



Gestion INIS  
Doc. Enreg. le 26/11/2003...  
N° TRN FR03.0...2254

# DAPNIA

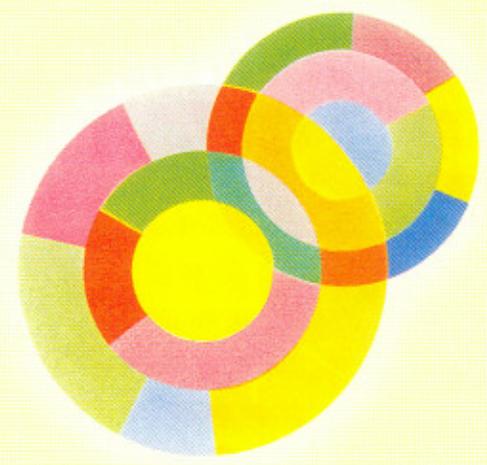
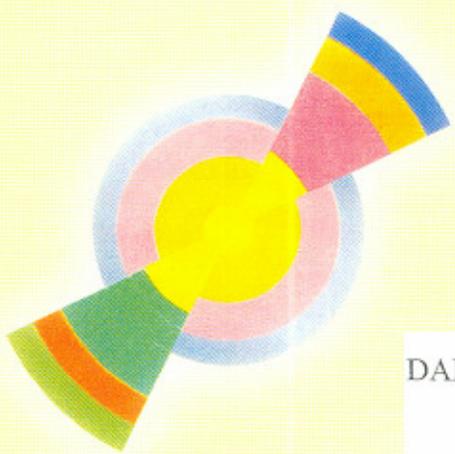
A 3000 343



FR0302254



*Retourner*



DAPNIA-03-01-T

Thèse soutenue  
Le 6/03/2003

Mise au point d'une méthodologie innovante pour la mesure du potentiel d'incinération d'actinides mineurs sous des sources très intenses de neutrons, dans la perspective de transmutation des déchets nucléaires.

Manssour FADIL

**INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE GRENOBLE**



**THESE**

Pour obtenir le grade de

**DOCTEUR DE L'INPG**

**Spécialité : « Energétique Physique »**

Préparée au Service de Physique Nucléaire du Commissariat à l'Energie Atomique  
dans le cadre de l'Ecole Doctorale « Energétique et Mécanique »

Présentée et soutenue publiquement

par

Manssour FADIL

Le 26 mars 2003

**Titre :**

**MISE AU POINT D'UNE MÉTHODOLOGIE INNOVANTE POUR LA MESURE DU  
POTENTIEL D'INCINÉRATION D'ACTINIDES MINEURS SOUS DES SOURCES TRÈS  
INTENSES DE NEUTRONS,  
DANS LA PERSPECTIVE DE TRANSMUTATION DES DÉCHETS NUCLÉAIRES**

---

**Directeur de thèse : Pr. Jean-Marie LOISEAUX**

---

**JURY**

M. Jacques Martino,	Président, rapporteur
M. Philippe Leconte,	Rapporteur
M. Jean-Marie Loiseaux,	Directeur de thèse
M. Gabriele Fioni,	Responsable et encadrant de thèse
M. Jean-Louis Durand,	Examineur
M. Frédéric Marie,	Examineur
M. Christophe Blandin,	Examineur



*À MES PARENTS*

*À NOUHAD, MA NIÈCE BIEN AIMÉE*

*À TOUS MES PROCHES*



## Remerciements

*« Les mots sont ces quelques feuilles qui créent l'illusion d'un arbre avec toutes ses feuilles »  
Elsa Triolet (Romancière Française contemporaine)*

### JE M'EN SOUVIENDRAI...

Les contes ont, d'ordinaire, une fin heureuse. Ma thèse a été un vrai conte. Par la volonté de ses personnages, leur détermination et aussi leur force d'esprit, nulle autre fin n'était concevable.

J'aimerais exprimer ma reconnaissance la plus sincère à toutes celles et à tous ceux qui ont eu leur mot à dire dans ce travail...qui ont fait l'effort de le rendre distingué, efficace et fort utile. La thèse n'est jamais un travail purement personnel.

Je voudrais avant tout remercier le Pr. Jean-Marie Loiseaux d'avoir accepté d'être le directeur de cette thèse. Chaque fois qu'une rencontre nous réunissait à l'Institut des Sciences Nucléaires à Grenoble, seul ou accompagné de mes responsables de thèse, j'en sortais avec des conseils précieux qui étaient pour moi d'une grande utilité pour avancer dans ce travail.

Je remercie M. Jacques Martino d'avoir accepté d'être le rapporteur de cette thèse. Je me souviendrai toujours de son intervention, lorsqu'il était chef du Service de Physique Nucléaire, pour sauver mon projet quand ce dernier a connu de vrais problèmes budgétaires. Son apport à ce projet était crucial et décisif.

Je tiens à remercier M. Philippe Leconte d'avoir accepté sans hésitation d'être membre de mon jury malgré ses nombreux engagements et pour avoir été rapporteur de ces travaux. Je le remercie très sincèrement de ce temps qu'il m'a consacré un samedi soir pour discuter longuement et en détail de mon travail. Ses commentaires et ses critiques m'ont éclairé.

A M. Jean-Louis Durand j'adresse un très grand merci. C'était un vrai honneur pour moi qu'il ait été membre dans mon jury de thèse. C'est grâce à vous, M. Durand, que j'ai aimé la neutronique. Je me souviendrai toujours, avec une grande nostalgie, de cette forte ambiance du savoir que vous faisiez régner dans notre classe d'élèves-ingénieurs à l'INPG. Je vous remercie d'avoir accepté d'être membre dans mon jury.

Mon cher Gabriele, que puis-je dire pour te remercier de tout ce que tu as fait pour cette thèse ? Tu n'étais pas seulement le responsable de ce travail qui a su le suivre efficacement, mais aussi un père (ou un grand frère, tu es encore jeune, Gabriele) par tes conseils et ta présence. Tu as toujours su m'écouter, me guider et me motiver. Tu avais toujours des solutions pour tous les problèmes qui se posaient parfois comme une barrière devant notre projet. Tu m'as aimablement et aussi efficacement permis de profiter de ton réseau relationnel très riche pour que ce travail avance sans cesse. Tu resteras l'une des personnes auxquelles je m'adresserai sans hésitation dans l'avenir pour demander conseil. Au nom de tout ce qui a été beau et de tout ce qui a été excellent dans cette thèse, je crie « Merci Gabriele ! Merci, Merci, Merci ! ».

Mon cher Fred, tu as été la personne qui su seconder Gabriele. Ton apport dans ma thèse, en particulier dans les derniers mois, était vital. Tu as été disponible chaque fois que

j'avais besoin de ton aide. Tu n'as jamais hésité à me consacrer du temps pour répondre à mes questions. Ta compétence, ton efficacité et ton dynamisme se sont distingués. Et si nous n'avons pas toujours partagé les mêmes visions, cela n'a pas empêché que nous ayons de forts échanges constructifs. Je te reconnais, Fred, une grande qualité, tu sais facilement motiver ceux qui t'entourent. Et lorsque tu t'engages, c'est avec sincérité que tu le fasses. Merci Fred et bon courage pour la poursuite de nos travaux à Méga-Pie.

Christophe, tu étais toujours présent lorsque j'avais besoin de toi. J'ai beaucoup admiré en toi ton grand sens de responsabilité. Ton apport à mon travail a été distingué par ton savoir-faire. Ton efficacité et ta rigueur m'ont beaucoup marqué. Merci Christophe et meilleur succès pour ton engagement aux diverses applications de ce travail.

Je remercie également Gilles Bignan du CEA/Cadarache que j'ai connu au début de ma thèse et qui a été l'un des premiers à lancer notre projet sur les chambres à fission.

Je tiens à exprimer à Nicolas Alamanos, chef du Service de Physique Nucléaire, et Françoise Auger, son adjointe, à quel point j'étais touché par leur enthousiasme qu'ils ont toujours su montrer pour mon travail. Ils ont toujours été disponibles pour m'écouter et me conseiller. Merci Nicolas, merci Françoise. Ce que j'ai appris durant mon passage dans votre service je ne l'ai appris nulle part ailleurs.

Danas, tu es l'une des personnes desquelles je garderai les plus beaux souvenirs de mon passage au CEA. J'ai appris de toi énormément de choses, sans peut-être que tu t'en rendes compte. J'ai beaucoup d'admiration pour ta personnalité, tes qualités humaines, ta noblesse, ta sincérité et aussi ton savoir. Je me souviendrai de ces nuits de neige et de ces « -20°C » à Vilnius dans ton pays, la Lituanie. Je me souviendrai de ce repas et de cette soirée de Noël chez tes parents. Je me souviendrai de Sénine, de Lucas et de Thomas. Je vous donne, à ta chère famille et à toi, rendez-vous dans les vieilles ruelles étroites et serpentine de Fès pour te faire découvrir mon pays comme tu m'as fait découvrir le tien. Tu découvriras les œillets de mon enfance, ceux de mes vacances, les roses de ma grand-mère, les iris de nos cimetières, les jasmins de nos rues, les orangers en fleurs, les fleurs de pastèques et le charme du chant du muezzin. Tu comprendras pourquoi j'aime tant le Maroc et pourquoi je t'ai dit un jour « *La poésie de la terre ne meurt jamais !* »

Alain, tu m'as toujours admirativement étonné par ta sérénité, invariable quelles que soient les circonstances. Le monde s'écroule autour de toi et tu restes malgré tout dans un calme absolu. Ne serais-tu pas l'incarnation d'un des Sages à la Robe Prune qui ont marqué la civilisation chinoise il y a plus de trois mille ans ?

Tu me dois encore une sortie dans un restaurant marocain aux danseuses du ventre à Paris pour fêter, même tardivement, ma soutenance !

Merci Alain pour ta contribution dans ce travail. Tu as mon amitié la plus sincère.

Olivier, nous nous sommes toujours compris sans avoir besoin du lexique des mortels. Peu de temps était suffisant pour que nous nous découvriions. Nous avons partagé une belle complicité durant ces trois années de thèse passées ensemble au CEA. Je t'ai compris. Cela s'est passé en pleine lumière. Les rideaux n'étaient pas tirés. Quiconque voulait voir, voyait. La pluie aura cessé. Les vagues retomberont. Sur un ciel éclairé, les nuages s'écarteront et redeviendront ce qu'il faut que soient les nuages au-dessus des humains, sublimes et burlesques dans leur ressemblance aux îles bienheureuses. A bientôt Olivier sur une dune dans le désert marocain !

j'avais besoin de ton aide. Tu n'as jamais hésité à me consacrer du temps pour répondre à mes questions. Ta compétence, ton efficacité et ton dynamisme se sont distingués. Et si nous n'avons pas toujours partagé les mêmes visions, cela n'a pas empêché que nous ayons de forts échanges constructifs. Je te reconnais, Fred, une grande qualité, tu sais facilement motiver ceux qui t'entourent. Et lorsque tu t'engages, c'est avec sincérité que tu le fasses. Merci Fred et bon courage pour la poursuite de nos travaux à Méga-Pie.

Christophe, tu étais toujours présent lorsque j'avais besoin de toi. J'ai beaucoup admiré en toi ton grand sens de responsabilité. Ton apport à mon travail a été distingué par ton savoir-faire. Ton efficacité et ta rigueur m'ont beaucoup marqué. Merci Christophe et meilleur succès pour ton engagement aux diverses applications de ce travail. Je remercie également Gilles Bignan du CEA/Cadarache que j'ai connu au début de ma thèse et qui a été l'un des premiers à lancer notre projet sur les chambres à fission.

Je tiens à exprimer à Nicolas Alamanos, chef du Service de Physique Nucléaire, et Françoise Auger, son adjointe, à quel point j'étais touché par leur enthousiasme qu'ils ont toujours su montrer pour mon travail. Ils ont toujours été disponibles pour m'écouter et me conseiller. Merci Nicolas, merci Françoise. Ce que j'ai appris durant mon passage dans votre service je ne l'ai appris nulle part ailleurs.

