être utilisé pour toute durée d'irradiation jusqu'à quelques jours, mais une incertitude de 4 %, est due à la méconnaissance de la section efficace de capture du fer 58 ;
- le cobalt peut être utilisé dans toute situation avec des masses d'alliage à 1 % de cobalt de l'ordre de la dizaine de milligrammes.

Finalement, pour mesurer le flux par activation neutronique, nous avons choisi le cobalt comme élément actif sous la forme de disques de diamètres de 6mm (soit environ 7,63mg), découpés au laser (pour éviter toute contamination) dans une feuille d'alliage Al-Co (1 %^m) d'épaisseur 0,1mm (2,7g/100cm²), de type GEEL-IRMM528a. L'homogénéité de cet alliage est de 2 % donc la masse de cobalt contenu dans une pastille de masse m est de $0,01 \times m$ à 2% près. D'après les équations du paragraphe précédent l'incertitude finale sur le flux devrait être de l'ordre de quelques pour cents.

Après le choix de nos deux détecteurs, ce disque de cobalt est la seconde solution technique apportée au projet expérimental. Les études suivantes visent à intégrer ce moniteur de flux avec l'échantillon sur la "cible" qui sera irradiée pour organiser ces différents éléments en vue des mesures.

III.E. Les cibles

1. Définitions, objectifs et problématiques

La cible, aussi appelée échantillon, est l'objet central autour duquel se dispose tout le dispositif expérimental. La cible est constituée du dépôt actif que nous voulons observer, souvent un actinide, du matériau-contenant ou supportant ce dépôt et, si nécessaire, d'un porte-échantillon servant à tenir les objets précédents et à permettre leur manipulation. Plus précisément, une cible doit assurer l'intégrité de la matière active, en particulier éviter une perte de masse. Elle doit supporter les chocs mécaniques dus à la manipulation par les différents automates ainsi que les chocs thermiques et neutroniques pendant l'irradiation. Elle ne doit ni détériorer significativement le signal à mesurer, alpha ou gamma, ni trop le perturber par un fort bruit de fond. Enfin elle doit permettre un positionnement de l'échantillon compatible avec la précision des mesures envisagées.

L'un des points forts de nos expériences est de faire de la spectroscopie alpha juste après irradiation. Or les particules alpha interagissent fortement avec la matière et l'échantillon ne peut pas être enfermé dans un conteneur comme une ampoule de quartz. L'élément actif doit être "à l'air libre" et par exemple électrodéposé à la surface d'un premier support. Cette technique consiste en une simple électrolyse où, sous l'action du courant électrique, le métal se dépose sur une électrode et est ensuite fixé par calcination. Les échantillons ont été préparés aux laboratoires de JRC-IRMM à GEEL, Belgique, et de E. O. Lawrence Berkeley National Laboratory aux États-Unis par électrodéposition sur des substrats de nickel et de titane.

Pour le reste de la cible nous avons étudié des supports en titane ou en composés de graphite à cause des contraintes citées ci-dessus et surtout parce qu'elle ne doit pas trop s'activer. Ces deux corps possèdent un point de fusion élevé, une très bonne tenue aux rayonnements et surtout des impuretés "activables" en faibles proportions, de l'ordre du ppm pour le titane et du ppb pour le graphite. Finalement, dans un souci de sécurité maximale au vu des contraintes mécaniques et en particulier des chocs, le porte échantillon a été construit en titane.

Une fois la nature du support fixée, nous avons étudié les influences des cibles sur les mesures, que ce soit au niveau du dépôt actif ou du reste de la cible. Notre objectif est de minimiser ces effets par la conception même du système de mesure et de la géométrie des cibles.

2. Le dépôt actif

Le dépôt actif est à l'origine du signal que nous voulons mesurer et nous avons cherché à connaître l'influence de ses compositions chimique et physique et de ses caractéristiques géométriques.

La solution utilisée pour l'électrodéposition est de composition connue et une spectroscopie alpha avant irradiation nous permet de vérifier la composition des cibles. L'utilisation de masses de quelques microgrammes rend impossible l'utilisation d'un isotope réellement pur et c'est encore plus vrai pour des radioéléments. Cette contamination doit être étudiée au cas par cas selon les isotopes, car, à cause des durées de vies, des énergies des raies alpha et des sections efficaces, l'effet de quantités identiques d'impuretés peut être soit négligeable, soit majeur selon les mesures.

2.a) Effet sur le signal

Le dépôt actif a peu d'effet sur le signal gamma car en dessous de quelques MeV les rayonnements gamma interagissent peu avec la matière, et ce d'autant plus qu'ils sont énergétiques. L'auto-absorption, l'absorption d'un gamma par un noyau de la cible même, est le seul effet de la couche active qui est parfois non négligeable. Ce phénomène, qui peut être simulé par Monte-Carlo [65], est à prendre en compte pour les gamma de 59keV de l'américium 241 mais pas pour ceux de 1173keV du cobalt 60.

Comme toutes les particules lourdes chargées les alpha interagissent beaucoup avec la matière (interaction avec les électrons la constituant) et nous avons étudié l'effet de la couche d'actinide sur le signal alpha.

Pour quantifier cet effet sur le signal nous avons utilisé un programme dédié au transport des ions dans la matière, TRIM [75].

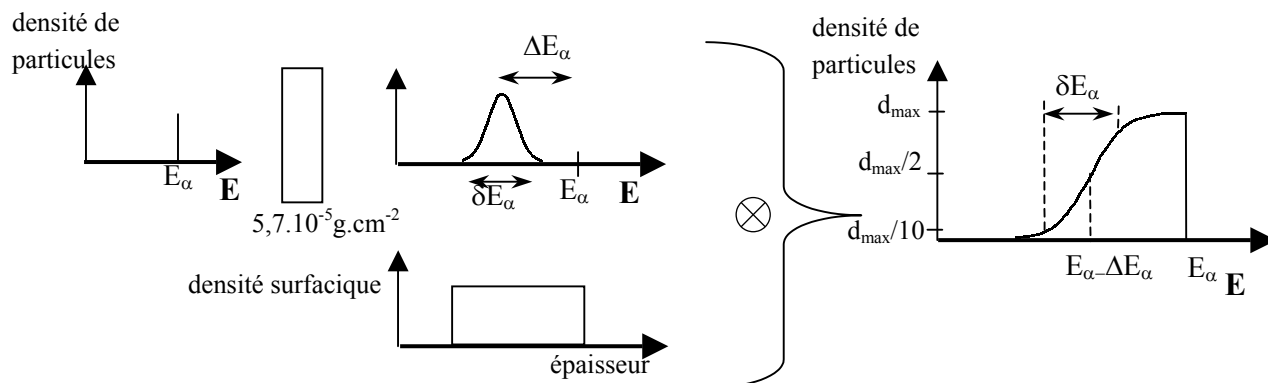


Figure 34 : effet de l'épaisseur de l'actinide-source sur l'énergie E des particules alpha

En traversant 300\AA d'un actinide de densité 19g.cm^{-3} , soit $11\mu\text{g}$ pour $0,2\text{cm}^2$, des alpha de 5Mev perdent en moyenne environ $13,5\text{keV}$ avec un écart-type de $3,4\text{keV}$. Pour obtenir l'effet de l'émission homogène des alpha dans la couche active, il suffit de convoluer la fonction de transmission précédente avec la "marche" qu'est le produit de deux fonctions d'Heaviside (voire la Figure 34). On obtient un signal en énergie en créneau, une perte moyenne de 7keV et un écart-type de $4,4\text{keV}$. Ces valeurs sont à comparer aux 14keV de la résolution gaussienne du détecteur qui doit être convoluée à la fonction précédente, les résolutions s'ajoutant alors en somme quadratique.

La faible influence de ce phénomène nous a permis d'envisager de couvrir le dépôt avec une couche protectrice suffisamment fine pour n'avoir qu'un faible effet sur le signal.

2.b) Nécessité d'une protection ?

Les cibles ne devraient pas, en théorie, être soumises à des contraintes (chocs, attaques chimiques et thermodynamiques) qui pourraient détériorer un dépôt actif correctement électrodéposé. Cependant dans le cas des éléments fissiles, en plus de ces contraintes, le phénomène dit de "sputtering" ("sputter" en anglais dans le sens de gâcher, gâter, abîmer) peut se révéler important : il s'agit de l'éjection d'un noyau de la cible à la suite d'une collision avec un produit de fission doté d'une grande énergie cinétique. Nous avons donc déterminé l'effet d'une couche protectrice en utilisant de l'or¹⁸ pour qu'elle soit la plus fine possible.

Un calcul monte-carlo avec TRIM a montré qu'une couche d'or de 30Å d'épaisseur arrête plus de 99 % des atomes d'actinides éjectés en provoquant pour des alpha de 5MeV une perte de 1,5KeV et une dispersion en énergie de 0,6keV.

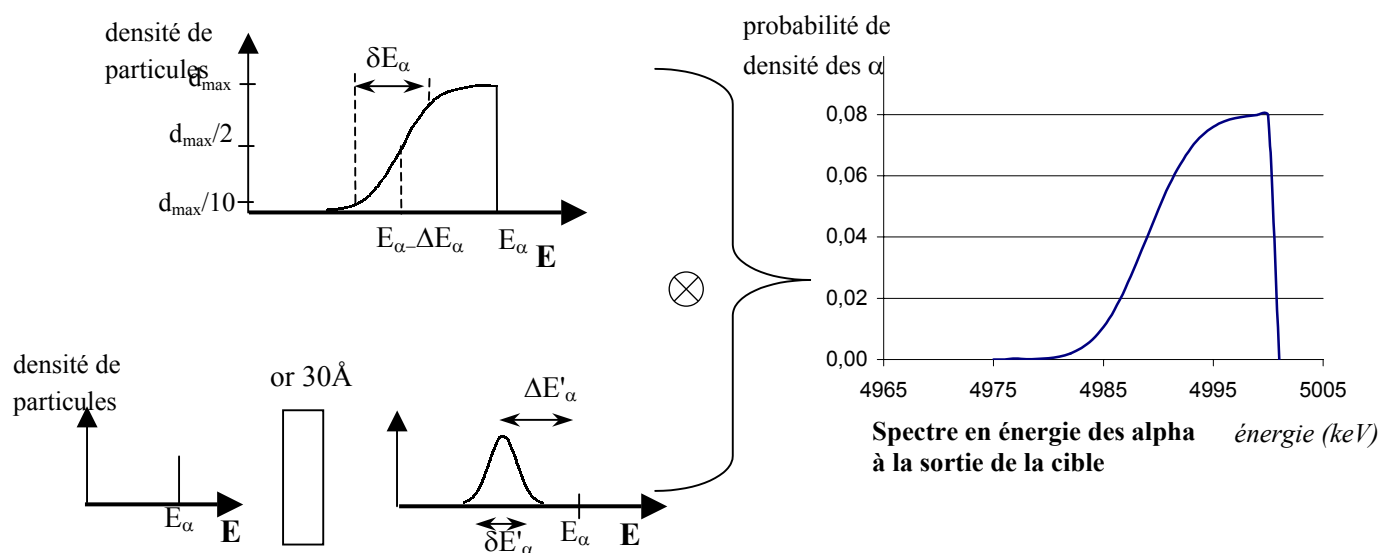


Figure 35 : effet d'une couche d'or de 30Å sur la distribution en énergie des alphas. Les valeurs des pertes en énergie et des écarts-types sont données dans le texte.

Il suffit de convoluer cette distribution avec celle de la Figure 34 à la sortie de la couche active pour obtenir une perte moyenne en énergie de 6keV pour des alpha de 5MeV avec un écart quadratique moyen de 4,2keV. Cette distribution doit encore être convoluée avec la fonction de résolution du détecteur (gaussienne centrée de 14keV de résolution) pour conclure que l'effet final sur le spectre alpha reste faible avec notre détecteur mais pas négligeable. Cette couche d'or supplémentaire n'a aucun effet sur le signal gamma, si ce n'est

¹⁸ L'or est le seul élément qui pouvait être déposé sur des épaisseurs de quelques dizaines d'angstroms par les laboratoires qui fabriquaient nos cibles.

l'augmentation du taux de comptage global, ce qui peut aussi se révéler très gênant pour certaines expériences, (cf. IV.B).

En conclusion, essentiellement dans un dessein expérimental, nous avons fait fabriquer des cibles sans protection, et d'autres avec protection pour tester la meilleure configuration. En fait une couche protectrice ne semble pas utile pour un noyau faiblement fissile et paraît très pénalisante lorsqu'il faut faire des mesures rapides à cause de son activation.

3. Le support et la question des produits de fission

Dans un souci de modularité et pour des raisons de simplicité de fabrication et d'utilisation, notre cible a été séparée en deux parties mécaniques distinctes (trois si on compte l'alliage de cobalt pour la mesure du flux). Dans ce paragraphe, nous différencierons le *support proche*, sur lequel est effectuée l'électrodéposition du *porte-échantillon* qui le maintient. Par contre le terme échantillon désignera indifféremment, dans le reste du manuscrit, le dépôt actif avec ou sans le support proche ou bien, par métonymie, l'ensemble formé avec le porte-échantillon.

3.a) *Le support proche*

En sus des contraintes dues à l'irradiation, le support proche doit permettre l'électrodéposition et le maintien du dépôt actif. De plus, pour effectuer des spectroscopies juste après irradiation, ce qui est un des principaux intérêts de notre système expérimental, il faut avoir le moins de contamination gamma possible et en particulier éviter que les produits de fission restent dans l'échantillon. Le parcours d'un produit de fission moyen, un atome de krypton de 80Mev par exemple, est d'environ $9,4\mu\text{m}$ dans le titane et de $5,9\mu\text{m}$ dans le nickel et nous avons dû imaginer et fabriquer une nouvelle cible à part entière. Créer un support si fin ayant la tenue mécanique et thermique nécessaire fut un vrai défi technique. Finalement, les actinides ont été déposés sur des disques en nickel ou en titane d'épaisseur respective $6\mu\text{m}$ et $4\mu\text{m}$. Ces disques très fragiles sont maintenus entre deux anneaux de $0,125\text{mm}$ d'épaisseur soudés par laser (diamètres intérieur et extérieur de 8mm et 12mm : cf. Figure 36).

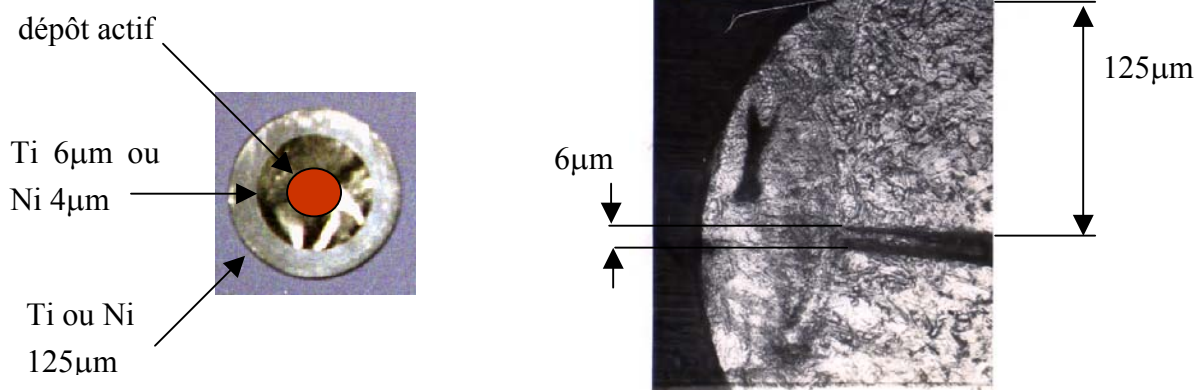


Figure 36 : photographies du support du dépôt actif et micrographie de la soudure par laser.

3.b) Le porte-échantillon

Le porte-échantillon doit assurer le positionnement du moniteur de flux et du support-proche ; c'est en fait la charpente de la cible et l'essentiel (95 % environ) de sa masse. Au cours de l'irradiation, il s'active à cause du flux de neutrons et se contamine car des actinides et des PF sont accidentellement présents dans le canal H9. Cette contamination est due à des expériences antérieures de Lohengrin (cf. III.C.6) avec des sources radioactives qui se sont en partie désagrégées.

Bien que le porte-échantillon soit en titane très pur et que le flux dans H9 soit essentiellement thermique, l'activité après irradiation provient principalement de l'activation des impuretés et des réactions à seuil¹⁹ de type (n,p) et (n, α) sur le titane. La composition d'échantillons de titane d'origines et d'épaisseurs différentes a été déterminée par analyse par activation au laboratoire Pierre-Sue, à Saclay. Les résultats sont donnés dans le tableau ci-dessous et l'on peut en déduire l'activité des principaux contaminants en fonction des temps d'irradiation et de refroidissement de l'échantillon.

¹⁹ donc dues à des neutrons épithermiques ou rapides

échantillon	n°1	n°2	n°3	n°4	n°5	n°6	n°7
Épaisseur. mm	1,2/10	2/10	2/10	4/10	4/10	3/10	3/10
Na	0,18	0,65	0,17	0,19	0,18	0,17	0,15
K	<0,9	<0,9	<0,7	<0,6	<0,8	<0,7	<0,8
Cr	43,6	42,7	132	128	149	2,17	2,05
Mn	9,8	7,7	1,7	30,6	13,5	6,7	6,3
Fe	1770	1540	849	128	1070	2,17	2,05
Co	0,286	0,246	2,12	2,09	2,74	0,229	0,214
Ni	<192	<130	250	<200	<131	<107	<102
Cu	15	0,16	0,11	0,15	0,32	0,053	0,053
Zn	<0,33	<0,37	1,2	1,1	0,97	<0,33	<0,33
Ga	0,15	0,16	0,11	0,15	0,32	0,053	0,053
As	13,5	12,6	15,4	13,3	31,2	7,37	7,6
Zr	29	30	20	17	25	2,4	2,66
Mo	44	47	38	36	11	0,63	0,76
Cd	<4	<4	<4	<3	<6	<3	<3
Sb	3,06	3,18	4,7	4,6	6,1	7,9-8,1	7,9-8,1
Hf	0,066	0,12	0,12	0,12	0,407	0,025	0,025

Impuretés les plus abondantes et les plus "activables" dans 7 échantillons de titane d'épaisseur comprise entre 1,2 et 4 dixièmes de millimètre. Les résultats sont donnés en ppm à 4% près environ.

Une irradiation d'une plaque de titane a ensuite été effectuée à Grenoble et a mis en évidence une forte contamination en produit de fission, en actinide et une activité due aux neutrons rapides (cf. Figure 37).

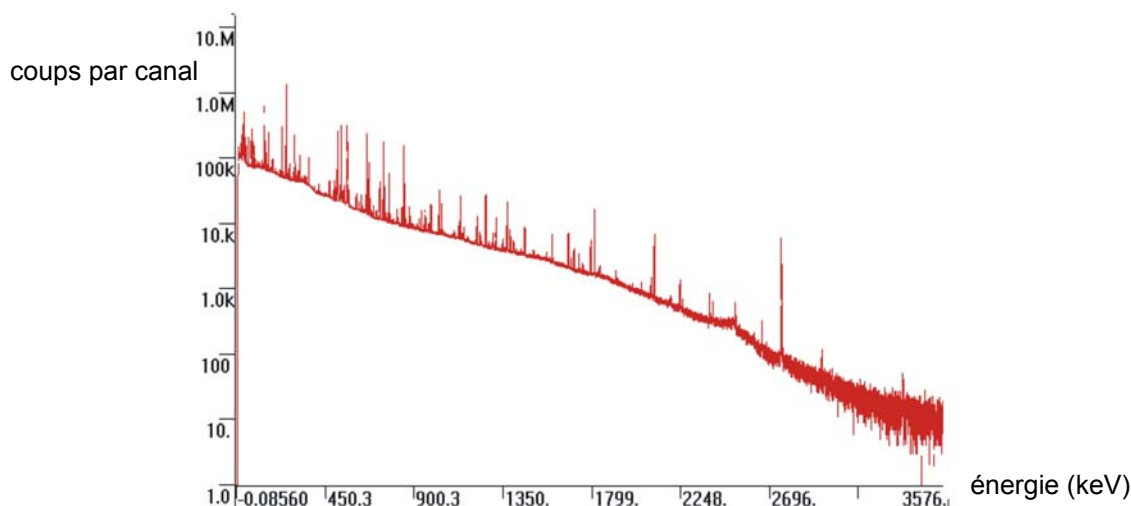


Figure 37 : spectre gamma d'une plaque de titane (72cm²×4/10^emm) irradiée 5mn dans le canal H9 au mois d'octobre 1999 et après 20h de "décroissance" dans le canal H9 à 6m derrière la position d'irradiation. Le temps effectif de comptage est de 7000s. Les principales raies gamma sont celles des corps suivants : ⁹⁹Mo, ¹⁰³Ru, ¹³²Te ¹³¹⁻¹³²⁻¹³³I, ¹³³⁻¹³⁵Xe, ¹⁴⁰La, ¹⁴³Ce. Des produits de fission à faible durée de vie ont été observés sur d'autres spectres pendant la décroissance du porte-échantillon.

Finally, these experiences have confirmed the need to reduce to a maximum the surface and mass of the sample holder and to "hide" it as much as possible by using collimators between the target and the detectors. Figure 38 represents the sample holder used. One can notice the system of legs to hold the target and the flux monitor. The positioning on the sample holder is ensured by the pre-forming of these legs with a specific press. The positioning of the sample holder is ensured by its outer frame whose shape is imposed by the H9 channel irradiation system.

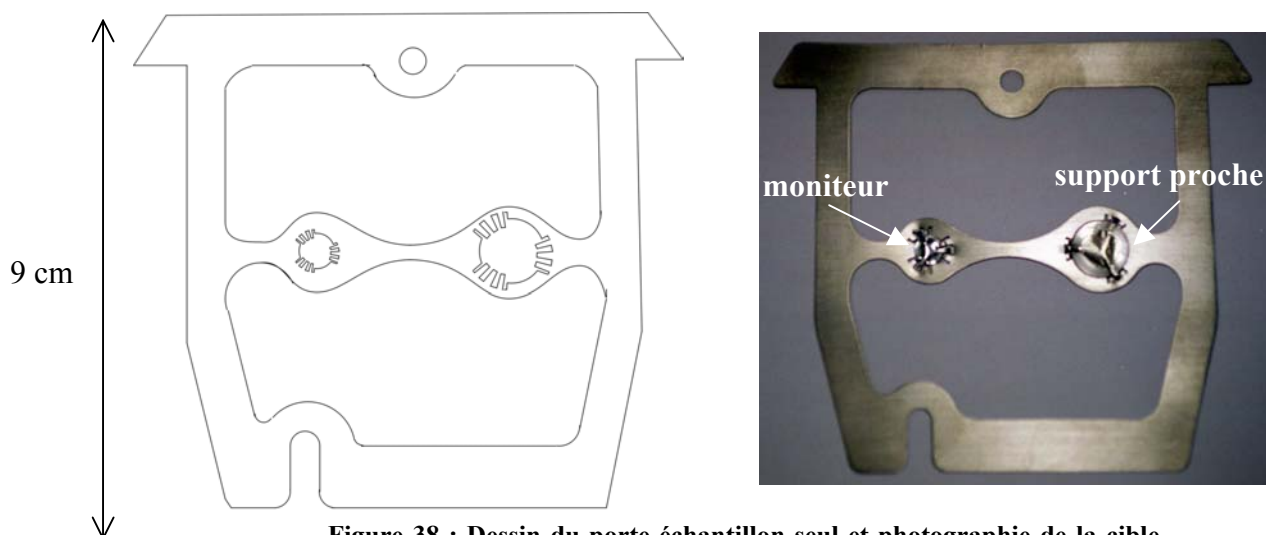


Figure 38 : Dessin du porte-échantillon seul et photographie de la cible complète, avec son dépôt actif et son moniteur de flux

In conclusion, the real technical difficulties of conception and fabrication have been overcome and the result is presented on the previous photographs. But these difficulties are not the only ones we have encountered from a technical point of view. In fact, after the measurement system and the target, source of the signal to be measured, have been chosen, we must ask ourselves how to manipulate these samples to bring them in front of our detectors in a well-defined geometry. What we call "the chamber" brings a part of the answer.

III.F. L'intégration des mesures : la chambre

1. Présentation, définition

Les chapitres précédents ont présenté les principes physiques et les méthodes que nous voulons utiliser ainsi que le matériel associé : détecteurs et cibles. Comme il n'existait pas à l'ILL d'instrument nous permettant de faire de manière simple et rapide les spectroscopies alpha-gamma envisagées, nous avons dû concevoir et construire une chambre à vide qui nous permette d'effectuer les spectroscopies alpha-gamma qui sont le cœur de nos expériences et l'objectif principal de ce travail de thèse.

Cette chambre à vide sophistiquée, que nous appelons dans la suite tout simplement "la chambre" doit essentiellement pouvoir prendre les échantillons dans le système d'irradiations de H9 de l'échangeur de source et les placer de manière très précise devant nos détecteurs.

2. Principales contraintes

Les systèmes déjà existants à l'ILL et les exigences physiques des différentes mesures imposent à la chambre de nombreuses contraintes qui ont évolué au cours de la conception de la chambre et dont les plus importantes sont discutées ci-dessous.

- Les mesures alpha et, dans une moindre mesure, gamma, doivent se faire sous vide ce qui implique que la chambre soit étanche et pourvue du système de pompage adéquat. Cela permet aussi de s'assurer du cloisonnement de l'enceinte et donc du confinement des radionucléides présents sur la cible.

- L'éventail des activités à mesurer est très large, et même si l'électronique utilisée est censée fonctionner dans de vastes domaines nous avons décidé que nos deux détecteurs seraient mobiles, de façon à changer les angles solides et en conséquence les taux de comptage. Cela implique la nécessité de permettre mécaniquement les mouvements et de les commander à distance.

- La précision de quelques pour-cent recherchée pour les mesures engendre des contraintes de positionnement et de reproductibilité fixées par des erreurs admissibles de l'ordre de quelques dixièmes de millimètre sur la géométrie du système cible-détecteurs mobiles.

- Enfin l'environnement du réacteur et l'utilisation du système d'irradiation de H9 impose de nombreuses contraintes d'ordre mécanique -échange de cible entre la chambre et l'échangeur de source, espace disponible au-dessus d'un sol non régulier-, d'ordre électrotechnique -communications nécessaires et "sécurisées" entre les automates-, d'ordre électrique -questions de masses- etc.

Finalement, l'outil complet de détection, la chambre, peut se décomposer en un ensemble de pièces mécaniques (le support, les tubes, les vis sans fin, les joints...) sur lesquelles se greffent un système de vide (pompes, jauges, tubes, filtres), des outils électromécaniques (détecteur de position, moteur, automate de commande...) et des détecteurs alpha et gamma pour les mesures physiques.

3. Description de la chambre

Fabriquer, ou plutôt faire fabriquer, et mettre au point un outil de ce type implique de répondre à un grand nombre de questions de nature technique qui sont autant d'occasions permettant d'exercer sa créativité mais qui n'ont pas leur place dans un document de thèse. Je vais donc simplement présenter la chambre en en soulignant les différentes parties.

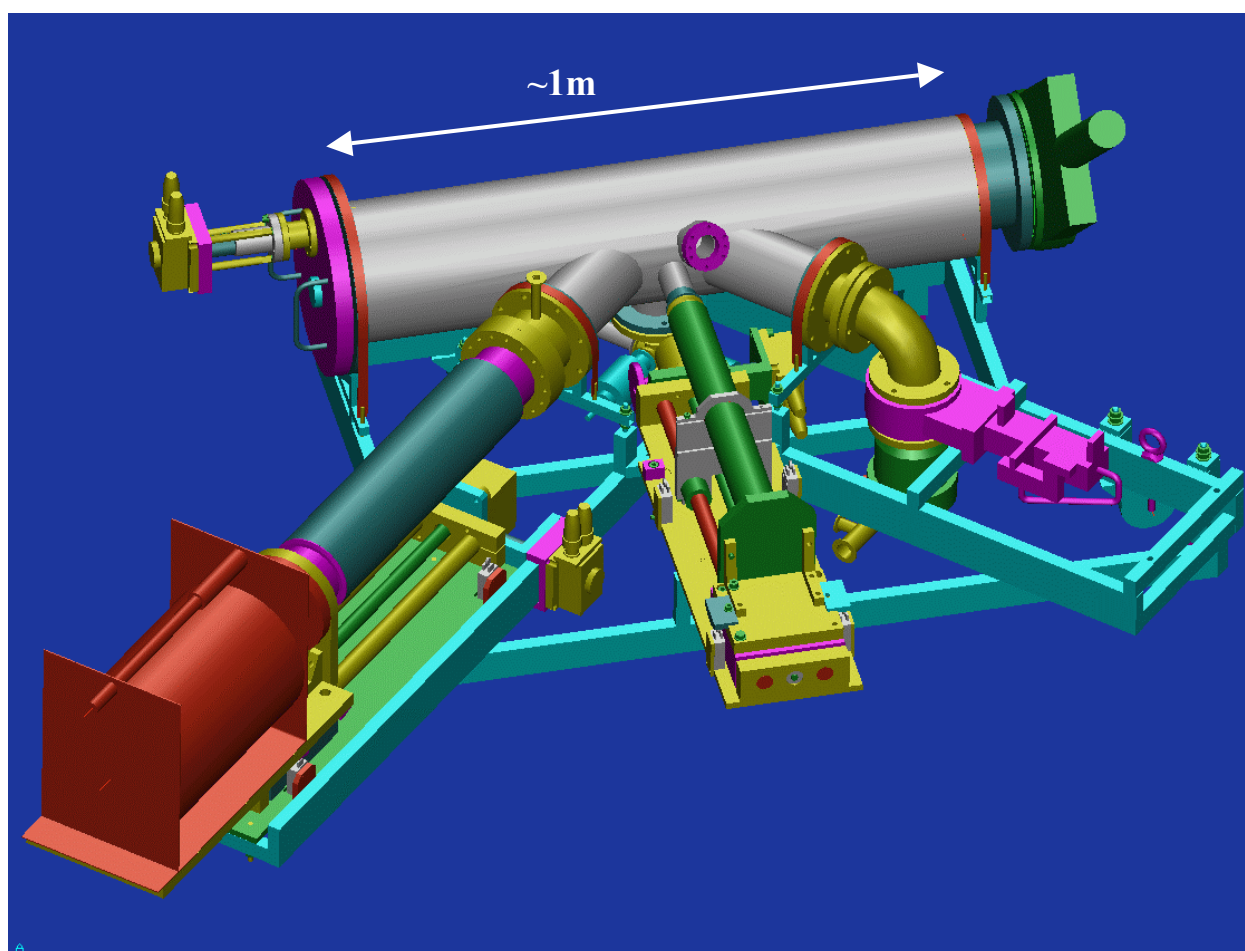


Figure 39 : dessin de la chambre lors des études préliminaires

La Figure 40 décompose la chambre en 4 ensembles distincts numérotés de 1 à 4. Les ensembles 1 et 2 se constituent autour des détecteurs, germanium (ensemble 1) et PIPS (ensemble 2). Ils sont fixés sur des chariots mobiles et les distances échantillon-détecteurs

peuvent varier entre 40cm et 80cm pour le germanium et 0,8cm à 30cm pour le PIPS. Ces mouvements sont schématisés sur la Figure 41. Un soufflet métallique assure l'étanchéité de l'enceinte au cours des mouvements. Les déplacements sont assurés par deux moteurs indépendants commandés par deux chaînes électromécaniques.

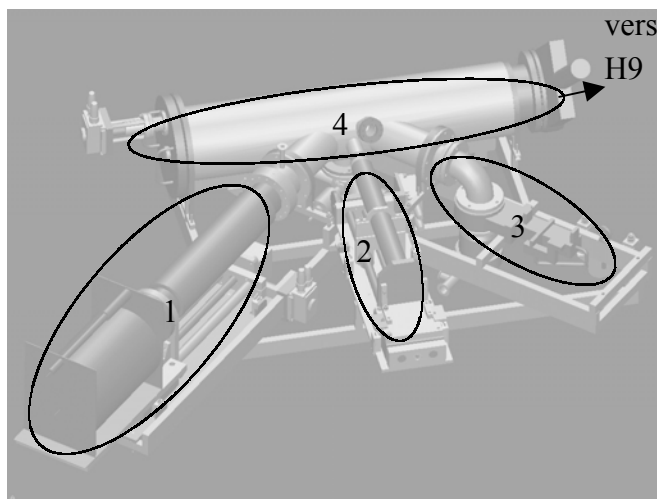


Figure 40 : décomposition de la chambre de la Figure 39 en ensembles fonctionnels

L'ensemble 3 est utilisé pour le système de vide. Une pompe secondaire (non représentée sur le dessin de la Figure 39, mais que l'on voit sur la photographie de la Figure 42) est fixée sur la chambre et est reliée à une pompe primaire disposée hors du blindage. Deux sondes mesurent la pression qui est de l'ordre de 10^{-2} Pa avec la pompe primaire et de 10^{-5} Pa avec la pompe secondaire.

L'ensemble 4 est centré autour de l'échantillon. Ce troisième ensemble mobile, commandé par une troisième chaîne électromécanique, a pour objectif de prendre la cible de l'échangeur de source de H9 et de la disposer devant nos détecteurs. Il permet de positionner la cible dans deux emplacements de mesure pour faire des spectroscopies soit du moniteur de flux, soit du dépôt actif.

Le Figure 42 montre une photographie de la chambre installée sur l'échangeur de source du canal H9 à l'ILL de Grenoble. Le blindage multicouche est ouvert, la partie horizontale est enlevée mais nous pouvons en voir les faces verticales. Nous pouvons remarquer un peu au-dessus du centre de l'image, un ensemble noir entouré. Il se compose d'une caméra CCD et de quatre fibres optiques qui amènent de la lumière devant un hublot en verre au plomb. Cette caméra permet de vérifier sur un moniteur extérieur l'aspect de la cible et son positionnement au cours des mesures.