Danas, tu es l'une des personnes desquelles je garderai les plus beaux souvenirs de mon passage au CEA. J'ai appris de toi énormément de choses, sans peut-être que tu t'en rendes compte. J'ai beaucoup d'admiration pour ta personnalité, tes qualités humaines, ta noblesse, ta sincérité et aussi ton savoir. Je me souviendrai de ces nuits de neige et de ces « -20°C » à Vilnius dans ton pays, la Lituanie. Je me souviendrai de ce repas et de cette soirée de Noël chez tes parents. Je me souviendrai de Sénine, de Lucas et de Thomas. Je vous donne, à ta chère famille et à toi, rendez-vous dans les vieilles ruelles étroites de Fès pour te faire découvrir mon pays comme tu m'as fait découvrir le tien. Tu découvriras les œillets de mon enfance, ceux de mes vacances, les roses de ma grand-mère, les iris de nos cimetières, les jasmins de nos rues, les orangers en fleurs, les fleurs de pastèques et le charme du chant du muezzin. Tu comprendras pourquoi j'aime tant le Maroc et pourquoi je t'ai dit un jour « *La poésie de la terre ne meurt jamais !* »

Alain, tu m'as toujours admirativement étonné par ta sérénité, invariable quelles que soient les circonstances. Le monde s'écroule autour de toi et tu restes malgré tout dans un calme absolu. Ne serais-tu pas l'incarnation d'un des Sages à la Robe Prune qui ont marqué la civilisation chinoise il y a plus de trois mille ans ?

Tu me dois encore une sortie dans un restaurant marocain aux danseuses du ventre à Paris pour fêter, même tardivement, ma soutenance !

Merci Alain pour ta contribution dans ce travail. Tu as mon amitié la plus sincère.

Olivier, nous nous sommes toujours compris sans avoir besoin du lexique des mortels. Peu de temps était suffisant pour que nous nous découvriions. Nous avons partagé une belle complicité durant ces trois années de thèse passées ensemble au CEA. Je t'ai compris. Cela s'est passé en pleine lumière. Les rideaux n'étaient pas tirés. Quiconque voulait voir, voyait. La pluie aura cessé. Les vagues retomberont. Sur un ciel éclairé, les nuages s'écarteront et redeviendront ce qu'il faut que soient les nuages au-dessus des humains, sublimes et burlesques dans leur ressemblance aux îles bienheureuses. A bientôt Olivier sur une dune dans le désert marocain !

J'adresse à tous ceux qui ont fait, ou qui font toujours, partie du groupe « Mini-Inca » ou du groupe de « Données Nucléaire » en général, mes remerciements pour toutes les discussions que nous avons eues, Rita, Arthuras, Darius, Jean-Cristophe, Pavel, Marie-Laure, Laurent, Sylvie, Céline, Stéphane Rötteger et autres.

Je remercie Claude Mounier de m'avoir accueilli dans son laboratoire au Service des Etudes des Réacteurs et de Mathématiques Appliquées (le SERMA) et d'avoir encadré, durant trois mois, les calculs que j'ai faits avec APOLLO2.

Je remercie fortement Christian Veyssière, le chef du projet Mini-Inca. C'est grâce à lui que l'installation du tube V4 et que toutes les réalisations techniques ont été faites dans les meilleures conditions.

Il y a beaucoup de personnes qui ont contribué d'une façon très importante à ce travail mais qui sont restées dans l'ombre. A ces personnes j'adresse ma sympathie et ma profonde reconnaissance. Le fait qu'elles aient été dans l'ombre n'a pas empêché leurs étoiles d'éclairer mon travail. Je pense à Daniel Le-Bihan et à Guy Rousseau et à ses collègues du service technique du DAPNIA. Je pense à Stéphane Bréaud, du CEA/Cadarache, et son rôle dans la réalisation des chambres à fission, à Marc Samuel, Elvio Manninno, André Rimet et d'autres ingénieurs et techniciens de l'Institut Laue-Langevin à Grenoble.

J'exprime ma sympathie à Danielle, Isabelle, Gilles, Pierre-François et tout le personnel du SPhN.

Je n'oublierai pas non plus les physiciens du SPhN qui m'ont toujours encouragé, mon « parrain » David Lhuillier (au sourire éternel), Franck Gusing, Jean-Luc Sida et autres. Valérie, je me souviendrai de cet orphelin match de foot que nous avons un jour joué ensemble. Je me souviendrai aussi à quel point j'y étais mauvais et du nombre de buts que nous avons reçus...à cause de moi ! A part la danse et courir dans les bois, je ne suis pas très doué dans les sports !

Aux doctorants qui préparent encore leurs thèses au SPhN je leur dis « bon courage, vous y arriverez ! ». J'adresse un salut très chaleureux à Carmen, Yann, Eric, Antonin, Flore, Pavel, Marie-Laure et Colin.

Alexandre, j'ai une grande admiration pour ta vaste culture littéraire ; J'ai toujours trouvé un grand plaisir intellectuel à discuter avec toi. Peut-être fonderions-nous un jour ensemble un club « des poètes disparus » !! Bon courage pour ta thèse.

Ma chère Béatriz, je t'aime beaucoup. J'aime ton caractère « bohème ». Nous avons passé de très bons moments ensemble au CEA et aussi en dehors du CEA, avec notre bande, Aurélien, Yann, Anna et la chère Carmen.

*« Combien de ceux que j'ai connus  
(si je les ai vraiment connus)  
hommes, femmes  
(si ce classement reste en vigueur)  
franchirent ce seuil  
(s'il s'agit bien d'un seuil)  
parcoururent ce pont  
(si l'on peut l'appeler ainsi) »  
Wisława Szymborska  
(Poétesse Polonaise contemporaine)*

*« L'aurore du bien-aimé s'est levée, de nuit ;  
Elle resplendit et n'aura pas de couchant.  
Si l'aurore du jour se lève la nuit,  
l'aurore des cœurs ne saura se coucher »  
Husayn Mansûr Hallaj,  
(Un sophiste du IX<sup>ème</sup> et X<sup>ème</sup> siècle)*

Dans la fin de ces remerciements, je pense tendrement à tous mes ami(e)s. Ils (elles) m'ont soutenu et épaulé durant cette période éprouvante. J'aimerais leur exprimer mon amour et mon attachement. Je pense à Stéphane, Nicolas (Tu as un fort potentiel Nicolas, continue de le mettre en valeur ! Un bel avenir t'attend !), Muriel, Ramine, Zhong-yi, Béatriz, Carmen, David T., David D., Francesco, Jean-Marc, Auguste...et mon Grand Ami Pedro.

*« Reste devant la porte si tu veux qu'on te l'ouvre. Ne quitte pas la voie si tu veux qu'on te guide. Rien n'est fermé jamais, sinon à tes propres yeux »  
Farid al-Din Attar (Poète Persan du XII<sup>ème</sup> siècle)*

MANSSOUR FADIL

Avril 2003



## Tables des matières :

Introduction.....	9
-------------------	---

### Partie I :

L'enjeu des déchets nucléaires et la démarche expérimentale pour l'étude de la transmutation d'actinides mineurs .....	13
--	----

### Chapitre 1 : Les déchets nucléaires ..... 14

1.1. L'énergie nucléaire en France .....	14
1.1.1. Le choix énergétique français .....	14
1.1.2. L'évolution de la filière nucléaire.....	14
1.1.3. Principaux défis et risques du nucléaire .....	15
1.2. Nature des déchets nucléaires produits.....	16
1.3. Les déchets nucléaires dans la « loi française » .....	17
1.3.1. La loi du 30 décembre 1991 .....	17
1.3.2. Etat des recherches sur la gestion des déchets nucléaires dans le cadre de la loi de 1991.....	18
1.3.3. Remarque sur la gestion des déchets nucléaires au niveau mondial .....	20
1.4. Introduction aux actinides comme déchets nucléaires .....	20
1.4.1. Pourquoi s'intéresse-t-on aux actinides ? .....	20
1.4.2. Un bref aperçu sur l'histoire de la découverte des actinides .....	21
1.4.3. Les actinides dans notre environnement.....	22
1.4.4. Les actinides dans les réacteurs nucléaires.....	23
1.4.5. Potentiel radiotoxique des actinides mineurs .....	27

### Chapitre 2 : Les données nucléaires pour la transmutation des déchets nucléaires..... 29

2.1. Etat actuel et problématique des données nucléaires.....	29
2.1.1. Vue générale .....	29
2.1.2. Situation actuelle des données nucléaires.....	29
2.1.3. Différents types de mesures des données nucléaires .....	30
2.1.4. L'évaluation des données nucléaires .....	31
2.1.5. Impact des Données nucléaires, exemple extrême : le cas de transmutation du plutonium dans un GT-MHR.....	33
2.2. Les données nucléaires dans une démarche expérimentale : le Projet Mini-Inca ....	38
2.2.1. Caractéristiques de la démarche .....	38
2.2.2. Spectroscopie nucléaire .....	41
2.2.3. Chambre Mini-Inca.....	43
2.2.4. Mesure en ligne de taux de fission .....	46
2.2.5. Applications d'une chambre à fission .....	48
2.3. La démarche de recherche suivie dans ce travail pour la mesure de potentiel d'incinération.....	49

## Partie II :

### Mesures du potentiel d'incinération : modélisation théorique et développement de détecteurs spécifiques..... 51

#### Chapitre 3 : Chambre à fission : principe de fonctionnement et sources de perturbation dans un haut flux de neutrons..... 52

3.1. Détecteurs classiques de neutrons .....	52
3.1.1. Chambre à ionisation et compteurs proportionnels .....	52
3.1.2. Mesure par activation neutronique .....	53
Cette méthode a été utilisée dans le cadre de cette thèse, comme décrit dans la suite, pour caractériser le flux neutronique dans le canal V4.....	53
3.2. Chambre à fission .....	54
3.2.1. Intérêt d'une chambre à fission .....	54
3.2.2. Parcours de fragments de fission .....	54
3.2.3. Modes de fonctionnement d'une chambre à fission .....	55
3.3. Méthodes de mesure en mode courant .....	56
3.3.1. Théorème de Campbell.....	56
3.3.2. Mesures relative et absolue avec une chambre à fission .....	56
3.4. Sensibilité d'une chambre à fission au spectre de neutrons .....	58
3.5. Perturbation des mesures avec une chambre à fission.....	60
3.5.1. Perturbations dues à la chambre elle-même .....	60
3.5.2. Perturbations à caractère « externe » à la chambre à fission .....	63

#### Chapitre 4 : Formalisme mathématique du régime de saturation d'une chambre à fission..... 69

4.1. Introduction .....	69
4.2. Hypothèses de calcul .....	69
4.3. Calcul de la densité des paires ions-électrons : $N_0$ .....	70
4.4. Courant de saturation.....	71
4.5. Distribution des charges d'espace .....	72
4.6. Constante caractéristique d'une chambre à fission.....	74
4.7. Flux de saturation .....	74
4.8. Validité du modèle développé .....	76

#### Chapitre 5 : Chambre à Fission à Simple Corps : Réalisation ..... 78

5.1. Introduction .....	78
5.2. Choix entre deux chambres à fission.....	79
5.3. Choix de la masse du dépôt fissile ( $^{235}\text{U}$ ).....	82
5.4. Choix du gaz de remplissage .....	83
5.5. Choix de la pression de remplissage.....	86
5.6. Chambre à fission $\text{CF}_4$ : constitution et câblage .....	87
5.7. Chambres destinées à l'irradiation .....	88
5.8. Electrodeposition de l'uranium 235 .....	88
5.8.1. Solution mère d'uranium 235 et milieu d'électrolyse .....	88
5.8.2. Milieu d'électrolyse et montage d'électrolyse.....	88
5.8.3. Masse d'uranium déposée sur un porte-dépôt.....	90

<b>Chapitre 6 :    Chambres à Fission à Double Corps (CFDC).....</b>	<b>91</b>
6.1. Principe d'une CFDC .....	91
6.2. Schéma d'une chambre à fission à double corps .....	92
6.3. Rendement de fission.....	93
6.4. Interférence de champs électriques.....	95
6.5. Choix des caractéristiques de la CFDC .....	97
Le gaz de remplissage, dans toutes ces chambres, est de l'argon à une pression de 1,1 bar.....	97
6.5.1. CFDC $^{241}\text{Am} - ^{235}\text{U}$ .....	97
6.5.2. CFDC $^{237}\text{Np} - ^{235}\text{U}$ .....	100
6.5.3. CFDC $^{239}\text{Pu} - ^{235}\text{U}$ .....	102
6.5.4. CFDC « sans dépôt » .....	103
6.6. Fabrication de la chambre CFDC .....	103

### **Partie III :**

## **Expériences dans le réacteur à haut flux commentaires et analyses ..... 105**

### **Chapitre 7 :    Réacteur à haut flux : structures, modélisation et mesures thermiques            106**

7.1. Présentation générale.....	106
7.2. Principaux constituants du cœur du réacteur .....	106
7.3 Contrôle du réacteur .....	109
7.3.1 Bore consommable .....	109
7.3.2 Barre de contrôle .....	109
7.4 Caractéristiques thermiques du cœur du réacteur.....	112
7.5 Fluctuations de la puissance dans le réacteur .....	112
7.6 Canaux expérimentaux V4 et H9.....	113
7.6.1 Canal H9 .....	113
7.6.2 Canal V4.....	113
7.7 Mesures thermiques dans le canal V4 .....	116
7.7.1 Objectifs.....	116
7.7.2 Rappels sur le principe de thermométrie par thermocouple .....	116
7.7.3 Etude d'erreurs et de précision .....	117
7.7.4 Mesures de températures et analyses.....	118
7.8 Flux et spectres neutroniques dans le cœur du réacteur à haut flux : modélisation .	122
7.8.1 Les calculs déterministes .....	122
7.8.2 Flux et spectres de neutrons dans le cœur du réacteur .....	122
7.8.3 Changement spectral durant le cycle .....	123
7.8.4 Comparaison des calculs APOLLO2 avec ceux de MCNP.....	126
7.8.5 Calcul (MCNP) des sections efficaces de l' $^{235}\text{U}$ à 50°C .....	128

### **Chapitre 8 :    Mesures et caractérisation de flux de neutrons dans le réacteur à haut flux ..... 129**

8.1. Mesures de flux à l'aide de chambres à fission .....	129
8.1.1 Scénario des irradiations.....	129
8.1.2. Fonctionnement des chambres à fission sous argon.....	132
8.1.3. Fonctionnement de chambres à fission sous néon.....	145

8.1.4.	Mesure du " bruit" .....	148
8.1.5.	Méthode de détermination du flux neutronique .....	149
8.1.6.	Evaluation des constantes caractéristiques des chambres à fission.....	162
8.1.7.	Comparaison des mesures avec les modèles .....	163
8.1.8.	Conclusion.....	164
8.2.	Mesure de flux par dosimétrie de moniteurs activés .....	165
8.2.1.	Dosimètres utilisés.....	165
8.2.2.	Capsules et navettes d'irradiation.....	166
8.2.3.	Irradiations dans le canal V4 et mise des échantillons dans la chambre Mini-Inca.....	168
8.2.4.	Méthode de mesure.....	171
8.2.5.	Mesure de flux .....	173
8.2.6.	Conclusion.....	175
<b>Chapitre 9 : Discussion sur le fonctionnement des chambres à fission à double corps.....</b>		<b>176</b>
9.1.	Potentiel d'incinération observable .....	176
9.2.	Fonctionnement de chambres à fission à double corps .....	176
9.3.	Commentaires sur la dépendance électriques des CFDC .....	178
9.4.	Effets de la dépendance électrique sur le comportement général du courant de la CFDC.....	179
9.5	Corrélation entre les courants Iref et Iact .....	180
9.6	Résultats obtenus avec la CFDC1 (Chambre à <sup>237</sup> Np) .....	180
9.6.1	Saturation en bas du tube V4.....	180
9.6.2	Usure de l' <sup>235</sup> U.....	181
9.6.3	Evolution du courant de saturation.....	182
9.7	Résultats des autres CFDC .....	183
9.8.	Conclusion .....	187
<b>Conclusions et perspectives .....</b>		<b>188</b>
<b>Annexe 1 : Calcul de la sensibilité d'une chambre à fission .....</b>		<b>190</b>
<b>Annexe 2 :Exemple de dossier d'irradiations (dossier de la chambre à fission CFDC1, à base du neptunium comme dépôt d'actinide) .....</b>		<b>196</b>
<b>Annexe 3 :Calculs FCD.....</b>		<b>204</b>
<b>Annexe 4 : Récapitulatif des résultats des chambres à fission double corps.....</b>		<b>210</b>
<b>Bibliographie : .....</b>		<b>227</b>

## Introduction

Les actinides constituent la partie la plus radiotoxique des déchets nucléaires. C'est dans l'objectif de réduire, faute de ne pas éliminer totalement, cette radiotoxicité, que des études sont effectuées et de nombreuses recherches sont menées depuis une dizaine d'années pour caractériser ces actinides, les identifier, mesurer leurs données nucléaires (sections efficaces de réaction, rapports de branchement,...), étudier leurs comportements sous irradiation de neutrons, et simuler leurs évolutions et la variation de leurs activités dans les différents systèmes du futur prévus pour la production d'énergie nucléaire.

L'avenir de la gestion des déchets nucléaires est sans aucun doute étroitement lié aux progrès qui seront réalisés dans toutes les branches de recherche explorant les différentes facettes des actinides mineurs.

Ainsi la loi du 30 décembre 1991, dite aussi loi 'Bataille', unique dans son genre dans l'industrie nucléaire française et reprise dans l'article L542 du code de l'environnement, prévoit un moratoire de 15 ans sur le stockage des déchets radioactifs.

Pendant cette période, et sur la base de la loi, des recherches visant à établir les modes de gestion les plus appropriés des déchets à haute activité et à vie longue seront poursuivies sur trois axes :

1. séparation et transmutation des éléments radioactifs à vie longue présents dans ces déchets ;
2. stockage réversible ou irréversible dans les formations géologiques profondes, notamment grâce à la réalisation de laboratoires souterrains ;
3. conditionnement et entreposage de longue durée en surface de ces déchets.

La loi prévoit que ces recherches fournissent, au législateur et aux pouvoirs publics, au plus tard en 2006, les éléments d'appréciation nécessaires à un examen de la question et, le cas échéant, à la promulgation d'une loi créant un centre de stockage des déchets radioactifs à haute activité et à vie longue en formation géologique profonde.

Dans ce cadre général, le Commissariat à l'Energie Atomique a lancé plusieurs programmes dédiés à la recherche sur le devenir des déchets nucléaires associant également d'autres acteurs de l'industrie nucléaire et des laboratoires de recherche aux niveaux national et international. Plusieurs réalisations et études ont été faites dans le cadre de ces recherches concernant les actinides mineurs, notamment leur séparation (plusieurs procédés ont été mis en œuvre) et leur transmutation (plusieurs scénarios ont été étudiés, combinant différents types de recyclage, de combustibles nucléaires, de formes innovantes de systèmes nucléaires). D'autres projets, d'échelle plus réduite mais très prometteurs, s'inscrivant dans la même thématique générale, ont également vu le jour au sein du CEA. Ainsi dans le cadre de la Direction des Sciences de la Matière (DSM), un projet expérimental, dit « Mini-IncA » (Incinération d'Actinides), a été mis en place, au milieu des années 90, pour étudier la problématique de la transmutation des actinides mineurs. Ce projet est destiné au traitement du problème de divergence des données nucléaires référencées dans les principales bibliothèques d'évaluation. Ce problème est susceptible de handicaper les études de transmutation se basant essentiellement sur les bibliothèques existantes des données nucléaires. Pour surmonter cette barrière et pour doter la communauté scientifique d'un ensemble fiable de données nucléaires expérimentales et intégrées (sections efficace de capture, de fission, rapports de branchements,...) des corps estimés comme principaux dans l'étude des systèmes complexes d'énergie nucléaire s'intéressant en particulier à la

transmutation, Mini-Inca a mis au point et en oeuvre des méthodes expérimentales innovantes dans le Réacteur à Haut Flux de l'Institut Laue-Langevin (ILL) à Grenoble.

Des études ont été menées dans le cadre de ce projet, notamment sur les isotopes  $^{242}\text{Pu}$ ,  $^{243}\text{Am}$  et  $^{241}\text{Am}$ . Ces travaux ont abouti à la mesure de sections efficaces de capture de certains de ces isotopes, intégrées sur le spectre quasi-thermique du canal H9 du RHF.

Au niveau international, des programmes expérimentaux ont été lancés au début des années 90 par une équipe de recherche dirigée par Katsuhei Kobayachi de l'université de Kyoto au Japon et en collaboration avec le « Japan Atomic Energy Research Institute » (JAERI). Ces études, qui furent publiées en 1996 et en 1997, avaient comme objectif la mesure de la section efficace de fission en thermique des éléments  $^{241}\text{Am}$  et  $^{243}\text{Am}$ . Ces mesures différentielles ont été réalisées sous un flux de neutrons très faible, ne dépassant pas  $10^7 \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ . Des chambres à fission dites « back-to-back » ont été utilisées pour mesurer la section efficace de fission de l'actinide étudié par rapport à l'isotope  $^{235}\text{U}$  dont les données nucléaires sont très bien connues.

Toutefois une voie importante reste à explorer. Elle concerne les études sous flux de neutrons très intense. L'intérêt d'irradiation sous un flux de neutrons très intense réside dans le fait qu'elle permet d'une part l'accès à des isotopes à vie très courte et d'autre part la production d'un taux de réaction très élevé. En effet, une irradiation qui a duré dix jours sous un flux de  $2 \cdot 10^{15} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$  équivaut à une irradiation d'environ trois ans dans un Réacteur à Eau Pressurisée classique.

La problématique peut être résumée par les deux questions suivantes :

- **Comment se comportent les actinides mineurs sous un flux de neutrons très intense ?**
- **Comment peut-on concrétiser expérimentalement ce comportement et son évolution dans le temps ?**

La réponse à ces deux questions constitue l'objectif principal de cette thèse. La résolution de la problématique posée revient, en fait, à mesurer le potentiel d'incinération des actinides mineurs étudiés :  $^{237}\text{Np}$  et  $^{241}\text{Am}$ . Ce potentiel d'incinération est défini comme étant le rapport du nombre de fissions créées pendant un certain temps d'irradiation par le nombre initial de noyaux présents dans l'échantillon. Il devient alors pertinent d'utiliser un détecteur connu sous le nom de « Chambre à Fission » mesurant en ligne le taux de fission, et permettant ainsi d'accéder par une « simple » intégration au potentiel d'incinération.

Ces détecteurs sont connus depuis 1946. Ils ont été développés aux laboratoires de Los Alamos par la Section Technique du Projet Manhattan. Ils furent introduits en France pour la première fois en 1954. Ils étaient utilisés dans des travaux de recherches menés par M. Guery dans un département au CEA appelé à l'époque « Département des Etudes de Piles » du CEN/Saclay. Néanmoins l'utilisation de ces détecteurs a toujours été limitée à des flux inférieurs à  $10^{14} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$  par référence au flux dans un Réacteur à Eau Pressurisée classique. Par conséquent, il a fallu développer une nouvelle génération de chambres à fission pouvant fonctionner dans un flux très intense atteignant  $2 \cdot 10^{15} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ . Cette intensité de flux est atteinte dans le canal expérimental V4 du Réacteur à Haut Flux (RHF) de l'Institut Laue-Langevin (ILL) à Grenoble.