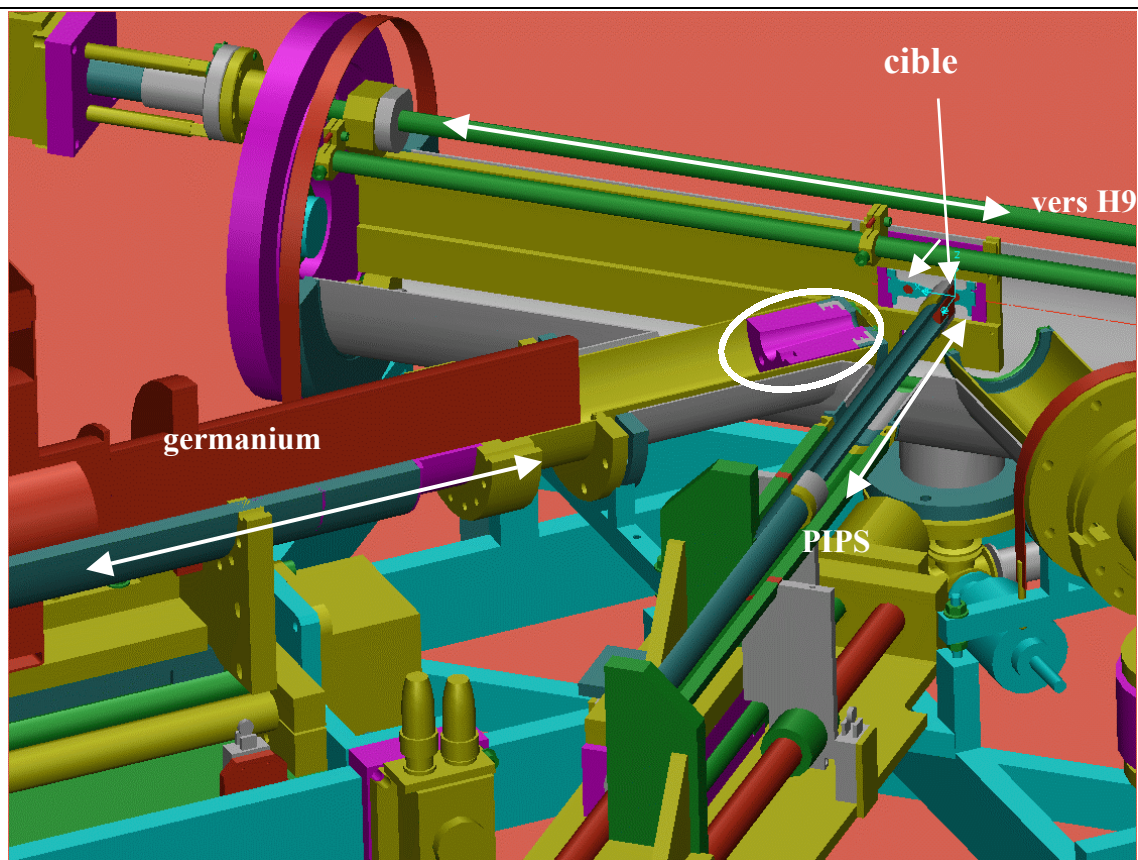


Figure 41 : vue intérieure rapprochée de la chambre. Chaque détecteur est représenté en deux coupes en position proche et éloignée. Le collimateur en plomb du germanium est entouré alors que celui du PIPS a été "enlevé" pour permettre de voir la cible. Les courses des élément mobiles sont représentées par les doubles flèches

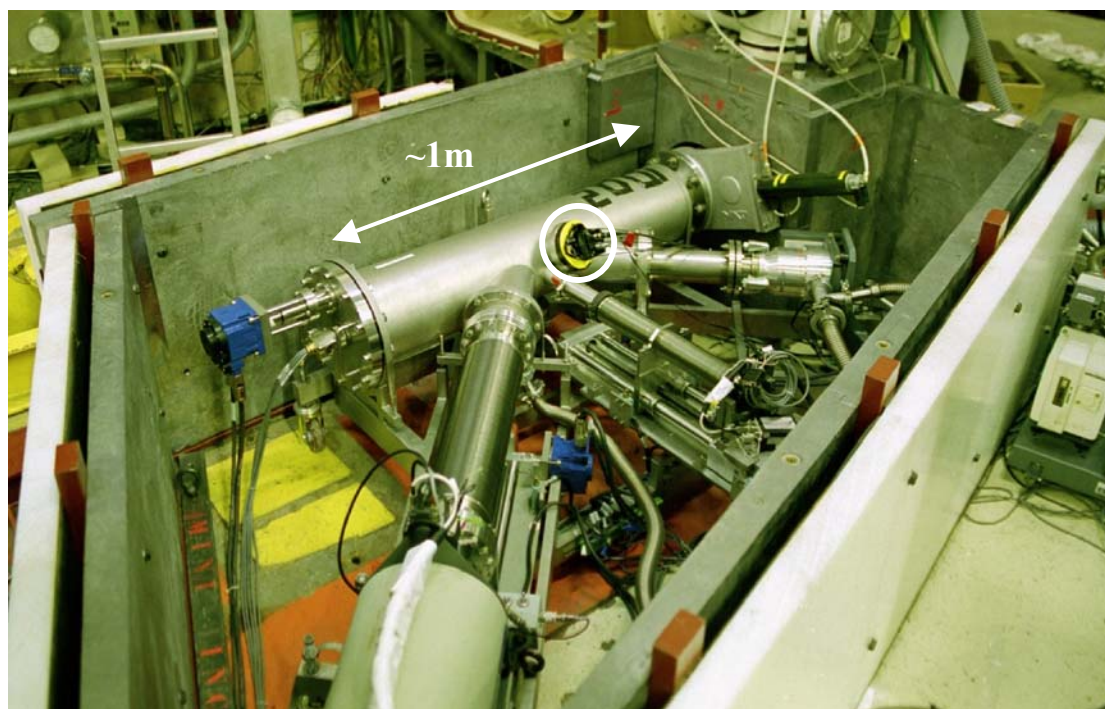


Figure 42 : photographie de la chambre, détecteurs et pompe à vide montés

Conclusions

Cette dernière photographie est une conclusion naturelle de cette partie et résume le travail effectué pour passer d'un projet d'expérience, à un instrument réel. Le projet visait à mesurer des sections efficaces intégrales dans le réacteur à haut flux de l'ILL. Cette partie montre comment nous avons alors conçu et développé un nouvel outil pour effectuer ces mesures par spectroscopie et comment nous sommes passé de concepts, tel "il faut mesurer le flux", à des outils concrets comme la pastille d'alliage Al-Co de quelques milligrammes et surtout la chambre de mesure.

Il faut maintenant valider cet instrument et tester ses performances pour vérifier si ses caractéristiques correspondent à ce que nous avons cherché à obtenir. Avant de mesurer des sections efficaces inconnues, nous cherchons surtout à montrer que la chambre fonctionne et qu'elle est efficace. De plus, nous avons constaté au cours de cette étude que les flux de l'ILL sont très thermiques et ne sont pas adaptés à des mesures de sections efficaces intégrales en spectre non maxwellien.

CHAPITRE IV. LES EXPÉRIENCES

Dans le précédent chapitre, nous avons décrit la démarche qui nous a permis de construire un nouvel instrument de spectroscopie pour faire des mesures de sections efficaces intégrales. La première installation de cet outil s'est effectuée à l'ILL de Grenoble, dans le canal d'irradiation H9 qui nous donne accès à un flux thermique de haute intensité. L'objectif principal des mesures intégrales dans un spectre thermique est de déterminer la valeur de la section efficace à 20° C, soit 0,0253 eV, appelée section efficace thermique.

Ce dernier chapitre présente la mise en place de l'instrument et les premières mesures effectuées. L'objectif de ce travail expérimental était de faire fonctionner le système de mesure et prendre des spectres alpha et gamma de cibles irradiées. Ensuite nous avons cherché à caractériser les performances de la chambre et à mesurer des sections efficaces relativement bien connues pour valider la méthode et l'ensemble du système expérimental.

Afin d'avoir une base commune pour interpréter les résultats expérimentaux dans des conditions de mesure extrêmes, nous allons approfondir les définitions et principes de spectroscopie définis au III.D. L'utilisation de sources étalonnées et de cibles sans actinide a ensuite permis un premier étalonnage pour valider le système de mesure et la procédure expérimentale. Enfin, nous allons décrire deux expériences qui nous ont permis de mesurer les sections efficaces de capture de l'américium 243 et du plutonium 242. Par irradiation de ces deux corps, nous avons créé des noyaux de plutonium 243 et d'américium 244 qui se désintègrent rapidement et dont les fils peuvent être observés par spectroscopie alpha (cf. Figure 63 et 64, p. 145).

IV.A. La spectroscopie dans la chambre, une trivivialité théorique ?

La chambre de mesure a été construite pour effectuer de la spectroscopie alpha-gamma et déterminer l'activité d'un isotope donné à un temps donné. Le paragraphe III.D.2 présente cette méthode et la relation fondamentale suivante :

$$N = A \cdot I \cdot \left(\frac{\Omega}{4\pi} \right) \cdot \varepsilon_{\text{sys}} \cdot t_c \quad (\text{IV.1})$$

(Cf. III.D.2)

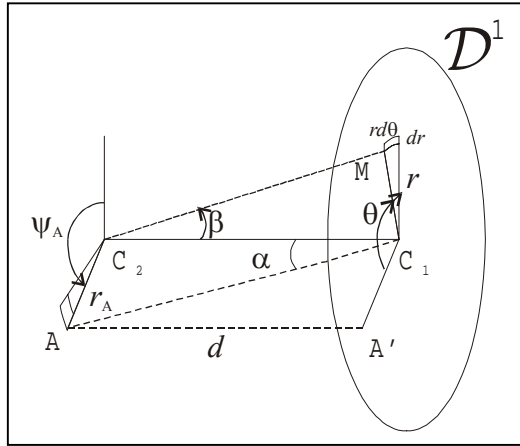
Cette relation théorique, donc exacte dans un monde idéal, et qui relie le spectre obtenu au couple activités-temps recherché est très élémentaire, mais la définition de ses termes dépend du fonctionnement de l'électronique et donc du taux de comptage. Ce dernier est très élevé dans les mesures réalisées, plusieurs dizaines de milliers de coups par secondes et il apparaît des phénomènes électroniques inhabituels. Nous allons donc étudier séparément chaque terme de l'équation (IV.1) : l'angle solide, le nombre d'événements sur le spectre et le couple efficacité-temps de comptage.

1. Question d'angle solide

Ce paragraphe a pour objectif d'obtenir des résultats généraux sur les angles solides et de les appliquer à notre système de spectroscopie. Nous allons donc calculer l'angle solide sous lequel une cible mince de forme circulaire voit un détecteur cylindrique de section circulaire.

1.a) Définitions, formules et approximations

Nous allons étudier le cas de deux disques parallèles "centrés" (*i.e.* la droite joignant les deux centres est orthogonale aux plans des disques) pouvant avoir des rayons différents. La méthode se généralise pour des disques non parallèles, non alignés, ou même pour des formes quelconques mais les simplifications possibles sont alors moindres.



- C_1, C_2 : centres de \mathcal{D}_1 et \mathcal{D}_2
- $A \in \mathcal{D}_1, M \in \mathcal{D}_2$
- A' : projeté orthogonal de A sur \mathbf{PD}_2
- $d_A^2\Omega$: angle solide sous lequel est vu $d\vec{S}(M, dr, rd\theta)$ par A . (On oriente les surface tel que $d_A^2\Omega > 0$)

On a :

$$AM^2 d_A^2\Omega = \overline{dS} \cdot \frac{\overline{AM}}{AM} = r dr d\theta \frac{\overline{AA'} + \overline{A'C_1} + \overline{C_1M}}{AM} \cdot \frac{\overline{dS}}{\|\overline{dS}\|} = r dr d\theta \frac{AA'}{AM}$$

soit :

$$d_A^2\Omega = \frac{AA' r dr d\theta}{\left[AC_1^2 + r^2 - 2AC_1 \cdot r \cdot \cos(\widehat{C_1A; C_1M}) \right]^{3/2}}$$

Or, on a :

$$\frac{\overline{C_1A}}{C_1A} \cdot \frac{\overline{C_1M}}{C_1M} = \frac{\overline{C_1A'} + \overline{A'A}}{C_1A} \cdot \frac{\overline{C_1M}}{C_1M} = \cos\theta \cdot \sin\alpha$$

d'où :

$$d_A^2\Omega = \frac{r \cdot d(A, D_2) \cdot dr d\theta}{\left(AC_1^2 + r^2 - 2AC_1 \cdot r \cdot \cos\theta \cdot \sin\alpha \right)^{3/2}}$$

On introduit maintenant Ω , l'angle solide sous lequel C_1 est vu par C_2 . Soit \mathcal{D} le domaine de $\mathbb{R}^4 [0, R_1] \times [0, 2\pi] \times [0, R_2] \times [0, 2\pi]$ tel que le théorème de Fubini ([72], [73]) soit applicable avec les fonctions utilisées sur \mathcal{D} .

On a :

$$\Omega = \int_{\mathcal{D}} d^4\Omega \text{ avec } d^4\Omega = \frac{r \cdot r_A \cdot d(A, D_2) \cdot dr d\theta dr_A d\psi_A}{\left(AC_1^2 + r^2 - 2AC_1 \cdot r \cdot \cos\theta \cdot \sin\alpha \right)^{3/2} A(D_2)} \quad (\text{IV.2})$$

Cette formule est valable pour toute configuration d'angle solide et aucune hypothèse n'a été faite si ce n'est sur le domaine d'intégration \mathcal{D} . Les hypothèses de notre système de mesure permettent de simplifier cette équation.

Si les disques sont parallèles alors $d(A, \mathcal{D}_2)$ est indépendante de A et vaut d . Si de plus les disques sont centrés, on a :

$$\sin \alpha = \frac{1}{\sqrt{1 + \left(\frac{d}{r_A}\right)^2}} \text{ et } AC_1 = \sqrt{r_A^2 + d^2} \quad \text{d'où} \quad AC_1 = \frac{d}{\cos \alpha} \text{ et } r_A = d \tan \alpha$$

En faisant le changement de variable (C^1 difféomorphisme sur les intervalles voulus) $r = d \tan \beta$, nous obtenons :

$$\Omega = \int_{D'} \frac{\sin \alpha \sin \beta \cdot d \beta d\theta d\alpha d\psi}{\left(\pi R_2^2 / d^2\right) \left[\cos^2 \beta + \sin^2 \beta \cdot \cos^2 \alpha - 2 \sin \beta \cdot \cos \beta \cdot \sin \alpha \cdot \cos \alpha \cdot \cos \theta \right]^{3/2}} \quad (\text{IV.3})$$

Cette équation donne l'expression exacte de l'angle solide recherché, quelles que soient la distance et les tailles de la cible et du détecteur. Elle est numériquement intégrable à une précision quelconque, mais elle n'est pas facilement utilisable pour des calculs symboliques.

La formule approchée de l'angle solide pour une source ponctuelle se calcule directement, en construisant la sphère centrée sur la source et s'appuyant sur le cercle du détecteur, et vaut :

$$\Omega = 2\pi \left(1 - \frac{1}{\sqrt{1 + R_1^2 / d^2}} \right) \quad (\text{IV.4})$$

avec R_1 : rayon du détecteur et d distance source-cristal du détecteur

On vérifie que le développement limité au premier ordre de cette expression est égal à celui obtenu par l'équation (IV.3) pour α et β petits, et on obtient :

$$\Omega = \frac{d^2}{\pi R_2^2} \int_{D'} \alpha \beta dr d\theta d\alpha d\psi = \pi \frac{R_1^2}{d^2}$$

1.b) Application numérique

L'équation (IV.3) peut se résoudre numériquement et nous avons reporté dans les tableaux suivants les angles solides calculés pour notre système de spectroscopie.

La distance détecteur germanium-cible varie de 35cm à 80cm et nous constatons sur le tableau suivant que l'utilisation de la formule approchée pour une source ponctuelle (IV.4) engendre par rapport à la formule exacte (IV.3) une erreur sur les angles solides inférieure à un pour dix mille.

Ω (Sr) d (cm)	(IV.3)	(IV.4)
80	$3,25225 \cdot 10^{-3}$	$3,25227 \cdot 10^{-3}$
70	$4,24681 \cdot 10^{-3}$	$4,24685 \cdot 10^{-3}$
65	$4,92449 \cdot 10^{-3}$	$4,92455 \cdot 10^{-3}$
60	$5,77825 \cdot 10^{-3}$	$5,77833 \cdot 10^{-3}$
55	$6,8748 \cdot 10^{-3}$	$6,8749 \cdot 10^{-3}$
50	$8,3156 \cdot 10^{-3}$	$8,3157 \cdot 10^{-3}$
45	$1,02613 \cdot 10^{-2}$	$1,02616 \cdot 10^{-2}$
40	$1,29785 \cdot 10^{-2}$	$1,29788 \cdot 10^{-2}$
35	$1,69353 \cdot 10^{-2}$	$1,69359 \cdot 10^{-2}$

Angles solides obtenus avec les formules (IV.3) et (IV.4) à des distances comprises entre 35cm et 80cm pour des rayons de cible et de détecteur de 2,5mm et de 25,75mm (valeurs de notre système). Nous avons écrit les chiffres significatifs nécessaires à la comparaison.

Pour le détecteur silicium, la formule approchée (IV.4) ne peut être utilisée en position proche (inférieure à 1cm) sans une erreur d'au moins 3 %. Afin d'avoir une fonction $\Omega(d)$ plus précise que (IV.4) mais plus facile à utiliser que (IV.3) nous avons décidé de manière empirique d'ajuster la formule précédente en ajoutant un facteur correctif :

$$\Omega = 2\pi \left(1 - \frac{1}{\sqrt{1 + R_1^2 / d^2}} \right) (1 - b \cdot d^a) \quad (\text{IV.5})$$

avec a et b (dépendant des valeurs numériques des diamètres de la cible et du détecteur) égaux à -1,7573 et à $0,024402 \cdot \text{cm}^{-a}$

Le tableau suivant donne les angles solides obtenus avec ces trois formules aux distances accessibles par notre système de mesure avec $R_1=5,65\text{mm}$.

Ω (Sr) d (cm)	(IV.3)	(IV.4)	(IV.5)	Différence (%)
30	$1,11395 \cdot 10^{-3}$	$1,11401 \cdot 10^{-3}$	$1,11394 \cdot 10^{-3}$	$9,7 \cdot 10^{-4}$
25	$1,60386 \cdot 10^{-3}$	$1,604 \cdot 10^{-3}$	$1,60385 \cdot 10^{-3}$	$7,9 \cdot 10^{-4}$
20	$2,50539 \cdot 10^{-3}$	$2,5057 \cdot 10^{-3}$	$2,50537 \cdot 10^{-3}$	$8,3 \cdot 10^{-4}$
15	$4,45156 \cdot 10^{-3}$	$4,45248 \cdot 10^{-3}$	$4,45155 \cdot 10^{-3}$	$2,4 \cdot 10^{-4}$
10	$1,00001 \cdot 10^{-2}$	$1,0005 \cdot 10^{-2}$	$1,00005 \cdot 10^{-2}$	$-4,2 \cdot 10^{-3}$
5	$3,966 \cdot 10^{-2}$	$3,973 \cdot 10^{-2}$	$3,968 \cdot 10^{-2}$	$-3,9 \cdot 10^{-2}$
4	$6,158 \cdot 10^{-2}$	$6,175 \cdot 10^{-2}$	$6,162 \cdot 10^{-2}$	$-6,9 \cdot 10^{-2}$
3	0,108022	0,1085	0,10816	-0,13
2	0,234	0,237	0,235	-0,29
1	0,788	0,813	0,793	-0,64
0,8	1,110	1,15	1,109	$7,1 \cdot 10^{-2}$
0,6	1,63	1,71	1,61	1,8

Angles solides obtenus pour le PIPS avec les équations (IV.3), formule exacte, (IV.4), approximation de la source ponctuelle et (IV.5), approximation que nous proposons aux distances accessibles par notre système de mesure. La colonne "différence" donne la différence relative pour les équations (IV.3) et (IV.5) souligne la très bonne adéquation de notre approximation. Nous avons écrit les chiffres significatifs nécessaires à la comparaison.

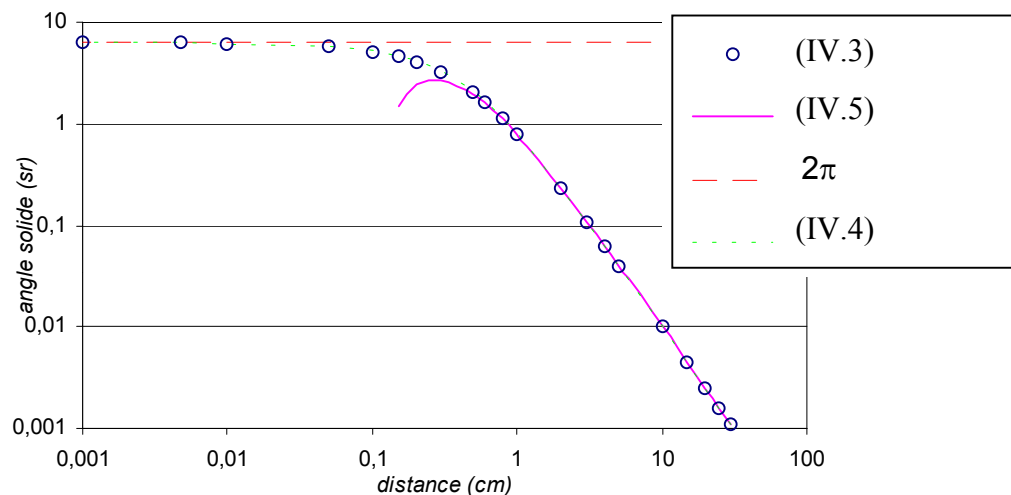


Figure 43 : résumé des angles solides obtenus en fonction de la distance par les formules (IV.3), (IV.4) et (IV.5) pour les caractéristiques de notre système : $R_{cible} = 2,5\text{mm}$; $R_{pips} = 5,65\text{mm}$.

En conclusion nous avons exhibé une formule d'angle solide (IV.5) simple et valable pour le PIPS à toute distance supérieure à 8mm (distance minimale autorisée par la chambre) exacte à mieux que 1%.

1.c) Les incertitudes

Les incertitudes sur les angles solides proviennent :

- des incertitudes sur les dimensions du problème (propagation d'incertitude)
- du défaut de parallélisme de la source et du détecteur (incertitudes de modélisations)
- du défaut de centrage des éléments (incertitudes de modélisations)
- des incertitudes sur les calculs numériques (négligeables car aussi faibles que nécessaire)

La propagation des incertitudes par les équations (IV.4) et (IV.5) est triviale²⁰ et nous remarquons que la taille de la source n'intervient pas et n'induit donc aucune incertitude.

Dans le cas où la formule (IV.4) ne peut être utilisée pour le PIPS, une approche numérique confirme l'intuition évidente (continuité de cet effet nul dans les autres cas) que si le rayon de la cible ne varie pas trop (quelques pour-cent), son effet est négligeable sur la formule (IV.5). De plus cette approche donne numériquement une dérivée ($\partial\Omega/\partial R_c$), si nécessaire.

²⁰ Au sens mathématique du terme.

$R_{\text{cible}} \backslash d$	4,25mm	5mm	5,75mm
0,6cm	1,65	1,64	1,61
1cm	0,796	0,788	0,782
2cm	0,235	0,234	0,233
5cm	0,03968	0,03966	0,03963

Angle solide (en stéradian) calculé par (IV.3) pour plusieurs valeurs des paramètres d et R_{cible} . Ce dernier paramètre est pris égal à 5mm (diamètre théorique de notre cible), et $5\text{mm} \pm 15\%$

Pour le défaut de parallélisme, une approche phénoménologique est possible tant que l'équation (IV.3) est grossièrement valable car si (IV.3) est valable, l'effet est nul. Une rotation de la cible revient principalement à changer la distance effective source-détecteur et à diminuer la surface effective de la source, mais ceci a un effet négligeable sur l'angle solide d'après le paragraphe précédent. En effet, la distance moyenne ne change pas, mais la *distance effective* (intégrale de la distance pondérée par la "fonction" d'angle solide vu par un point) varie d'une quantité dont on peut estimer simplement l'ordre de grandeur. Cet effet est donc négligeable tant que l'auto-absorption dans la source est négligeable.

Pour un défaut de centrage faible (par rapport au diamètre de la cible), l'effet est *a priori* du deuxième ordre maximum. En effet, la surface du disque-source qui a changé de place est un croissant dont l'aire est du premier ordre en $\delta d^2/R^2$ par rapport à l'aire totale du disque. Mais la position des points *sources* (qui interviennent dans la distance source-détecteur) n'a qu'une influence faible sur l'angle solide (voir les intégrations du 1.a) donc l'effet sur l'angle solide intégré total est en fait un premier ordre de premier ordre. De plus il s'ajoute un effet contraire dû à la pondération en $1/D^2$ de l'angle solide (voir paragraphe précédent). En bref, cet effet est négligeable et si le déplacement est trop grand (un rayon de cible par exemple), une bonne approximation consiste à calculer la nouvelle distance moyenne cible-détecteur.

En conclusion, nous avons donné dans ce paragraphe de nouvelles expressions symboliques et facilement réutilisables des angles solides recherchés à partir des définitions fondamentales. Le calcul des incertitudes est simplifié et la précision de positionnement de notre chambre de mesure (cf. IV.A.4 et IV.B.2.b) permet de les négliger devant les autres incertitudes de l'ordre du pour-cent.

2. Question d'efficacité

En pratique, deux termes de l'équation (IV.1), à savoir l'efficacité du système électronique et le temps de comptage, sont liés comme nous l'avons montré au paragraphe III.D.2. En utilisant les mêmes notations, nous allons montrer comment est déterminée l'efficacité du système, ε_{sys} , et les incertitudes qui en découlent.

2.a) Définitions, principes

Par efficacité, ε , il faut entendre efficacité à une énergie donnée, et par abus de langage le même terme et la même notation sont utilisés pour la fonction sur \square , $\varepsilon(E)$, ce qui ne pose aucune gêne en pratique. Les phénomènes compris dans le terme ε_{sys} sont d'origine physique (zones mortes du détecteur), d'origine expérimentale (géométrie de la zone active, position détecteur-source) et d'origine électronique. L'efficacité du système ε_{sys} est égale au produit des efficacités intrinsèques et électroniques définies au III.D.2.

L'efficacité intrinsèque du détecteur ne dépend, en théorie, que de sa géométrie (forme et nature des matériaux) et du rayonnement incident par son vecteur vitesse et par son point d'entrée. Les méthodes envisageables pour déterminer cette efficacité intrinsèque sont une simulation Monte-Carlo ou un étalonnage expérimental.

L'efficacité électronique, souvent traduite en terme de "temps mort", dépend uniquement des conditions expérimentales et du fonctionnement particulier de l'électronique. Elle est due au traitement des signaux par le détecteur et l'électronique. En particulier, nos modules électroniques fonctionnent en mode anti-empilement (PUR : pile-up rejection) et rejettent une partie des signaux provenant du détecteur. Cela peut modifier l'efficacité électronique selon le taux de comptage et la répartition en énergie de rayonnements incidents.

Finalement, l'efficacité ε_{sys} dépend fortement des conditions de mesure dès que le taux de comptage devient important, c'est-à-dire respectivement supérieur à environ dix mille et trente-mille coups par seconde pour nos chaînes de mesure alpha et gamma. Les taux de comptage obtenus au cours de nos expériences seront supérieurs à ces valeurs et étalonner complètement le système de mesure aurait nécessité des sources radioactives d'intensités comparables que nous n'avons pu nous procurer. Les premières expériences de la suite de ce chapitre sont donc des tests pour valider le fonctionnement de l'électronique, et en particulier la détermination de l'efficacité électronique, calculée par les modules du système d'acquisition.

Une seconde démarche, originale, a donc été développée pour contrôler le fonctionnement de l'électronique et est décrite au IV.A.4.

2.b) Spectroscopie alpha

De par la nature des rayons alpha, l'efficacité intrinsèque du PIPS qui les détecte est théoriquement indépendante de l'énergie des alpha et vaut 100 %. En pratique, elle est considérée comme exactement égale à 1. Déterminer la surface des raies (cf. IV.A.3 et IV.C.5-6) et quantifier les effets du taux de comptage sur l'électronique sont alors les principales difficultés de la spectroscopie alpha. Ce dernier phénomène doit être contrôlé expérimentalement pour toute mesure alpha où le taux de comptage est supérieur à une dizaine de milliers de coups par seconde.

2.c) spectroscopie gamma : simulations et formules empiriques

Un programme Monte-Carlo [52] donne pour notre détecteur germanium dans la chambre de mesure les efficacités intrinsèques représentées sur la figure ci-dessous. Les points obtenus peuvent être interpolés par la formule empirique de type log-polynômiale suivante :

$$\ln(\varepsilon) = -12,52 + 7,071 \ln(E) - 1,177 \ln^2(E) + 0,04064 \ln^3(E) + 0,0018 \ln^4(E)$$

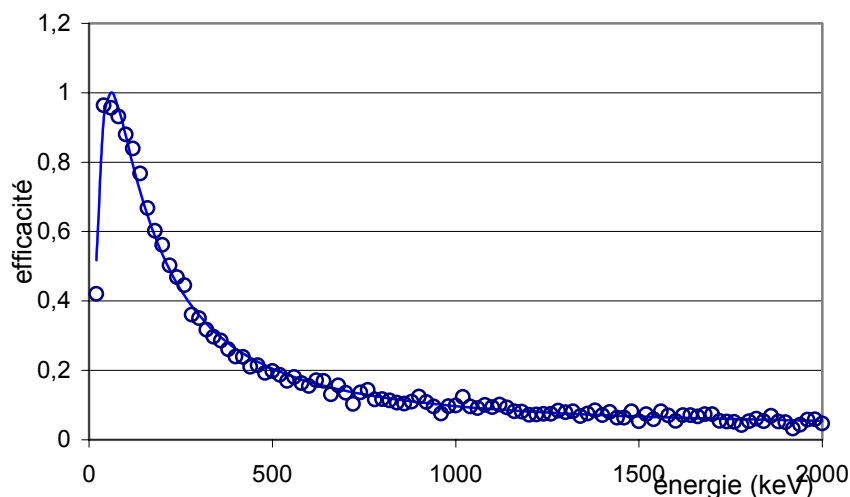


Figure 44 : efficacité du détecteur germanium en fonction de l'énergie des gamma (en keV). Points monte-carlo et formule empirique.

Les principaux inconvénients de cette méthode sont que les simulations ne tiennent pas compte des caractéristiques vraies de notre détecteur (zones mortes) et que la précision des valeurs obtenues n'est pas connue. De plus seule l'efficacité intrinsèque peut ainsi être déterminée et un étalonnage expérimental est indispensable.

2.d) Détermination expérimentale de l'efficacité du détecteur germanium

L'étalonnage d'un système électronique est la mesure la plus naturelle de son efficacité. Néanmoins, elle est tributaire de la précision expérimentale et en particulier sur l'activité des sources (en général 2 %) et sur l'angle solide.

La méthode consiste à effectuer des spectroscopies de sources d'activités connues pour appliquer la formule (IV. 1) et à en déduire l'efficacité d'une raie d'énergie donnée. Si les taux de comptage sont faibles nous obtenons l'efficacité intrinsèque du détecteur et la précision associée. Les exemples de la partie IV.B montrent comment à partir des points $(E, \varepsilon(E))$ on peut extrapoler la courbe ε .

3. Question de surface des raies

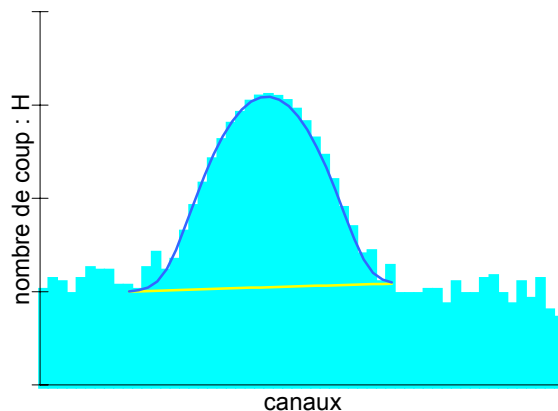
La détermination du dernier terme de l'équation (IV.1), N , consiste à mesurer le nombre total d'événements correspondant à une raie d'énergie donnée, nombre qui peut-être assimilé à l'aire du "pic" sur le spectre. Ces événements sont répartis sur plusieurs canaux à causes des phénomènes statistiques de mesure : résolution du détecteur, traitement électronique...

Quand le système de détection fonctionne correctement la définition et la détermination de la surface des raies sur le spectre sont soit une banalité soit une question de déconvolution de pic, et donc d'analyse de spectre. Cela n'est plus vrai pour nos expériences à cause des taux de comptage attendus qui sont très élevés, de plusieurs dizaines de milliers à cent mille coups par seconde. Il existe alors des dysfonctionnements électroniques qui se traduisent sur la définition et la détermination du terme N . Les exemples suivants vont montrer que la définition même de N (différencier les "bons" événements des "mauvais", et les compter), évidente dans des cas simples, peut-être délicate dans des situations complexes.

3.a) Cas simples

La mesure de l'aire comprise sous le pic peut s'effectuer de deux manières distinctes :

- N obtenue en faisant une somme (donc discrète) du nombre d'événements dans chaque canal appartenant au pic ;
- N' obtenue en intégrant une fonction ajustée sur le spectre, fonction arbitrairement choisie pour reproduire la forme du pic. Cette fonction est souvent gaussienne en spectroscopie gamma.



$$N = \sum_{\text{canal bas}}^{\text{canal haut}} H - bdf$$

$$N' = \int_{\text{énergie}} G(E) - bdf$$

Figure 45 : exemple de pic gaussien superposé à un bruit de fond, bdf , linéaire. La définition et le calcul de N ne posent pas de problèmes particuliers et $N=N'$

Dans le cas idéal, les aires N (obtenue par "somme sur les canaux") et N' (intégrale) sont en pratique égales et la seule source d'incertitude est la nature probabiliste du phénomène (cf. III.D.2). Ajouter un bruit de fond de forme simple ne modifie alors pas la méthode, même si sa paramétrisation peut être complexe.

3.b) Cas complexes

Pour nos expériences, les taux de comptage et le bruit créent des dysfonctionnements de l'électronique qui déforment les spectres et la mesure de N est plus complexe. Par exemple, des phénomènes d'*empilement* (ajout de deux signaux dus à deux particules différentes) apparaissent à des taux de comptage élevés. Normalement, notre électronique rejette ces signaux et ajuste le temps mort en conséquence. L'expérience montre d'une part qu'elle ne rejette pas tous ces événements (cf. Figure 46) et d'autre part que le temps mort n'est pas toujours correctement corrigé (cf. IV.C). Plus précisément, nous pouvons dire que dans nos conditions de mesure, l'efficacité du système ne peut pas toujours se déduire du temps mort mesuré. De plus, nous voyons sur la Figure 46 que les raies peuvent aussi ne plus présenter une forme gaussienne.