La micro-chambre à fission à simple corps développée dans le cadre de cette thèse au Service de Physique Nucléaire du CEA/Saclay, et réalisée en collaboration avec le Laboratoire de Systèmes et de Mesures Nucléaires de la Direction d'Énergie Nucléaire du CEA/Cadarache, a permis dans une première série d'expériences au RHF de mesurer, pour la première fois,

l'intensité du haut flux au fond du canal V4 se situant à 12 cm seulement du combustible. Un flux de  $1,6 \cdot 10^{15} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$  a été mesuré avec une incertitude inférieure à 4 %. Cette première série de mesures a permis également de caractériser cette chambre à fission utilisée pour la première fois dans un flux de neutrons très intense. Elle a servi ensuite comme une base pour le développement d'une chambre à fission dite « à double corps ». L'idée de cette chambre innovante est très simple. Elle consiste à mettre d'une façon adjacente dans la même enceinte deux chambres à fission à simple corps géométriquement identiques, remplies du même gaz d'ionisation à la même pression et liées à deux chaînes électroniques identiques et indépendantes. Dans une chambre est déposé un élément dit de référence, dont les données nucléaires sont bien connues ( $^{235}\text{U}$  dans notre cas), et dans l'autre chambre, l'actinide à étudier. On montre, dans ces conditions, que les taux de fission dans les chambres sont proportionnels l'un à l'autre, et que le facteur de proportionnalité n'est autre que le rapport des courants de saturation délivrés par chacune des chambres.

Grâce à ce nouveau détecteur, deux corps ont été irradiés : le  $^{237}\text{Np}$  et l' $^{241}\text{Am}$ . Leurs irradiations ont permis notamment de vérifier le fonctionnement de ces chambres à double corps qui furent, pour la première fois dans le milieu scientifique, réalisées et irradiées.

Ce travail s'inscrit dans le cadre d'une continuité de recherche et de développement sur les chambres à fission dédiées à la transmutation ou aux études de données nucléaires. Les dernières recherches consacrées aux données nucléaires et utilisant des chambres à fission remontent à la première moitié des années 1990 avec l'équipe de l'université de Kyoto mentionnée plus haut.

L'originalité de ce travail réside également dans les voies qu'il a pu ouvrir permettant aux chambres à fission, développées et calibrées dans ce travail, d'être utilisées dans d'autres projets présentant des conditions neutroniques très différentes. L'un de ces projets est le projet européen « Méga-Pie » à l'Institut Paul-Scherrer à Zurich pour lequel des mesures de flux de neutrons seront réalisées, en 2005, à l'aide de ces chambres à fission.

Cette thèse est constituée de neuf chapitres remis en trois grandes parties : la première fait le point sur la question des déchets nucléaires et présente la problématique scientifique constituant la motivation de ce travail. La seconde partie traite du développement détaillé des chambres à fission. La troisième partie présente les résultats des expériences menées au RHF avec les détecteurs développés ainsi que leurs analyses. Finalement une conclusion générale présente une opinion critique sur le travail réalisé, avec un résumé des résultats les plus marquants et une description des perspectives ouvertes grâce à la présente étude. Des recommandations seront également incluses dans la conclusion générale pour la continuité de ce travail et notamment l'exploration des résultats qui n'a pas pu être complètement accomplie.



## **Partie I :**

**L'enjeu des déchets nucléaires et la  
démarche expérimentale pour l'étude de  
la transmutation d'actinides mineurs**



# Chapitre 1 : Les déchets nucléaires

## 1.1. L'énergie nucléaire en France

### 1.1.1. Le choix énergétique français

En 30 ans, l'énergie nucléaire en France a connu un développement considérable. La part du nucléaire dans la production totale d'électricité passe de 7 % en 1973 à 78 % actuellement. Et alors que la dépendance énergétique était de 77 % il y a 30 ans (cela signifie que la France importait 77 % de l'énergie qu'elle consommait, ce qui représentait le taux de dépendance énergétique le plus élevé du monde industrialisé<sup>[1]</sup>) elle est actuellement en dessous des 50%. Cette situation particulière permet à la France d'être, en ce moment, le premier exportateur d'électricité en Europe. Depuis 1998, ces exportations atteignent une moyenne annuelle de l'ordre de 57 TWh pour ses voisins européens. A la tête de ses clients se trouve l'Italie avec 28,5 % suivie par le Royaume-Uni et l'Allemagne avec 22 % chacun, puis les autres pays du voisinage<sup>[2]</sup>.

La situation énergétique durant les années 1970 était étroitement conditionnée par la situation pétrolière mondiale. Les hausses du prix du pétrole brut décidées par l'OPEP à la fin de 1973 et au début de 1974 ont fait passer la part des produits énergétiques dans les importations de la France de 12 % à plus de 22 %. Les deux chocs pétroliers qu'a connus le marché énergétique mondial pendant cette décennie liés à l'instabilité politique et militaire dans cet endroit stratégique qu'est le Moyen-Orient (en 1973 à cause de la guerre arabo-israélienne et en 1979 suite à la révolution islamique en Iran) avaient des impacts violents sur la situation économique française avec le quadruplement du prix du baril de pétrole brut.

C'est dans ces conditions énergétiques défavorables marquées d'un côté par le déséquilibre national entre la production et la consommation d'énergie et d'un autre par l'instabilité du marché pétrolier international que la France a choisi clairement sa voix énergétique en renforçant le parc nucléaire français.

### 1.1.2. L'évolution de la filière nucléaire

De 1973 à 1980, les investissements électro-nucléaires d'EDF passaient de 920 millions de francs à 16 200 millions, soit 60 % des investissements nouveaux d'EDF rendant ainsi la part nucléaire majoritaire au sein des investissements engagés.

La filière à eau légère pressurisée (REP) a été définitivement adoptée en 1975 en abandonnant ainsi la filière française graphite-gaz (UNGG). Cette décision politique (de ne retenir qu'une seule technique) répondait au souci d'éviter toute dispersion des moyens industriels, pour atteindre rapidement la pleine maîtrise technologique.

Aujourd'hui, 59 réacteurs (dont 58 réacteurs électrogènes à eau pressurisée et un seul réacteur à neutrons rapides, Phénix, destiné à la recherche) sont en opération. Ils se répartissent en 34 réacteurs au palier 900 MWe dont la moyenne d'âge est de 17 ans, 20 réacteurs appartenant au palier 1300 MWe dont la moyenne d'âge est de 11 ans et 4 réacteurs N4 d'une puissance de 1450 MWe dont l'âge varie de 3 à 6 ans<sup>[3]</sup>.

La filière rapide (ou surrégénératrice) a été définitivement abandonnée par l'arrêt définitif de Super-Phénix en 1997 suite à une décision politique favorisée notamment par deux incidents techniques majeurs sur le circuit secondaire.

Cette évolution du parc nucléaire a eu un impact favorable sur l'économie française. Elle en a réduit fortement la sensibilité à l'égard des fluctuations du prix des énergies primaires. L'impact a été aussi positif sur le bilan des devises, et par conséquent la balance commerciale, durant les années 1980 et 1990. La réalisation de ce programme a contribué à la valorisation de l'ensemble du potentiel industriel et technologique français. Sans négliger que le parc nucléaire, étalé sur 30 ans, a créé plus de 130 000 emplois allant de compétences de pointe aux travaux publics et à la construction mécanique.

### 1.1.3. Principaux défis et risques du nucléaire

La question de la continuité du nucléaire comme une source énergétique en France se heurte aux grands défis que pose cette forme d'énergie. Les inconvénients du nucléaire, à savoir un rendement thermique médiocre, une grande puissance unitaire des moyens de production et une utilisation liée aujourd'hui exclusivement au vecteur électricité, restent relativement négligeables devant ses trois grands défis ou trois genres de risques :

1. La sûreté des installations nucléaires : le niveau de sûreté détermine le degré d'exposition des personnes et la contamination de l'environnement par des rejets radioactifs, aussi bien en fonctionnement normal qu'en cas accidentel. L'accident de Tchernobyl en 1986 a montré que l'ampleur d'un accident nucléaire dépasse les frontières nationales et que ses conséquences sont continentales et à long terme. Néanmoins il faut noter que la conception des réacteurs de l'ex-bloque soviétique, dits « RBMK », est très différente de celles des réacteurs en fonctionnement dans les pays de l'OCDE.  
Plusieurs recherches engagées portent actuellement, et depuis un certain nombre d'années, sur des réacteurs dits « intrinsèquement sûrs » optimisés pour minimiser tout risque d'accident majeur. Cependant l'amélioration du niveau de sûreté exigera de grands investissements technologiques qui sont par conséquent économiquement coûteux ce qui pourrait affaiblir la compétitivité de l'option nucléaire devant notamment certaines énergies fossiles.
2. La prolifération : le risque de prolifération d'éléments susceptibles d'entrer dans la composition des armes nucléaires, comme l'uranium 235 ou le plutonium 239, constitue un genre d'obstacle « politique » au développement de l'énergie nucléaire. Le Traité de Non-Prolifération (TNP) est un cadre international, juridique et actif, pour contrôler l'étendue de ce problème et pour surveiller, par le biais de l'Agence Internationale de l'Energie Atomique, tout détournement possible de combustibles des centrales à des fins militaires [4]. Cependant la mondialisation des compétences scientifiques et industrielles rend de moins en moins évidente cette tâche de surveillance.
3. Les déchets nucléaires : plusieurs solutions sont activement étudiées, depuis une dizaine d'années, pour le conditionnement et le stockage des déchets nucléaires liés notamment à la fin du cycle du combustible afin d'éviter leur contact avec la biosphère. La transmutation de ces déchets, en particulier ceux à haute activité et à vie longue, constitueraient l'une des options prometteuses pour réduire leur potentiel

radiotoxique. Une nouvelle génération de réacteurs liés à un accélérateur, du genre réacteurs hybrides, et utilisant de nouveaux combustibles à base du thorium ou des actinides mineurs pourrait minimiser les problèmes de production de déchets.

## 1.2. Nature des déchets nucléaires produits

Le combustible nucléaire est accompagné durant tout son cycle par la production de différentes formes des déchets nucléaires :

**En amont du cycle :** dans cette phase du cycle, le combustible nucléaire subit toutes les opérations de préparation nécessaires pour être destiné à la production énergétique en réacteur nucléaire. Il s'agit essentiellement de déchets très faiblement radioactifs (TFA) avec un impact mineur sur l'environnement même si leur volume est considérable.

Lors de l'extraction minière, les premiers déchets radioactifs sont produits. Ces déchets sont constitués principalement des matériaux et matériels hors service (matériel de forage, d'excavation, de chargement, de transport, ...). Cependant ils ne sont considérés comme tel que lorsque la teneur en uranium du minerai exploité est supérieur à 1 %.

Lors de la concentration du minerai, les résidus du traitement constituent les principaux déchets radioactifs. Ces résidus contiennent tout ce qui n'était pas de l'uranium à savoir le  $^{230}\text{Th}$ , le  $^{232}\text{Th}$ , le  $^{231}\text{Pa}$  et tous leurs descendants.

Les descendants résiduels sont principalement le  $^{234}\text{Th}$ , le  $^{234}\text{Pa}$ , le  $^{210}\text{Pb}$ , le  $^{214}\text{Pb}$ , le  $^{210}\text{Bi}$ , le  $^{214}\text{Bi}$  et le  $^{210}\text{Po}$ . A trois tonnes de l'uranium du minerai, correspondent, en total, des activités de 8 Ci en  $\alpha$  et 6 Ci en  $\gamma$ .

L'opération d'enrichissement et les procédés de fabrication des éléments combustibles constituent également une source de déchets radioactifs. Ces déchets sont essentiellement des matériels contaminés par suite de leur utilisation en milieu actif, des déchets liquides sous forme de solutions de carbonate de potassium contenant des composées uranifères, des filtres chargés en uranium, des gaines défectueuses, ....

**Durant le fonctionnement du réacteur :** différentes natures de déchets sont produites à ce niveau ; essentiellement à faible activité  $\beta^-$ ,  $\beta^+$  et  $\gamma$  :

- des déchets gazeux qui parviennent du circuit primaire contenant des produits de fission gazeux,
- des déchets liquides formés des eaux usées provenant du circuit primaire,
- des déchets solides qui sont principalement des déchets de procédé produits notamment lors des traitements des déchets liquides et gazeux. Le  $^{137}\text{Cs}$ , le  $^{134}\text{Cs}$  et les radionucléides de corrosion sont à l'origine du potentiel radiotoxique de ces déchets solides<sup>[5]</sup>.

**En aval du cycle :** les déchets du retraitement du combustible usé représentent la catégorie la plus importante des déchets nucléaires. On y trouve les déchets de moyenne et de haute activité et à vie longue. En effet, un combustible irradié d'un REP classique de 900 MW<sub>e</sub> et ayant un taux de combustion de 33 GWj/t du parc nucléaire français, est composé essentiellement (cf. figure 1.1) :

- D'actinides majeurs qui sont l'uranium et le plutonium qui constituent 97 % de la masse du combustible, dont 1 % est du plutonium. L'isotope  $^{239}\text{Pu}$  est réutilisable pour la fabrication du combustible fissile, comme le MOX ( Mixed OXyde) constitué de l'uranium et du plutonium.

- Des produits de fission et d'actinides mineurs qui sont des matières non utilisés. Ils constituent 3 % en masse du combustible irradié.

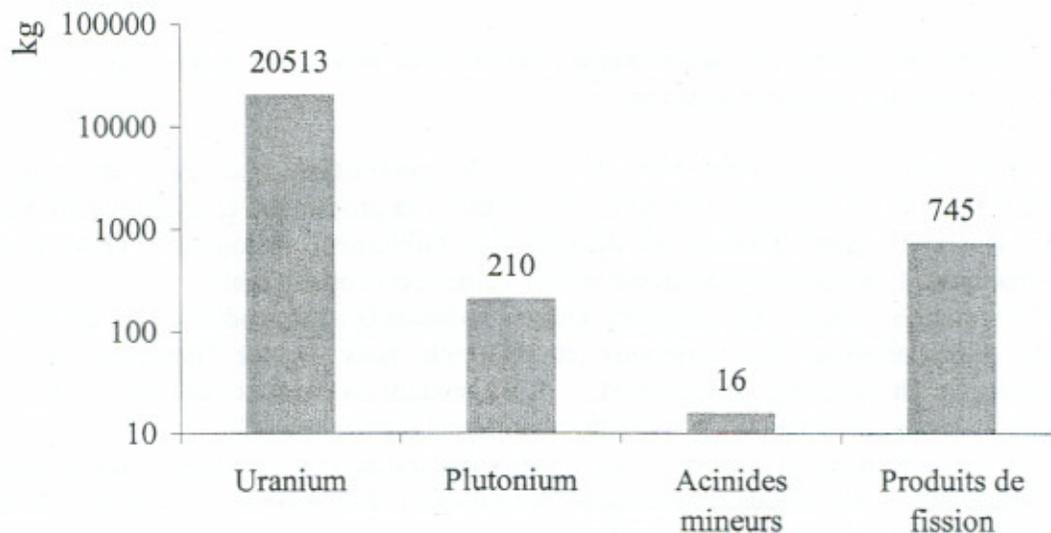


Figure 1.1 : Constitution d'un combustible irradié dans un REP 900 d'un taux de combustion de 33 GWj/t

Pour faciliter la gestion des déchets nucléaires indépendamment de leurs origines, il est devenu courant de les classer selon trois grandes catégories suivant leur activité :

- **Faible et Moyenne Activité à Vie Courte (FAVC)**, formée d'équipements (filtres, résines) ne contenant que des éléments à vie courte, émetteurs bêta et gamma. Elle forme 90 % des déchets mais seulement 10 % de l'activité. Le parc nucléaire français en produit 25 000 m<sup>3</sup> tous les ans,
- **Moyenne Activité à Vie Longue (MAVL)**, ce sont des déchets de procédé générés par le retraitement et contaminés par des corps à vie longue, de faible et de moyenne activité, généralement émetteurs de particules alpha. Une masse d'environ 4 500 tonnes de cette catégorie est produite tous les ans,
- **Haute Activité et à Vie Longue (HAVL)**, ce sont des déchets à haute activité et à vie longue<sup>[7]</sup>. Le parc EDF en produit environ 300 tonnes par an.

### 1.3. Les déchets nucléaires dans la « loi française »

#### 1.3.1. La loi du 30 décembre 1991

En 1994, le Premier Ministre français à l'époque déclare que « La gestion des déchets nucléaires constitue désormais un véritable enjeu national »<sup>[7]</sup>. Cette déclaration résume l'état de préoccupation de la classe politique française depuis la seconde moitié des années 1980 par le problème des déchets nucléaires et de leurs conséquences potentielles sur l'environnement et la santé publique. La volonté politique s'est traduite par l'adoption, le 30 décembre 1991, par le parlement français d'une loi, dite *Loi 'Bataille'* du nom du Député du Nord qui a

proposé le texte de la loi, déterminant les différentes voies d'une éventuelle solution définitive de gestion des déchets nucléaires.

Cette loi a créé une véritable impulsion pour la recherche dans ce domaine. Plusieurs programmes relatifs aux différents axes définis par la loi ont été mis en œuvre.

La loi 'Bataille', reprise dans l'article L542 du code de l'environnement, prévoit un moratoire de 15 ans sur le stockage des déchets radioactifs.

Pendant cette période, et sur la base de la loi, des recherches visant à établir les modes de gestion les plus appropriés des déchets à haute activité et à vie longue seront poursuivies sur trois axes :

1. séparation et transmutation des éléments radioactifs à vie longue présents dans ces déchets ;
2. stockage réversible ou irréversible dans les formations géologiques profondes, notamment grâce à la réalisation de laboratoires souterrains ;
3. conditionnement et entreposage de longue durée en surface de ces déchets.

La loi prévoit que ces recherches fournissent, au législateur et aux pouvoirs publics, au plus tard en 2006, les éléments d'appréciation nécessaires à un examen de la question et, le cas échéant, à la promulgation d'une loi créant un centre de stockage des déchets radioactifs à haute activité et à vie longue en formation géologique profonde.

La loi institue aussi une commission nationale d'évaluation (CNE) des recherches. La CNE rédigera à l'échéance de 2006, un rapport global d'évaluation des recherches qui sera transmis par le Gouvernement au Parlement.

Conformément à la loi, la CNE rédige aussi un rapport annuel qui est adressé par le gouvernement au Parlement. Le Parlement saisit de ce rapport l'Office parlementaire d'évaluation des choix scientifiques et techniques.

La volonté de la CNE est de se limiter au domaine de l'évaluation scientifique, sans rentrer dans des considérations d'ordre économique, social ou de sûreté nucléaire.

Le pilotage des recherches de chaque axe de la loi est confié à des organismes publics. Les recherches se déroulent en partenariats entre plusieurs laboratoires français et étrangers.

La coordination de l'axe 2 est confié à l'Agence Nationale pour la gestion des Déchets Radioactifs (ANDRA) qui est chargée de construire à Bure [Meuse -Haute Marne] un laboratoire souterrain.

Le Commissariat à l'Energie Atomique (CEA) est chargé du pilotage des axes 1 et 3. Les activités expérimentales sont menées principalement sur les centres CEA de Marcoule et Cadarache en collaboration avec le CNRS et de nombreux laboratoires français et étrangers.

### **1.3.2. Etat des recherches sur la gestion des déchets nucléaires dans le cadre de la loi de 1991**

Malgré les incertitudes sur la reprise des travaux de réalisation du laboratoire de recherche souterrain, les nombreux résultats obtenus après dix ans de recherches dans le cadre de la loi de 1991 sur la gestion des déchets radioactifs, constituent à ce jour un acquis majeur et permettent de regarder avec confiance à l'échéance prévue par la loi. Avec les résultats supplémentaires en cours d'acquisition, il ne fait aucun doute que tous les éléments nécessaires au débat seront réunis avant 2006.

**Le retard dans la réalisation du laboratoire de recherche souterrain à Bure** (Meuse Haute-Marne) et l'absence d'un deuxième site affectent la possibilité de décider d'un site de stockage. Mais les résultats déjà obtenus par l'Andra, le CEA, le CNRS et les universités, sur le comportement à long terme des colis (corrosion et lixiviation), sur la migration des radioéléments vers la biosphère et sur l'analyse phénoménologique des situations de stockage représenteront une base importante de jugement sur le principe du stockage géologique profond.

C'est ainsi que ces recherches menées dans le cadre de collaborations nationales et internationales devraient permettre d'envisager une prise de décision en 2006 sur la validité du stockage géologique comme élément clef dans la gestion des déchets radioactifs.

Pour la qualification d'un site, les expériences indispensables pourront intervenir ultérieurement au cours du processus de mise en œuvre de la politique de gestion qui aura été décidée.

En ce qui concerne les autres deux axes de la loi, l'état prévisible des recherches en 2006 est très positif, comme il est décrit dans la suite.

### **Axe 1 : séparation et transmutation**

La démonstration de la faisabilité scientifique de la séparation poussée, tant des actinides mineurs (Neptunium, Américium et Curium) que des éléments de fission à vie longue (technétium et césium), a été obtenue en 2001 par le CEA. Les études permettant d'en démontrer la faisabilité technologique seront achevées en 2005.

Sur la transmutation, de nombreuses études de scénarios (stabilisation de l'inventaire en plutonium, transmutation par des réacteurs conventionnels et par des systèmes innovants) seront terminées avant 2006 dans le cadre de travaux menés par le CEA, le CNRS et EDF.

Les recherches pour la réalisation de cibles pour la transmutation progressent aussi grâce aux travaux du CEA, du CNRS et dans le cadre de collaborations internationales.

Une série d'expériences essentielles pour la mesure des taux de transmutation en spectres rapides et modérés sont prêtes pour irradiation dans le réacteur PHENIX de Marcoule, dont la remonté en puissance devrait avoir lieu en début 2003.

Les études sur les systèmes hybrides (ADS) se poursuivent tant sur le plan théorique qu'expérimental, avec les mesures MUSE sur le réacteur MASURCA du CEA à Cadarache.

La faisabilité scientifique de matrices de conditionnement spécifique pour les actinides mineurs et de matrices pour les produits de fission a été démontrée par le CEA et le CNRS en 2001. La démonstration de la faisabilité technologique est programmée pour 2005.

### **Axe 3 : conditionnement et entreposage**

Un démonstrateur fonctionnel d'un conteneur de conditionnement pour les déchets de moyenne activité et à vie longue (MAVL) et pour les combustibles usés (CU) sera disponible au CEA/Marcoule pour début 2003. Cette première étape permet d'envisager un démonstrateur de conteneur à l'échelle 1 pour 2004, largement en accord avec les échéances prévues par la loi de 1991.

Pour les déchets de haute activité et à vie longue (HAVL), le « colis standard déchets vitrifiés » (CSD-V) utilisé par COGEMA est la base des études de comportements des colis en situation de stockage géologique profond.

Concernant les études de définition d'un entreposage de longue durée, elles se poursuivent au CEA. Les études préliminaires de conception pour les déchets MAVL et les CU seront terminées fin 2002. Deux concepts, l'un en sub-surface (flanc de colline) et l'autre sous forme de tranchées en surface sont étudiés.

A ce jour il n'est pas prévu la réalisation d'un démonstrateur d'entreposage de longue durée. L'expérience acquise sur les entreposages industriels existants (La Hague pour les HAVL, Marcoule pour les déchets MAVL, Cadarache pour les combustibles usés) apportent un retour d'expérience considéré comme suffisant.

### **1.3.3. Remarque sur la gestion des déchets nucléaires au niveau mondial**

Plusieurs pays dans le monde ayant recours à l'énergie nucléaire envisagent comme solution finale pour les déchets nucléaires le stockage souterrain après une période d'entreposage. En Europe, des laboratoires existent en Allemagne (à Gorleben dans un dôme de sel), en Belgique (à Mol dans l'argile), en Suisse (à Grimsel dans le granite) ou en Suède (à Stripa dans le granite). Des installations semblables ont aussi été aménagées aux Etats-Unis, au Canada et au Japon.