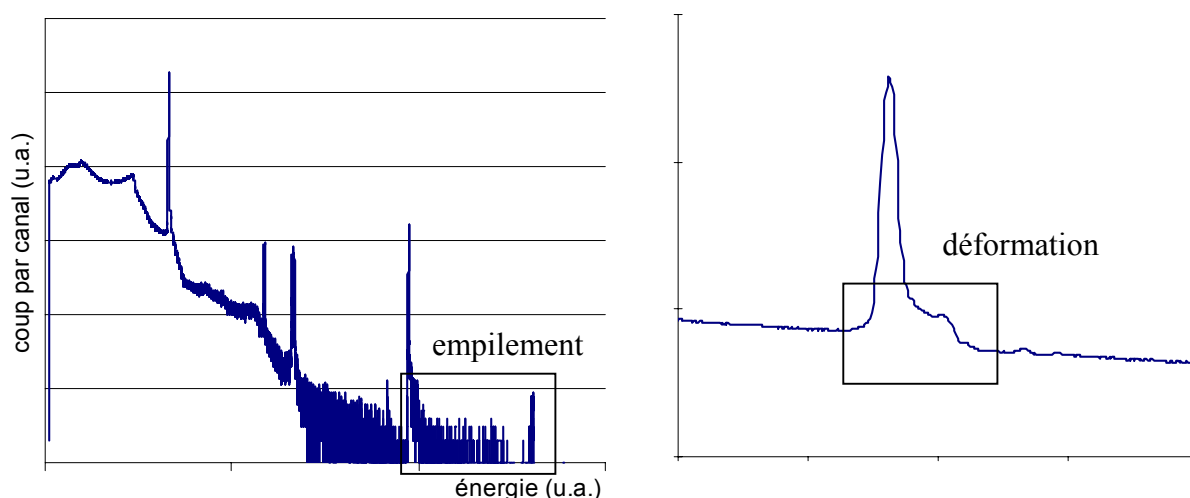


Figure 46 : exemples de spectres déformés pris avec notre système d'acquisition. Le spectre de gauche met en évidence le phénomène d'empilement et le spectre de droite la déformation des raies à haut taux de comptage. Les conditions de mesures ne sont pas représentatives et donc volontairement omises dans cette approche qualitative.

Déterminer la surface d'un pic déformé ne se résume pas à une question de forme de la raie mesurée et la définition du bruit de fond est plus délicate que dans les cas précédents. Pour appliquer la première méthode (somme sur les canaux) il suffit de déterminer le bruit de fond. Utiliser la seconde méthode (intégrale) nécessite de trouver de nouvelles fonctions G pour interpoler le nombre d'événements par canal et de valider leur utilisation. Finalement, la définition de N dans ces deux méthodes n'est pas précise car elle dépend de la définition exacte de l'efficacité du système, ε_{sys} .

3.c) Cas réel

Dans une mesure réelle, les phénomènes illustrés se superposent et il est alors possible, en gardant la même définition de l'efficacité, ε , de mesurer des surfaces, N , différentes. Pour en tenir compte et pour traduire notre incapacité à savoir exactement le

nombre d'événements dans la raie N , nous devons donner une incertitude ΔN qui n'est pas due à la statistique. Cette incertitude dépend des conditions de mesure et d'exploitation du spectre.

Dans le cas de spectres gamma, les raies sont séparées mais le bruit de fond est important ainsi que la déformation des pics à haut taux de comptage. Les spectres alpha présentent toujours de nombreuses raies superposées dont la forme n'est pas simplement modélisable, même à faible taux de comptage (cf. spectres du IV.B). Dans nos expériences, un fort bruit bêta et gamma crée d'importantes déformations des pics fonctions du taux de comptage.

La détermination de N dépend de nombreux phénomènes expérimentaux qui ne sont pas modélisables quand le fonctionnement de l'électronique n'est pas bien connu. Nous pensons qu'il est donc nécessaire de diversifier les méthodes d'analyse des spectres pour les spectres complexes obtenus dans nos expériences. Afin de tester la cohérence des résultats, nous devons prendre différentes mesures des mêmes grandeurs, dans plusieurs configurations de notre système de mesure. Notre chambre de spectroscopie permet par exemple de déplacer les détecteurs et de modifier l'angle solide de mesure.

4. S'affranchir de l'angle solide ?

L'angle solide de mesure dépend fortement de la géométrie détecteur-cible et est présenté au paragraphe IV.A.1. La chambre de mesure que nous avons développée nous donne la possibilité, même avec des échantillons très actifs, de déplacer les détecteurs et nous pouvons changer de manière très précise cette géométrie. La parfaite connaissance des angles solides accessibles à notre système nous a fait mettre au point une méthode d'analyse originale qui s'avère indispensable pour valider le fonctionnement de l'électronique en conditions extrêmes.

4.a) *Qu'implique le mouvement des détecteurs ?*

Les taux de comptage varient avec la distance détecteur-source selon une fonction de la distance donnée par les équations (IV.4) et (IV.5). Prendre des mesures à différentes distances permet de faire un ajustement avec les formules théoriques, ce qui justifie l'effort fait au IV.A.1 pour en obtenir des expressions simples. Interpoler les variations expérimentales du taux de comptage avec la distance comme variable met en évidence les tendances systématiques, en particulier cela permet de mesurer la distance cible détecteur, et surtout cela permet d'étudier la reproductibilité des mesures et le fonctionnement de l'électronique.

Nous avons appliqué cette méthode à des mesures effectuées avec des sources étalonnées à des taux de comptage faibles pour avoir un comportement fiable de

l'électronique. Nous pouvons alors conclure sur les caractéristiques mécaniques de la chambre et électronique du système de mesure.

4.b) Application pour une cible d'américium 243

La méthode décrite a été appliquée à la spectroscopie alpha d'une cible d'américium 243 d'environ 11µg dans la chambre de mesure. Sa période est de 7370 ans donc l'activité de la source ne change pas. La pression est suffisamment peu importante pour considérer que les particules alpha sont dans le vide (cf. III.F). Le taux de comptage reste assez "faible" pour ces mesures : inférieur à 11 000 coups par seconde dans le détecteur pour une fraction de temps mort égale au maximum à 11 %. Ces deux hypothèses sont les seules nécessaires pour illustrer notre propos et l'ajustement suivant est donc une vérification du fonctionnement du système de mesure.

Distance (mm)	Taux de comptage	$T_x \cdot 4\pi / \Omega$
10,3	5229	87679
13,3	3396	87291
18,3	1917	87425
28,3	837,4	87239
38,3	463,5	87041
48,3	293,3	86950
98,3	70,93	86234
148,3	31,36	86592
198,3	17,43	86014
298,3	8,415	87711

Taux de comptages total (nombre total de particules alpha dans le spectre par seconde) mesuré avec le PIPS sur une cible d'américium 243. Les angles solides utilisés sont calculés avec la formule (IV.5) avec la distance réelle cible-détecteur, d , donnée (cf. IV.B).

Le tableau ci-dessus donne les taux de comptages expérimentaux dans le détecteur, T_x , et les valeurs obtenues pour le terme $T_x \cdot 4\pi / \Omega$ qui est égal au produit $AI\varepsilon$ d'après la formule (IV.1). La Figure 47 montre l'ajustement obtenu avec les valeurs du tableau précédent et la courbe d'équation :

$$B \cdot \frac{1}{2} \left(1 - \frac{1}{\sqrt{1 + 5,65^2 / (d + C)^2}} \right) (1 - 0,024402 \cdot d^{-1,7573})$$

avec d : valeur, exprimée en millimètre, de la distance cible-détecteur, B et C variable sur lesquelles se fait la minimisation

La variable B représente la valeur du rapport taux de comptage sur fraction d'angle solide, soit $T_x \cdot 4\pi / \Omega$. La variable C représente une correction de la distance cible-détecteur pour, d'une part tenir compte de l'imprécision de positionnement de la cible due par exemple à une déformation du porte échantillon, et pour d'autre part traduire le fonctionnement de l'électronique selon le taux de comptage. En théorie, C doit être égal à zéro et sera notée ΔD dans la suite de ce document.

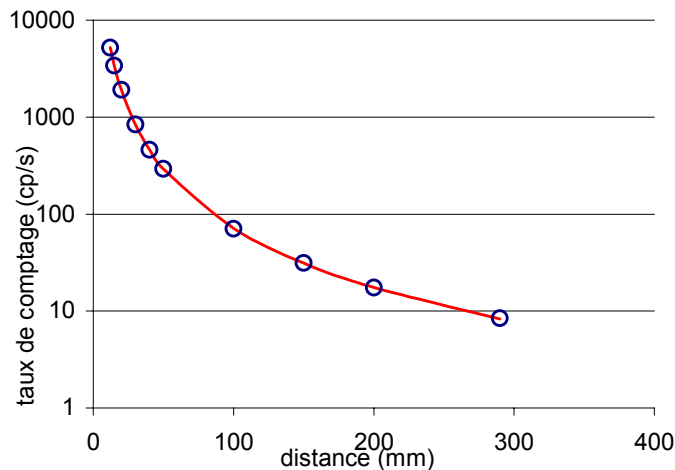


Figure 47 : "ajustement en angle solide" obtenu avec les points du tableau précédent. Les variables B et C valent respectivement $(86559 \pm 224) \text{ s}^{-1}$ et $(-0,2 \pm 0,02) \text{ mm}$. le χ^2 de l'ajustement vaut 7,1 pour 8 degrés de liberté.

Nous pouvons remarquer que l'ajustement de la Figure 47 nous permet de mesurer avec précision le paramètre C (égal à ΔD) et donc la distance cible détecteur sans avoir besoin de connaître ni l'activité de la source utilisée, ni l'efficacité de la mesure d'après les hypothèses faites dans ce paragraphe.

Les expériences présentées dans les chapitres suivants illustreront l'intérêt de ces ajustements dans différentes conditions d'utilisation de la chambre de mesure. Cet exemple de spectroscopie alpha est une preuve directe du bon fonctionnement de l'ensemble du système de mesure alpha dans ces conditions et nous pouvons donc conclure de manière très positive sur sa construction. Le chapitre suivant expose les tests et étalonnages effectués pour valider l'ensemble du système expérimental.

IV.B. Étalonnages et premières mesures

Cette partie résume l'ensemble des tests et procédés mis en œuvre pour vérifier le bon fonctionnement de la chambre et préparer les expériences de la partie suivante, l'irradiation de deux cibles d'américium 243 et de plutonium 242.

1. Dispositifs expérimentaux

Afin d'exposer le contexte des expériences effectuées à Grenoble, et avant de donner les premiers spectres pris avec la chambre, ce paragraphe présente le dispositif complet installé dans l'enceinte du réacteur de l'ILL, ainsi que la procédure permettant de l'utiliser. Après une courte description des vérifications mécaniques faites, nous allons décrire comment se déroule une prise de données.

1.a) *Mise en place de la chambre*

Une fois la chambre assemblée à partir de ses parties constituantes, des réglages et des étalonnages mécaniques ont été effectués avant de l'installer à Grenoble. Les alignements cibles-détecteurs ont été vérifiés à toutes les positions avec un laser, les parallélismes ont été validés, et les distances cibles détecteurs ont été mesurées. Les précisions correspondantes sont assez bonnes sauf pour la distance cible-détecteur alpha (PIPS) à cause de l'absence, lors de ces mesures, de la pièce mécanique assurant le positionnement de la cible.

Le détecteur germanium s'approche de 41,73 à 81,23cm sur un axe faisant avec la droite détecteur-cible un angle d'environ $0,2^\circ$. Le détecteur PIPS s'approche de la cible à environ 9,5mm ($\pm \sim 1$ mm) avec un défaut de centrage inférieur au millimètre en toute position, et un défaut de parallélisme inférieur à $0,3^\circ$.

Le déplacement des détecteurs est contrôlé par un automatisme électromécanique très précis et l'exactitude de ces mouvements a été mesurée au dixième de millimètre près.

1.b) *Procédure expérimentale*

Pour comprendre les expériences, il nous semble nécessaire de présenter la procédure expérimentale, c'est-à-dire les différentes étapes effectuées lors d'une prise de données et donc les possibilités de mesure.

La chambre est enfermée dans son blindage lors des expériences. Nous n'y avons pas accès directement, mais à travers un automate et son programme de commande que nous avons développé, en particulier pour déplacer nos détecteurs et la cible.

Des capteurs de positions et une caméra permettent de contrôler le bon déroulement des opérations décrites sur les Figure 48-49-50, et nous avons vérifié le bon fonctionnement de l'ensemble à travers les résultats des mesures de physique.

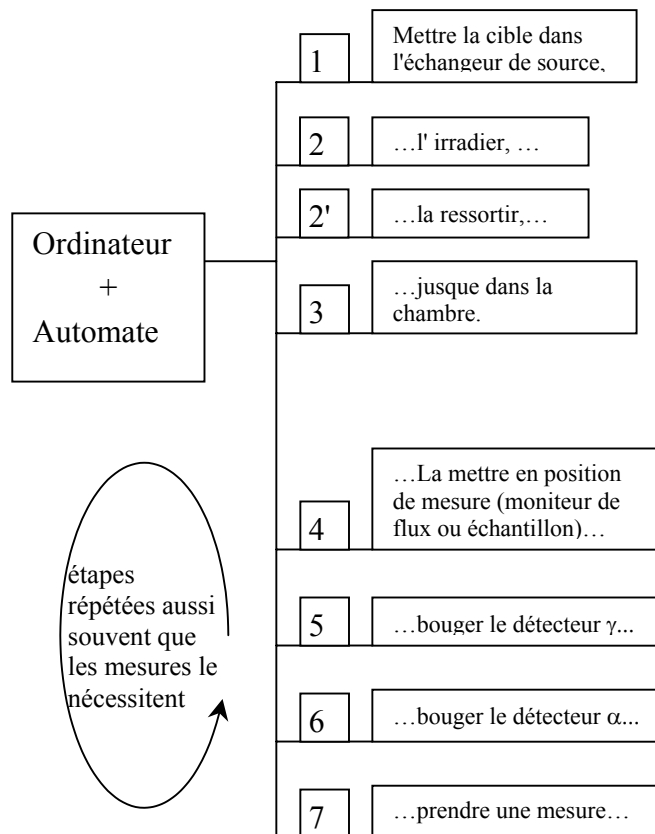


Figure 48 : procédure expérimentale suivie lors des mesures. Les étapes sont illustrées sur les deux figures suivantes.

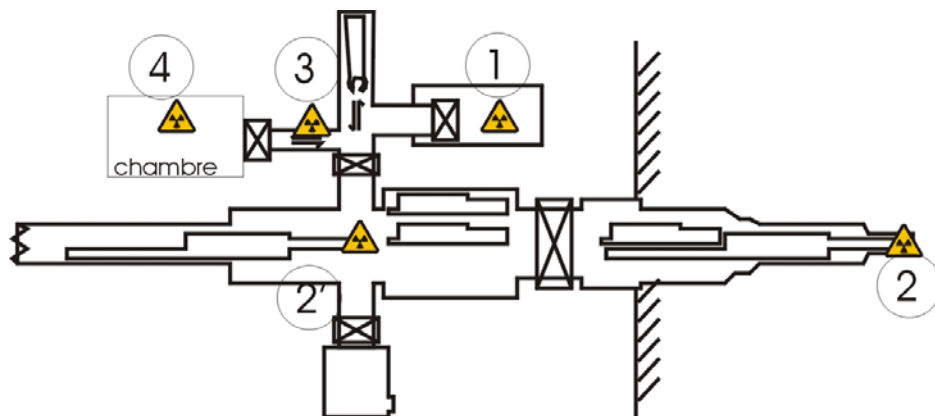


Figure 49 : tube d'irradiation H9 et trajet de la cible en quatre étapes :

- 1. introduction de la cible dans l'échangeur par une boîte à gants ;
- 2. et 2'. positionnement sur le chariot d'irradiation, irradiation et retour sous l'échangeur de source ;
- 3 mise en place de la cible dans la chambre ;
- 4 mise en position de mesure (cf. figure suivante)

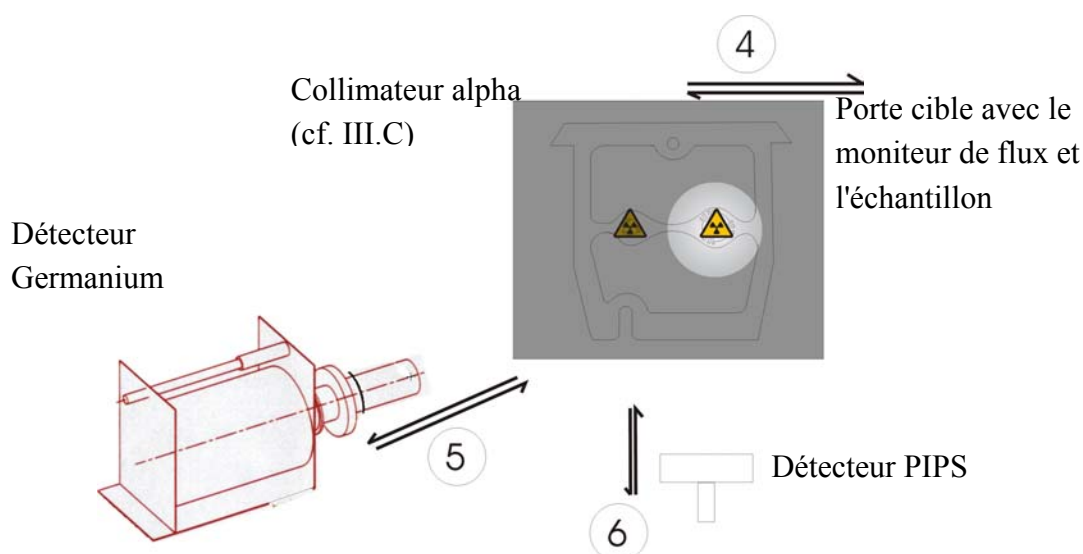


Figure 50 : schéma de la position relative cible-détecteur et de leurs mouvements (cf. III.F pour les dessins précis). Les étapes suivantes de la mesure sont indiquées par leurs numéros :

- 4. mise en place de la cible en position de mesure *échantillon* ou *moniteur de flux*.
- 5. déplacement du détecteur germanium ;
- 6. déplacement de détecteur PIPS.

Une fois la chambre installée, nous avons utilisé des sources radioactives pour faire l'étalonnage du système de mesure.

2. Sources, étalonnages

L'objectif des étalonnages dans la chambre est de préparer les mesures de la partie suivante et donc de :

- vérifier le mouvement des détecteurs ;
- tester le fonctionnement de l'électronique ;
- déterminer l'efficacité du détecteur germanium pour les raies des isotopes de cobalt 60 et américium 244.

Les mesures suivantes ont été effectuées à Grenoble, au même endroit et dans les mêmes conditions où seront faites les expériences.

2.a) Le détecteur alpha

Pour déterminer la résolution de la spectroscopie alpha nous avons utilisé une source fine (épaisseur de quelques nanomètres) d'américium 241 d'activité égale à 1500 becquerels environ et une source de plutonium 239 d'activité égale à 4350 becquerels environ. Les activités de ces deux sources ne sont pas exactement connues.

Plutonium 239	Américium 241	Américium 243
5156 keV (73%)	5486 keV (85,2%)	5275 keV (88%)
5143 keV (15%)	5443 keV (12,8%)	5233 keV (10,6%)
5105 keV (11,7%)		

Énergie et intensité des principales raies alpha des plutonium 239, américium 241 et américium 243

Deux exemples de spectres obtenus sont donnés sur la Figure 51.

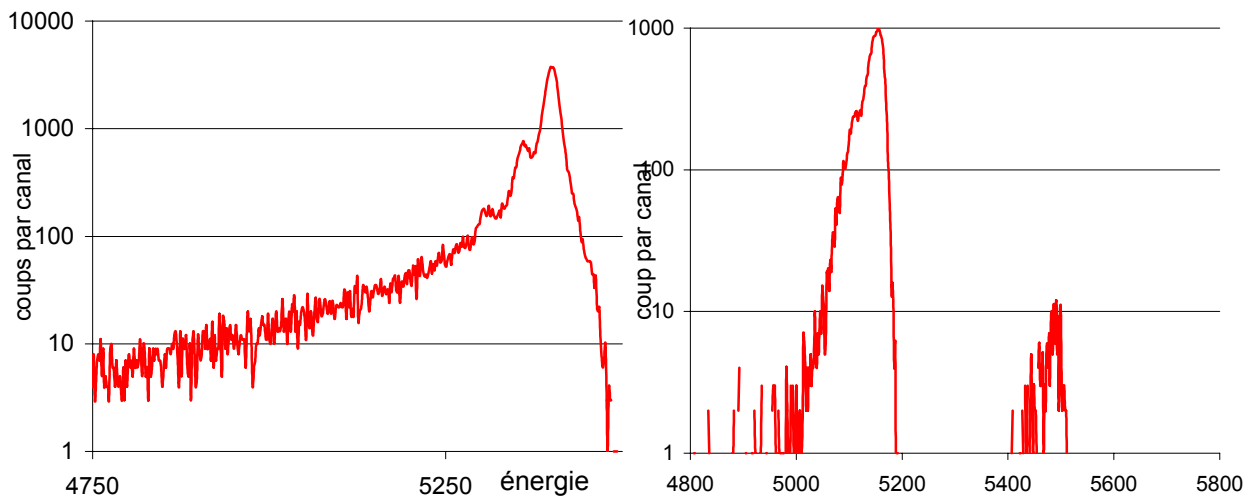


Figure 51 : spectres alpha de la source d'américium 241 (à gauche) et du plutonium 239 (à droite). Les distances détecteurs-sources sont respectivement de 1,03cm et 9,83 cm pour un temps de comptage effectif de 2010s et 7400s. Les largeurs à mi-hauteur des pics principaux sont égales à 22 keV pour l'américium 243 et 23keV pour le plutonium 239. Nous pouvons remarquer la présence d'américium 241 contaminant sur le spectre du plutonium 239.

Les sources précédentes n'étaient pas assez intenses pour vérifier les mouvements du détecteur alpha et pour mesurer la distance cible-détecteur et nous avons utilisé une cible d'américium 243 d'environ 11 microgrammes (cf. IV.C.1). Deux exemples de spectres obtenus sont représentés sur la Figure 52. Les taux de comptages mesurés et l'exploitation des résultats ont été donnés dans le paragraphe IV.A.4.b).

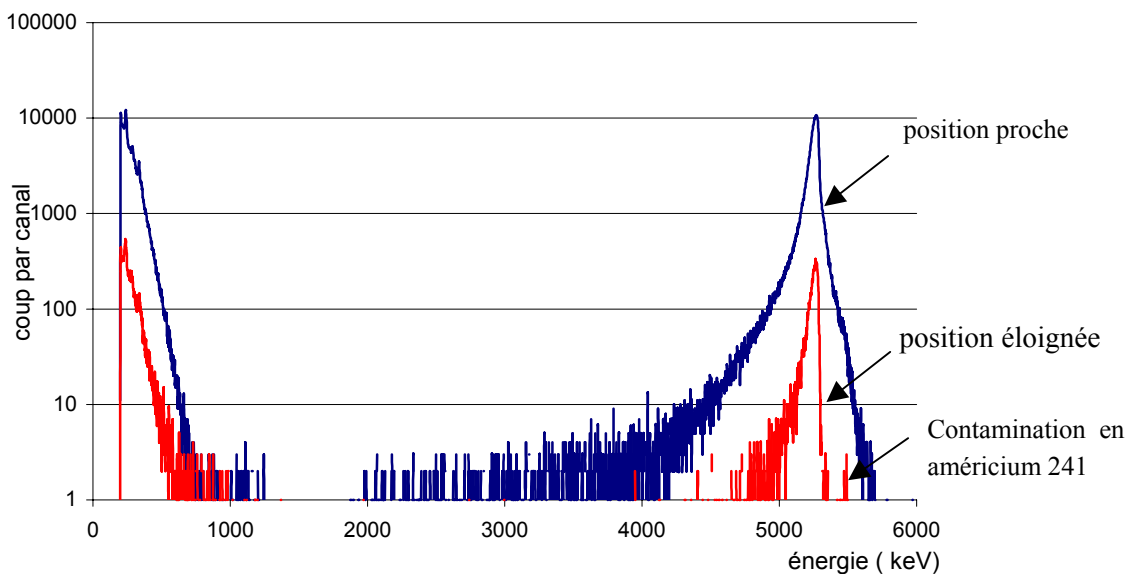


Figure 52 : spectres alpha de la cible d'américium 243 pour une distance cible-détecteur de 10,4mm (temps de comptage 100s) et 288,4mm (temps de comptage 1500s). Nous pouvons remarquer une légère contamination en américium 241 et surtout une nette différence de forme des raies alpha entre les deux spectres : plus on s'éloigne, plus le taux de comptage devient faible et plus le spectre s'affine.

Associés aux vérifications mécaniques du paragraphe précédent, ces résultats permettent de conclure sur la distance cible détecteur que nous pouvons exactement choisir entre 298,4mm et 10,4mm. Les incertitudes sur cette distance et sur l'angle solide de mesure sont alors négligeables.

2.b) Le détecteur gamma : angle solide

Pour vérifier les mouvements du détecteur germanium nous avons utilisé une source de cobalt 60 d'activité $2,68 \cdot 10^5 \text{Bq}$ (précision à 0,9 % pour deux écarts standards²¹) et une source d'euporium d'activité $308 \cdot 10^6 \text{Bq}$ (précision à 2 % pour un écart standard). L'utilisation de la source de cobalt a nécessité la soustraction d'un bruit de fond peu précis dépendant de la position du détecteur et de la configuration du réacteur. La Figure 53 représente les ajustements obtenus (cf. IV.A.4) en laissant libre le paramètre distance, Δd , car les sources ne sont pas exactement à la même place que les cibles.

L'utilisation de la source d'euporium confirme le bon fonctionnement du système de spectroscopie et la distance détecteur-cible mesurée est compatible avec les résultats du IV.B.1.a).

L'utilisation de la source de cobalt ne permet pas de faire un bon ajustement et de conclure sur la géométrie cible détecteur. Le bruit de fond peut être une cause de ce résultat.

²¹ Aussi appelé "à deux sigma" en référence à la loi normale

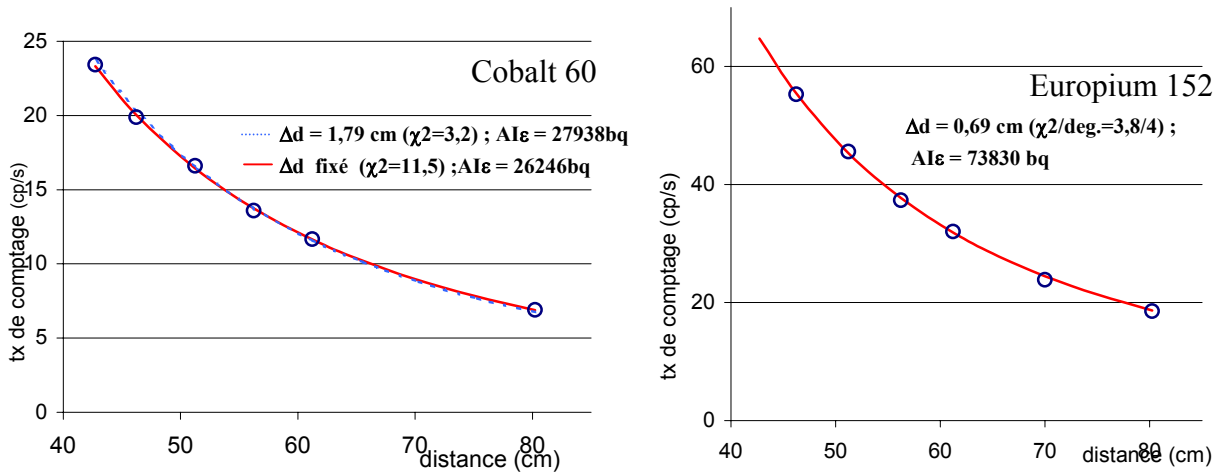


Figure 53 : ajustements en angle solide obtenus pour les taux de comptage des raies à 1173 keV et 122keV des sources de cobalt 60 et d'euporium 152. Pour le cobalt, deux ajustements ont été faits, un en laissant libre le paramètre distance et l'autre en le fixant (cf. IV.A.4) d'après les mesures du IV.B.1.

2.c) Le détecteur gamma : efficacité

Les deux sources utilisées ci-dessus nous ont permis de déterminer l'efficacité intrinsèque du Ge. Le spectre de la source d'euporium 152 montre de nombreuses raies qui permettent d'interpoler une courbe complète mais peu précise de $\epsilon(E)$ (cf.IV.A.2). Par exemple l'efficacité à 744 keV est calculée égale à 0,15 à 7 % près en interpolant les efficacités mesurées des raies à 689keV et 779keV de l'euporium 152.

Énergie (keV)	Intensité gamma (%)
40,263	59,2
45,801	11,5
122,009	28,4
244,795	7,54
295,973	0,443
344,299	26,52
367,764	0,842
443,947	3,1
488,66	0,412
503,476	0,156
563,919	0,491
688,582	0,846
778,813	12,94
867,277	4,23
1085,746	10,1
1112,006	13,56
1408,191	20,8

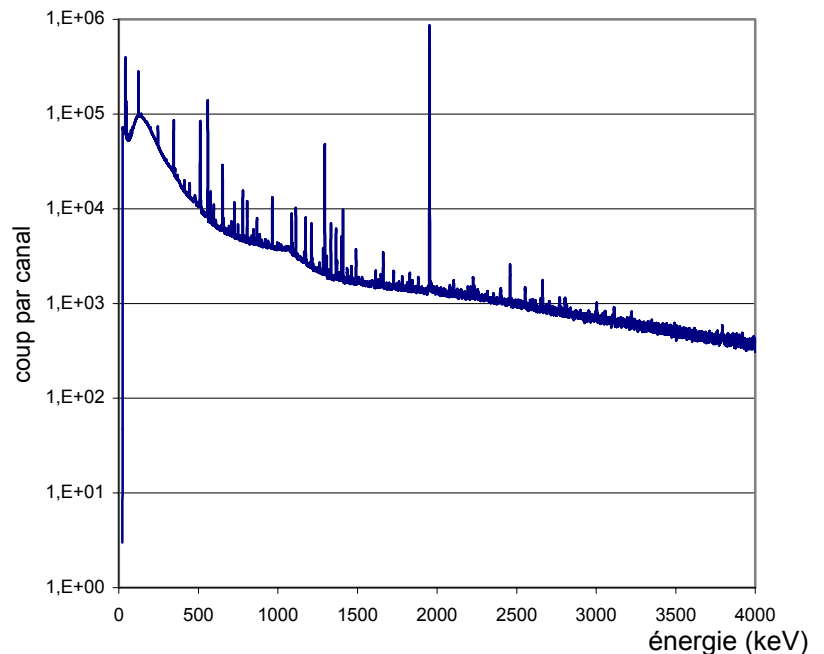


Figure 54 : Exemple de spectre gamma de la source d'euporium et tableau des raies utilisées pour déterminer l'efficacité du détecteur

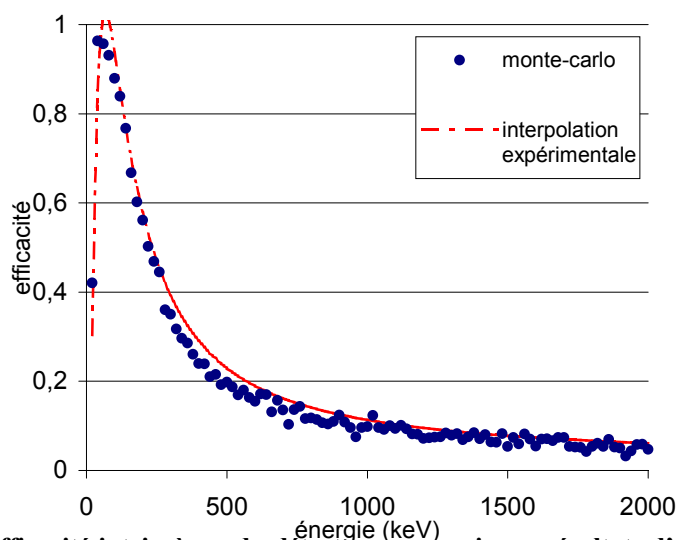


Figure 55 : efficacité intrinsèque du détecteur germanium : résultats d'un calcul monte-carlo (IV.A.2.c) et interpolation des raies de l'euporium 152.

La source de cobalt 60 a été utilisée pour avoir plus de précision sur la mesure de l'efficacité des raies du cobalt à 1173keV et 1332keV. Rappelons que ce corps joue un rôle particulier dans nos mesures puisqu'il nous sert de moniteur de flux et est donc utilisé dans toutes nos irradiations. En utilisant les mesures du paragraphe précédent, la formule de définition de l'efficacité et les angles solides calculés (cf.IV.A.1) nous obtenons les valeurs du tableau suivant.

Sources	Distance (cm)	Efficacité (%)
Euporium 152	42,8	9,65
Euporium 152	80,3	9,915
Cobalt 60	42,8	9,638
Cobalt 60	46,3	9,576
Cobalt 60	51,3	9,808
Cobalt 60	56,3	9,674
Cobalt 60	61,3	9,839
Cobalt 60	80,3	9,997

Résultats de plusieurs mesures prises dans des conditions semblables, mais à différentes distances, traduites en terme d'efficacité à 1173keV (soit directement, soit extrapolé linéairement entre les deux raies de l'euporium à 1112 et 1408keV). Toutes les mesures ont une incertitude statistique de 1%.

Ce tableau nous permet de conclure à une efficacité pour de faibles taux de comptage et une énergie de 1173 keV égale à $0,0978 \pm 0,0025$ (soit 2,5 pour-cent près) pour rendre compatibles les différentes mesures en tenant compte des incertitudes sur l'activité des sources, sur la détermination de la surface des raies et celle dues à la statistique.

L'utilisation des sources d'activités connues a donc permis de s'assurer du bon fonctionnement de l'appareil expérimental et d'étalonner une partie de ses caractéristiques. Nous avons ensuite terminé l'installation mécanique de la chambre et de son blindage pour pouvoir effectuer les tests complètement intégrés que sont les premières irradiations.

3. Les premières irradiations

La chambre a été montée sur l'échangeur de source de H9 après les étalonnages et les premières cibles ont été irradiées. L'objectif de ces expériences était de vérifier la tenue mécanique de la cible et du moniteur de flux, l'absence de problèmes pour les introduire dans la chambre après irradiation (débit de dose, positionnement mécanique) et d'étudier les conséquences de l'activité des structures de la cible et du moniteur de flux après irradiation.

3.a) Cible vierge

Une cible sans dépôt actif (donc composée uniquement du support de cible, du moniteur de flux et du support proche cf. III.E) a été irradiée 4h30 avec un moniteur d'alliage aluminium-cobalt de 7,34mg (donc 73,4 μ g de cobalt, cf. III.D.). Les spectres obtenus sont donnés ci-dessous, d'abord pour le moniteur de flux, puis pour l'anneau en nickel.

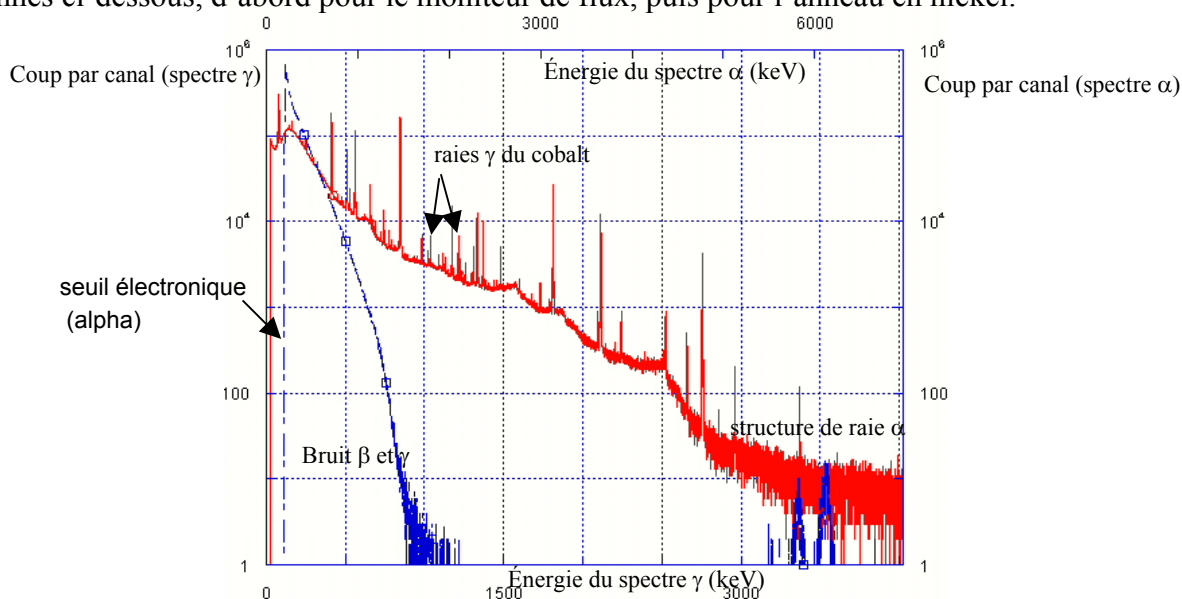


Figure 56 : spectres alpha et gamma obtenus pour le moniteur de flux après 4h30 d'irradiation et 20 h de refroidissement. Les taux de comptage sont d'environ 6250cp.s⁻¹ (PIPS), et 28 000cp.s⁻¹ (germanium), le temps réel de comptage est de 7000s avec un temps mort donné par l'électronique de 6 % (PIPS) et 21,5 % (germanium).

On peut remarquer :

- sur le spectre gamma les deux raies du cobalt (1173keV et 1332 keV) présente dans ce bruit de fond
- sur le spectre alpha le fort bruit de fond bêta et gamma (basse énergie), et un bruit de fond alpha entre 5,5MeV et 6MeV

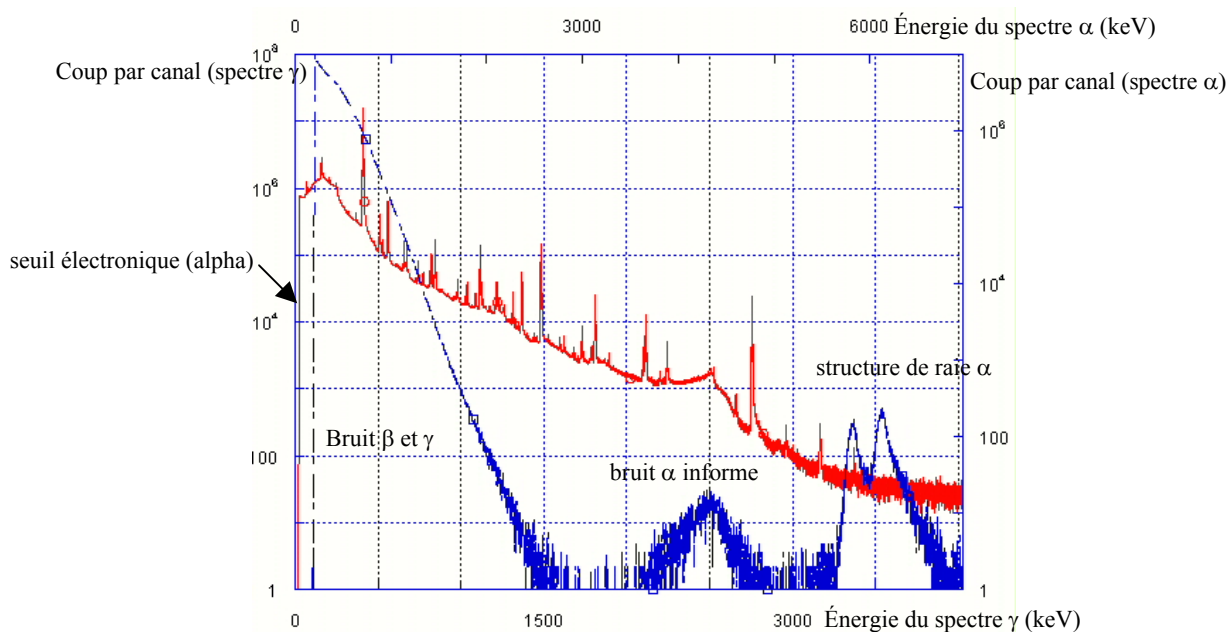


Figure 57 : spectres alpha et gamma obtenus pour le support proche après 4h30 d'irradiation, 24 h de refroidissement. Les taux de comptage sont d'environ 100 000cp.s⁻¹ (PIPS), et 130 000cp.s⁻¹ (germanium), le temps réel de comptage est de 1h avec un temps mort donné par l'électronique de 65 % (PIPS) et 60 % (germanium).

On peut remarquer sur le spectre alpha le fort bruit de fond bêta et gamma (basse énergie), et un bruit de fond alpha entre 4MeV et 4,5MeV et entre 5,5MeV et 6MeV.

Manganèse 56	Or 198	Or 199
846,7 keV (98,87%)	411,8 keV (95,56%)	158,38 keV (36,9%)
1810,7 keV (27,19%)	70,8 keV (1,3%)	208,2 keV (8,35%)
2113 keV (14,34%)		

Énergie et intensité des principales raies gamma des manganèse 56, or 198 et 199

- détecteur gamma

Nous observons après irradiation et environ trente minutes de refroidissement un très fort taux de comptage dans le détecteur, de l'ordre du million de coups par seconde, qui sature l'électronique. Après quelques heures de décroissance, ce taux reste élevé et les raies du manganèse 56 (2,58h de période) et de l'or 198 (2,69j de période) dominent le spectre (cf. tableau ci-dessus). La durée de vie de ces deux corps et la section efficace de capture de l'or 198 (environ 25000b vers l'or 199 de 3,1j de période) montrent que les taux de comptage seront très élevés dans les premières heures, voire les premiers jours, après irradiation, et ce d'autant plus que le temps d'irradiation sera grand.

La comparaison des deux spectres et les études sur plusieurs échantillons de titane semblent montrer que l'or est un contaminant du nickel, à hauteur de quelques dizaines de ppm, ou bien du canal d'irradiation H9 lui-même. En regardant les raies du cobalt dans les deux positions de mesure, visée directe sur le moniteur de flux ou bien sur le nickel, nous pouvons vérifier que le blindage interne (collimateur gamma de 6 cm de plomb cf. III.C) joue bien son rôle.

- détecteur alpha

Tout d'abord le PIPS se révèle sensible au bruit de fond bêta et gamma qui augmente le taux de comptage et dégrade la forme des pics. Les spectres mettent en évidence une contamination alpha (*a priori* curium 242, californium 249...) de la cible avec, pour 4h30min d'irradiation, une activité d'environ 25 et 12 becquerels en position de mesure et en position moniteur de flux (cf. IV.B.1). Sur les deux spectres nous pouvons voir les pics "étroits" correspondant aux corps cités et sur le seul spectre du nickel (support proche) une bosse informe entre 3,7 et 4,8 MeV. La perte d'énergie linéique des particules alpha de 6MeV dans le nickel est de 360 keV par micron. Les événements de cette dernière région peuvent sans doute être associés aux contaminants qui se trouvent sur l'autre face du disque de 4µm d'épaisseur (cf. paragraphe III.E et Figure 36), ce qui explique la forte déformation observée.

Cette contamination vient du canal H9 qui contient donc un ensemble d'actinides sous un flux de neutrons qui peut être de plusieurs $10^{14} \text{ n.cm}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$. Nous pouvons donc retrouver tous les actinides. En supposant que les masses déposées restent faibles, les corps les plus visibles en spectroscopie alpha sont ceux dont la période est la plus courte ce qui justifie les pics de curium 242 ($T_{1/2}=163\text{j}$), 244 ($T_{1/2}=18,1\text{an}$), de californium ($T_{1/2} < 900\text{an}$) et d'einsteinium 253 ($T_{1/2}=20,5\text{j}$) parfois observés. Ces faibles durées de vie et les flux de neutrons importants montrent que la composition de cette contamination peut fortement changer d'une expérience à l'autre si elles sont temporellement éloignées.

Des spectres ont été pris en novembre 2000 (lors des premiers tests de la chambre à l'ILL) et à l'été 2001 et en première approximation, l'activité de la contamination semble dépendre de manière linéaire avec le temps d'irradiation (compris entre 4h et 2j). À environ 30 % près, nous avons mesuré un "taux de déposition" de 0,4 –respectivement 30– becquerels par stéradian par heure d'irradiation sur le cobalt –respectivement, le nickel ou le titane–. Le faible nombre de mesures, le peu de statistique et l'origine assez aléatoire de cette contamination (*a priori*, adsorption d'actinides présents dans le tube d'irradiation H9) font que ces résultats ne sont qu'indicatifs et devront être remis en perspective après une plus ample utilisation de notre système d'irradiation.

3.b) Mesure avec deux moniteurs de flux

Comme nous l'avons vu au III.C.1, toutes les mesures envisagées sont fondées sur l'équivalence du flux moyen entre les deux positions de la cible distantes de quelques centimètres (cf. Figure 38). Comme nous en avons simplement la possibilité, nous avons

décidé de vérifier cette hypothèse. Un porte-échantillon a été irradié avec deux pastilles du même alliage aluminium-cobalt (cf. III.D), l'une à sa position habituelle et l'autre à la place du dépôt actif. Des spectres de chaque pastille ont été pris, le collimateur (supposé parfait) assurant l'indépendance des deux spectres. Les masses d'alliage sont de 7,21mg pour la position "moniteur" et 24,91 mg pour la position "actinide" pour 3h d'irradiation. Le tableau suivant montre les taux de comptage obtenus à différentes positions du détecteur germanium. Les incertitudes sur les taux de comptage sont fixées à 1 % du à la détermination de la surface de la raie et à la statistiques.

Distance (cm)	Tx cobalt n° 1	Tx cobalt n° 2	Rapport
42,8	62,73	217,3	3,464
46,3	53,66	184,9	3,446
51,3	42,82	148,0	3,457
56,3		122,4	
61,3	30,90	106,3	3,442
71,3	22,36	79,11	3,538
80,3	17,79	62,31	3,502
Moyenne			3,475

Taux de comptage, Tx, dans la raie à 1173keV du cobalt en fonction de la distance détecteur-cible pour chacune des deux positions de la cible. La dernière colonne donne le rapport entre ces deux taux qui est théoriquement égal au rapport des masses d'alliage, soit 3,455.

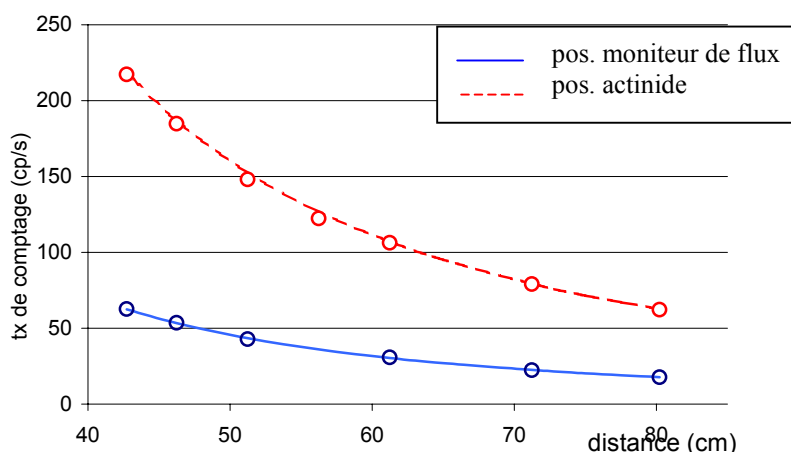


Figure 58 : ajustements obtenus pour les deux pastilles de cobalt en laissant libre le paramètre distance (cf.IV.A.4). Les résultats obtenus sont : $\Delta d = 0,02$ cm ($\chi^2/\text{deg}=5,3/4$) ; $AI\epsilon = 68886\text{Bq}$ pour la position "moniteur de flux" et $\Delta d = 0,71$ cm ($\chi^2/\text{deg}=10,7/5$) ; $AI\epsilon = 245620\text{Bq}$ pour la position actinide.

Les ajustements obtenus sont très bons (Δd et χ^2 faibles) et le rapport des activités expérimentales est égal au rapport des masses à 0,6 % près.

En sachant que les mesures de surface se feront à l'ordre du pour-cent pour les expériences, ce résultat est très positif et signifie que nous ne pouvons pas faire la différence

entre les deux positions de la cible. En conclusion, pour mesurer le flux de neutrons vu par l'actinide, nous pouvons aussi ajouter une incertitude de 0,6% à la mesure du flux à cause de cet effet, ou bien nous pouvons utiliser le moniteur de flux sans ajouter une incertitude supplémentaire en considérant les hypothèses vérifiées (cf. III.D.1). Nous pouvons aussi noter que ces deux expériences, effectuées dans de meilleures conditions que les étalonnages du IV.B.2 confirment la précision des mouvements du détecteur ainsi que la valeur de la distance détecteur-cible que nous avons déterminée.

4. Exemple de détermination du flux

Ce paragraphe détaille comment déterminer le flux dans les conditions de mesure et la procédure suivie à chaque irradiation, sans le préciser à nouveau. Les exemples donnés sont ceux de l'expérience avec l'américium 243 de la partie suivante (IV.C) et seules les raies à 1173keV du cobalt ($I_\gamma = 99,98\%$) sont représentées pour illustrer notre propos.

Les spectres sont toujours pris avec la cible en position moniteur de flux et en déplaçant le détecteur germanium de la distance la plus éloignée à la plus proche, progressivement et toujours dans le même sens en prenant soin d'avoir une "bonne" précision statistique (plus de 15 000 événements dans les pics). Les raies obtenues sont données sur la Figure 59 pour illustrer la déformation des spectres.

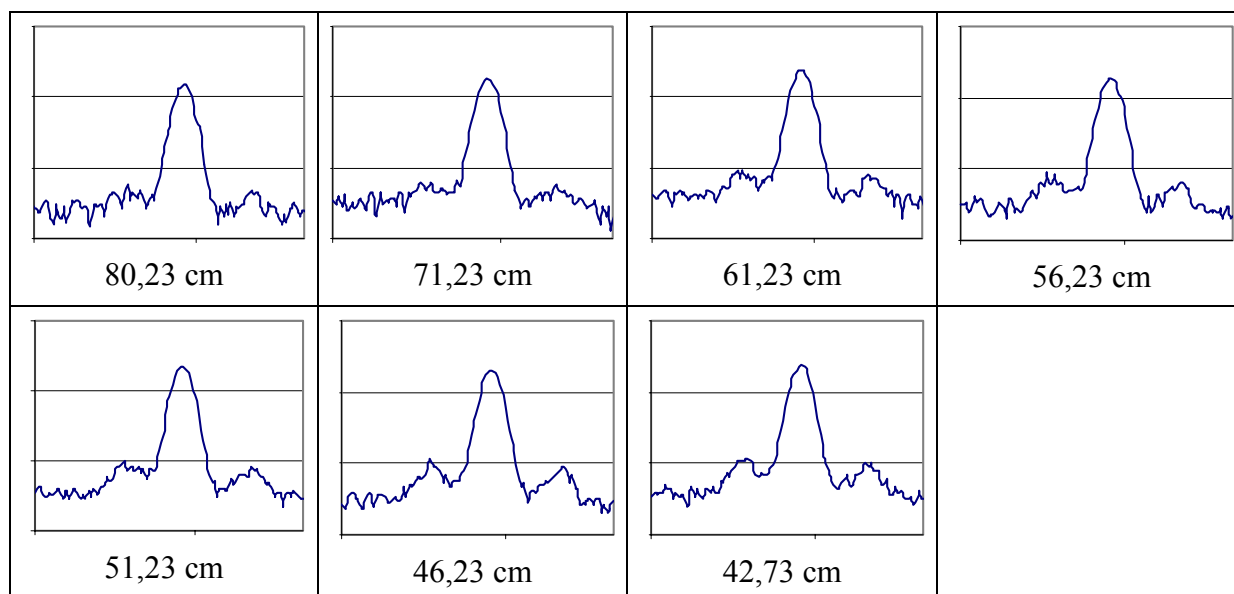


Figure 59 : Exemple de déformation des raies gamma du cobalt 60 à 1173keV en fonction de la distance, de 80,23cm (temps mort de 6 %) à 42,7cm (temps mort de 15%). Les échelles sont linéaires et différentes sur chaque spectre pour souligner l'aspect qualitatif de ces figures.

Distance (cm)	Taux de comptage (s ⁻¹)	$Tx \cdot 4\pi / \Omega$
42,73	71,97	79488
46,23	61,81	79873
51,23	50,26	79730
56,23	42,08	80380
61,23	35,53	80472
71,23	26,21	80304
80,23	20,37	76176
moyenne		79918

Taux de comptage (s⁻¹) dans la raie à 1173keV du cobalt en fonction de la distance du détecteur et rapport taux de comptage–fraction d’angle solide, théoriquement égal à $A_{co}I_{\gamma}\epsilon_{1173}$. Les incertitudes statistiques sont inférieures au pour-cent et deviennent donc négligeables devant l’incertitude de la méthode de mesure des raies lorsque l’on considère l’ensemble des 7 mesures.

La surface des raies très déformées est mesurée en sommant sur les canaux (cf. IV.A.3) avec une incertitude, due aussi bien à la méthode qu’à la statistique, fixée à 1 %. Le tableau ci-dessus donne les résultats obtenus et le rapport taux de comptage sur fraction d’angle solide. La Figure 60 montre l’ajustement en angle solide associé et la valeur $A_{co}I_{\gamma}\epsilon_{1173}$ obtenue.

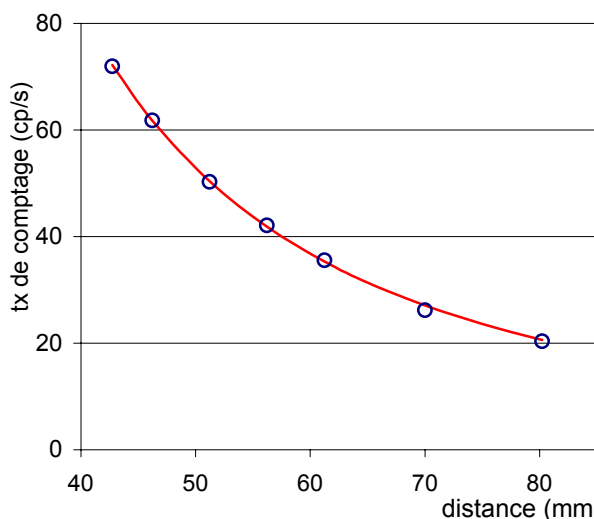


Figure 60 : ajustement obtenu en laissant libre le paramètre distance (cf.IV.A.4). Les résultats obtenus sont : $\Delta d = -0,21$ cm ($\chi^2/\text{deg}=3,5/5$) ; $A I \epsilon = 80557$ Bq.

Les deux résultats obtenus avec la distance cible-détecteur fixé (tableau) et laissée libre (ajustement) sont compatibles et nous obtenons une valeur intermédiaire de 80250Bq pour la valeur du produit $A_{co}I_{\gamma}\epsilon_{1173}$, et donc du produit $A_{co}\epsilon_{1173}$. L’incertitude associée est de 1 % et est due à la méthode de détermination de la surface des raies.

Nous insistons sur l'originalité et l'importance de cette méthode de comparaison pour déterminer l'activité car elle permet de vérifier la cohérence des données sur plusieurs mesures en faisant varier le domaine de fonctionnement de l'électronique. La pratique de l'analyse des spectres en montre la nécessité pour avoir confiance dans les valeurs obtenues et surtout dans les incertitudes associées.

Le tableau suivant récapitule les données nécessaires au calcul du flux :

Grandeur	$T_{1/2}$ ^{60}Co	σ_{cap}	t_{irr}	t_{ref}	alliage Al-Co		Efficacité ε_{1173}	$A\varepsilon_{1173}$
					masse	% de cobalt		
Valeur	5,272an	31,4b	12480s	388800s	7,43mg	1%	0,0978	80250Bq
Incertitude (%)	0,11	0,64	0,7	1	1	2	2,5	1

Valeurs et incertitudes des grandeurs utilisées pour calculer le flux, soient : la période du cobalt 60, la section efficace de capture totale du cobalt 59, les temps d'irradiation et de refroidissement, la masse d'alliage de moniteur et la proportion de cobalt, l'efficacité de détection et le produit mesuré $A\varepsilon$. L'incertitude sur le temps de refroidissement est due à la durée des mesures gamma et est majoré par 1%. Cette valeur a une influence négligeable sur le résultat final vu la durée de vie du cobalt 60.

En utilisant les équations données au III.D, et sous couvert des hypothèses prises (en particulier la valeur de la section efficace moyenne de capture du cobalt 59) nous obtenons une activité de $8,23 \cdot 10^5 \text{Bq}$ et donc un flux de :

$$\phi = (6,03 \pm 0,23) \cdot 10^{14} \text{n.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1} ; \Delta\phi/\phi = 3,8\%$$

5. Conclusion des premières mesures

Tout d'abord, avant de conclure sur l'étalonnage de la chambre et ces premières mesures, nous tenons à souligner le temps pris par ce travail (plus d'un an), qui somme toute est une "simple" vérification du bon fonctionnement de la chambre et sa mise en place à Grenoble. En effet de longs mois sont nécessaires pour vérifier que chaque élément fonctionne, puis réparer ceux qui ne marchent pas et s'apercevoir de l'existence de nouveaux problèmes (ou d'anciens qui avaient été réglés !). Voici pour illustration une liste des domaines couvrant les nombreux problèmes que nous avons résolus : mécanique (pièces de la chambre à ré-usiner), électrotechnique (moteurs bloqués ou chauffant), génie électrique (baie de commande, tensions de fonctionnement), électroniques (dysfonctionnement des modules et du programme d'acquisition), "détection" (perte de vide du Germanium, masses volantes), "vide" (pompes qui chauffent, fatiguées ou hors services)...

Finalement, ces premières expériences de l'ensemble du dispositif expérimental ont été de réelles sources de satisfaction comme d'inquiétude. D'un côté la cible et le moniteur de

flux se comportent de manière parfaite (sans fusion ni déformation) ainsi que les communications physiques et d'automatisme entre l'échangeur de source de l'ILL et notre chambre. D'un autre côté nous avons mis en évidence de très forts taux de comptage gamma, qui empêchent toute mesure rapide, y compris pour le détecteur PIPS. De plus, même après un refroidissement de plusieurs jours, ce bruit de fond perturbe sensiblement les spectres. La présence d'une contamination alpha devrait aussi gêner les mesures en rendant encore plus délicate la détermination des surfaces des pics, c'est-à-dire en augmentant les incertitudes. En particulier le bruit difforme (et donc pas simplement modélisable) compris entre 3,7 et 4,8MeV sera très gênant pour certaines expériences, et par exemple celle du plutonium 242, comme va le montrer la partie suivante.

IV.C. Les expériences

Les expériences effectuées ont pour but de mesurer les sections efficaces de capture de l'américium 243 et du plutonium 242. Pour l'américium 243, nous chercherons à déterminer les sections efficaces de capture totale, vers les deux états de l'américium 244, et partielle vers le seul état fondamental. Pour cela nous avons irradié une cible d'américium 243 et une cible de plutonium 242 qui ont ensuite été analysées dans notre chambre de spectroscopie. Le flux a été mesuré par activation neutronique de cobalt et la composition de la cible a été déterminée par spectroscopie alpha des isotopes d'américium 243-curium 244 d'une part et plutonium 242-américium 243 d'autre part. La décroissance gamma de l'américium 244 –état fondamental– a aussi été suivie par spectroscopie gamma.

Ces sections efficaces de capture sont relativement bien connues (cf. IV.C.7) et l'objectif de ces expériences est autant de valider la méthode et l'outil expérimental que de faire de nouvelles mesures en spectre thermique. Nous chercherons aussi à tester le fonctionnement de l'acquisition dans des domaines de fonctionnement que nous n'avons pas pu atteindre auparavant et à mettre en évidence de possibles modifications du système pour de futures expériences.

Après avoir montré les résultats des analyses avant activation, nous allons étudier l'évolution des cibles sous le flux de neutrons et donner les résultats des analyses par spectroscopie : les mesures gamma des moniteurs de flux et de l'américium 244 puis les mesures alpha des cibles d'américium 243 et de plutonium 242. Enfin ces résultats seront traduits en terme de section efficace.

1. Mesures avant irradiation

Les spectres alpha des cibles non irradiées d'américium 243 et, respectivement, de plutonium 242 nous permettent de faire les ajustements en angles solides décrit au IV.A.4).

Les activités initiales sont respectivement mesurées égales à 86560Bq et 1544Bq ce qui donne des masses de 11,7mg et 10,5mg (cf. Figure 47 et Figure 62). Les spectres obtenus mettent aussi en évidence la présence de contamination, américium 241 et plutonium 239, en quantité compatible avec les certificats de fabrication (cf. tableau ci dessous), mais l'effet de cette contamination est négligeable sur le signal avant et après irradiation.

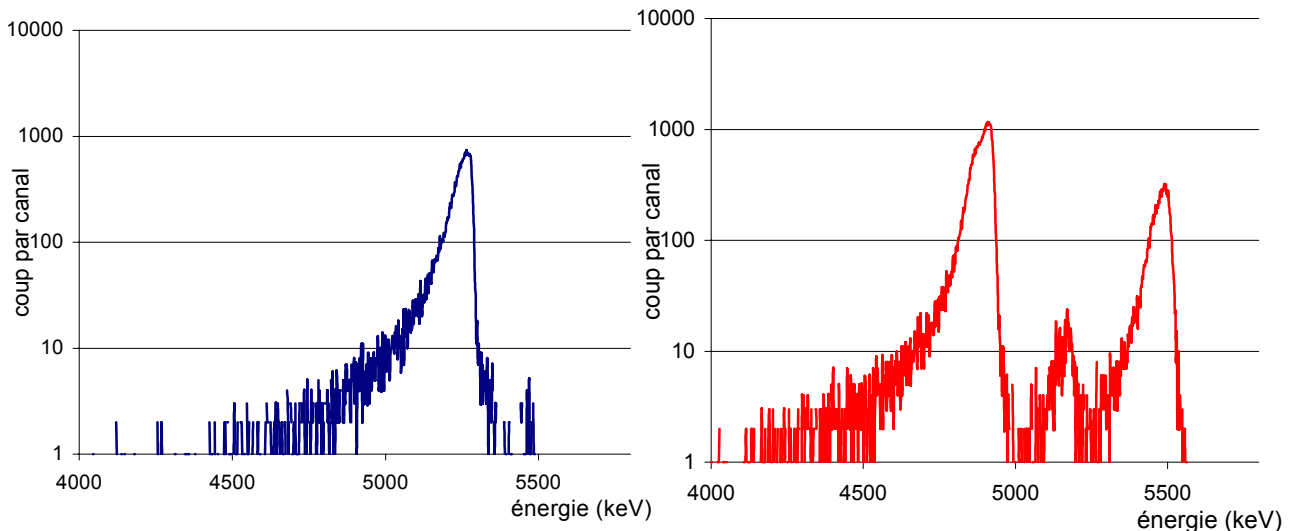


Figure 61 : spectres alpha des cibles d'américium 243 (à droite) et de plutonium 242 (à gauche) avant irradiation à une distance de 5cm pour des temps de comptages respectifs de 100s et 9200s. On peut remarquer sur le spectre de plutonium 242 une contamination en américium 241 (vers 5480keV). D'autres spectres alpha de la cible d'américium 243 sont donnés au IV.B.2.a)

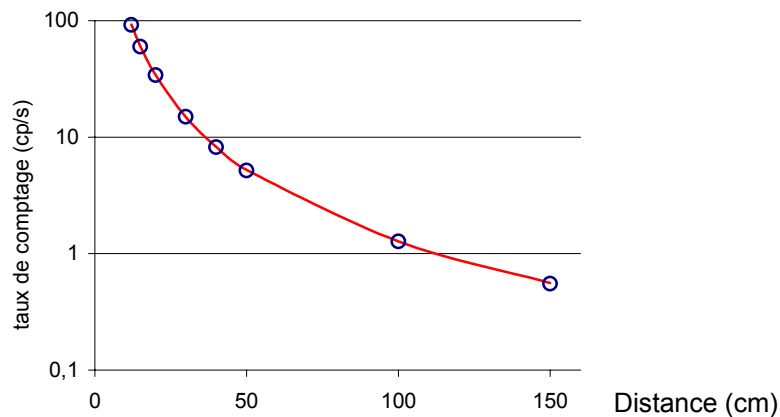


Figure 62 : ajustement obtenu pour la cible de plutonium avant irradiation en laissant libre le paramètre distance (afin de tenir compte de la géométrie réelle de la cible cf.IV.A.4). Les résultats obtenus (à mieux que 0,5%) sont : $\Delta d = 0,04\text{cm}$ ($\chi^2=10,57$) et " $\text{AI}\epsilon$ " = 1544 Bq pour la cible de plutonium 242.

Isotope	Cible d'américium 243
^{241}Am	0,011 %
^{242}Am	0,002 %
^{243}Am	99,987 %

Isotope	Cible de plutonium 242
^{238}Pu	0,004 %
^{239}Pu	0,005 %
^{240}Pu	0,022 %
^{241}Pu	0,035 %
^{242}Pu	99,932 %
^{244}Pu	0,002 %

Extrait des certificats de fabrication donnant la composition des cibles utilisées en actinides contaminant (en % du nombre total d'atome). Ces analyses isotopiques ont été faites le 06/04/1983 pour l'américium 243 et le 20/03/1989 pour le plutonium 242

Les masses des moniteurs de flux d'alliage de cobalt ont été déterminées par pesée et sont égales à 7,43mg (à 1%) pour l'américium 243 et 7,43mg (à 1%) pour le plutonium 242

2. Irradiation

Après les mesures initiales, les deux cibles ont été irradiées respectivement pendant 3h28min pour l'américium 243 et 1j23h58min30s pour le plutonium 242. Pour prévoir les réactions à prendre en compte dans le calcul symbolique de l'évolution des cibles nous pouvons comparer les caractéristiques nucléaires principales des isotopes produits et la valeur prévue, environ $6 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, du flux neutronique, ϕ .

	$T_{1/2}$	σ_{cap} (b)	$T_{1/2}^{\text{disp(1)}}$ (j)	σ_f (b)
^{242}Pu	$3,75 \cdot 10^5 \text{ an}$	16,2	815	<0,2
^{243}Pu	4,96 h	<85	52	170
^{243}Am	7370 an	~ 4,5	2600	0,06
		69,6	192	
^{244}Am	10,1 h	/	7	1900
$^{244\text{m}}\text{Am}$	~26 min		10	1350
^{244}Cm	18,1 an	12,8	976	0,9

Caractéristiques nucléaires principales des isotopes importants des deux expériences effectuées : période, section efficace de capture, demie vie de disparition par capture et fission²² et section efficace de fission. Les sections efficaces sont données pour un spectre de neutron supposé maxwellien à 50°C, soit égales²³ à $\sigma_0 \cdot \sqrt{\pi \cdot 293 / 4 \cdot 323}$

Une simple application des équations et principes du III.D.2 permet de déduire quelles sont les réactions majoritaires lors de l'irradiation ainsi que les équations reliant les grandeurs présentées dans le tableau ci-dessus.

Les réactions à prendre en compte sont :

- les captures simples, $\text{Pu}^{242}(\text{n},\gamma)\text{Pu}^{243}$; $\text{Am}^{243}(\text{n},\gamma)\text{Am}^{244}$; $\text{Am}^{243}(\text{n},\gamma)\text{Am}^{244\text{m}}$ et $\text{Am}^{244}(\text{n},\gamma)\text{Am}^{245}$;
- les désintégrations bêta, $\text{Am}^{244} \mapsto \text{Cm}^{244}$; $\text{Am}^{244\text{m}} \mapsto \text{Cm}^{244}$; $\text{Pu}^{243} \mapsto \text{Am}^{243}$.

Il est nécessaire *a priori* de considérer toutes ces réactions et uniquement celles-ci d'après les équations différentielles (cf. III.D.2) et les données nucléaires des isotopes considérés.

²² La demie vie de disparition par capture et fission est égale au temps au bout duquel la moitié de la quantité initiale d'un isotope donné a disparu par capture neutronique dans un flux donné. Elle vaut : $\ln(2) / [(\sigma_{\text{cap}} + \sigma_{\text{fs}}) \cdot \phi]$. Le flux a ici été pris égal à $6 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$

²³ La valeur moyenne d'une section efficace suivant une loi en $1/v$, $\sigma = \sigma_0 \sqrt{E_0/E}$, dans un flux maxwellien à une température T, $\phi_{\text{max.}} \propto (kT)^{-3/2} \cdot E \cdot e^{-E/kT}$ vaut $\langle \sigma \rangle_{\phi} = \sigma_0 \cdot \frac{\sqrt{\pi}}{2} \cdot \sqrt{\frac{T_0}{T}}$

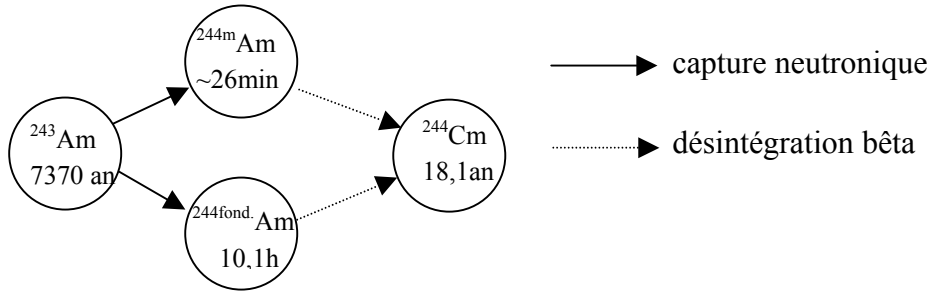


Figure 63 : schéma d'évolution à prendre en compte pour l'américium 243 dans notre expérience.

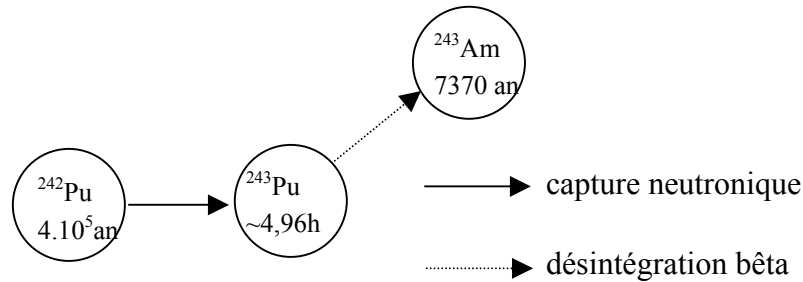


Figure 64 : schéma d'évolution à prendre en compte pour le plutonium 242 dans notre expérience.