Au niveau mondial, le Waste Isolation Pilot Plant aux Etats-Unis constitue la plus grande réalisation réalisée jusqu'à ce jour pour le stockage géologique des déchets. Elle est ouverte en 1999 au Nouveau Mexique, au milieu d'une couche de sel se trouvant à une profondeur de 655 m. Cette installation, consacrée aux déchets de catégorie B, a une capacité d'accueil de  $180 \cdot 10^3 \text{ m}^3$ .

Pour les déchets de catégorie C d'origine militaire et civile, les Etats-Unis ont commencé par étudier le site de Yucca Mountain, dans le désert de Nevada. Le projet a été stoppé par le président Clinton à la suite de la découverte de quelques failles géologiques dans le site mais il a été repris par son successeur républicain G.W. Bush suite à plusieurs études et revues internationales du projet (NEA et AIEA).

## **1.4. Introduction aux actinides comme déchets nucléaires**

### **1.4.1. Pourquoi s'intéresse-t-on aux actinides ?**

Quatorze éléments chimiques au total, de l'actinium ( $Z = 89$ ) au lawrencium ( $Z = 103$ ), forment la famille des actinides occupant l'avant-dernière ligne dans la table de classification périodique.

Les actinides dits « mineurs » sont des transuraniens formés dans les réacteurs nucléaires par captures successives sur les isotopes d'uranium suivies par différents processus de désintégration naturelle. Leurs activités par décroissance  $\alpha$  font d'eux les éléments les plus radiotoxiques produits dans un réacteur après le plutonium. Cette activité s'accompagne d'un dégagement de chaleur non négligeable à cause de l'énergie cinétique des particules émises. L'activité de ces éléments constitue un risque de nuisance sur l'environnement et la santé du public, d'où toutes les recherches menées pour les diminuer, par confinement, par stockage dans des couches géologiques profondes ou par transmutation dans un réacteur nucléaire.

## 1.4.2. Un bref aperçu sur l'histoire de la découverte des actinides

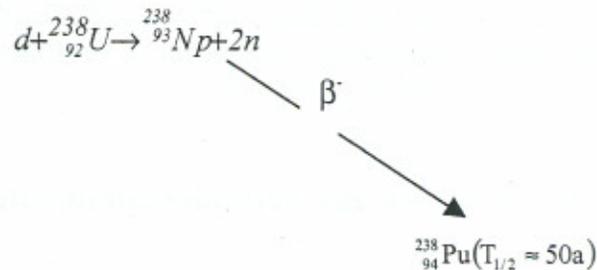
L'uranium fut découvert en 1789 par le chimiste allemand Martin Heinrich Klaproth<sup>[8]</sup>. Le minerai d'uranium était tout d'abord prospecté pour en extraire le radium utilisé à des fins médicales. A partir de la fin des années 1930, l'uranium suscita un intérêt particulier avec la découverte de la fission artificielle. Il a été alors utilisé à des fins militaires avant que son utilisation soit également orientée vers des usages civils pour la production de l'énergie électronucléaire.

Durant plus d'un siècle et demi, l'uranium fut l'élément le plus lourd connu de l'époque dans la table de Mendeleïev. A partir de 1940 apparaissent de nouvelles possibilités de production de réactions nucléaires dans le laboratoire avec une particule récemment découverte : le neutron.

Ce fut ainsi que fut découvert le Neptunium. Alors que E. M. McMillan étudiait les produits de fission d'une couche mince de l' $^{238}\text{U}$  avec des neutrons lents, il observa la présence d'une activité d'une période radioactive de 2,3 jours. Il a fallu attendre quelques mois avant que le corps estimé être à l'origine de cette radioactivité, ne soit chimiquement séparé et identifié par McMillan et son collaborateur P. H. Abelson. Ainsi la réaction nucléaire fut correctement écrite et interprétée. Ce corps n'était autre que le  $^{239}\text{Np}$ .



Le Plutonium n'a pas pu être identifié avec le même succès dans cette réaction nucléaire. Il l'a été en 1941 lorsque G. T. Seaborg et ses collaborateurs ont observé une activité d'environ 50 ans de période dans la réaction suivante :



Le  $^{239}\text{Pu}$  a été identifié quelques mois après cette découverte en constatant que sa section efficace de fission avec des neutrons lents était 50 % plus grande que celle de  $^{235}\text{U}$ .

La découverte du comportement du  $^{239}\text{Pu}$  avec les neutrons thermiques a abouti à la création du Projet de Plutonium aux États-Unis qui avait comme objectif la production et la séparation d'une quantité considérable de cet élément à des fins purement militaires<sup>[9]</sup>.

En 1944 le  $^{242}_{96}\text{Cm}$  fut produit en bombardant le  $^{239}\text{Pu}$  par des particules  $\alpha$  accélérées dans le Cyclotron de Berkeley. En 1945 ce fut le tour de l'isotope 241 de l'américium d'être produit. Il a été obtenu par des captures successives sur le  $^{239}\text{Pu}$  par les neutrons dans un réacteur, suivies de décroissance  $\beta^-$ .

Cette découverte parvient après plusieurs essais sans succès de produire et de séparer chimiquement ces deux éléments en croyant qu'ils appartenaient à la série d'uranide et qu'ils

avaient des propriétés chimiques similaires à celles de l'uranium, du plutonium et du neptunium. On constaterait par la suite que ses propriétés ressemblaient plutôt à celles des lanthanides : l'euporium et le gadolinium.

L'américium et le curium étaient extrêmement difficiles à être séparé l'un de l'autre. Cette séparation ne fut possible qu'après avoir développé la technique d'échanges ioniques qui a été également utilisée pour des actinides de numéros atomiques plus élevés.

Seaborg fit alors la proposition que cette série de nouveaux éléments commence par le thorium avec l'actinium comme prototype.

Ensuite s'est succédée la découverte du reste des actinides : l'einsteinium ( $Z = 99$ ), le fermium (100) et le ménélevium (101) en 1955 ; le nobélium (102) a été produit en 1958 et identifié six ans plus tard ; puis le dernier de la série : le lawrencium (103) qui a pu être produit en 1961 avant d'être identifié en 1965.

### 1.4.3. Les actinides dans notre environnement

L'uranium est relativement abondant dans l'écorce terrestre. C'est en Afrique du Sud, au Niger, au Canada, aux États-Unis et en Australie que sont concentrées les quantités les plus importantes de ce minerai. En France, le massif central contient des gisements riches en uranium mais peu rentables au prix actuel. Les ressources d'uranium sont estimées au début des années 1990 à 1 389 000 tonnes. Ces estimations ne prennent en compte que les gisements d'uranium dont l'exploitation est économiquement raisonnable, autrement-dit ayant un coût inférieur à 80 \$/kg d'uranium. Le total d'uranium atteint les 3 125 000 tonnes dans  $5 \cdot 10^{13}$  tonnes de minerai. La production mondiale annuelle en uranium atteint actuellement 50 000 tonnes. La Russie est le premier producteur avec plus de 25 % de la production mondiale, suivie par le Canada, l'Australie, les États-Unis et le Niger. Durant les années 80, la France présentait 5 % de la production mondiale<sup>[1]</sup>. Cependant ces mines sont actuellement toutes fermées, pour leur faible rentabilité.

D'autres actinides sont encore présents sur notre planète mais en quantités extrêmement faibles. Le tableau 1.1 montre les quantités d'actinides, y compris l'uranium, présentes dans la couche terrestre sur 36 km de profondeur de la surface<sup>[10]</sup>.

*Tableau 1.1 : Les actinides présents dans l'environnement.*

Actinide	Isotopes	Période (ans)	Teneur ( $10^{-10}$ ppm)	Quantité (t)
Actinium	$^{227}\text{Ac}$	21,77	$6 \cdot 10^{-10}$	$1,1 \cdot 10^4$
Protactinium	$^{231}\text{Pa}$	32760	$10^{-6}$	$1,8 \cdot 10^7$
Uranium	$^{234}\text{U}$ $^{235}\text{U}$ $^{238}\text{U}$	245500 $7,038 \cdot 10^8$ $4,46 \cdot 10^9$	2,8	$5 \cdot 10^{13}$
Plutonium	$^{239}\text{Pu}$ $^{244}\text{Pu}$ (traces)	24110 $8 \cdot 10^7$	$5 \cdot 10^{-11}$	$8,9 \cdot 10^2$
Thorium	$^{232}\text{Th}$	$14,05 \cdot 10^9$	9	$1,6 \cdot 10^{14}$
Neptunium	$^{237}\text{Np}$	$2,14 \cdot 10^6$	$6 \cdot 10^{-12}$	$10^2$

#### 1.4.4. Les actinides dans les réacteurs nucléaires

##### 1.4.4.1. Principaux actinides formés dans un réacteur nucléaire

Les réacteurs nucléaires sont la source principale de production d'actinides mineurs et du plutonium. Des captures successives, sur  $^{235}\text{U}$  et sur ses isotopes, ainsi que sur les nouveaux éléments produits, suivies par des radioactivités naturelles sont à l'origine de tous les transuraniens et les actinides mineurs comme le montre la figure 1.2.

**Plutonium** : Le plutonium est l'élément le plus abondant, après l'uranium dans un réacteur nucléaire. Il est aussi le plus toxique, aussi bien chimiquement que radiologiquement, parmi les actinides!! Il est produit essentiellement à partir de la transmutation de l' $^{238}\text{U}$ . Dans une tonne de combustible irradié dans un réacteur REP classique d'une puissance de 900 MWé et de 33 000 MWj/t de combustion, une masse de 10 kg du plutonium est formée. Le parc EDF actuel produit environ 13 t de plutonium par an.

**Américium :** L'isotope le plus abondant de l'américium, dans un réacteur nucléaire, est  $^{241}\text{Am}$ , d'une période radioactive de 432 ans. Il se produit par décroissance  $\beta^-$  du  $^{241}\text{Pu}$ . Depuis les années 90, 320 kg de l'américium sont produits par le parc nucléaire EDF tous les ans comprenant les isotopes  $^{241}\text{Am}$  et  $^{243}\text{Am}$ . L'isotope  $^{242\text{m}}\text{Am}$ , d'une période de 141 ans, est produit en quantité très faible.

**Neptunium :** C'est exclusivement le  $^{237}\text{Np}$ , avec une période de plus de deux millions d'années ( $T_{1/2} = 2,14 \cdot 10^6$  ans), qui est présent dans un combustible usé. Les isotopes  $^{238}\text{Np}$  et  $^{239}\text{Np}$  sont d'une période de décroissance inférieure à 3 jours. Il est produit en quantité relativement importante : 430 kg/an dans le parc EDF actuel. C'est l'actinide mineur le plus important, en quantité, après le plutonium. Mais il est beaucoup moins radiotoxique.

**Curium :** Environ 30 kg de cet actinide sont produits par le parc électronucléaire français tous les ans. Cette quantité peut passer à 500 kg en cas de multirecyclage du plutonium en réacteur modéré. Ses principaux isotopes sont les  $^{243}\text{Cm}$  et  $^{244}\text{Cm}$ . Tous ces isotopes présentent une période de décroissance inférieure à 30 ans ce qui augmente la chaleur dégagée à cause du rayonnement émis (des alpha). Le curium est un fort émetteur alpha. Certains de ses isotopes sont également des émetteurs de neutrons (par fission spontanée). En plus, il y a un problème important qui peut se poser dans le cas d'un entreposage de curium séparé, c'est la criticité. En effet, il suffit d'une très faible masse du curium pur (le  $^{243}\text{Cm}$  notamment) pour que cette dernière ait lieu. C'est pourquoi il faut également prendre en compte l'éventualité de reconcentration de cet actinide lorsqu'il est mélangé à une matrice.