Finalement en appelant N_{Am3} le nombre d'atomes d'américium 243 (au temps t), σ_t^{Am3} sa section efficace totale de capture, σ^4 et σ_c^4 les sections efficaces de capture de l'américium 243 (vers l'américium 244) et de l'américium 244 recherchées, on obtient pour un temps d'irradiation, t_{irr} , et après un temps de refroidissement long devant la demie vie de l'américium 244 (10,1h) :

$$N_{Am3} = N_{Am3}^0 \cdot e^{-\sigma_t^{Am3} \cdot \phi \cdot t_{irr}} \quad \text{et} \quad N_{cm4} = N_{Am3}^0 \cdot \left[1 - e^{-\sigma_t^{Am3} \cdot \phi \cdot t_{irr}} \right]$$

soit
$$\sigma_t^{Am3} = \frac{1}{\phi t_{irr}} \cdot \ln \left(1 + \frac{N_{cm4}}{N_{Am3}} \right) \quad \text{ou bien} \quad \sigma_t^{Am3} = \frac{-1}{\phi t_{irr}} \cdot \ln \left(1 - \frac{N_{cm4}}{N_{Am3}^0} \right)$$

En prenant l'hypothèse d'un flux constant pour la création d'américium 244 (de constante de décroissance radioactive λ), on obtient aussi :

$$\sigma_4 = \frac{N_{Am4}}{N_{Am3}^0} \cdot \frac{\lambda + \sigma_c^4 \phi - \sigma_t^{Am3} \phi}{\phi \left[e^{-\sigma_t^{Am3} \phi t} - e^{-(\lambda + \sigma_c^4 \phi) t} \right]} \quad \text{ou bien} \quad \sigma_4 = \frac{N_{Am4}}{N_{Am3}} \cdot \frac{\lambda + \sigma_c^4 \phi - \sigma_t^{Am3} \phi}{\phi \left[1 - e^{(\sigma_t^{Am3} \phi - \lambda - \sigma_c^4 \phi) t} \right]}$$

Ces expressions sont transposables directement pour l'américium 244 métastable.

En faisant de même à partir du plutonium 242 et avec des notations transparentes nous obtenons sa section efficace de capture, après décroissance du plutonium 243 :

$$\sigma_c^{Pu2} = \frac{1}{\phi t_{irr}} \cdot \ln \left(1 + \frac{N_{Am3}}{N_{Pu2}} \right) \quad \text{ou bien} \quad \sigma_c^{Pu2} = \frac{-1}{\phi t_{irr}} \cdot \ln \left(1 - \frac{N_{Am3}}{N_{Pu2}^0} \right)$$

Expérimentalement on veut donc mesurer les activités en américium 243, en plutonium 242, en curium 244 (spectroscopie alpha), en américium 244 et en américium 244 métastable (spectroscopie gamma). Le tableau suivant rappelle les principaux rayonnements émis par ces corps.

Noyau	Radioactivité	Énergie (intensité)	Énergie (intensité)	Énergie (intensité)
Plutonium 242	alpha	α 4901keV (76,5%)	α 4856keV (23,5%)	
Plutonium 243	bêta	γ 84keV (23%)		
Américium 243	alpha	α 5275 keV (87,9%)	α 5233 keV (10,6%)	γ 74,7keV (68,2%)
Américium 244 fond.	bêta	γ 744 keV (66%)	γ 898keV (28%)	γ 154keV (16%)
Américium 244 m.	bêta	γ 985keV (1,05%)		
Curium 244	alpha	α 5805 keV (77%)	α 5763 keV (23%)	

Énergie et intensité des principaux actinides présent au cours des irradiations (cf. [77])

La mesure des gamma émis par décroissance de l'américium 244 métastable doit être très rapide (dans les 5 premières heures de refroidissement pour une période de 26 minutes) et ne semble pas réalisable à cause des forts taux de comptage prévisibles (cf. IV.B.3). Sa période et la section efficace de capture vers cet état ne seront donc pas déterminées ici. De même la mesure des gamma du plutonium 243 (période de 4,9h) ne semble pas réaliste et la seule désintégration gamma que nous pouvons observer est celle de l'américium 244 (période de 10,1h).

Toutes les autres mesures de spectroscopie alpha peuvent se faire après un long refroidissement et ne devraient pas poser de problèmes.

3. Les flux

Les spectres des moniteurs de flux présentent une forte déformation des raies du cobalt due aux taux de comptage importants (cf. IV.B.4). Les surfaces sont donc mesurées par une somme canal par canal en soustrayant un bruit de fond linéaire (cf. IV.A.3) et l'utilisation de l'ajustement en angle solide des taux de comptage dans les raies est indispensable pour vérifier le fonctionnement de l'électronique et la validité des mesures.

Les résultats pour l'américium 243 ont été détaillés au IV.B.4). Le tableau suivant donne ceux obtenus pour la cible de plutonium.

Distance (cm)	Taux de comptage	$T_x \cdot 4\pi / \Omega$
42,73	1000	1104617
46,23	846,6	1094055
51,23	690,5	1095247
56,23	574,1	1096755
61,23	488,3	1105826
71,23	357,9	1096541
80,23	283,9	1103448
moyenne		1099499

Taux de comptage (s^{-1}) dans la raie à 1173keV du cobalt en fonction de la distance du détecteur ; et rapport taux de comptage–fraction d’angle solide, théoriquement égal à $A_{co} I_{\gamma} \epsilon_{1173}$. Les incertitudes statistiques sont inférieures au pour-cent et deviennent donc négligeables devant l’incertitude de méthode de mesure des raies lorsque l’on considère l’ensemble des 7 mesures.

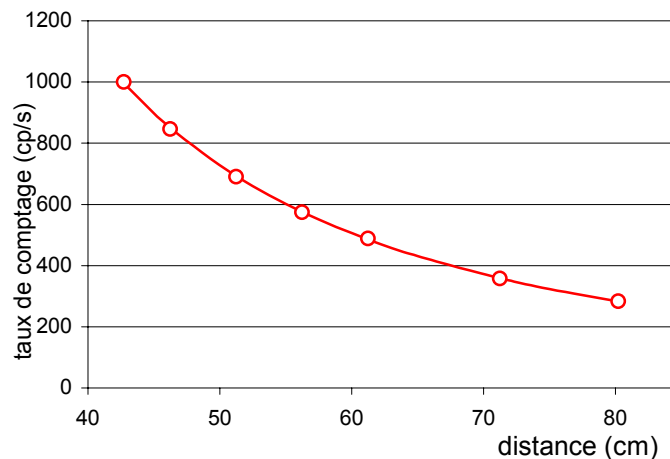


Figure 65 : ajustement en angle solide obtenu pour le moniteur de flux de la cible de plutonium 242. On a : $\Delta d = -0,056 \text{ cm}$ ($\chi^2/\text{deg.}=1,17/5$) ; $A I \epsilon = 1103100 \text{ Bq}$ (à 1%)

La valeur des grandeurs utilisées pour calculer le flux pour le plutonium 242 sont données dans les tableaux du IV.B.4 et ci-dessous.

Grandeur	t_{irr}	t_{ref}	$A \epsilon_{1173}$
Valeur	48h	18j	1101300Bq
Incertitude (%)	0,09	2	1

Valeurs et incertitudes des grandeurs utilisées pour calculer le flux pour la cible de plutonium 242, soient : les temps d’irradiation et de refroidissement et le produit mesuré $A \epsilon$. L’incertitude sur le temps de refroidissement est due à la durée des mesures gamma et est majoré par 1%. Cette valeur a une influence négligeable sur le résultat final vu la durée de vie du cobalt 60.

Finalement, en appliquant les équations du III.C.5 nous avons des activités de $(8,23 \pm 0,22) \cdot 10^5 \text{Bq}$ et $(1,13 \pm 0,03) \cdot 10^7 \text{Bq}$ pour les moniteurs de flux des américium 243 et plutonium 242. Les valeurs de l'intensité du flux sont obtenus à 3,8% près et valent :

- pour l'américium 243 : $\phi = (6,03 \pm 0,23) \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$
- pour le plutonium 242 : $\phi = (6 \pm 0,23) \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$

Les incertitudes finales sont dues principalement à la détermination de l'efficacité du détecteur et à l'homogénéité de l'alliage.

4. La mesure gamma de l'américium 244

Pour déterminer la section efficace de capture de l'américium 243 vers l'américium 244 dans son état fondamental (cf. IV.C.2) il faut mesurer le nombre d'atomes d'américium 244 formés à la fin de l'irradiation avant que celui-ci ait complètement décrépu ($T_{1/2} = 10,1 \text{h}$ à 1 %).

Nous avons obtenu après irradiation un fort bruit de fond gamma qui sature l'électronique et déforme les spectres obtenus. Les taux de comptage sont supérieurs à 100kcp.s^{-1} et le temps mort est supérieur à 50 %. En théorie, une seule mesure permet de déterminer l'activité cherchée en américium 244, mais vu le domaine de fonctionnement de l'électronique il nous semble nécessaire de prendre plusieurs spectres pour vérifier la cohérence des résultats et donner une incertitude raisonnable au résultat.

Nous avons pris une série de spectres avec une distance détecteur germanium-cible maximum (soit 80,3cm) et un temps de comptage réel inférieur ou égal à une heure pour avoir un temps mort environ constant à chaque mesure (cf. III.D.2). Nous appelons t_{ref} le temps entre la fin de l'irradiation et l'instant auquel on attribue l'activité mesurée, $A(t_{ref})$. Pendant les mesures l'activité de l'américium 244 décroît selon la loi :

$$A(t_{ref}) = A_0 e^{-\lambda_{Am} t_{ref}} \quad (\text{IV.6})$$

La Figure 66 présente un exemple de spectre après 17,4h de refroidissement, la Figure 67 montre la forme de la raie à 744keV de l'américium 244.

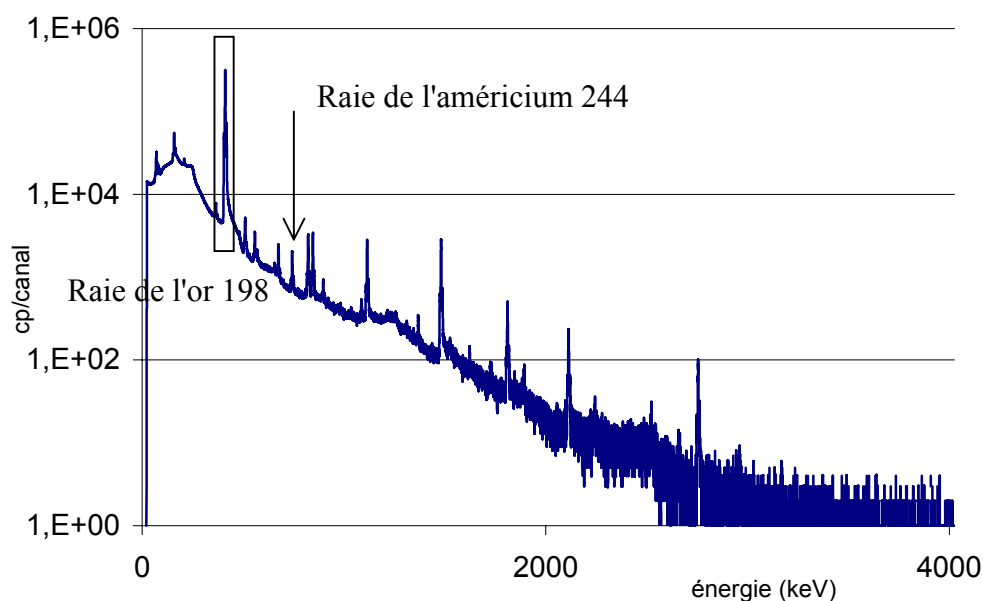


Figure 66 : Spectre gamma de la cible d'américium après 3h30 d'irradiation et 17,4h de refroidissement. Le temps mort est supérieur à 70%. Les autres raies de l'américium 244 ne sont pas exploitables

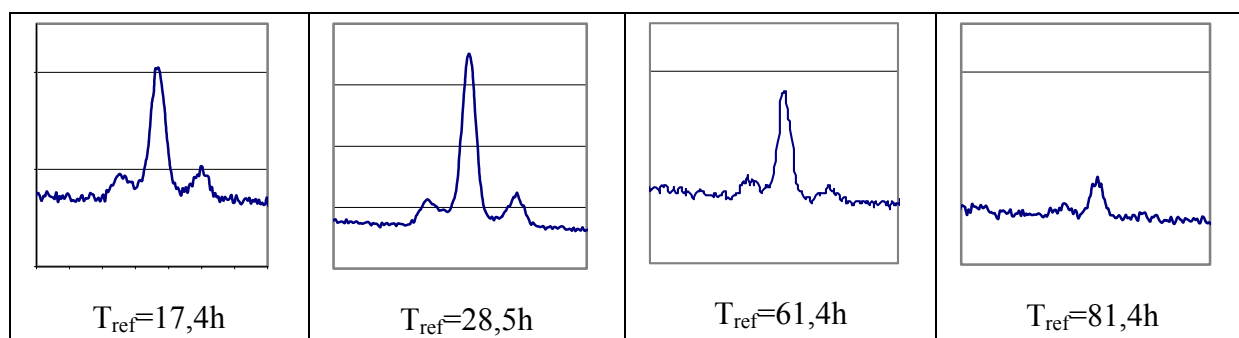


Figure 67 : exemples de spectres de la raie à 744keV de l'américium 244. Le nombre de coups par canal est représenté en fonction de l'énergie, avec une échelle linéaire différente pour les quatre courbes, à des temps de refroidissement égaux à : 17,4h– 28,5h– 61,4h et 71,4h.

Les tableaux suivants donnent les résultats numériques obtenus des taux de comptages²⁴ pour l'américium 244 et l'or 198 et les activités à la fin de l'irradiation, obtenues avec la formule précédente. Après 17h, 47h et 70h de décroissance, les taux de comptage donnés par l'électronique sont de l'ordre de $250\text{--}300\text{kcp}\cdot\text{s}^{-1}$, $150\text{kcp}\cdot\text{s}^{-1}$ et $90\text{kcp}\cdot\text{s}^{-1}$.

Le tableau ci-dessous met en évidence les limites de l'électronique et des mesures.

Dans les premières dizaines d'heures après l'irradiation, le taux de comptage est trop élevé pour faire des mesures précises et l'efficacité électronique ne semble pas correctement corrigée par le système d'acquisition.

²⁴ Taux de comptage = (surface mesurée)/(temps effectif de mesure) ; le temps effectif de mesure est donné par l'électronique d'acquisition

d'angle solide vaut $2,573 \cdot 10^{-4}$ avec une incertitude négligeable. Nous pouvons donc majorer l'incertitude sur le taux de comptage à 10% sans changer sensiblement le résultat final (moins de 1% d'écart) et nous obtenons donc finalement une activité en américium 244 à la fin de l'irradiation égale à :

$$A_0 = (1,74 \pm 0,52) \cdot 10^7 \text{ Bq} \text{ soit } (\Delta A/A) = 29,9\%$$

5. Mesure alpha de la cible d'américium 243

Les spectres alpha de la cible d'américium 243 après irradiation (cf. Figure 68) se caractérisent par une forte déformation des pics due aux bruits de fonds gamma et bêta. La contamination alpha reste faible par rapport aux activités à mesurer. L'objectif de cette mesure est de déterminer le rapport du nombre d'événements dans les raies de l'américium 243 et du curium 244.

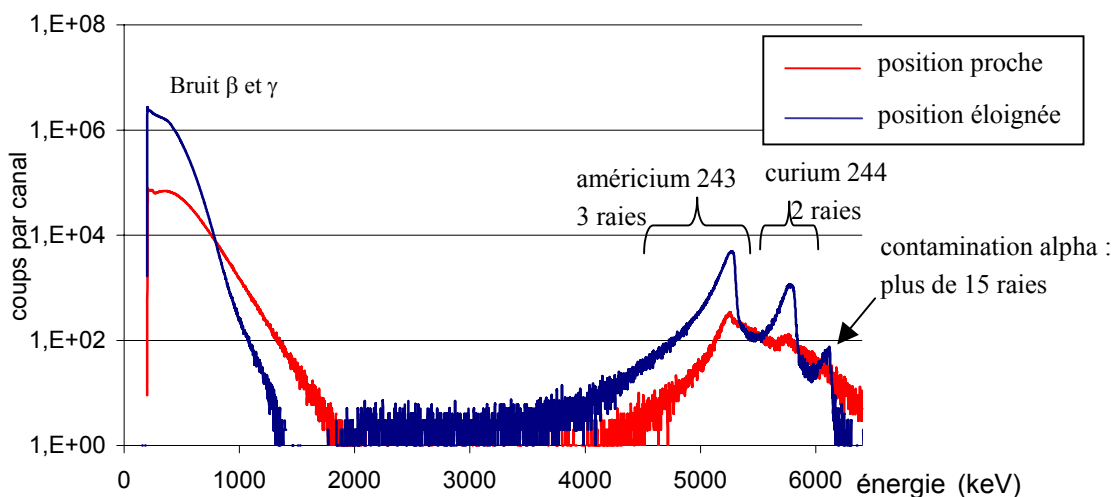


Figure 68 : Spectres alpha de la cible d'américium 243 après 3h28 d'irradiation et 5j de refroidissement. La distance cible détecteur est égale à 10,3mm et 298,3mm et les temps de comptages effectifs sont respectivement de 60 et 38200 secondes pour des temps morts de 90 % et 7 %.

Américium 243		Curium 244	
Énergie	Intensité	Énergie	Intensité
5275,3	87,4	5762,7	23
5233,3	11	5804,8	76,8
5181	1,1	X	

Énergie et intensité des principales raies alpha de l'américium 243 et du curium 244

Pour déterminer la surface des raies correspondantes à l'américium 243 et au curium 244 deux approches ont été suivies :

• En intuitant la forme des pics, on peut interpoler le spectre comme une superposition d'une quinzaine de raies (cf. [76]). Chaque raie est paramétrée ainsi :

$$\text{Pour la partie droite du pic : } (1-a)e^{-\frac{(x-x_0)^2}{2b^2}} + a \cdot e^{-\frac{(x-x_0)}{c}}$$

$$\text{Pour la partie gauche du pic : } (1-d)e^{-\frac{(x-x_0)^2}{2f^2}} + \frac{d}{1+\left(\frac{|x-x_0|}{g}\right)^h}$$

avec : x énergie ; x_0 énergie de la raie ; a , b , c , d , f , g et h des paramètres de calculs devant assurer la continuité de la raie. Ces paramètres sont égaux pour chaque raie et sont déterminés par un ajustement sur l'ensemble du spectre. La forme droite de la raie s'interprète comme la somme d'une demie gaussienne de résolution b due au détecteur et d'un terme exponentiel pour tenir compte des effets d'empilement alpha plus bêta ou gamma. La forme gauche de la raie est la somme d'une demie gaussienne de résolution f et d'une maxwellienne pour traduire les effets électroniques.

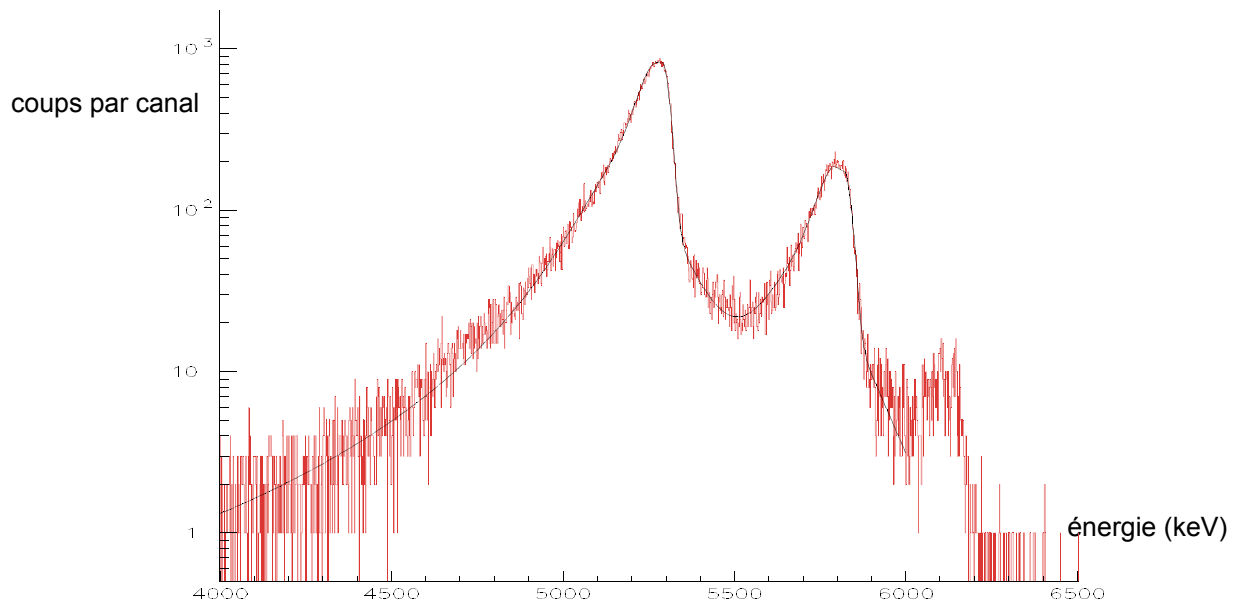


Figure 69 : spectre d'américium 243 illustrant la méthode d'interpolation décrite dans le paragraphe précédent. Le χ^2 de l'ajustement vaut : 897 pour 772 degrés de liberté. La distance détecteur-cible est de 198,3mm et le temps de comptage effectif est de 4300s.

L'énergie et l'importance relative des raies pour chaque élément est fixée (cf. [77] par exemple). Pour chaque noyau présent dans sur le spectre, soit dans le cas présent ^{243}Am et ^{244}Cm (signal à mesurer), ^{238}Pu , ^{242}Cm , ^{244}Cm , ^{249}Cf (contamination alpha) nous recherchons donc à déterminer l'activité totale sur le spectre qui est égale à la somme des nombres d'événements compris dans les deux ou trois principales raies de chaque élément.

Les ajustements sur les 8 spectres acquis à distances différentes donnent pour chaque paramètre les valeurs du tableau suivant.

Distance (cm) Paramètres	38,3	48,3	58,3	68,3	98,3	148,3	198,3	288,3
a	0,6542	0,5775	0,404	0,311	0,228	0,12	0,12	0,805
b	0,1554	7,366	14,12	16	15,9	18,9	19,4	14,31
c	287,8	202,3	137,2	123	115,5	105,5	88,6	82,8
d	0,2974	0,392	0,314	0,314	0,314	0,314	0,314	0,307
f	58,83	45,98	48,5	48,5	48,5	48,5	48,5	51,4
g	213	168,9	182,8	182,8	182,8	182,8	182,8	185
h	2,843	2,698	2,8	2,8	2,8	2,8	2,8	2,8
N ²⁴³ Am	69800	32770	80370	56950	41001	22860	77850	431900
N ²⁴⁴ Cm	12700	6869	18230	12800	9336	5282	18170	100800
N ²⁴² Cm	0,6142	4,98.10 ⁻⁴	762	536,8	356,7	154	724,5	3790
N ²⁴⁴ Cm (contaminant)	0,0115	9,26.10 ⁻⁵	14,1	17,23	7,89	3,3	15,7	83,7
N ²⁴⁹ Cf	0,00258	2,09.10 ⁻⁵	3,2	3,9	1,34	0,564	2,65	18,9
N ²³⁸ Pu	0,0033	2,67.10 ⁻⁵	4,09	4,98	2	0,848	3,99	24,2
χ^2 / degré de liberté	972/619	618,9/586	798/651	697/569	717/598	670/594	897/772	1710/776

Valeur des paramètres de chaque ajustement. Les valeurs de b, c, f et g sont en keV, a, d et h sont sans unité. Les valeurs des surfaces, N_{éléments} sont données en nombre total d'événements.

Distance (mm)	T _x (²⁴³ Am) (s ⁻¹)	T _x (²⁴³ Am) · 4π / Ω	T _x (²⁴⁴ Cm) (s ⁻¹)	$\frac{T_x(^{243}\text{Am})}{T_x(^{244}\text{Cm})}$	Temps mort (%)
38,3	1163	218484	212	5,49	90
48,3	546	161921	114	4,77	80
58,3	200	118353	45,6	4,41	56
68,3	142	110042	32	4,45	46
98,3	82	99720	18,6	4,39	32
148,3	32,6	90186	7,55	4,32	16
198,3	18,1	89350	4,22	4,29	12
288,3	11,3	87428	2,64	4,28	7

Taux de comptage pour l'américium 243 et le curium 244 d'après la première méthode. Les incertitudes statistiques sont négligeables devant une incertitude due à la méthode de détermination de la surface des raies qui vaut 2%.

Dans cette méthode, le bruit de fond pour une raie résulte uniquement des raies alpha des autres éléments et ne nécessite donc pas d'hypothèses supplémentaires. Nous obtenons les résultats du tableau ci-après avec des incertitudes de l'ordre de 2 % sur la mesure des surfaces.

- En constatant la relative séparation des trois "zones" sur le spectre (cf. Figure 68), nous pouvons tracer "à la main" des limites entre les pic d'américium 243, de curium 244 et de contamination. Une somme, canal par canal, des événements sur le spectre permet de conclure sur la surface de chaque "zone".

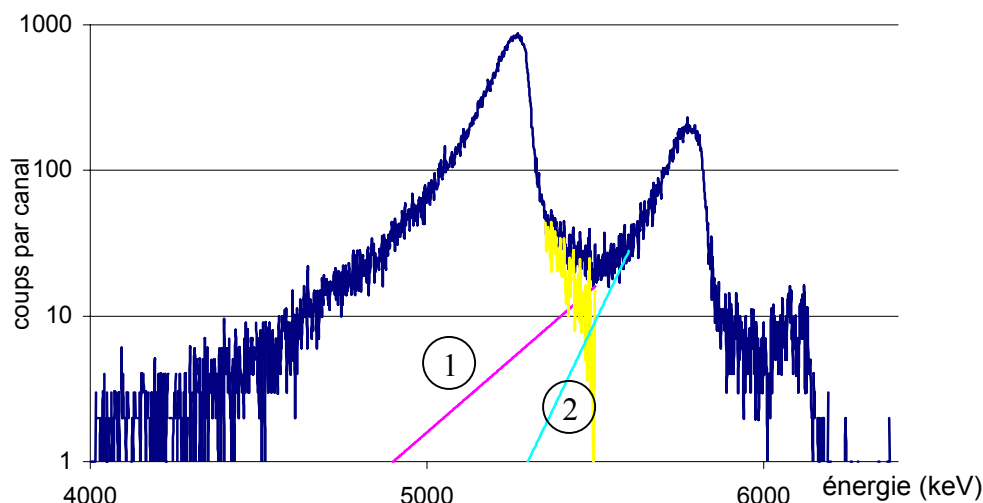


Figure 70 : spectre d'américium 243 de la Figure 69 avec la deuxième méthode de mesure des surfaces des pics. Deux séparations possibles, 1 et 2, ont été dessinées sur le spectre et la valeur des surfaces associées, N, sont :

- pour 1 : $N(^{243}\text{Am})= 76710$; $N(^{244}\text{Cm})=19276$; rapport =3,98 ;
- pour 2 : $N(^{243}\text{Am})= 78172$; $N(^{244}\text{Cm})= 17812$; rapport = 4,39 .

Les surfaces réelles des raies d'américium 243 et de curium 244 semblent comprises entre ces deux valeurs et nous associons une incertitude de 7% aux résultats de cette méthode

La Figure 70 montre que les incertitudes de la deuxième méthode sont plus élevées et elle n'est donc finalement pas employée. Cependant, rien ne permet d'affirmer que la première méthode est plus "juste" que la seconde ou plus efficace. La première se fonde sur des postulats : forme de raie, linéarité et justesse de la calibration en énergie, présence des corps considérés. La seconde ne fait aucune hypothèse, mais vise à encadrer de manière indiscutable le résultat obtenu.

D'après les équations du IV.C.2 nous savons que la variation de masse d'américium 243 pendant la mesure est négligeable (cf. IV.C.2) donc le rapport taux de comptage-fraction d'angle solide doit être égal à 86560Bq quelle que soit la distance cible-détecteur (cf. IV.C.1). Le tableau ci-dessus met donc en évidence des dysfonctionnements de l'électronique créant des variations d'un facteur presque 3 sur les activités mesurées. Ces différences sont

dues à la mauvaise détermination de l'efficacité électronique et du temps mort quand les taux de comptage sont très élevés.

Nous constatons cependant que seul le rapport $\frac{T_x(^{243}\text{Am})}{T_x(^{244}\text{Cm})}$ est utilisé pour déterminer la section efficace de capture de l'américium 243 (IV.C.2) et qu'il reste à peu près constant si nous faisons abstraction des deux premières mesures où le taux de comptage est le plus important. Cela semble prouver que le comportement du système de mesure est identique pour la détection de ces deux isotopes. Ces 6 mesures sont compatibles et leur moyenne vaut 4,36. La précision de chaque mesure est d'environ 1% statistique et 2% à cause de la méthode de détermination de la surface des raies. Les incertitudes statistiques se réduisent en combinant les mesures mais pas l'incertitude systématique. Finalement, nous pouvons conclure que le rapport $\frac{T_x(^{243}\text{Am})}{T_x(^{244}\text{Cm})}$ vaut 4,36 à 2% près.

6. Mesure α de la cible de plutonium 242

Les spectres de la cible de plutonium 242 après irradiation présentent les mêmes caractéristiques que ceux du paragraphe précédent, mais l'importance relative de la contamination alpha est plus importante. Ceci s'explique par un temps d'irradiation 14 fois plus grand et par des activités à mesurer plus faibles à cause des plus grandes périodes des isotopes considérés. Nous pouvons aussi remarquer l'importance du bruit alpha "informe" compris entre 4,3MeV et 4,7MeV. Ce signal est dû aux particules alpha émises par la contamination et qui traversent la feuille de nickel de 4 μm d'épaisseur (cf. III.E.1).

L'objectif de cette mesure est de déterminer le rapport des nombres d'événements compris dans les raies du plutonium 242 et de l'américium 243.

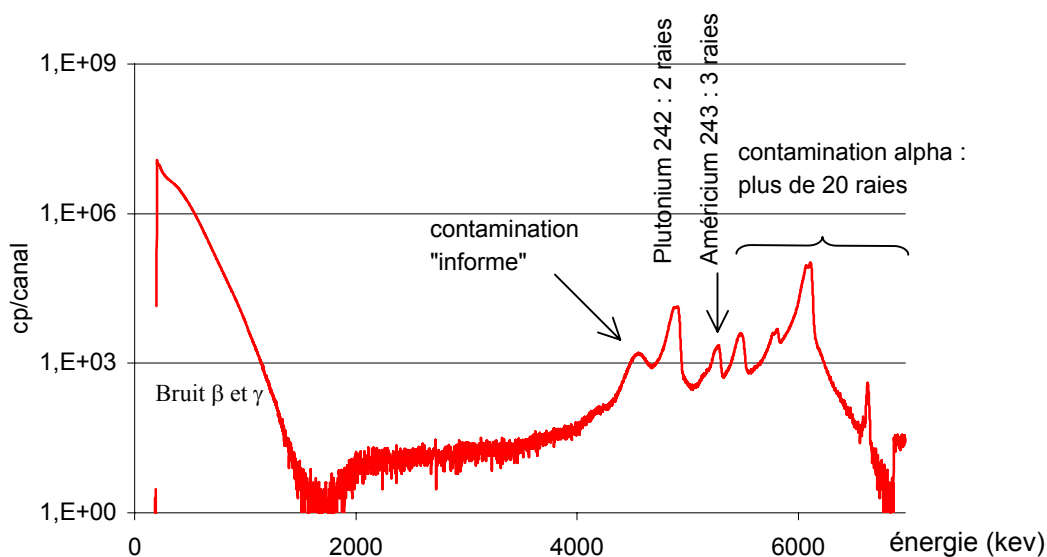


Figure 71 : Spectres alpha de la cible de plutonium 242 après 2j d'irradiation et un mois de refroidissement. La distance cible détecteur est égale à 48,3mm pour un temps de comptage effectif de 172800s et 4% de temps mort.

Les taux de comptage plus faibles nécessitent des temps d'acquisitions plus longs et seules trois mesures ont été prises pour des distances cible-détecteur de 28,3mm ; 48,3mm et 98,3mm. Les incertitudes statistiques sont de quelques pour-mille et sont donc négligeables devant les incertitudes de méthode dues à la détermination de la surface des raies.

La contamination alpha complique la détermination de la surface des raies et seule la première méthode du paragraphe précédent semble applicable. Nous avons obtenu les résultats présentés dans les tableaux suivant :

Distance (mm)	Tx(²⁴² Pu)	$Tx(^{242}Pu) \cdot 4\pi / \Omega$	Tx (²⁴³ Am)	$\frac{Tx(^{242}Pu)}{Tx(^{243}Am)}$	Temps mort (%)
28,3	14,8	1537	1,79	8,26	8
48,3	5,14	1525	0,61	8,41	4
98,3	1,24	1503	0,149	8,28	2

Taux de comptages pour le plutonium 242 et l'américium 243 pour trois distances source-détecteur. Les incertitudes sur les taux de comptage sont de 3% dues à la statistique et à la méthode.

Distance (cm) \ Paramètres	28,3	48,3	98,3
a	0,0926	0,059	0,0434
b	13,7	12,4	11,1
c	72,6	58,5	44
d	2,53	2,13	2,53
f	17,6	16,5	17,6
g	28,7	29,1	28,7
h	2,18	2,1	2,18
N ²⁴² Pu	4,346.10 ⁶	8,9.10 ⁵	155800
N ²⁴⁰ Pu	6,114.10 ⁴	1,16.10 ⁴	2100
N ²⁴³ Am	5,264.10 ⁵	1,02.10 ⁵	18800
N ²⁴¹ Am	8,672.10 ⁵	1,06.10 ⁵	30580
N ²⁴² Cm	3,252.10 ⁷	5,667.10 ⁶	1150000
N ²⁴⁴ Cm	8,94.10 ⁵	1,663.10 ⁵	31630
N ²³⁸ Pu	1,8.10 ⁵	3,344.10 ⁴	6362
N ²³⁸ Pu		8,24.10 ⁴	
χ ² / degré de liberté	15580/264	750/263	766/264

Valeur des paramètres de chaque ajustement. Les valeurs de b, c, f, g sont en keV, a, d et h sont sans unité. Les valeurs des surfaces, N_{éléments}, sont données en nombre total d'événements.

Le rapport taux de comptage sur fraction d'angle solide du plutonium 242 devrait être égal à 1544Bq d'après les paragraphes IV.C.1-2. Les résultats obtenus ont une incertitude de 3 % due à la détermination de la surface des raies et sont donc compatibles avec cette valeur.

En conclusion nous obtenons un rapport des activités en américium 243 sur plutonium 242 de 8,32 avec une incertitude associée de 3 %.

7. Les sections efficaces

7.a) Les sections efficaces intégrales et les extrapolations pour la valeur thermique

Les sections efficaces de capture de l'américium 243 et du plutonium 242, intégrées sur le spectre de neutrons se déduisent des formules du IV.2 et des résultats obtenus dans les paragraphes IV.C.3-4-5-6, soient la mesure du flux neutronique, la mesure de l'activité en américium 244 métastable et les mesures des rapports des activités.

On obtient :

– pour la section efficace de capture de l'américium 243 vers l'américium 244 –état fondamental– :

$$\sigma_{1 \text{ mesure}} = 4,72 \pm 1,42 \text{ b soit à } 30,1 \text{ \% près ;}$$

– pour la section efficace totale de capture de l'américium 243 vers l'américium 244 :

$$\sigma_{2 \text{ mesure}} = 74,8 \pm 3,25 \text{ b soit à } 4,35\% \text{ près ;}$$

– pour la section efficace de capture du plutonium 242 vers l'américium 243:

$$\sigma_{3 \text{ mesure}} = 22,7 \pm 1,09 \text{ b soit à } 4,8 \text{ \% près.}$$

Ces résultats sont les sections efficaces intégrales mesurées et sont à comparer avec les sections efficaces calculées par le monte-carlo MCNP [52] avec le modèle de l'ILL (avec la bibliothèque ENDF cf. III.D) :

$$\sigma_2 = 68,9 \text{ b} ; \sigma_2 / \sigma_{2 \text{ mesure}} = 0,92 \quad \text{et} \quad \sigma_3 = 17 \text{ b} ; \sigma_3 / \sigma_{3 \text{ mesure}} = 0,75$$

En supposant que le flux suit une distribution maxwellienne à 50°C et que la section efficace est proportionnelle à l'inverse de la vitesse des neutrons (loi dite "en 1/v") nous pouvons transposer les résultats expérimentaux à la valeur de la section efficace à 0,0253eV (en toute rigueur et avec la notation de Wetscott, les résultats obtenus sont égaux à $\sigma^0(\text{g+rs})$:

– pour la section efficace de capture de l'américium 243 vers l'américium 244 –état fondamental– :

$$\sigma_{1 \text{ mesure}}^0 = 5,59 \pm 1,68 \text{ b} ;$$

– pour la section efficace totale de capture de l'américium 243 vers l'américium 244 :

$$\sigma_{2 \text{ mesure}}^0 = 88,6 \pm 3,85 \text{ b} ;$$

– pour la section efficace de capture du plutonium 242 vers l'américium 243:

$$\sigma_{3 \text{ mesure}}^0 = 26,9 \pm 1,29 \text{ b.}$$

7.b) Comparaison avec les travaux existants

Les sections efficaces de capture des américium 243 et plutonium 242 ont déjà été mesurées à plusieurs reprises par différentes méthodes. Si les bibliothèques évaluées les plus utilisées ne montrent pas de grandes différences, il existe une assez grande dispersion des résultats expérimentaux. Nous pouvons remarquer que la majorité des précédentes mesures ont été faites dans des spectres pas très bien thermalisés et extrapolées à 0,0253eV. De plus elles ont été effectuées à partir d'échantillons assez massifs irradiés pendant des temps bien supérieurs aux nôtres.

La valeur à 0,0253eV de la section efficace de capture de l'américium 243 vers l'américium 244 dans son état fondamental, σ_1 , vaut 3,8b à 10,5% près d'après la référence [78] ; 4,3b d'après [79] ; 5,9b d'après [80] et 3,9b d'après [81]. La référence [82] donne un rapport de branchement (σ_1/σ_2) de 18,5 à (10%). Les grandes incertitudes de l'ensemble de ces résultats rendent notre mesure compatible avec ces valeurs.

Les tableaux suivant donne les résultats de précédents travaux pour les sections efficaces de capture des américium 243 et plutonium 242.

σ^0 (n, γ) pour l'américium 243 [barn]	Méthode	Année	Laboratoire [Référence]
88,6 \pm 3,9	ce travail	2001	
84,4	activation+spectroscopie	1997	NCL, Tokai-mura [81]
83 \pm 6	activation+spectroscopie	1975	NIIAR dimitrovgrad [83]
73,6 \pm 1,8 68,5 \pm 2 (corr.)	activation+spectroscopie	1957 - 1968	Chalk River, Canada [84] (corrigée en 1968)
78,0	radiochimie	1968	Savannah River [85]
73 \pm 6	activation+spectroscopie	1967	Khlopin Radievij Inst., [86]
66,0 $<\sigma<$ 84,0	radiochimie	1966	Savannah River [79]
140 \pm 50	activation+spectroscopie	1954	Berkeley, [87]
115	radiochimie	1954	Argonne [88]
75,35	évaluation		ENDF-B/VI
78,55	évaluation		JENDL 3.2
76,705	évaluation	1996	Maslov [89]
76,02	évaluation		JEF 2.2
76,99	évaluation		BROND-2

Valeur de la section efficace totale de capture de l'américium 243 selon différentes sources.

Section efficace de capture thermique [barns]	Méthode	Année	Laboratoire [Référence]
26,9±1,29	ce travail	2001	
18,5±1,0	spectroscopie gamma prompt	1979	Los Alamos National Lab. [90]
18,7±0,7	activation+spectroscopie	1971	Chalk River, Canada [91]
20	activation+spectroscopie	1968	Savannah River [85]
18,0< σ <23,0	radiochimie	1966	Savannah River, [79]
19,6±1	activation+spectroscopie	1957	Chalk River, Canada [84]
30,0±10,0	radiochimie	1954	Argonne National Lab. [92]
19,27	évaluation		ENDF-B/VI
18,80	évaluation		JENDL 3.2
18,52	évaluation	1984	JEF 2.2
18,69	évaluation		BROND-2

Valeur de la section efficace de capture du plutonium 242 selon différentes sources.

Les sections efficaces mesurées sont au-dessus des valeurs retenues par les évaluateurs, d'environ 10 % pour la section efficace de capture de l'américium 243 et de 25-30 % pour le plutonium 242. Cependant, dans le cas de l'américium 243 nous pouvons constater que les trois mesures les plus récentes (1975 [83] ; 1997 [81] et la notre) sont compatibles et il est donc possible que les prochaines versions des évaluations soient modifiées.

La méthode que nous avons utilisée pour mesurer les sections efficaces est relativement simple et les sources d'erreur (décrites dans le paragraphe suivant) sont peu nombreuses. Afin de valider notre résultat, nous pensons néanmoins qu'il est indispensable de faire une seconde mesure après un nouvel étalonnage de l'électronique et dans de meilleures conditions de bruit de fond.

Nous pouvons aussi signaler que la valeur obtenue pour la section efficace de capture de l'américium 241 est aussi supérieure à celle des évaluations, mais inférieure à celle mesurée récemment par une équipe japonaise (cf. annexe A).

7.c) Sources d'erreur

Les différences soulignées ci-dessus sont relativement grande par rapport aux incertitudes et à la simplicité de la méthode utilisée, surtout pour le plutonium 242. Ce paragraphe regroupe les sources possibles d'erreur que nous avons envisagées.

Les principales hypothèses utilisées pour écrire les équations sont : (H1) le flux de neutrons est maxwellien à 50°C et (H2) les sections efficaces de capture du cobalt, de

l'américium 243 et du plutonium 242 varie "en $1/v$ ". L'hypothèse (H2) est confirmée par les "facteurs g "²⁵ des isotopes considérés²⁶ (cf. [7] par exemple) : 1,0005 ; 1,0128 ; 1,01.

L'hypothèse (H1) est justifiée par la géométrie du réacteur et la température du gaz de neutron doit être celle de l'eau lourde. De plus une erreur sur cette valeur n'a qu'un faible effet sur la valeur des sections efficaces thermiques car la même méthode d'activation, sensible au produit $\sigma\phi$, est utilisée pour mesurer le flux et les sections efficaces²⁷. Une étude de "l'index épithermique", c'est-à-dire de la thermalisation du flux avec la méthode du cadmium ratio permettrait de confirmer expérimentalement (H1) [69]. Cette dernière est primordiale pour la mesure de la section efficace de capture du plutonium 242 et de l'américium 243 qui possèdent une grande résonance entre 1 et 4eV qui leur donne une "intégrale de résonance", I_{cd} d'environ $(1200\pm 300)b$ et $(1820\pm 70)b$ respectivement.

De plus nous avons supposé que l'intégrité de notre cible était conservée (ce que nous pouvons en fait vérifier par spectroscopie). Nous avons aussi considéré que le curium 244 et l'américium 243 que nous mesurons dans nos expériences vient des réactions de capture sur l'américium 243 et le plutonium 242. Ceci est justifié par la grande pureté de nos cibles (voir les compositions initiales au IV.C.1) et par les spectres de contamination du IV.B.3.

Les résultats expérimentaux utilisés sont la détermination de l'angle solide, la mesure des surfaces et la détermination de l'efficacité électronique. La combinaison de plusieurs résultats expérimentaux et théoriques montre que l'angle solide est très précisément déterminé. La mesure des surfaces est par contre délicate pour les spectres alpha et peut être une source d'erreur pas totalement maîtrisée, même si le χ^2 des ajustements de chaque spectre est bon²⁸. La détermination de l'efficacité expérimentale est phénoménologique et ne peut être résolue de manière théorique. L'efficacité intrinsèque des détecteurs a été contrôlée et mesurée de manière indépendante. Pour s'affranchir de l'efficacité électronique nous nous sommes ramené à mesurer des rapports de surface sur les spectres alphas.

Pour l'expérience avec le plutonium 242 les faibles taux de comptage ont, de plus, permis de vérifier que l'activité absolue mesurée en plutonium 242 était compatible avec les mesures avant irradiation.

Pour l'expérience avec l'américium 243, les incertitudes ont été calculées pour rendre compatible un ensemble de 8 mesures prises dans des conditions différentes de fonctionnement de l'électronique.

La linéarité de l'équation IV.1 en $(N.\varepsilon)$ implique que la seule hypothèse supplémentaire utilisé est que, en moyenne, l'électronique se comporte de façon identique (et

²⁵ Facteur traduisant l'écart de la section efficace considérée par rapport à une loi en $1/v$

²⁶ En toute rigueur, les valeurs données aux paragraphes précédents sont égales à $g\sigma^0$ et non à σ^0

²⁷ En effet, modifier la température du gaz de neutron de $T1$ à $T2$ modifie la relation entre la section efficace thermique et moyenne par un facteur $\sqrt{T1/T2}$. Ceci s'applique au moniteur de flux et aux sections efficaces mesurées donc cet effet s'annule si (H2) est vérifiée et que les réactions utilisées sont linéaires en $\sigma\phi$ (ce qui est le cas dans nos expériences)

²⁸ Rappelons que le test du χ^2 n'est qu'un test de rejet, pas une preuve de l'exactitude du résultat

linéaire) pour les signaux provenant des particules alpha des couples (américium 243, plutonium 242) et (américium 243, curium 244). L'origine et l'énergie de ces signaux sont semblables et cette hypothèse semble justifiée. La vérifier nécessiterait de faibles taux de comptages ou bien l'utilisation de source alpha et bêta de très haute activité pour étalonner complètement l'électronique en reproduisant les conditions de mesures.

8. Conclusions techniques

Les cibles d'actinides et l'instrument de mesure ont été conçus pour réaliser les expériences présentées dans les meilleures conditions possibles. D'après les spectres et résultats obtenus, plusieurs conclusions peuvent être formulées à ce sujet.

8.a) Pour le flux

La mesure de l'intensité du flux neutronique semble donner de bons résultats et les principales sources d'incertitudes sont dues à la détermination de l'efficacité du système de mesure : efficacité intrinsèque du détecteur germanium à l'énergie des raies du cobalt et efficacité électronique. Pour améliorer les résultats obtenus, il faut effectuer un nouvel étalonnage du système de mesure dans de meilleures conditions de bruit de fond, de taux de comptage (pour être représentatif des conditions expérimentales) et avec des sources étalons plus intenses et plus précises.

Nous devons cependant souligner l'hypothèse fondamentale de cette mesure qui est la connaissance de la section efficace moyenne du moniteur dans le spectre de neutrons, c'est-à-dire en fait la connaissance de la forme du spectre. (cf. paragraphe précédent).

8.b) Pour la mesure gamma de la cible d'américium 243

Malgré le collimateur, une très forte activité de la cible, au moins de l'ordre du gigabecquerel, rend impossible une mesure gamma rapide et/ou précise. Après quelques heures de décroissance et la disparition des produits d'activation à vie courte cette activité décroît avec les périodes des éléments suivants : manganèse 56 ($T_{1/2}=6h$), or 198 ($T_{1/2}=2,7j$) et or 199 ($T_{1/2}=3,1j$). L'américium 244 métastable ($T_{1/2}\sim 26m$) décroît complètement avant de pouvoir être détecté et la durée de vie de l'américium 244 –dans son état fondamental– est trop courte, 10h, pour avoir des résultats précis.

Pour réduire cette activité parasite il faut réduire la quantité d'or et de manganèse dans la cible. En admettant que l'or provienne majoritairement du nickel, il suffit par exemple de remplacer les deux anneaux en nickel du support proche (cf. III.D) par du titane pour diminuer ce problème.

Pour diminuer le taux de comptage de l'électronique il est aussi possible de collimater le détecteur germanium (en intercalant un écran entre la cible et une partie du cristal) ou bien de le remplacer par un autre détecteur de plus faible efficacité.

8.c) Pour les spectroscopies alpha

Deux effets perturbent les spectres alpha : le bruit bêta-gamma et la contamination alpha.

Le détecteur PIPS utilisé est sensible aux rayonnements bêta et gamma émis par la cible qui saturent l'électronique et déforment fortement les signaux. D'après les spectres gamma, ce bruit vient essentiellement des structures de la cible et non de l'actinide ou des produits de fission. Pour diminuer cet effet, il faut changer la nature des matériaux utilisés ou la forme de la cible. Ces deux contraintes ont cependant déjà été optimisées (à l'exception du support proche en nickel, cf. paragraphe ci-dessus) selon les contraintes du système d'irradiation du tube H9 de l'ILL. Si la chambre de mesure est installée dans un autre environnement le porte-cible et le collimateur alpha (cf. III.E.) doivent donc être revus pour améliorer cet aspect.

Pour diminuer l'effet de ce bruit de fond, il est aussi possible de changer le détecteur alpha, en le remplaçant par exemple par un PIPS plus fin, donc moins sensible aux rayons gamma et bêta, ou par des petites chambres à ionisation de grande résolution.

La présence de contamination qui se dépose sur la cible perturbe sensiblement le signal par la présence d'une part des raies alpha et d'autre part d'un bruit "informe" vers 4MeV. Selon les mesures envisagées, la déformation des raies, l'activité des noyaux à mesurer et l'énergie des alpha émis, les effets de cette contamination seront plus ou moins grands comme l'illustrent les deux expériences effectuées. Ce phénomène est propre au système d'irradiation de H9 et n'est pas lié au système de mesure que nous avons développé et que nous voulons tester.

Le bruit informe est dû aux particules alpha qui traversent la feuille de nickel. Pour modifier leur énergie apparente sur le spectre, nous proposons d'augmenter l'épaisseur de cette feuille. Le bruit se décale alors vers les basses énergies²⁹ et interfère moins avec le signal. Néanmoins cette solution présente les inconvénients de ne plus permettre aux produits de fission créés dans la cible de s'échapper et d'augmenter la masse de nickel, et donc le bruit bêta et gamma. Cette solution est donc particulièrement adaptée pour les spectroscopies alpha des isotopes à longue durée de vie où les activités sont faibles et les temps de refroidissement peuvent être longs.

²⁹ Doubler l'épaisseur de la feuille décale les alpha de 2MeV environ

Conclusion

La chambre de spectroscopie décrite dans le chapitre précédent a été installée à Grenoble, étalonnée et une première série d'irradiations a été effectuée. Nous avons montré que l'ensemble du système de mesure fonctionnait, que nous étions capable d'acquérir dans de bonnes conditions des spectres alpha et gamma et que des cibles pouvaient être irradiées puis transmises dans la chambre. De plus, par la mobilité de nos détecteurs et la bonne détermination symbolique des angles solides accessibles à notre système nous avons validé une méthode originale pour augmenter la fiabilité des mesures en prenant plusieurs spectres dans des conditions différentes.

Nous n'avons pas pu caractériser précisément les performances de l'instrument de mesure car : - nous n'avons pas pu nous procurer des sources étalonnées suffisamment actives³⁰ pour valider le système de mesure dans des conditions difficiles :

- le tube d'irradiation H9 que nous avons utilisé n'est finalement pas bien adapté aux mesures intégrales projetées : il est fortement contaminé et les contraintes sur la cible sont très fortes.

Même si les performances des systèmes de spectroscopie restent remarquables au vu des très difficiles conditions de mesure, elles sont moins bonnes que ce que nous espérons. La résolution des spectres gamma reste de l'ordre du keV, mais la mesure de l'efficacité électronique n'est plus fiable dès que les taux de comptage dépassent les 80.000cp.s⁻¹ environ. La résolution des spectres alpha est fortement dégradée par le bruit bêta et gamma et l'efficacité électronique est très variable en fonction des taux de comptage dès quelques dizaines de milliers de coups par seconde.

Les premières irradiations montrent que nous pouvons mesurer le flux de neutrons à 5 % près environ et nous avons fait une nouvelle mesure des sections efficaces de capture de l'américium 243 et du plutonium 242. Les résultats obtenus ne semblent pas compatibles avec les valeurs des bases de données et ne permettent donc pas de conclure de manière très positive sur le fonctionnement de la chambre de mesure (cf. IV.7-8). Cependant, les derniers résultats expérimentaux sur la section efficace de capture de l'américium 243 sont compatible avec notre mesure ce qui nous rend confiant dans la valeur que nous avons trouvé. Néanmoins nous pensons que de nouvelles expériences de validation doivent être effectuées pour utiliser cet instrument, bien que ces premiers résultats soient très positifs.

³⁰ Cela nécessiterait des activités gamma et alpha de l'ordre de plusieurs dizaines et centaines de mégabecquerels

CONCLUSION

Le programme expérimental du projet Mini-Inca visait à développer des méthodes pour mesurer des sections efficaces intégrales d'actinides. Nous avons montré dans ce travail comment nous avons conçu et mis en place un système de spectroscopie dans l'enceinte du réacteur à haut flux de l'Institut Laüe-Langevin à Grenoble pour atteindre cet objectif. Nos expériences se fondent sur :

- l'irradiation conjointe de cibles de faible masse et de moniteur de flux ;
- des spectres neutroniques de haute intensité ;
- des techniques de spectroscopie pour déterminer la composition des échantillons.

Nous avons utilisé deux détecteurs à semi-conducteur ayant une très bonne résolution en énergie et une électronique récente pouvant fonctionner à hauts taux de comptage. Ces détecteurs sont fixés sur deux ensembles mobiles d'une enceinte à vide. Les angles solides accessibles aux détecteurs germanium et PIPS pour les spectroscopies gamma et alpha sont respectivement compris dans les intervalles $[1,1 \cdot 10^{-2} \text{Sr} ; 3,1 \cdot 10^{-3} \text{Sr}]$ et $[0,88 \text{Sr} ; 10^{-3} \text{Sr}]$. Nous avons fabriqué des cibles comportant un dépôt actif électrodéposé d'une dizaine de microgrammes et un moniteur de flux sous la forme d'un disque d'alliage aluminium-cobalt. Ces cibles peuvent être irradiées dans le canal H9 du réacteur de l'ILL, puis grâce à un blindage adapté, immédiatement transmise dans la chambre de mesure pour en faire des spectroscopies alpha et gamma.

Dans les premières heures –les premiers jours– après irradiation, nous observons de très fortes activités qui saturent le système de détection. Néanmoins, des mesures de spectroscopies ont pu être effectuées grâce aux déplacements de nos détecteurs et à la bonne connaissance théorique et symbolique des angles solides associés. En effet, en prenant plusieurs mesures à différentes positions du détecteur nous faisons varier les angles solide cible-détecteur et donc les taux de comptage ainsi que le domaine de fonctionnement de l'électronique. Cela permet de mieux s'affranchir des erreurs liées à la détermination de l'efficacité électronique.

Nous avons mesuré à plusieurs reprises le flux de neutrons dans le canal H9 et nous avons obtenu environ $6 \cdot 10^{14} \text{n.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ avec une précision meilleure que 4 %. Cette incertitude provient essentiellement de la calibration en efficacité de notre système et de l'erreur sur la masse de cobalt utilisée.

En utilisant des cibles sans dépôt d'actinide et sur les disques de cobalt nous avons constaté la présence après irradiation de contamination alpha et d'une forte activité gamma et bêta. Ces rayonnements perturbent et déforment le signal à mesurer en augmentant fortement les taux de comptage et les phénomènes d'empilement électronique. Le bruit bêta-gamma est en grande partie dû à l'activation de notre "support proche" en nickel (cf. terminologie au paragraphe III.E) tandis que la contamination alpha provient du dépôt des actinides accidentellement présents dans le canal d'irradiation.

Nous avons ensuite effectué deux irradiations avec des cibles d'américium 243 et de plutonium 242. En mesurant les activités alpha de la cible après irradiation et quelques jours de décroissance, nous avons alors estimé les sections efficaces intégrales de capture vers l'américium 244 et vers le plutonium 243 dans le flux donné. Ces valeurs et les extrapolations des sections efficaces à 0,0253eV obtenues avec les hypothèses d'un flux maxwellien et d'une section efficace "en 1/v" sont données dans le tableau suivant.

	$^{243}\text{Am}(n,\gamma)^{244\text{fond.}}\text{Am}$ (b)	$^{243}\text{Am}(n,\gamma)^{244\text{total}}\text{Am}$ (b)	$^{242}\text{Pu}(n,\gamma)^{243}\text{Pu}$ (b)
Section efficace intégrale mesurée	4,72±1,42	74,8±3,25	22,7±1,09
Extrapolation à 0,0253 eV	5,59±1,68 b	88,6±3,85	26,9±1,29

Résultats expérimentaux sur les sections efficaces de capture des américium 243 et plutonium 242.

Les incertitudes principales proviennent de la mesure du flux et :

- de l'incertitude sur l'intensité gamma de la raie à 744keV de l'américium 244 dans son état fondamental pour la réaction $^{243}\text{Am}(n,\gamma)^{244\text{fond.}}\text{Am}$;
- de la détermination de l'efficacité électronique de la spectroscopie alpha pour la réaction $^{243}\text{Am}(n,\gamma)^{244\text{total}}\text{Am}$;
- de la détermination des surfaces des raies sur le spectre alpha contaminé pour la réaction $^{242}\text{Pu}(n,\gamma)^{243}\text{Pu}$.

Bien que la valeur obtenue pour l'américium 243 soit supérieure à celle donnée dans les bases de données, elle est totalement compatible avec les deux mesures les plus récentes (1997 et 1975) et nous avons confiance dans nos résultats. Ils sont supérieurs de 30 % pour le plutonium 242 aux valeurs communément admises et utilisées par l'ensemble des bibliothèques évaluées. Même si les valeurs des précédentes expériences sont assez dispersées, cette expérience semble délicate à interpréter. Finalement, même si nos conclusions sont très positives, l'ensemble des résultats obtenus n'est peut-être pas suffisant pour valider complètement le système expérimental et les méthodes utilisées. Dans cet objectif, nous proposons d'effectuer une seconde mesure après un nouvel étalonnage de l'électronique et en améliorant les conditions de mesure.

En effet, ces premières irradiations, qui valident la faisabilité et les principes de notre dispositif expérimental de spectroscopie, permettent d'en envisager plusieurs perfectionnements. Pour diminuer l'effet du bruit alpha, bêta et gamma, il est possible d'optimiser le porte-cible selon les expériences envisagées (géométrie, matériaux) ou de modifier le système de détection. Nous pouvons changer les détecteurs ou l'électronique pour rendre le système moins sensible aux signaux parasites et plus efficace à des taux de comptage de plusieurs dizaines de milliers de coups par seconde. Un étalonnage effectué avec des sources d'activités connues et très intenses faciliterait aussi l'exploitation des résultats obtenus en étant représentatif des conditions de mesures.

Les expériences présentées avaient pour objectif principal de valider l'instrument de mesure de sections efficaces intégrales que nous avons développé. Cette chambre de spectroscopie est pour l'instant utilisée avec le canal H9 de l'ILL où les flux sont *a priori* thermiques. Une expérience peut être effectuée pour le vérifier, par exemple en irradiant un moniteur de flux dans une boîte de cadmium. Ce canal n'est cependant pas bien adapté à des mesures de précision car il est contaminé et les contraintes mécaniques pour la manipulation des cibles sont importantes. Enfin, l'instrument que nous avons développé peut être mis en place dans d'autres installations, pour avoir accès à des flux neutroniques de formes différentes. Il peut aussi être par exemple utilisé pour mesurer les taux de transmutation d'échantillons d'actinides de faible masse.

Dans la double optique d'étudier la transmutation du plutonium et d'aborder une filière permettant de créer moins de déchets nucléaires et d'augmenter les réserves, nous avons étudié un combustible MOX thorium-plutonium pour les réacteurs à eau pressurisée. En utilisant le programme monte-carlo MCNP couplé à un module d'évolution, Monteburn, nous avons montré que ce combustible peut soit aider à démarrer une filière thorium soit constituer une option pour dégrader du plutonium. L'utilisation de ce type de combustible dans un REP crée de l'uranium 233 et permet d'avoir de manière simple et rapide une expérience industrielle avec des combustibles thorium sans avoir à construire de nouveaux réacteurs. Les spectres modérés et l'importance des inventaires font que la création d'uranium 233 est assez rapide, 300kg par an et par réacteur, pour une disparition d'environ 1,2t de plutonium fissile. Ce combustible n'est pas régénérateur et ne peut être utilisé que dans une optique de transition, par exemple pour commencer une filière surgénératrice thorium-uranium 233 qui a l'avantage de créer moins de déchets et d'augmenter les ressources nucléaires. Cette étude souligne le double aspect du plutonium qui est considéré à la fois comme le déchet nucléaire le plus radiotoxique et comme la ressource fissile la plus importante pour de nouveaux réacteurs.

Ce dernier point et la question des déchets nucléaires sont directement liés à la problématique plus générale de la situation énergétique. Si les réacteurs nucléaires sont démantelés d'ici quelques dizaines d'années sans être renouvelés, le stockage du combustible irradié apparaît comme la solution la plus simple. Ceci n'est plus évident si le nucléaire se développe et si les capacités de production doivent être multipliées par dix.

La situation des ressources en énergie montre que le nucléaire semble le mieux placé pour remplacer les énergies fossiles à moyen terme dans la production électrique. Les énergies renouvelables restent encore trop marginales, et la fusion n'est pas encore une réalité industrielle ou économique. Ce développement est un grand défi pour l'industrie nucléaire et elle ne pourra le relever qu'à certaines conditions. Les acteurs du nucléaire doivent d'abord proposer des solutions techniques :

- à l'utilisation du plutonium et des ressources, uranium ou thorium ;
- à l'obligatoire retraitement du combustible usé pour y retirer les matières fissiles ;
- à la gestion des déchets nucléaires.

Néanmoins, ceci n'est pas suffisant et l'industrie du nucléaire doit réussir sa mission de communication car les décisions seront prises avec les citoyens. L'exemple de Superphénix nous rappelle que la question des futures filières doit être discutée, comprise et approuvée par la majorité de la population, ou du monde politique. En particulier, l'utilisation des spectres rapides, du plutonium et du thorium sont à notre avis des enjeux majeurs des futures discussions où le nucléaire doit apparaître comme une énergie qui respecte et préserve l'environnement.

*“Que dites-vous ? ... C'est inutile ? ... Je le sais !
Mais on ne se bat pas dans l'espoir du succès !
Non, non, c'est bien plus beau lorsque c'est inutile ! ”*
E. Rostand, Cyrano de Bergerac

BIBLIOGRAPHIE

- [1] AIEA, *international energy outlook 2002, world energy consumption*. Report#:DOE/EIA 484(2002)
- [2] E. Littré, *Dictionnaire*. La Fontaine Au Roy Eds De
- [3] *Petit Robert, dictionnaire du français primordial*, Dictionnaire Le Robert (1985)
- [4] *Protocole de Kyoto*, Troisième Convention Cadre des Nations Unies sur le Changement Climatique, (Kyoto) décembre 1997
- [5] Bureau international des poids et mesures, *Le système international d'unités (SI)*. 7^eédition, 1998 ; Organisation intergouvernementale du mètre
- [6] www.iter.org
- [7] Groupe Ecobilan *Etude ExternE*, commission européenne DGXII, EUR 16520EN Bruxelles, 1995
- [8] Euroserv'er, *Le baromètre européen du bois-énergie*, Observatoire européen des énergie renouvelable publication, Système solaire n°146 (décembre 2001)
- [9] R. Harrison *et al.*, *Large wind Turbine*. Willey (2000)
- [10] G. Cuntz, *Éoliennes et aérogénérateur* Edisud (2001)
- [11] Euroserv'er, *Le baromètre européen de l'énergie éolienne*, Observatoire européen des énergie renouvelable publication, Système solaire 2001-21
- [12] D. Ridikas, et al., *A Sub-Critical Reactor Driven by Electron Accelerator*, Proc. Of the Int. Conference on Accelerator Application/ Accelerator Driven Transmutation Technology and Application (Acc/ADTTA) Reno, Nevada, (2001)
- et [13] J-M. Charpin, B. Dessus, R. Pellat, *étude économique prospective de la filière électrique nucléaire* rapport au premier ministre (juillet 2000)
- [14] H. Becquerel, *Sur les radiations invisibles émises par les corps phosphorescents*, Compt. Rend. Acad. SC. Paris 122, 501 (1896)
- [15] H. Métivier, *Cours du DEA 3R*, Université Paris XI, 1998
- [16] CEA-direction de la communication, *Livret informations utiles*, (2001) ISSN-1291-133X
- [17] R. Guillaumont, *Conditionnement des déchets radioactifs de l'aval du cycle*. Cours du DEA 3R, Université Paris XI, 1998
- [18] J.L. Basdevant, *énergie nucléaire*, cours de l'école polytechnique (2002)
- [19] IRSN, *Risques associés à l'uranium appauvri dans les obus perforants*, communiqué du 12/01/2001
- [20] Loi n° 91-1381 du 30 décembre 1991 relative aux recherches sur la gestion des déchets nucléaires, Journal Officiel de la République française, 1^{er} janvier 1992, pp 10-12
- [21] S. David, *Capacité des réacteurs hybrides au plomb pour la production d'énergie et l'incinération avec multirecyclage des combustibles. Évolution des paramètres physiques, radiotoxicités induites*. Thèse soutenue le 26 mars 1999, Université Grenoble I

- [22] S. Sala, *Réduction de la radiotoxicité des déchets nucléaires à vie longue : étude théorique et stratégique de la transmutation des actinides mineurs et des produits de fission dans les réacteurs électronucléaires*. Thèse soutenue le 26 juin 1995, Université de Provence
- [23] Annals of the ICRP, ICRP Publication 56, Ed. Pergamon, 1989
- [24] Annals of the ICRP, ICRP Publication 72, Ed. Pergamon, 26 1996
ICPR, *Age-dependant Dose for Members of the public from Intake of radionucléides : Part 5 Compilation of ingestion and inhalation dose coefficient, ICRP Publication 72*. Elsevier, Oxford 1996
- [25] J-C Krupa , *lois de la radioactivité, structure nucléaire*. Cours du DEA 3R, Université Paris XI, 1998
- [26] P. Toulhoat, *Stockage des déchets nucléaires*, Cours du DEA 3R, Université Paris XI, 1998
- [27] J-P. Schapira, *Transmutation des radionucléides à vie longue : principe, méthodes, réacteurs, accélérateurs*. Cours du DEA 3R, Université Paris XI, 1998
- [28] F. Lelièvre, *Stratégie pour l'incinération de déchets nucléaires dans les réacteurs hybrides* Thèse soutenue le 11 décembre 1998, Université de PARIS XI
- [29] M. Salvatores, *La transmutation*. Cours de l'école supérieur de chimie Paris, 2000
- [30] M. Salvatores et al, *A global Physics Approach to transmutation of radioactive Nuclei*, Nuclear Science and Engineering, 116 1-18 (1994)
- [31] Uematsu, *Étude physique du couplage d'un accélérateur et d'un réacteur sous-critique pour la transmutation des déchets nucléaires*, Thèse soutenue le 28 novembre 1994, Université de Provence Aix-Marseille I
- [32] M. Valade, *Étude de l'incinération des transuraniens en réacteur à sel fondu*, Thèse soutenue le 27 octobre 2000, Université Louis Pasteur, Strasbourg
- [33] Introductory Nuclear Physics ; Kenneth S. Krane ; Wiley international edition ; ISBN 0-471-85914-1
- [34] *JEF-2.2, The evaluated neutron nuclear data library of the NEA Data Bank*. IAEA-Vienna, IAEA-NDS-120, Rev. 3 (1996)
- [35] *JENDL-3.2, The Japanese Evaluated Nuclear Data Library*. IAEA-Vienna, IAEA-NDS-110, Rev. 5 (1994)
- [36] *ENDF/B-VI, The US evaluated neutron nuclear data library for neutron reactions*. IAEA-Vienna, IAEA-NDS-100, Rev. 6 (1995)
- [37] H. Métivier, thèse de doctorat, *Devenir biologique et toxicité du plutonium*. In Toxiques nucléaires P. Galle ed. Masson, Paris 149-182
- [38] Radkowsky fuel project : www.rtpc.com
- [39] P.W. Phlippen and I. Neuhaus Thorium, *assisted Pu burning in PWRs*, in *Thorium as a waste management option* [47]
- [40] General Atomics, *Gas turbine-Modular Helium reactor (GT-MHR) Conceptual Description report*, No. 910720, Revision 1, Ga Project No. 7658, July 1996