#### *1.4.4.2. Vecteurs isotopiques d'actinides à la sortie d'un réacteur nucléaire*

Le vecteur isotopique d'un actinide dans un réacteur et les poids de ce vecteur dépendent du spectre neutronique dans le réacteur, autrement dit de la nature du réacteur et de son taux de combustion. L'importance de la transmutation est déterminée par le facteur  $\alpha = \sigma_c / \sigma_f$ ,  $\sigma_c$  étant la section efficace microscopique de capture et  $\sigma_f$  celle de fission. Ce facteur dépend exclusivement du spectre de neutrons. Les poids du vecteur sont déterminés aussi bien par la valeur absolue de flux de neutrons que par sa distribution énergétique.

Le tableau 1.2 présente les isotopes essentiels présents généralement dans un réacteur nucléaire. On y constate que les vecteurs isotopiques de certains actinides contribuent à la détermination des vecteurs d'autres actinides.

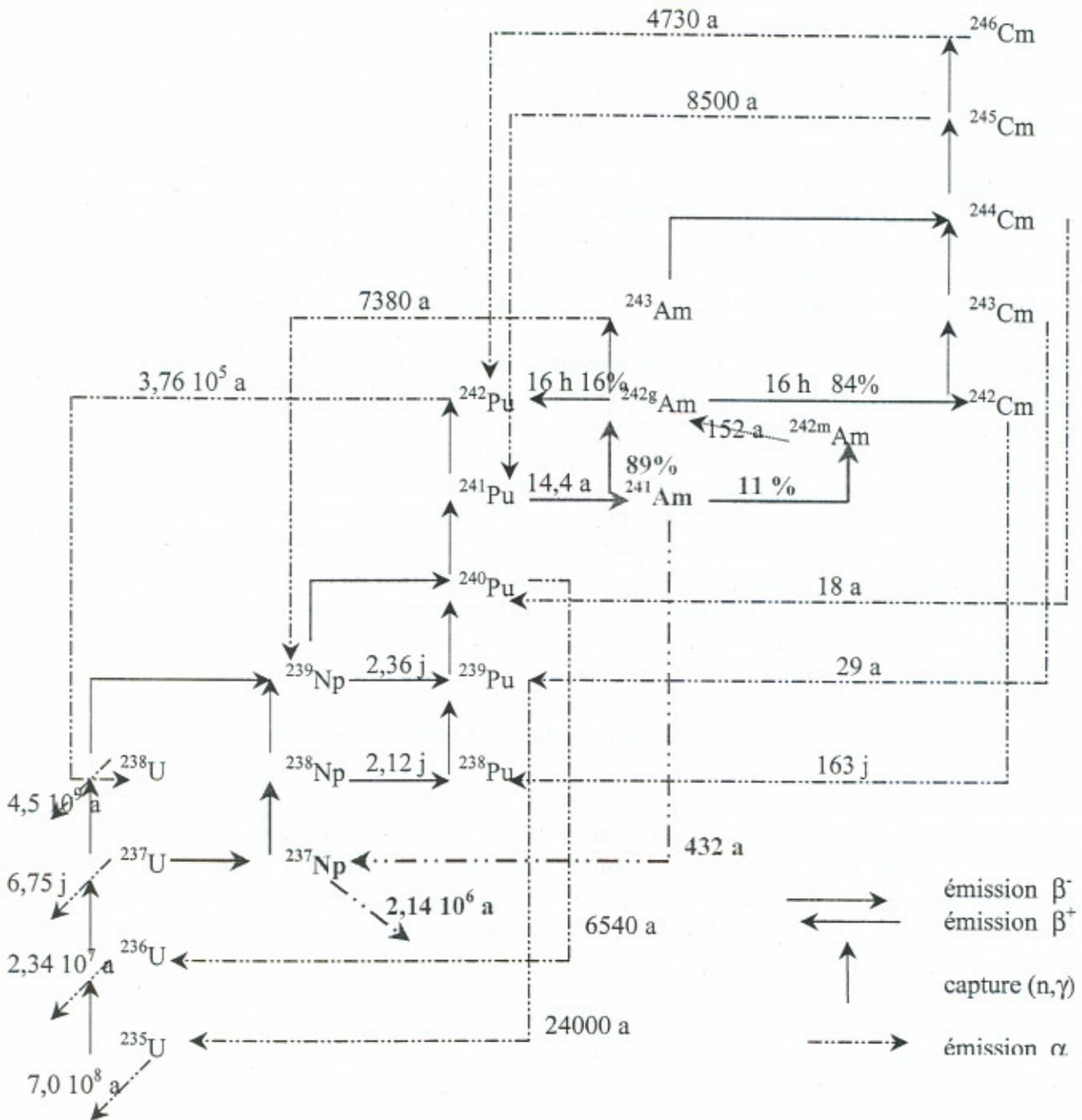


Figure 1.2 : Chaînes de formation d'actinides dans un réacteur nucléaire.

Tableau 1.2 : Les principaux isotopes d'actinides formés dans un réacteur nucléaire

Actinide	Isotopes	Décroissance	Période	Descendants
Np (Z=93)	237	$\alpha$	$2,1 \cdot 10^6$ a	$^{233}\text{Pa}$ (27j) $^{233}\text{U}$ ( $1,6 \cdot 10^5$ a) $^{229}\text{Th}$ (??)
	239	$\beta^-$	2,3 j	$^{239}\text{Pu}$
Pu (Z=94)	238	$\alpha$	87 a	$^{234}\text{U}$ ( $2,4 \cdot 10^5$ a)
	239	$\alpha$	$24 \cdot 10^3$ a	$^{235}\text{U}$
	240	$\alpha$	6540 a	$^{236}\text{U}$
	241	$\beta^-$	14 a	$^{241}\text{Am}$
	242	$\alpha$	$3,7 \cdot 10^5$ a	$^{238}\text{U}$
Am (Z=95)	241	$\alpha$	432 a	$^{237}\text{Np}$
	242g	$\beta^-$ (83 %) CE (17 %)	16 h	$^{242}\text{Cm}$ $^{242}\text{Pu}$
		$\gamma$	152 a	$^{242g}\text{Am}$
	242m	$\gamma$	141 a	$^{242g}\text{Am}$
Cm (Z=96)	242	$\alpha$	163 j	$^{238}\text{Pu}$
	243	$\alpha$	28,5 a	$^{239}\text{Pu}$
	244	$\alpha$	18 a	$^{240}\text{Pu}$
	245	$\alpha$	8500 a	$^{241}\text{Pu}$

### 1.4.5. Potentiel radiotoxique des actinides mineurs

Deux aspects différents caractérisent fortement les actinides :

1. Le dégagement de la chaleur due à leur haute activité. Cette chaleur constitue un critère essentiel pour la détermination des caractéristiques de conditionnement d'actinides dans des colis ainsi que celle du milieu d'accueil en couches géologiques profondes ;
2. Le risque radiologique induit par l'activité des actinides et leurs émissions. La majorité des actinides sont des émetteurs  $\alpha$ . Ces particules sont fortement ionisantes de la matière. Une notion « radio-physique » permet d'exprimer et de quantifier ce risque important : c'est le potentiel radiotoxique.

Le potentiel radiotoxique d'un radionucléide exprime sa nocivité potentielle sur la santé et l'organisme humains en cas de son ingestion. Elle prend en compte l'évolution du radionucléide en considérant le risque lié à tous ses descendants. Elle s'exprime en Sv ou en Sv par tonne de combustible :

$$R(t) = \sum_i D_i(t) a_i(t)$$

où  $a_i(t)$  est l'activité en Bq du radionucléide présent à l'instant  $t$  (père et descendant) et  $D_i(t)$  est le coefficient de dose effective du radionucléide  $i$  en Sv/Bq.

On peut également diviser cette grandeur  $R(t)$  par la masse initiale du père pour l'exprimer en Sv/g.

Le plutonium, avec ses cinq isotopes, représente l'élément le plus radiotoxique de tous les actinides jusqu'à  $10^6$  ans (cf. figure 1.3). Le potentiel radiotoxique d'actinides mineurs reste aussi durant toute cette période plus important que celle de produits de fission.

La chaîne de l'américium, principalement celle de  $^{241}\text{Am}$ , est responsable d'environ 90 % de l'inventaire radiotoxique d'actinides mineurs jusqu'à  $10^3$  ans. Ce facteur atteint 35 % après  $10^6$  ans.

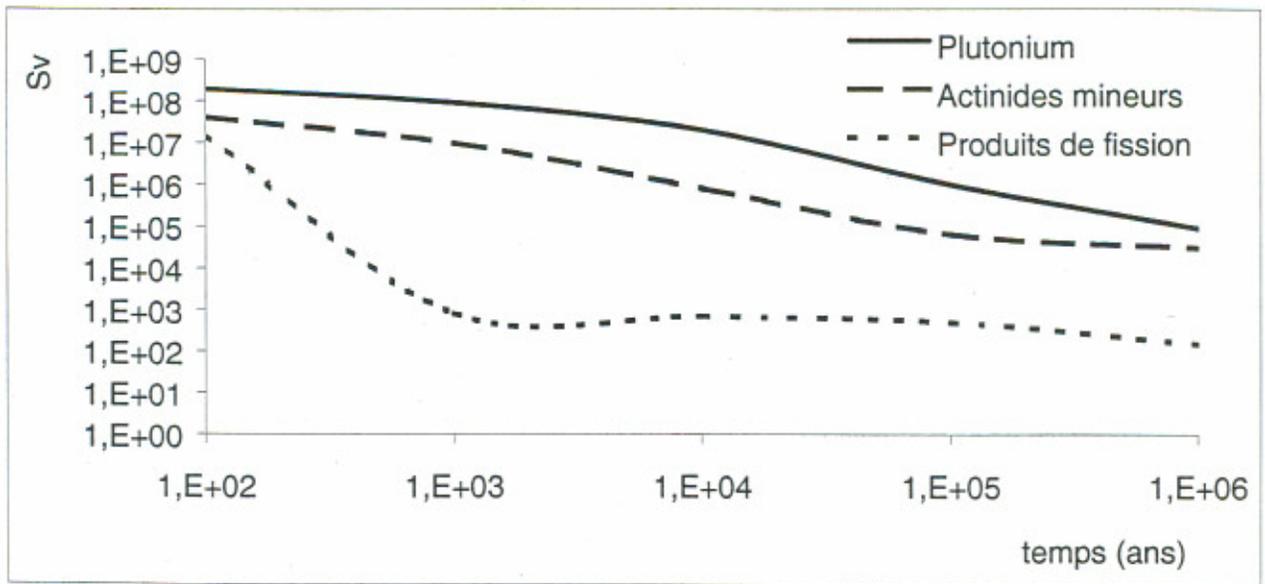


Figure 1.3 Potentiel radiotoxique d'une tonne du combustible d'uranium après son déchargement d'un REP 900 MWé avec un taux de combustion de 33 GWj/t



## Chapitre 2 : Les données nucléaires pour la transmutation des déchets nucléaires

### 2.1. Etat actuel et problématique des données nucléaires

#### 2.1.1. Vue générale

L'importance donnée à la transmutation émane du fait que cette voie pourrait conduire à la diminution de la masse des actinides mineurs et du plutonium dans les déchets ultimes avant que ceux-ci soient confinés dans des colis destinés au stockage dans des couches géologiques profondes.

Les flux de neutrons à haute intensité sont actuellement d'un grand intérêt dans les études de transmutation des déchets nucléaires. Les nouvelles générations des réacteurs nucléaires, en mode critique ou sous-critique, avec des flux neutroniques intenses présentent un intérêt particulier dans l'objectif de réduire la radiotoxicité potentielle et de diminuer le risque de prolifération liés aux déchets nucléaires<sup>[1]</sup>.

Cependant ces études se heurtent aux incertitudes générées par les divergences entre les bibliothèques d'évaluation. Pour surmonter cette barrière, les mesures intégrales sont de grand intérêt pour une bonne compréhension des processus de transmutation et d'incinération et pour une bonne estimation des caractéristiques nucléaires de ces systèmes innovants.