- [41] R. Vijayaraghavan, *Production and Fabrication of Thorium Fuels at BARC*. Thorium Util. Proc. Indo-Japanese Semin., 1990, p99-104
- [42] H.A. Feiveson & s. N. Rodionov, *technical and white papers : Thorium Fuel for light water reactors -- reducing Potential of nuclear power fuel cycle ; Sciences & Global Security*, 1997, Volume 6, pp. 265-290, Princeton University
- [43] R.K.Sinha and Dr A. Kakodkar, *Advanced heavy water reactor*, Nu-power Vol. 13 (1999)
- [44] H. Pigford, *Thorium fuel cycle compared to uranium fuel cycles*. Journal de physique IV France 9 (1999) p.67-73
- [45] J. Magill *et al.*, *A strategy for Pu destruction in PWR's*, IAEA techn. Committee meeting on advanced fuels with reduced actinide generation, Vienna (nov. 1995)
- [46] J. Magill *et al.*, *A once through Scheme for weapon disposition in LWR's : proliferation and criticality aspects*. techn. Comm. Meet. On the recycling of Plutonium and uranium in Water reactor fuel, Newby bridge, Windermere U.K. (juil. 1995)
- [47] H. Gruppelaar, J-P. Schapira *et al.*, *Thorium as a Waste Management option*. Edited by H. Gruppelaar and J.-P. Schapira (1999), the 4th framework programme of the European Commission 21125/99.27350/C
- [48] A. Nuttin *et al.* Thorium fuel cycle : A Graphite-Moderated molten Salt Reactor Versus a Fast solid Fuel System
- [49] S. David *et al.*, Fast Subcritical Hybrid reactors for Energy Production : Evolution of Physical Parameters and Induced Radiotoxicities. Nucl. Instr. Meth A 443 (2000) 510-530
- [50] D. Poolley *et al.*, *Opinion of the Scientific and technical Committee (STC) on a nuclear energy amplifier*. Report EUR 17616 (1999) of the European Commission, ISSN 018-5593
- [51] A. Nuttin Thèse de doctorat, soutenance prévue le 15 novembre 2002, Université Grenoble I
- [52] J.Briesmeiter for Group X-6, MCNP-A, *A General Monte Carlo N-Particle Transport Code*. Los Alamos Laboratory report, LA-12625-M (1997)
- [53] H.R. Trellue and D.I. Poston, *User's manual, Version 2.0 for Monteburns, Version 5B*. Los Alamos National Laboratory, preprint LA-UR-99-4999 (1999)
- [54] L. Bletzacker, *Influence des bibliothèques de sections efficaces ENDF, JEF et JENDL sur les performances du réacteur à haute température GT-MHR*. Rapport de stage, DEA MIP, université de Paris XI
- [55] RSIC Computer Code Collection, *ORIGEN 2.1 – Isotope Generation and Depletion Code Matrix Exponential Method*. Radiation Shielding Information Center, report CCC-371 (1991)
- [56] D. Ridikas, L. Bletzacker, O. Déruelle, M. Fadil, G. Fioni, A. Letourneau, F. Marie, R. Plukiene, *Comparative Analysis of the ENDF, JEF and JENDL Data Libraries by Modeling High Temperature Reactors (GT-MHR) and Plutonium Based Fuel Cycles*

- Proc. the Int. Conference on Nuclear Data for Science and Technology, ND2001, Oct. 7-12, 2001, Tsukuba, Ibaraki, Japan, in press
- [57] n-ToF collaboration, *n-ToF Technical Design Report*. CERN/INTC/2000-04, (2000)
- [58] n-ToF collaboration, European collaboration for high-resolution measurements of neutrons cross sections between 1eV and 250 MeV. CERN/SPSC 99-8 SPSC/P310, (1999)
- [59] V. Gressier, *Nouvelle détermination expérimentale des paramètres de résonances neutroniques de ^{237}Np en dessous de 500eV*. Thèse soutenue le 13 octobre 1999, Université de PARIS XI
- [60] D. ridikas, *Modeling of Transmutation Systems, Neutron and RNB Production*. Internal report for SPhN/CSTS
- [61] E. Moll *et al.*, Nucl. Instr. and Meth. 123 (1975) 615
- [62] F. Marie *et al.*, *Integral Measurement of Capture and Fission Cross Section of Minor Actinide of Interest*, CEA/DSM/SPhN-00-50 rapport interne
- [63] Canberra User's manuals : 2024-USR 4/98 9231226A ; 8715-USR 4/97 ; 2003BT-USR 6/96 ; DSP-USR 6/98 ;
- [64] Canberra User's manual : Germanium GX1518 and 2101P -98
- [65] *Geant2 User's guide*, CERN DD/EE/83 1
- [66] M. Fadil, *Développement d'un nouvel outil de mesure pour des études d'incinération d'actinides mineurs sous haut flux de neutrons(sujet provisoire)*. Thèse de doctorat, soutenance prévue printemps 2003, université de Grenoble
- [67] F. De Corte, *The k_0 -standardisation method, A move to the optimization of neutron activation analysis*. Thèses de doctorat , université de Gend
- [68] Laboratoire Pierre Sue, mixte CEA/CNRS, CEA-SALAY 91191 Gif/Yvette
- [69] C.H. Wetscott *et al.*, *Effective Cross Section and Cadmium Ratios for the Neutron Spectra of Thermal Reactors*. Proc. 2nd Int. conf. Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva, vol. 16, 70 (1958)
- [70] S. Nakamura *et al.*, *Measurement of Thermal Neutron Capture Cross Section and Resonance Integral of the $^{129}\text{I}(n,\gamma)^{130}\text{I}$ Reaction*. Journal of NUCLEAR SCIENCE and TECHNOLOGY, vol. 33, No. 4 p.283-289 (April 1996)
- [71] H. HARADA *et al.*, *Measurement of Thermal Neutron Cross Section and Resonance Integral of the Reaction $^{99}\text{Tc}(n,\gamma)^{100}\text{Tc}$* . Journal of NUCLEAR SCIENCE and TECHNOLOGY, vol. 32, No. 5 p.395-403 (May 1995)
- [72] MM. Ramis, Deschamps & Odoux, *Cours de mathématiques spéciales*. Dunod Masson
- [73] J.M. Arnaudès & H. Fraysse, *Cours de mathématiques*. Dunod Université
- [74] J.H. Baard *et al.*, *Nuclear Data Guide for Reactor Neutron Metrology* ISBN 0-7923-0486-1
- [75] J.F. Ziegler *et al.*, *TRIM and SRIM code (Transport of Ions in Matter)*, Copyright: International Business Machines Corporation, 1998.
- [76] F. Marie, CEA/DSM/DAPNIA/SPhN, private communication.

-
- [77] *Bibliothèque de données nucléaires pour la spectroscopie gamma et alpha*, Lara 2^d ed., DAMRI/LPRI ed. (1990)
- [78] R.B. Firestone *et al.*, Tables of isotope/ VIRGINIA Shirley editor, 8th ed. ISBN 0-471-14918-7
- [79] C.H. Ice *et al.*, Savannah River Laboratory Report, MS-66-69 (1966)
- [80] Schuman *et al.*, Idaho Nuclear corp. Report IN-1126,19,6712 (1967)
- [81] Hatsukawa *et al.*, *Measurement of neutron cross section of the $^{243}\text{Am}(n,\gamma)^{244}\text{Am}$ reaction* Symposium on Nuclear Data (JAERI-Conf 98-003)
- [82] R. Vandenbosh *et al.*, Journal of Inorganic and nuclear Chemistry 26, 219, (1964)
- [84] J.P. Butler *et al.*, Can. Jour. Of Phys., 35, 147 (1957)
- [85] R.L. folger *et al.*, Nuclear cross section and technology, Proc. Conf. Washington D.C; March 4-7, 1968, v.2, p. 1279 NBS special publication 299 (1968)
- [87] Harvey *et al.*, Physical review 95, 581 (1954)
- [88] C.M. Stevens *et al.*, Physical review, 94, 974, (1954)
- [86] M. Bak *et al.*, Atomnaya Energiya, 23, 316 (1967)
- [83] V.D. Gavrilov *et al.*, Atomnaya Energiya, 41, 185, (1975) (see Soviet Atomic Energy for english translation)
- [89] Maslov *et al.*, *Evaluation of Neutron Data for Americium-243*. International Atomic Energy Agency, INDC(BLR)-006
- [90] Bendt *et al.*, Los Alamos report 7853, 7905 (1979)
- [91] R.W. Duhram *et al.*, Can. Jour. Of Phys 48, 716 (1970)
- [92] P.R. Field *et al.*, Nuclear science and engineering, 1, 62 (1956)

ANNEXE A : PUBLICATION ASSOCIÉE

Nuclear physics A 693 (2001) 546-564

Incineration of ^{241}Am induced by thermal neutrons

G. Fioni^a, M. Cribier^a, F. Marie^a, M. Aubert^b, S. Ayrault^c, T. Bolognese^a,
J.-M. Cavedon^b, F. Chartier^b, O. Deruelle^a, F. Doneddu^b, H. Faust^d, A. Gaudry^c,
F. Gunsing^a, Ph. Leconte^{a,d}, F. Lelievre^a, J. Martino^a, R. Oliver^d,
A. Pluquet^a, S. Röttger^a, M. Spiro^a, C. Veyssiere^a

^aCommissariat à l'Energie Atomique, CEA/Saclay, DSM/DAPNIA,
F-91191 Gif-sur-Yvette Cedex, France

^bCommissariat à l'Energie Atomique, CEA/Saclay, DCC/DPE,
F-91191 Gif-sur-Yvette Cedex, France

^cCommissariat à l'Energie Atomique, CEA/Saclay-CNRS, Laboratoire Pierre Süe,
F-91191 Gif-sur-Yvette Cedex, France

^dInstitut Laue-Langevin, BP 156, F-38042 Grenoble, France

Abstract

An experimental study of the ^{241}Am incineration in a high intensity thermal neutron flux was carried out at the high-flux reactor of the Institut Laue-Langevin in Grenoble. The combination of nuclear γ -ray spectroscopy and off-line mass spectrometry methods made possible the measurement of several parameters of the transmutation chain and the first experimental determination of the unknown $^{242\text{gs}}\text{Am}$ thermal neutron capture cross section, which plays an essential role in the ^{241}Am incineration process. During a 19 days irradiation in a thermal neutron flux of $5.6 \cdot 10^{14}$ n/s/cm², (46±5)% of the initial ^{241}Am was transmuted by neutron capture of which (22±8)% was incinerated by nuclear fission. A value of the thermal neutron cross section of $^{242\text{gs}}\text{Am}(n,\gamma)$ of (330±50) barns was obtained. We show that this keeps the option open to incinerate ^{241}Am by high-intensity moderated neutron fluxes.

Key words: nuclear waste, transmutation, ^{241}Am , ^{242}Am , neutron capture cross section

Introduction

The social acceptability of nuclear energy is closely related to the problem of long-lived nuclear waste produced during the burn-up of nuclear fuel. The incineration of transuranic elements by neutron-induced fission constitutes a very promising way to reduce the radiotoxicity of nuclear waste. ^{241}Am contributes significantly to the short-term radiotoxicity, since it is the most abundant minor actinide in the spent nuclear fuel. With its decay products being long-lived alpha emitters, the presence of ^{241}Am in the nuclear waste also induce long-term radiotoxicity.

Dedicated facilities are foreseen to incinerate nuclear waste and a large consensus is reached for the use of hybrid systems, where an accelerator driven spallation facility is coupled to a sub-critical system. A number of advantages with respect to conventional nuclear reactors are present, from safety issues to the neutronics of the system [1, 2].

The transmutation rate and the neutron balance depend on the interplay between the neutron spectrum and neutron cross sections. During irradiation, the evolution of a radioactive sample in a neutron flux is given by a linear system of differential equations [3]:

Nuclear physics A 693 (2001) 546-564

$$\frac{d\vec{N}}{dt} = -M\vec{N} \quad (1)$$

where M is a square matrix with the off-diagonal elements giving the reaction rates to form an isotope i starting from an isotope j, and where N is a vector giving the isotope population N_i for a given isotope i.

The calculation of the individual reaction rates M_{ij} requires the knowledge of the radioactive decay constants $\lambda = \ln 2 / T_{1/2}$ (with $T_{1/2}$ the half-life) and of the average neutron cross sections, $\langle \sigma_x \rangle$, for a specific neutron reaction, x, in a given neutron spectrum, $\phi(E)$, given by:

$$\langle \sigma_x \rangle = \frac{\int_0^{\infty} \sigma_x(E) \phi(E) dE}{\int_0^{\infty} \phi(E) dE} \quad (2)$$

where: $\sigma_x(E)$ is the neutron cross section of the reaction $j \rightarrow i$.

The performances of an incineration system depend crucially on the neutron spectrum, as neutron cross sections are in general very large near thermal energies and decrease roughly as the inverse of the neutron velocity at higher neutron energies. Thermal neutron spectra provide the highest transmutation rates because of the higher neutron cross section. On the other hand, not all isotopes are fissionable at thermal energy and the ratio between the capture and the fission reaction rates in a thermal neutron system is higher than in fast neutron spectra. On a pure neutronics point of view, fast neutron systems are therefore preferable, providing higher neutron excess. More neutrons will then be available to counteract the poisoning effect of fission fragments. Even though, other parameters must be taken into account for a complete comparison of incineration systems, like the total mass of fuel in the system and the time required to decrease the long-term radiotoxicity of the initial fuel. With this respect, thermal neutron systems can operate with a factor of 20 lower fuel mass for an equivalent gain in radiotoxicity. Without going into further details, the final choice of the most suitable neutron spectrum is far from being clearly defined, and fundamental research studies, based on nuclear physics experiments, are essential to solve the problem. A more detailed analysis of the transmutation in different neutron spectra can be found in reference [4].

The quality of the results obtained by computer code simulations is mainly affected by the poor knowledge of the nuclear parameters of the isotopes involved in the incineration process. The most widely used nuclear data libraries, like JENDL 3.2 [5], JEF 2.2 [6] and ENDF-B/VI.2 [7], are in good agreement for the isotopes that play a major role in the nuclear industry. This is the result of a 40 years long experimental effort, during which high resolution differential measurements have been carried out all around the world. The situation is completely different for the so-called minor actinides, as americium, curium, and some of the neptunium and plutonium isotopes. Discrepancies of 30 to 40% in the average neutron cross section of these isotopes often result in differences in both the prediction of the transmutation rate and in the neutronics of dedicated incineration systems.

The $^{242\text{gs}}\text{Am}$ thermal neutron capture cross section

An extreme example is provided by the transmutation of ^{241}Am in a high intensity thermal neutron flux. A sizeable discrepancy of a factor of 20 exists on the $^{242\text{gs}}\text{Am}$ thermal neutron capture cross section from JEF-2.2 (5511 barns) and ENDF-B/VI (252 barns)

Nuclear physics A 693 (2001) 546-564

libraries. For this reaction, the JEF 2.2 data are based on the JENDL 3.2 library, which relies on a Japanese evaluation [8]. No experimental data are available for this reaction and the recommended values are based on theoretical evaluations.

This large discrepancy has no major impact on the existing nuclear reactors, where $^{242\text{gs}}\text{Am}$ is present at a very low concentration due to the absence of ^{241}Am in the starting fuel¹, to the low neutron flux and to its very short half-life of 16.02 h. On the other hand, in a minor actinide incineration system, the initial fuel will contain a high percentage of ^{241}Am and the high neutron flux will contribute to form a large amount of $^{242\text{gs}}\text{Am}$.

The quantitative impact of a given isotope A on the neutron balance of the system can be obtained by looking at the number of neutrons, per fission reaction, required to incinerate one atom of a given nuclear fuel. This parameter, also known as the D-factor, has been first introduced by Slessarev et al. [9] in order to estimate the excess of neutrons in a transmutation process. We can rewrite it at the n-th order approximation as [10]:

$$D_A = \sum_{k=A}^{A+n} \frac{1}{\langle \sigma_f^k \rangle} * \left[\langle \sigma_{abs}^k \rangle - \langle \sigma_{(n,2n)}^k \rangle + (v-1) \langle \sigma_f^k \rangle \right] * P_{A \rightarrow k} \quad (3)$$

where: $\langle \sigma_{abs} \rangle$ is the average neutron capture cross section,

$\langle \sigma_{(n,2n)} \rangle$ is the average (n,2n) cross section,

$\langle \sigma_f \rangle$ is the average fission cross section,

$P_{A \rightarrow k}$ is the probability to create the k isotope from the initial isotope A and

v is the neutron multiplicity.

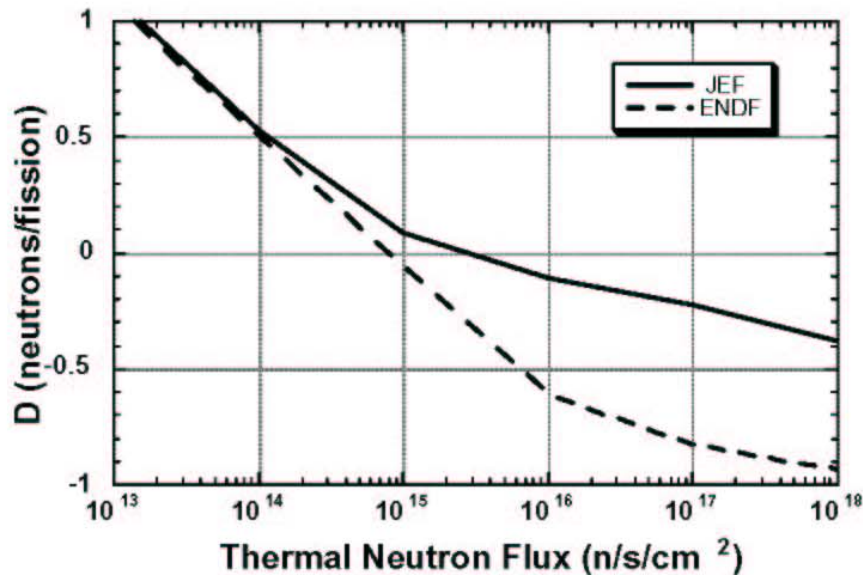


Figure 1: Number of neutrons required to incinerate by nuclear fission one atom of a mixture of ^{241}Am (43%), ^{243}Am (27%), ^{237}Np (17%), ^{244}Cm (10%) as a function of the thermal neutron flux intensity (data from [11]). The continuous line is calculated using the JEF 2.2 library, while the dashed line is obtained with ENDF-B/V1. The starting mixture corresponds to the average composition of the minor actinides after multi-recycling of a MOX-fuel.

¹ ^{241}Am is mainly formed by β -decay of ^{241}Pu formed during the fuel burn-up

Nuclear physics A 693 (2001) 546-564

The D-factor is plotted in figure 1 as a function of the thermal neutron flux for a mixture of minor actinides composed of 43% ^{241}Am , 27% ^{243}Am , 17% ^{237}Np and 10% ^{244}Cm , as calculated by Y. Terrien [11]. This composition corresponds to the minor actinides that are supposed to be present after multi-recycling of a MOX (Mixed Oxide) fuel. The continuous and the dashed lines in figure 1 are obtained respectively by using the JEF-2.2 and the ENDF-B/VI libraries. A negative value of the D-factor results in a gain of neutrons during the transmutation process and it should be obtained to have a transmutation system economically viable. In reality the break point, where the system becomes "critical", is situated at about -0.3 to take into account the neutron leakage from the system. It is therefore evident that the transmutation of a mixture of minor actinides issued from multi-recycling of MOX fuels, is possible with a thermal neutron flux of about $2 \cdot 10^{15}$ n/s/cm² only if the value of the $^{242\text{gs}}\text{Am}$ capture cross section is about few hundred barns and if neutron capture by fission fragments is kept at a low rate by on-line fuel reprocessing. A correct determination of this cross section is therefore crucial for the present studies of minor actinides incineration systems.

Experimental method

In order to assess experimentally the incineration rate of ^{241}Am in a high thermal neutron flux and to estimate the $^{242\text{gs}}\text{Am}(n,\gamma)$ and $^{242\text{m}}\text{Am}(n,\gamma)$ capture cross sections, a total of 12 samples containing each about 30 μg of ^{241}Am oxide canned in quartz ampoules were irradiated at the High Flux Reactor of the Institut Laue-Langevin in Grenoble (France). This single highly enriched fuel element reactor is cooled and moderated by D_2O and provides the highest purely thermal neutron flux available in the world. The combination of a very high neutron flux and the absence of epithermal neutrons was essential for the success of the experiment.

Table 1: initial composition of the irradiated samples determined by ICP-MS and TIMS.

$^{237}\text{Np}/^{241}\text{Am}$	$^{239}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$	$^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	$^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	$^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$
10^{-3}	10^{-3}	10^{-3}	10^{-3}	10^{-3}	10^{-3}
25.3±0.8	3.64±0.04	11.32±0.20	371.9±1.5	42.42±0.20	44.58±0.25

The initial isotopic composition of the samples is given in Table 1. The percentage of ^{237}Np was measured by Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry (ICP-MS), while the remaining analyses were carried out by Thermal Ionisation Mass Spectrometry (TIMS). A High Performance Liquid Chromatography (HPLC) was performed prior TIMS to separate each element, to avoid isobaric contamination.

The experimental method relies on the measurement of the evolution of the isotopic composition of several samples irradiated for different irradiation times and for two different neutron flux intensities. The H9 beam position, which provides the highest neutron flux available at the ILL, was used for 8 samples. The sample changer of the Lohengrin spectrometer brought the samples at a distance of about 60 cm from the fuel element in an evacuated beam tube, where the neutron flux approaches $5.6 \cdot 10^{14}$ n/s/cm² with a thermalization coefficient higher than 98%. The T4 irradiation position located at the top level of the ILL-reactor and giving access to a neutron flux of about $2 \cdot 10^{13}$ n/s/cm², was used for the remaining 4 samples. The mass of each sample before irradiation was measured by gamma-spectroscopy and it is listed in Table 2 with the corresponding irradiation duration and the experimental position.

Nuclear physics A 693 (2001) 546-564

The main reason for using two different neutron fluxes resides on having two independent sets of data to be used in the final fit and especially to verify experimentally that the epithermal component in H9 could be neglected in the data analysis. In fact, the T4 position is outside the heavy water reactor vessel at about 1.3 meters from the fuel element, where the neutron flux is perfectly thermalized.

Table 2: details of the irradiation programme. In three cases, two ^{241}Am samples were irradiated simultaneously to permit two independent mass spectrometry analyses. The neutron flux at the H9 position is about $5 \cdot 10^{14} \text{ n/s/cm}^2$, while on T4 is about $2 \cdot 10^{13} \text{ n/s/cm}^2$.

^{241}Am Initial Mass [μg]	Irradiation duration [days]	Irradiation Position
29.52±0.53	$2.08 \cdot 10^{-2}$	H9
25.94±0.47	0.95	H9
30.21±0.54	2.01	H9
27.89±0.50	5.02	H9
31.52±0.57	10.98	H9
25.24±0.45	10.98	H9
25.32±0.46	19.03	H9
38.14±0.69	19.03	H9
37.92±0.68	5.01	T4
27.95±0.50	11.01	T4
29.81±0.54	24.0	T4
29.85±0.54	24.0	T4

The isotopic chains formed by thermal neutron irradiation of ^{241}Am are shown in figure 2. Off-line gamma-ray spectroscopy and mass spectrometry were used to determine the evolution of each irradiated sample as described in the following section.

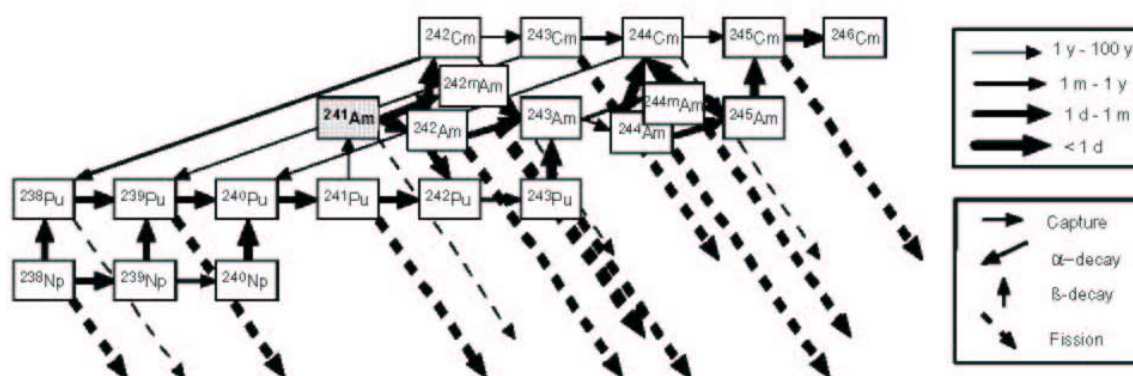


Figure 2: Isotopic chains formed during the irradiation of ^{241}Am in a thermal neutron flux of $2 \cdot 10^{15} \text{ n/s/cm}^2$. The bold dashed lines indicate if neutron induced fission is possible. Transmutation is more efficient when the fission event occurs after the lowest number of successive neutron captures.

The short half-life of $^{242\text{gs}}\text{Am}$ of 16 h and its very low concentration, make on-line experiments impossible. Mass spectrometry techniques must then be applied. A number of ancillary measurements based on nuclear spectroscopy are necessary to obtain a good precision on the final results.

Nuclear physics A 693 (2001) 546-564

Neutron Flux determination

A 20 mg natural iron wire, canned in a quartz ampoule, was irradiated together with each ^{241}Am sample to measure the integral thermal neutron fluence.

During the irradiation of the iron sample, the isotope ^{59}Fe is formed through neutron capture of ^{58}Fe . ^{59}Fe then decays with a half-life of $T_{1/2} = 44.5$ days to the stable ^{59}Co through beta decay followed by gamma-ray emission. By measuring the absolute gamma-ray intensity of the 1291.6 keV line of the irradiated iron samples, the average neutron flux was determined [12] with an accuracy of about 4%, which is satisfactory for the present experiment.

The choice of natural iron as a flux monitor was made in consideration of the experimental conditions. The very high temperature (>750 °C) inside the H9 beam tube makes the use of any aluminium alloy impossible and the high neutron flux imposes a very "diluted" sample to avoid a very high radioactivity.

If an amount of ^{58}Fe is irradiated, starting at $t=t_0$, in a constant neutron flux of ϕ n/s/cm², the number of neutrons captured per second is $N_{58} \langle \sigma_\gamma \rangle \phi$, where $\langle \sigma_\gamma \rangle$ is the ^{58}Fe average thermal neutron capture cross section as defined in eq. 2. The empirical value $\langle \sigma_\gamma \rangle = 1.30$ barns with a 2% relative uncertainty at the thermal neutron energy was given by the LPS-Saclay. The number of ^{58}Fe atoms N_{58} is assumed to be constant, as for the longest irradiation time of 19 days the burn-up of ^{58}Fe is less than 10^{-3} . The ^{59}Fe formed by neutron capture decays with a decay constant $\lambda = \ln(2)/T_{1/2}$. In that case the evolution in time of the number of ^{59}Fe atoms $N_{59}(t)$ satisfies the differential equation:

$$\frac{dN_{59}(t_1)}{dt} = N_{58} \langle \sigma_\gamma \rangle \phi - \lambda N_{59} \quad (5)$$

The solution at the end of irradiation $t=t_1$ is, given the boundary condition $N_{59}(t_0)=0$,

$$N_{59}(t_1) = \frac{1}{\lambda} N_{58} \langle \sigma_\gamma \rangle \phi (1 - e^{-\lambda(t_1-t_0)}) \quad (5)$$

The activity A_{59} of ^{59}Fe at time $t=t_2$, at which the absolute intensity of the gamma rays of the iron samples is simply given by:

$$A_{59}(t_2) = \lambda N_{59}(t_2) = A_{59}(t_1) e^{-\lambda(t_2-t_1)} \quad (6)$$

The activity at $t=t_2$ is determined with a gamma-ray measurement where the peak area P of a single strong gamma-ray transition is measured from t_2 until t_3 with an absolute efficiency ε . When the intensity of the gamma ray in photons per beta decay is $I_{\beta\gamma}$, the activity $A_{59}(t_2)$ can be written as:

$$A_{59}(t_2) = \frac{P}{(t_3 - t_2) I_{\beta\gamma} \varepsilon} \cdot \frac{\lambda(t_3 - t_2)}{1 - e^{-\lambda(t_3-t_2)}} \quad (7)$$

where the second part of the equation comes from the decay of the ^{59}Fe nuclei during the measurement. Since this measurement can take up to several days, representing a considerable fraction of the half life, this effect should therefore be taken into account.

From the previous equations, the average neutron flux can be written as:

$$\phi = \frac{\lambda P}{N_{58} \langle \sigma_\gamma \rangle I_{\beta\gamma} \varepsilon (1 - e^{-\lambda(t_1-t_0)}) \cdot e^{-\lambda(t_2-t_1)} (1 - e^{-\lambda(t_3-t_2)})} \quad (8)$$

The uncertainty in λ (0.014%) and the time differences can be neglected, so the square of the relative uncertainty of ϕ is just the squared sum of the relative uncertainties of ε , $\langle \sigma_\gamma \rangle$, N_{58} , $I_{\beta\gamma}$, and P . The uncertainty of P is due to the counting error of the gamma-ray areas (uncorrelated uncertainty or statistical error). The uncertainty of the other components is common to all the iron samples (correlated uncertainty or systematic error).

Nuclear physics A 693 (2001) 546-564

Table 3: Final results for the average neutron fluxes and their uncertainties for the different iron samples.

	H9 11 days	H9 19 days	H9 2 days	H9 1 day	H9 5 days	T4 5 days	T4 11 days	T4 24 days
average flux	5.495E+14	5.615E+14	5.703E+14	5.895E+14	5.989E+14	2.271E+13	2.463E+13	2.159E+13
Uncertainty (%)	4.08	4.08	4.09	4.10	4.09	4.12	4.09	4.09
<i>Statistical</i>								
• Peak Area	0.24	0.19	0.39	0.49	0.39	0.62	0.40	0.38
<i>Systematic:</i>								
• solid angle	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30
• ^{60}Co activity	0.45	0.45	0.45	0.45	0.45	0.45	0.45	0.45
• detector efficiency	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00
• $\sigma(n,\gamma)$	2.00	2.00	2.00	2.00	2.00	2.00	2.00	2.00
• gamma branching	2.54	2.54	2.54	2.54	2.54	2.54	2.54	2.54
• I_β	1.90	1.90	1.90	1.90	1.90	1.90	1.90	1.90
• iron mass	0.52	0.54	0.50	0.48	0.49	0.48	0.48	0.48
• non-constant flux	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00

The final results are given in Table 3, where the experimental uncertainties are also given. The final uncertainty of about 4% is mainly due to the uncertainties on the branching ratios. A higher precision could have been obtained using ^{59}Co monitors, but the fabrication of a dedicated alloy suitable to be used in the H9 experimental conditions was not justified by the goal of the present experiment.

In figure 3 the average neutron flux is plotted as a function of the irradiation time, where the day 0 corresponds to the beginning of the irradiation campaign. We observe a steady decrease of the neutron flux as a function of time, probably due to the movement of the reactor control rod during the cycle. The reactor stability is better than 2% over the considered time interval. During six days the reactor was operated at the nominal power, before the decrease to 52 MW for the rest of the cycle as shown in figure 4, where the reactor power is plotted as a function of the time. The irradiations on the H9 position were carried out during the reactor cycle 108-2, while the T4 irradiation was performed during the following cycle.

The results given in Table 3 are based on a constant neutron flux during the irradiation, which is in principle not correct. An estimate of the additional error for this effect can be simply obtained. If we replace ϕ by a linear time dependent flux $\phi(t)$, an analytical solution still exists.

The form

$$\phi(t) = \phi_0 \left(1 - p + \frac{2p}{t_1 - t_0} (t - t_0) \right) \quad (9)$$

has an average flux ϕ_0 (averaged over $t_1 - t_0$) and differs at $t = t_0$ and $t = t_1$ by a fraction p from the average flux. The ratio of the number of ^{59}Fe atoms at $t = t_1$, for a time-dependent flux and for a constant flux is

$$R = \frac{N_{59,\phi(t)}}{N_{59,\phi}} = 1 + p + \frac{2p}{e^{\lambda(t_1 - t_0)} - 1} - \frac{2p}{\lambda(t_1 - t_0)} \quad (10)$$

Nuclear physics A 693 (2001) 546-564

depending only on the parameter p and the product $\lambda(t_1-t_0)$. If we assume $p=0.10$, which is an upper limit considering figure 3, we find for the longest irradiation of 24 days a value $R=1.006$. We have adopted an uncertainty due to a non-constant neutron flux of 1%. The knowledge of the time evolution of the neutron flux during the irradiation is important, not only for the use of the flux monitors, but also for a correct analysis of the transmutation of ^{241}Am .

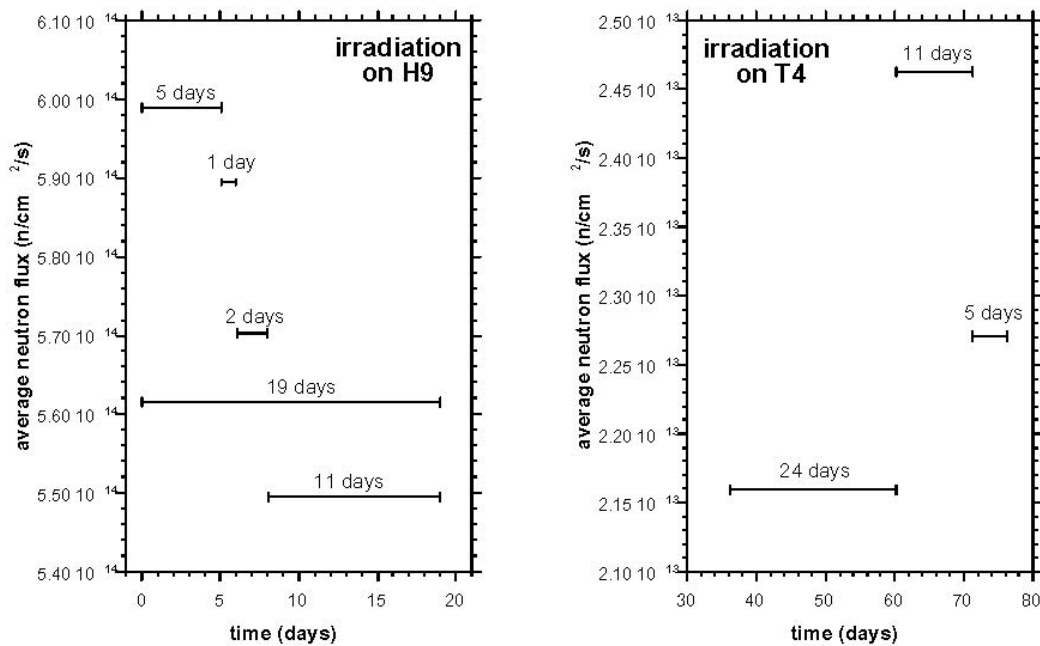


Figure 3: Average thermal neutron flux at the H9 and T4 positions of the ILL reactor as a function of the time, where 0 corresponds to the beginning of the irradiation campaign. It should be noted that after 6 days of irradiation, the reactor thermal power was decreased from 57 to 52 MW.

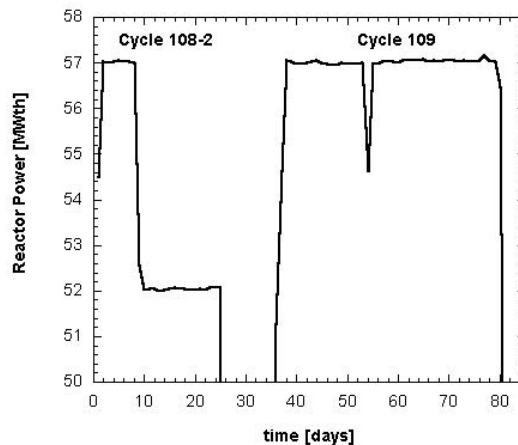


Figure 4: The reactor power during the measurements. The H9 irradiations were performed during the reactor cycle 108-2, while the T4 irradiations were carried out during the cycle 109.

Nuclear physics A 693 (2001) 546-564

X and Gamma-ray spectroscopy of irradiated samples

Measurement of the ^{241}Am thermal neutron capture cross section

The interpretation of the final results is strongly dependent on the value of the neutron capture cross section of ^{241}Am and the corresponding branching ratio towards the ground and the metastable states of ^{242}Am . An uncertainty of 10% on these values results in a variation of 40% in the determination of the $^{242\text{gs}}\text{Am}$ capture cross section by our method. As a recent Japanese measurement [13] reports a value of the $^{241}\text{Am}(n,\gamma)$ cross section larger by 50% at thermal energy with respect to the literature value [14], we have proceeded to an ancillary measurement using two of the ^{241}Am samples irradiated on H9 for 30 minutes and 1 day. In order to determine the amount of $^{242\text{gs}}\text{Am}$ and $^{242\text{m}}\text{Am}$ formed during the irradiation, the X and gamma activities of the two samples were measured after 1, 2 and 273 days from the end of the irradiation. As shown in figure 5, $^{242\text{gs}}\text{Am}$ is formed either directly by $^{241}\text{Am}(n,\gamma)$ reaction or by decay of $^{242\text{m}}\text{Am}$ by internal conversion. This 48.6 keV E4 transition is practically invisible, as the gamma emission is attenuated by $1.66 \cdot 10^{-6}$. The $^{242\text{gs}}\text{Am}$ then undergoes β^- decay to ^{242}Cm (83%) and electron capture to ^{242}Pu (17%) with a half-life of 16.02 hours.

The decay rate of $^{242\text{gs}}\text{Am}$ can then be determined by looking at the $K_{\alpha 1, \alpha 2}$ X-ray lines of ^{242}Pu at 99.5 and 103.7 keV, and at the 42.1 keV γ -line from ^{242}Cm . Complementary information can be obtained by the α -decay of ^{242}Cm to ^{238}Pu observed by looking at the associated 44.1 and 101.9 keV γ -lines.

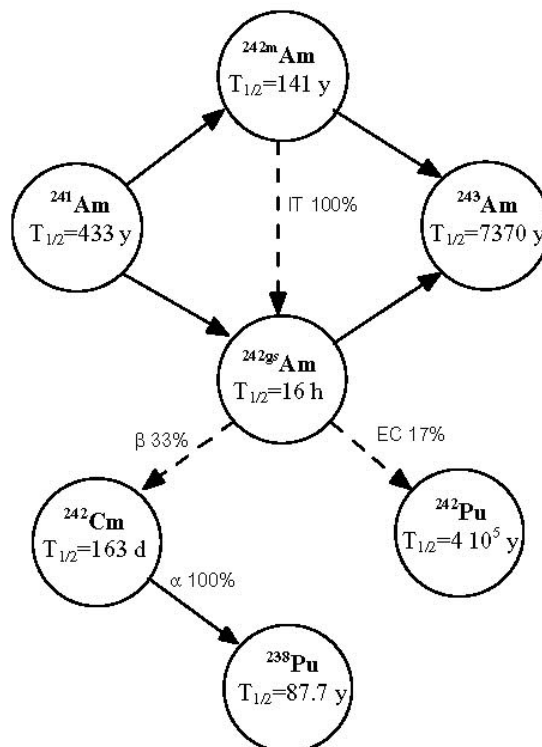


Figure 5: Schematic view of the first steps of the ^{241}Am transmutation chain.

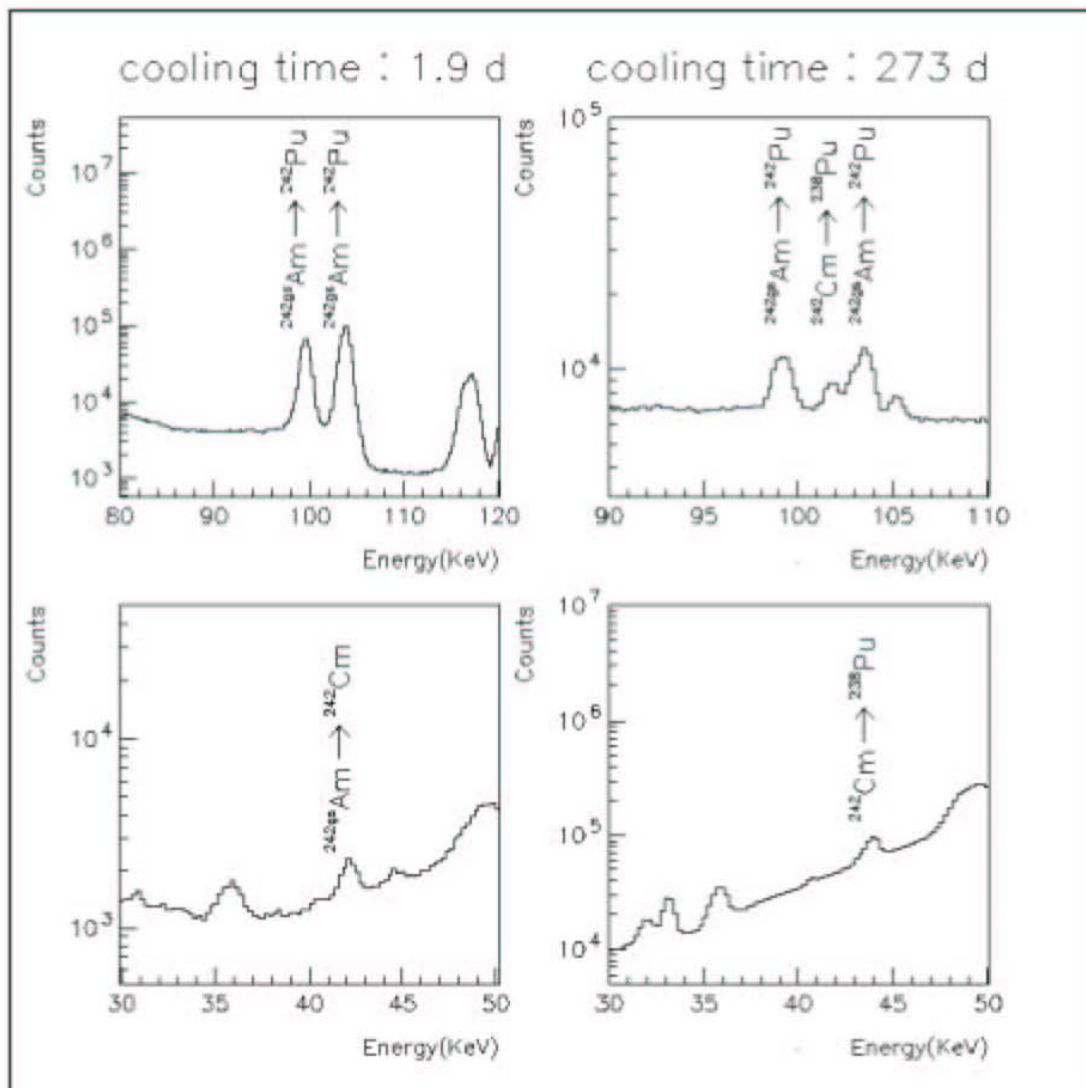
Nuclear physics A 693 (2001) 546-564

At short cooling times, the decay of $^{242\text{gs}}\text{Am}$ formed by $^{241}\text{Am}(n,\gamma)$ dominates, with the contribution coming from $^{242\text{m}}\text{Am}$ decay being negligible. X- and γ -spectroscopy measurements will then provide directly the capture cross section for $^{241}\text{Am}(n,\gamma)^{242\text{gs}}\text{Am}$. These measurements require a very short irradiation (30 minutes) in order to avoid a huge background coming from the X-rays emitted from the fission fragments.

At long cooling times, the initial $^{242\text{gs}}\text{Am}$ has disappeared and the $^{242\text{gs}}\text{Am}$ present in the sample is formed only by the internal conversion of $^{242\text{m}}\text{Am}$ ($T_{1/2} = 141$ y). In this case, X and γ -ray spectroscopy measurements of a sample irradiated for 1 day on H9 will provide the capture cross section for $^{241}\text{Am}(n,\gamma)^{242\text{m}}\text{Am}$.

A high-purity germanium detector with a thickness of 1.5 cm, a diameter of 4.37 cm and a 500 μm beryllium window was used in the measurements.

In Figure 6, the X and γ spectra obtained after a cooling time of 1.9 and 273 days are shown. The γ transition at 42.1 keV is strongly suppressed after 273 days as a consequence of the disappearing of $^{242\text{gs}}\text{Am}$ formed during the irradiation. The γ -lines at 101.9 keV and 44.1 keV of ^{238}Pu following the α -decay of ^{242}Cm ($T_{1/2} = 163$ d) are observed together with the K_{α} -lines of ^{242}Pu emitted in the EC-decay of $^{242\text{gs}}\text{Am}$.



Nuclear physics A 693 (2001) 546-564

Figure 6: X and γ -spectra from ^{241}Am irradiated samples after a cooling time of 1.9 and 273 days.

The global analysis of the obtained spectra [15] provide the following values for the capture cross sections and the branching ratio at the thermal energy of 25.3 meV:

$$\begin{aligned} {}^{241}\text{Am}(n,\gamma) &= (696 \pm 48) \text{ barns} \\ {}^{241}\text{Am}(n,\gamma) {}^{242\text{gs}}\text{Am} &= (636 \pm 46) \text{ barns} \\ {}^{241}\text{Am}(n,\gamma) {}^{242\text{m}}\text{Am} &= (60 \pm 4) \text{ barns} \\ BR &= 0.914 \pm 0.007 \end{aligned}$$

While the branching ratio is in agreement with the values given in the literature, the total capture cross section is 16% higher than the recommended value from Mughabghab [14] and 19% lower than the measurement of Shinohara [13].

Measurement of the Transmutation of ^{241}Am

The total amount of ^{241}Am transmuted during the 19 days irradiation on H9 was measured by gamma spectroscopy using a spare 154 μg (2% uncertainty) sample irradiated at the same time with the other equivalent samples. After a very long cooling time of 1072 days, required to decrease the total activity of the sample, a gamma spectroscopy measurement was performed.

The mass of the ^{241}Am at the end of the irradiation was estimated to be 82.52 μg (4% uncertainty), giving a transmutation rate of $(46 \pm 5) \%$.

Mass spectrometry analysis

The high activity of the samples after few days of irradiation, coming mainly from the fission fragments, makes gamma spectroscopy measurements impossible. The more precise way to determine the isotopic composition of irradiated samples is based on mass spectrometry after a cooling time of about six months to reduce the radiological hazard.

Table 4: Relative concentration of americium and curium isotopes obtained by TIMS. The given error is the standard deviation of three separate analysis performed on each sample.

Sample	${}^{242}\text{Am}/{}^{241}\text{Am}$ 10^{-3}	${}^{243}\text{Am}/{}^{241}\text{Am}$ 10^{-3}	${}^{243}\text{Cm}/{}^{242}\text{Cm}$ 10^{-3}	${}^{244}\text{Cm}/{}^{242}\text{Cm}$ 10^{-3}	${}^{242}\text{Cm}/{}^{241}\text{Am}$ 10^{-3}
H9, 1 day	2.90±0.02	0.20±0.01			
H9, 2 days	4.61±0.03	0.51±0.01			
H9, 5 days	8.64±0.04	3.05±0.06			
H9, 11 days	9.99±0.05	7.20±0.04	29.16±0.15	3.709±0.025	31.19±0.35
H9, 19 days	10.45±0.05	15.94±0.08	38.18±0.20	6.393±0.035	85.38±0.90
T4, 5 days	0.50±0.004	0.006±0.001			
T4, 11 days	1.361±0.008	0.024±0.002			
T4, 24 days	2.505±0.013	0.079±0.003	1.682±0.015	0.106±0.003	4.57±0.05

Table 5: Relative concentration of plutonium isotopes obtained by TIMS. The given error is the standard deviation of three separate analysis performed on each sample.

Nuclear physics A 693 (2001) 546-564

Sample	$^{239}\text{Pu}/^{238}\text{Pu}$ 10^{-3}	$^{240}\text{Pu}/^{238}\text{Pu}$ 10^{-3}	$^{241}\text{Pu}/^{238}\text{Pu}$ 10^{-3}	$^{242}\text{Pu}/^{238}\text{Pu}$ 10^{-3}	$^{238}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ 10^{-3}
H9, 11 days	15.43±0.07	9.436±0.040	1.442±0.008	233.8±0.8	249.3±2.5
H9, 19 days	11.94±0.06	6.70±0.03	1.131±0.006	241.3±0.8	429.2±4.5
T4, 24 days	219.0±0.9	86.88±0.30	10.22±0.03	277.9±0.9	15.99±0.16

After dissolution of the deposit in nitric acid, the Pu isotopes were separated by a ion-exchange resin. The remaining solution underwent to a High Performance Liquid Chromatography (HPLC) to separate the elements Am and Cm, where several isobars are present. A separation approaching 100% was obtained, with a reproducibility of 1%. The purity of the obtained fractions was verified by Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry (ICP-MS), before depositing each fraction on a rhenium filament of a thermal ionisation source.

All samples were analysed by Thermal Ionisation Mass Spectrometry (TIMS). Each complete analysis (chemical separation and TIMS) was repeated three times. With TIMS, the Am isotope ratios for all samples, as well as those of Cm and Pu for three samples, were measured for each element present on some tens of ng, with a precision ranging from 0.5 % to few percents, depending on the value of the isotopic ratios. For some samples, the isotope dilution analysis with tracers was applied for the determination of Cm and Pu amounts relative to the initial ^{241}Am quantity.

In Table 4 and 5 we report the results of the different isotopic ratios for all 8 irradiations. The total time required to carry out all analyses was about 4 months. The given errors (95% confidence limit) on the Pu isotopic ratios have been obtained by comparison with Pu isotope standards, which permit the adaptation of the TIMS analytical procedures to obtain accurate isotopic ratios. For the Am and Cm isotopic ratios, a previous study [16] has shown that the precision obtained by TIMS was of the same order than for Pu measurements.

For the $^{242}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ and for $^{238}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ ratios, the given uncertainties take into account the errors on the concentration of the spike solutions as well as the errors on the different measurements on the isotopic ratio.

The data in table 4 and 5 were not corrected for the different cooling periods of the samples.

Nuclear physics A 693 (2001) 546-564

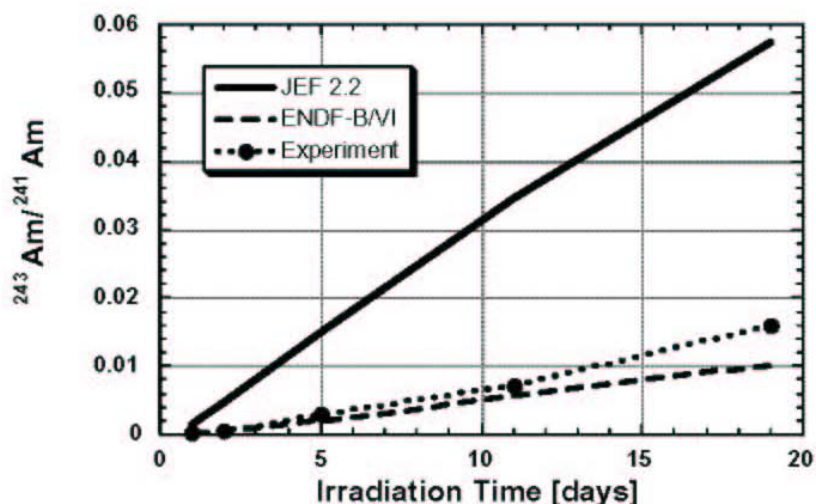


Figure 7: isotopic ratio $^{243}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ plotted as a function of the irradiation time. The continuous and the dashed lines are respectively calculated for a nominal neutron flux of $5 \cdot 10^{14} \text{ n/s/cm}^2$ from JEF 2.2 and ENDF-B/VI libraries. The uncorrected experimental data are plotted with a circle marker connected by a dotted line to guide the eye.

In order to get a first qualitative estimate of the $^{242\text{gs}}\text{Am}$ capture cross section value, in figure 7 the isotopic ratio $^{243}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ is plotted as a function of the irradiation time. The continuous and the dotted lines are calculated for a nominal neutron flux of $5 \cdot 10^{14} \text{ n/s/cm}^2$ using respectively JEF 2.2 and ENDF-B/VI libraries. The uncorrected experimental data, without any renormalization on the neutron flux, are plotted with circles connected by a dashed line to guide the eye. It is evident from these raw data that the value of the $^{242\text{gs}}\text{Am}$ cross section is compatible with the ENDF-B/VI evaluation.

Determination of the $^{242\text{gs}}\text{Am}$ thermal neutron capture cross section

The mass spectrometry data, as well as the X- and γ -ray spectroscopy measurements, were analysed to determine the capture cross sections of $^{242\text{gs}}\text{Am}$ [17].

All available measurements on the different samples ($X_s \pm \delta X_s$) - isotopic ratios ($^{243}\text{Am}/^{241}\text{Am}$, $^{242\text{m}}\text{Am}/^{241}\text{Am}$) for all samples as well as Cm and Pu abundances for three samples- constitute the experimental data to be compared in a global fit with the prediction (P_s) obtained by solving the Bateman equations (eq. 1) describing the evolution of each sample.

The main nuclear parameters used by the fitting program are given in Table 6, where the cross section data are given at the thermal energy. Maxwellian averaged cross sections at the temperature of the ILL D₂O moderator of 50 degrees Celsius were calculated prior to the fit.

Table 6: Main Nuclear Parameters at the thermal neutron energy used in the fitting procedure. All other required neutron data were taken from the ENDF-B/VI.2 library.

Reaction	Cross Section [barn]	Reference
$^{241}\text{Am}(n,\gamma)^{242}\text{Am}$	696±48	this work
^{241}Am Branching Ratio	0.914±0.007	this work
$^{241}\text{Am}(n,f)$	3.20±0.09	Mughabghab

Nuclear physics A 693 (2001) 546-564

$^{242\text{gs}}\text{Am}(n,f)$	2100±200	Mughabghab
$^{242\text{m}}\text{Am}(n,\gamma)^{243}\text{Am}$	2000±600	Mughabghab
$^{242\text{m}}\text{Am}(n,f)$	6950±280	Mughabghab
$^{242}\text{Cm}(n,\gamma)^{243}\text{Cm}$	16.8±5.0	Mughabghab

The minimisation of the global χ^2 function over all different measurements and for all twelve samples,

$$\chi^2 = \sum_{s=1}^{12} \sum_{m \neq \omega} \left(\frac{X_s - P_s}{\delta X_s} \right)^2 \quad (11)$$

with the unknown $^{242\text{gs}}\text{Am}$ capture cross section as a free parameter.

The result obtained at the thermal neutron energy is:

$$^{242\text{gs}}\text{Am}(n,\gamma) = (330 \pm 50) \text{ barns}$$

This value is around the minimum in the χ^2 function as shown Figure 9.

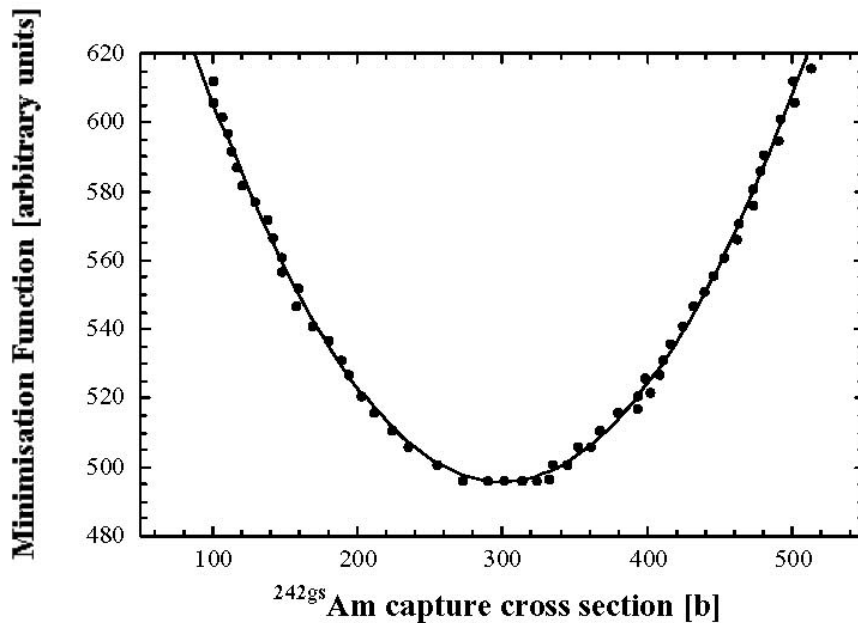


Figure 9: values of the minimisation function versus the $^{242\text{gs}}\text{Am}(n,\gamma)$ cross section. The full line corresponds to a second-degree polynomial fit.

It should be stressed that there is a very high correlation of the $^{242\text{gs}}\text{Am}(n,\gamma)$ cross section value with the ^{241}Am branching ratio and the ^{241}Am total capture cross section. For this reason, the results obtained by the gamma spectroscopy measurements previously described were fixed in the fitting procedure. The absolute error on the $^{242\text{gs}}\text{Am}$ capture cross section was estimated on a sensitivity study by variation of the ^{241}Am branching ratio and total capture cross section, as shown in Figure 10. The correlation obtained in the fit between the

Nuclear physics A 693 (2001) 546-564

two cross section are plotted, and the error assumed for the $^{242\text{gs}}\text{Am}$ capture cross sections corresponds to the 95% confidence interval shown in the plot.

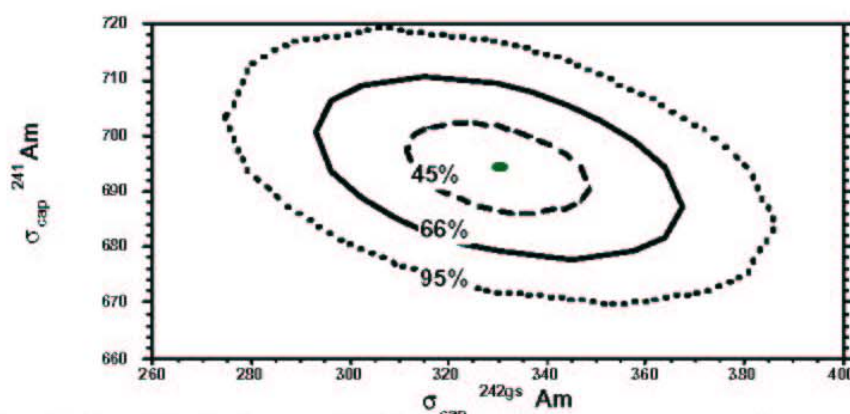


Figure 10: Correlation plot between the ^{241}Am and the $^{242\text{gs}}\text{Am}$ capture cross sections

Other nuclear parameters, as the beta decay branching of the $^{242\text{gs}}\text{Am}$, were fixed during the analysis. Our experiment is not particularly adapted for a precise determination of this parameter and though the fit would have been more accurate, the obtained results for the beta branching ratio would have had no physical meaning.

With this respect we want to stress the importance of keeping the nuclear physics content of the parameters fitted in the analysis of these kinds of experiments, where several components are strongly correlated. The quest for a good mathematical fit is legitimated only if the fitted quantities are chosen according to the experimental sensitivity. This is often not the case in nuclear reactor global fitting procedures, where all parameters are left free even if more suited experiments have already precisely determined those values.

The $^{242\text{gs}}\text{Am}$ experimental cross section value is compatible with both the ENDF-B/VI value of 252.08 barns and with a recent evaluation by Maslov [18] that indicates a value of 218.32 barns. The value of 5500 barns of JEF-2.2 and JENDL 3.2 cannot be accepted and therefore the low D-factor shown in figure 1 is valid. The estimates of transmutation of ^{241}Am in highly thermalised spectra -obtained also in a moderated fuel assembly in fast reactors- based on those libraries have to be fully reconsidered.

Incineration rate of ^{241}Am

For two of the irradiated samples, a semi-quantitative analysis has also been carried out by ICP-MS to obtain the weight ratio of the integrated non-volatile fission fragments with respect to the remaining weight ratio of ^{241}Am . The results are given in table 7.

Table 7: ratio of the total mass of the non-volatile fission fragments with respect to the remaining mass of ^{241}Am .

	Σ Fission Fragments/ ^{241}Am remaining
H9, 19 days	0.17±0.05
T4, 24 days	0.058±0.014

Nuclear physics A 693 (2001) 546-564

In order to obtain the fraction of the initial ^{241}Am incinerated by nuclear fission, the ICP-MS results have to be renormalized to include the contribution from volatile fragments. Experimental data can be obtained from the $^{241}\text{Am}(2n_{\text{th}},f)$ fission yields for krypton isotopes [19, 20]. Summing over the yields of $A=83, 84, 86$, a yield of $(1.75\pm 0.2)\%$ was obtained. On the opposite, for xenon isotopes no experimental data exists for the yield of heavy fission fragments and the $^{242}\text{Am}(n_{\text{th}},f)$ evaluated yields from [21] were assumed, providing a total yield of 11.66% for $A=129, 131, 132, 134, 136$.

The volatile fission fragments were estimated to represent $(13\pm 2)\%$ of the total fission yield. At the temperature of ICP-MS only Kr and Xe isotopes are gaseous. Other elements like bromine and iodine that could have been at their boiling temperature during the irradiation, should be solid during the ICP-MS analysis. The error given in the volatile fragment yield includes the uncertainty on the chemical processes connected to condensation and on using the xenon fission yields from a theoretical evaluation.

Therefore the ratio of the total mass of fission fragments with respect to the remaining mass of ^{241}Am will be $(19\pm 7)\%$. This means that $(22\pm 8)\%$ of the transmuted ^{241}Am was incinerated by nuclear fission during a short irradiation of 19 days in a thermal neutron flux of $5.6 \cdot 10^{14} \text{ n/s/cm}^2$.

In the near future, we will carry out measurements in neutron spectra with the same thermal flux but with the addition of an equivalent epithermal component. The total neutron flux will be about $2 \cdot 10^{15} \text{ n/s/cm}^2$, a value that will permit a more realistic approach to the foreseen transmutation systems based on moderated neutron spectra. This new installation, named Mini-Inca, has been recently commissioned at ILL/Grenoble [22]. A much more efficient incineration of nuclear waste, and of ^{241}Am in particular, should then be possible by the interplay between strong thermal and epithermal components. This will result in a significant reduction of long-term radiotoxicity. These spectra that are characteristics of a number of innovative systems, from GT-HMR [23] to molten salt reactors, are extremely promising and more attractive than fast reactor like spectra, both for the radiotoxicity reduction and for the fuel inventory in the reactor. The same experimental approach followed in the present study will be applied, using low-mass samples and nuclear physics methods to determine essential nuclear parameters shortly after irradiation.

Conclusions

After an irradiation of only 19 days in a perfectly thermalised neutron spectrum of $5.6 \cdot 10^{14} \text{ n/s/cm}^2$, $(46\pm 5)\%$ and $(10\pm 4)\%$ of the initial ^{241}Am were transmuted and incinerated respectively. The thermal neutron capture cross sections of the most important Am isotopes were measured. The value of (330 ± 50) barns for the $^{242\text{gs}}\text{Am}$ capture cross section keeps the option open to transmute ^{241}Am together with the minor actinides issued from multi-recycling of a MOX fuel by an intense flux of moderated neutrons.

We showed that fundamental research studies based on nuclear physics experiments are indeed essential to address the problem of nuclear waste incineration.

Acknowledgements

This experiment would have not been possible without the co-operation and the essential help of the personnel of the ILL-Grenoble. We wish to acknowledge the ILL reactor division in the person of Dr. E. Bauer for the competent and efficient technical support.

*Nuclear physics A 693 (2001) 546-564***References**

- [1] C. D. Bowman et al., NIM A320 (1992)336-367
- [2] C. Rubbia et al., CERN/AT/95-44 (ET), Geneva (1995)
- [3] M. Benedict, T.H. Pigford, H. W. Levi, Nuclear Chemical Engineering, Mc Graw Hill, New York (1985)
- [4] F. Lelievre, PhD Thesis, Université de Paris Sud, 1998 (in french)
- [5] JENDL-3.2, The Japanese Evaluated Nuclear Data Library, IAEA-Vienna, IAEA-NDS-110 Rev. 5 (1994)
- [6] JEF-2.2, The evaluated neutron nuclear data library of the NEA Data Bank, IAEA-Vienna, IAEA-NDS-120 Rev. 3 (1996)
- [7] ENDF/B-VI, The US evaluated nuclear data library for neutron reaction data, IAEA-Vienna, IAEA-NDS-100 Rev. 6 (1995)
- [8] T. Nakagawa and S. Igarasi, JAERI report, M8903 (1980)
- [9] I. Slessarev, M. Salvatores, M. Uematsu, Proceeding of the Int. Conf. Global 93, Versailles (1993)
- [10] G. Fioni et al., Proc. Seminar on Fission Point D'Oye IV, C. Wagemans, O. Serot and P. D'Hondt Editors, World Scientific, ISBN 981-02-4241-7, World Scientific, (2000) 203-214
- [11] Y. Terrien, CEA report, DSM/DAPNIA/SPhN 98-56 (1998)
- [12] F. Gunsing and G. Fioni, CEA-report, DAPNIA/SPhN (1998) 98-07;
- [13] N. Shinohara et al., Journal of Nucl. Sci. and Technology, Vol. 34, No. 7. P.613-621 (July 1997)
- [14] S. F. Mughabghab, BNL 325, 4th edition, Vol. 1, Part B, (1987)
- [15] F. Marie et al., G. Fioni et al. Editors, American Institute of Physics Conference Series 447(1998)52-60
- [16] F. Chartier, M. Aubert, M. Pilier, Fresenius Journal of Analytic Chemistry (1999) 364;320-327
- [17] M. Cribier et al., Proc. of the Int. Conf. on the Physics of Nuclear Science and Technology, Long Island, American Nuclear Society, Vol. 2 (1998) 1719-1725
- [18] V.M. Maslov, IAEA- Vienna, INDC(BLR) - 007 (January 1997)
- [19] M. Davi et al., G. Fioni et al. Editors, American Institute of Physics Conference Series 447(1998)239-246
- [20] P. Siegler et al., Proc. Of the Conf. On Nuclear Data for Science and Technology, S.M. Qaim editor, 1992, Springer, Berlin, p. 128
- [21] T.R. England and B.F. Rider, Los Alamos National Laboratory, LA-UR-94-3106; ENDF-349 (1993).
- [22] G. Fioni et al., Proc. of the 5th Int. Information Exchange Meeting on Actinide and Fission-Product Partitioning and Transmutation, Mol (Belgium), OECD/NEA Paris (1999) 231-238
- [23] D. Ridikas et al., Proc. of the 6th Int. Information Exchange Meeting on Actinide and Fission-Product Partitioning and Transmutation, Madrid (Spain), OECD/NEA Paris, in press

SUMMARY - RÉSUMÉ

This work concerns the development of nuclear energy and nuclear waste management in particular. Two parts of this study can be distinguished.

In the first part (theoretical), a thorium–plutonium fuel based on MOX and dedicated for PWR was investigated in order to transmute plutonium in a potentially low waste fuel cycle. It was shown that this type of fuel is not regenerative but could be used for a transition to the industrial thorium fuel cycle without building new reactors. Thanks to moderated neutron spectra and high loaded actinide mass in the core, U-233 is quickly created (~300 kg/y) for a loss of about ~1200kg of fissile plutonium.

In the second part (experimental), we have developed and built a new reaction chamber to measure neutron cross sections of actinides by alpha-gamma spectroscopy. This experimental device (in principle transportable) was commissioned in the high flux reactor of ILL Grenoble. Neutron flux was measured by gamma spectroscopy of irradiated Al and Co samples and was found to be of the order of $6,0 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ (4%). By the irradiation of 11 μg of Am-243 and Pu-242, corresponding capture cross sections were measured in the thermal neutron flux at 50°C. These are the results: $^{243}\text{Am}(n,\gamma) \text{ } ^{244\text{fond.}}\text{Am}=4,72 \pm 1,42\text{b}$; $^{243}\text{Am}(n,\gamma) \text{ } ^{244\text{total}}\text{Am}=74,8 \pm 3,25\text{b}$; $^{242}\text{Pu}(n,\gamma) \text{ } ^{243}\text{Pu}=22,7 \pm 1,09\text{b}$. Uncertainties of the measurements are mostly due to the determination of the neutron flux, efficiency of the electronics and ambiguities related to the definition of the area under α - γ spectra. Although our measured cross sections deviate (by 10-30%) from the corresponding values widely used in evaluated data libraries such as ENDF, JEF and JENDL, in this work we have demonstrated the feasibility and principle of our experimental method. Furthermore, the value for the 243-américium capture cross-section is in very good agreement with the last two measurements done in 1975 and 1997. These facts allowed us to think of new experiments and their eventual improvements.

Ce travail s'inscrit dans le cadre de la gestion des déchets nucléaires et du développement du nucléaire comme source d'énergie.

Dans une première partie (théorique) nous avons étudié un combustible MOX thorium–plutonium pour les REP afin de transmuter le plutonium, créer moins de déchets nucléaires et augmenter les réserves énergétiques. Ce combustible n'est pas régénérateur mais peut être utilisé dans une optique de transition : il crée de l'uranium 233 et permet d'avoir de manière simple et rapide, sans avoir à construire de nouveaux réacteurs, une première expérience industrielle avec des combustibles thorium. Les spectres modérés et l'importance des inventaires font que la création d'uranium 233 est assez rapide, 300kg par an et par réacteur, pour une disparition d'environ 1,2t de plutonium fissile.

Dans une seconde partie, expérimentale, nous avons développé et construit une nouvelle chambre à vide pour mesurer des sections efficaces neutroniques par spectroscopie α - γ . Elle a ensuite été installée dans l'enceinte du réacteur à haut flux de l'ILL Grenoble. Par spectroscopie de moniteur aluminium-cobalt, le flux neutronique a été mesuré égal à $6,0 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ (4%). Par irradiation d'échantillons d'environ 11 μg d'américium 243 et de plutonium 242 nous avons mesuré leurs sections efficaces de capture dans le flux thermique à 50°C du réacteur. Les résultats obtenus sont de : $^{243}\text{Am}(n,\gamma) \text{ } ^{244\text{fond.}}\text{Am}=4,72 \pm 1,42\text{b}$; $^{243}\text{Am}(n,\gamma) \text{ } ^{244\text{total}}\text{Am}=74,8 \pm 3,25\text{b}$; $^{242}\text{Pu}(n,\gamma) \text{ } ^{243}\text{Pu}=22,7 \pm 1,09\text{b}$. Les principales incertitudes proviennent de la détermination du flux, de l'efficacité électronique et des surfaces des raies sur les spectres. Ces résultats sont supérieurs de 10% pour l'américium 243 et 30 pour le plutonium 242 aux valeurs utilisées dans les bibliothèques évaluées. Néanmoins, la section efficace de capture trouvée de l'américium est compatible avec les deux mesures les plus récentes datant de 1976 et 1997. Ces premières irradiations valident la faisabilité et les principes de notre dispositif expérimental et permettent d'en envisager des perfectionnements et de nouvelles expériences.