Le champ de données nucléaires dont la connaissance est importante pour toute étude précise des systèmes d'énergie nucléaire couvre toute une série de données, notamment :

- les sections efficaces de différentes réactions nucléaires du neutron avec le noyau, principalement la capture et la fission, mais aussi les diffusions élastique et inélastique et autres réactions ((n , xn), (n , p),...),
- la décroissance radioactive : la période de demi-vie et les facteurs de branchement,
- d'autres données sont également importantes pour la cinétique du réacteur : la fraction de neutrons retardés, le nombre de neutrons émis lors d'une fission, les rendements en énergie dans les interactions, rendement de fission, et de manière moins importante la photofission et les réactions photonucléaires en général.

#### 2.1.2. Situation actuelle des données nucléaires

L'importance des données nucléaires réside dans le fait qu'elles constituent la base de référence pour tout calcul et toute caractérisation de systèmes critiques ou sous-critiques. Les besoins actuels pour avoir une optimisation plus fiable, en particulier des systèmes innovants du combustible nucléaire dédiés notamment aux études de transmutation des déchets nucléaires, sont de plus en plus importants. Ces besoins couvrent également d'autres problèmes non encore résolus tels que la diminution des stocks de plutonium et le stockage des déchets nucléaires à haute et à moyenne activité et à vie longue. Pour les exploitants des réacteurs nucléaires, l'amélioration de la précision des données nucléaires est susceptible d'apporter des gains économiques non négligeables à l'exploitation des tranches nucléaires existantes.

De cela on comprend l'intérêt d'avoir une base de données validée et dont l'utilisation est bien optimisée. Un moyen de validation de données nucléaires, en vue de leur amélioration, sont les mesures intégrales.

Cependant on peut bien constater un recul important aujourd'hui dans les moyens consacrés aux problèmes de données nucléaires. En Europe il n'existe plus qu'un seul laboratoire dont la mission est la réalisation de mesures fondamentales de données nucléaires, qui est l'Institut des Matériaux de Référence et des Mesures (IRMM) à Geel en Belgique. A cela s'ajoute le projet européen n-TOF au CERN, mais dont le programme et le support financier expirent en 2005. Aux Etats-Unis les crédits alloués par les Autorités aux instituts de mesures sont considérablement réduits et il ne subsiste plus que les laboratoires situés à Oak Ridge et à Los Alamos.

D'autres pays à travers le monde se sont également investis dans ce problème de données nucléaires. On en cite notamment le Japon, la Russie, la Chine et la Corée du Sud.

### 2.1.3. Différents types de mesures des données nucléaires

#### 2.1.3.1. Mesures intégrales

Les mesures intégrales sont des mesures moyennées sur le spectre énergétique du flux de neutrons. La grandeur généralement concernée directement par ce type de mesures est le taux de réaction. Ces mesures ont comme objectif la validation voire l'amélioration de fiabilité de certaines données nucléaires. Elles permettent également de valider des schémas de calcul et de simulation des réacteurs. Ces mesures exigent bien-entendu la bonne connaissance du spectre neutronique d'irradiation. En effet, la section efficace intégrale (ou moyennée) sur un spectre est donnée par :

$$\langle \sigma \rangle = \frac{\int_0^{\infty} \sigma(E) \Phi(E) dE}{\int_0^{\infty} \Phi(E) dE}$$

où  $\Phi(E)$  est le flux de neutrons à l'énergie  $E$ .

Plusieurs projets ont été créés en France pour effectuer ce genre de mesures pour des fins différentes. PROFIL était l'un de ces projets qui effectuait des irradiations dans le réacteur PHENIX avec des échantillons d'actinides. Le projet Mini-Inca de la Direction des Sciences de la Matière du CEA est également l'un de ces projets. Il étudie les conditions de faisabilité d'incinération et de transmutation d'actinides mineurs sous haut flux de neutrons en effectuant des mesures intégrales permettant de déterminer la section efficace de capture, le taux de fission, les facteurs de branchement et d'autres données liées aux actinides mineurs. Ces irradiations ont lieu au réacteur à haut flux de l'Institut Laue-Langevin à Grenoble.

### 2.1.3.2. Mesures différentielles

Contrairement aux mesures intégrales, les mesures différentielles ont comme objectif la détermination des données nucléaires, notamment les sections efficaces, en fonction de l'énergie du neutron.

La méthode la plus utilisée pour effectuer ce genre de mesures est celle du « temps de vol ». Le principe de la méthode consiste à envoyer une particule chargée sur une cible pour produire des neutrons. L'énergie des neutrons est déterminée par la mesure du temps de vol entre la cible produisant les neutrons et l'échantillon étudié.

Au niveau européen, le Laboratoire de Geel en Belgique possède un accélérateur linéaire d'électrons permettant d'effectuer des mesures de sections efficaces dans des domaines d'énergie allant de l'énergie thermique à plusieurs MeV.

#### *Exploitation et indexation des mesures*

Toute mesure de données nucléaires est référencée sous forme informatique dans l'index bibliographique dit « CINDA ». Pour cela quatre centres de compilation informatique répartis sur le monde coordonnent entre eux pour indexer toute mesure selon la zone géographique.

Ces centres sont :

- ❖ la Banque de Données de l'AEN à Paris, pour l'Europe Occidentale et le Japon ;
- ❖ le Centre de Données Nucléaires de Brookhaven, pour l'Amérique du Nord ;
- ❖ le Centre d'Obinsk en Russie pour l'Europe de l'Est ;
- ❖ la Section des Données Nucléaires de l'AIEA pour le reste du monde.

### 2.1.4. L'évaluation des données nucléaires

#### 2.1.4.1. Les bibliothèques d'évaluation

L'évaluation des données nucléaires se base essentiellement sur des méthodes nucléaires théoriques.

Les plus grands obstacles auxquels se heurte l'évaluateur sont le désaccord entre les mesures identiques faites avec des techniques différentes et les problèmes de résolution en énergie.

Comme pour les centres de compilation, les bibliothèques d'évaluation des données nucléaires sont réparties par zones géographiques. Les bibliothèques les plus connues sont :

- ❖ le projet européen JEF (Joint Evaluated File)<sup>[12]</sup>,
- ❖ le projet américain ENDF/B (Evaluated Nuclear Data File)<sup>[13]</sup>,
- ❖ le projet japonais JENDL (Joint Evaluated Nuclear Data Library)<sup>[14]</sup>.

A titre d'exemple, le tableau 2.1 présente le nombre d'éléments traités par chaque bibliothèque et se trouvent notamment dans des fichiers accessibles par le code MCNP.

ENDF présente l'avantage de posséder une base de données de sections efficaces pour les différentes températures de modérateurs dans une gamme assez large (jusqu'à 2000°K pour le graphite).

Pour JENDL, sa principale caractéristique est le grand nombre de produits de fission disponible. C'est la seule bibliothèque, parmi ces trois références étudiées, à posséder les données concernant les huit principaux produits de fission à vie longue (PFVL).

A ces trois bibliothèques s'ajoutent celles développées par les russes et les chinois qui sont respectivement BROND et CENDL.

Tableau 2-1 : Caractéristiques des bibliothèques JEF, ENDF/B et JENDL

	JEF	ENDF/B	JENDL
Isotopes avec $Z < 80$	83	83	274
Isotopes avec $80 \leq Z < 90$	2	4	13
Actinides $Z \geq 90$	23	35	53
Total	108	122	340

#### 2.1.4.2. Divergence des bibliothèques d'évaluation

Les études de transmutation, notamment d'actinides mineurs, et les études de conception de nouvelles générations de réacteurs nucléaires nécessitent une connaissance précise de données nucléaires. L'une des insuffisances dans les bibliothèques actuelles est celle qui concerne les sections efficaces d'actinides mineurs. Les actinides les plus concernés sont  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{241}\text{Am}$  et  $^{243}\text{Am}$ . Le tableau suivant illustre les grands désaccords entre les bibliothèques :

Tableau 2-2: Divergences des données des sections efficaces de fission et de capture en %

		Thermique ; $E_n \leq 0,5 \text{ eV}$		
		endf/jef	jendl/jef	endf/jendl
$^{237}\text{Np}$	Fission	0,00	-24,90	19,94
	Capture	0,00	9,12	-10,04
$^{241}\text{Am}$	Fission	2,41	6,18	-4,02
	Capture	-0,63	2,42	-3,12
$^{243}\text{Am}$	Fission	-49,74	-133,70	35,93
	Capture	0,65	-3,78	4,27
		Résonances ; $0,5 \text{ eV} < E_n \leq 100 \text{ keV}$		
		endf/jef	jendl/jef	endf/jendl
$^{237}\text{Np}$	Fission	0,19	-117,20	54,04
	Capture	0,31	-8,45	8,08
$^{241}\text{Am}$	Fission	-5,71	-0,95	-4,72
	Capture	9,23	8,73	0,54
$^{243}\text{Am}$	Fission	-120,16	-42,43	-54,57
	Capture	8,73	4,94	3,99
		Rapide ; $E_n > 100 \text{ keV}$		
		endf/jef	jendl/jef	endf/jendl
$^{237}\text{Np}$	Fission	-0,72	-1,89	40,48
	Capture	0,81	7,61	102,87
$^{241}\text{Am}$	Fission	-4,42	-2,04	-78,29
	Capture	-24,27	25,39	203,61
$^{243}\text{Am}$	Fission	-2,12	2,54	302,60
	Capture	42,4	21,95	-97,61

Note : on lit :  $\text{endf/jef} = (\text{jef} - \text{endf})/\text{jef}$

A ces isotopes s'ajoutent ceux du Cm, qui présentent des écarts entre les bibliothèques atteignant pour certaines sections efficaces 500 % !!

### **2.1.5. Impact des Données nucléaires, exemple extrême : le cas de transmutation du plutonium dans un GT-MHR**

Afin d'évaluer, dans un exemple extrême, l'impact des divergences des données nucléaires, nous avons conduit des calculs et des simulations de transmutation du plutonium dans un réacteur GT-MHR.

#### **2.1.5.1. Caractéristiques d'un GT-MHR**

Le réacteur GT-MHR (Gas Turbine-Modular Helium Reactor) est une dérivée de la famille classique des « Réacteurs à Haute Température » notée HTR. Ce réacteur, encore sous forme de projet, est développé par un ensemble de quatre grands constructeurs de chaudières : FRAMATOME (France), GENERAL ATOMICS (Etats-Unis) et FUJI (Japon), sans oublier la contribution de la Russie.

Ce réacteur est semi-homogène du fait que son combustible est dispersé dans une matrice carbonée. Le cœur est sous forme d'hexagones de graphite percés de petits canaux dont une partie est remplie par des sphères creuses en graphite contenant l'élément combustible et l'autre partie des canaux est destinée à la circulation d'hélium qui constitue le fluide caloporteur<sup>[15]</sup>.

L'utilisation du graphite comme modérateur donne au cœur un volume important cependant il permet de supporter des températures très élevées qui peuvent atteindre 1600 °C au cœur du combustible<sup>[16]</sup>.

L'hélium, qui est transparent aux neutrons, ne présente pas de transition de phases à ces températures élevées. Il présente aussi l'avantage d'être chimiquement inerte ce qui évite la formation de corrosion au niveau de la structure du réacteur.

Ce réacteur présente un coefficient de température négatif ce qui constitue effectivement un avantage puisque cela rend le réacteur auto-stable. Cette propriété est très importante pour un cœur concentré et de faible inertie thermique.

Du point de vue conception géométrique, la forme annulaire du cœur lui donne un confinement avec des températures raisonnables puisque le rapport entre la surface et le volume se voit augmenter. Cependant cela nécessite la présence de réflecteurs assez épais pour minimiser les fuites de neutrons au niveau des parois.

#### **2.1.5.2. Avantages et inconvénients d'un GT-MHR**

- ✓ L'une des caractéristiques les plus importantes de ce réacteur est son rendement thermique pouvant atteindre les 50 %. En effet la très haute température atteinte en sortie du cœur (de l'ordre de 850 °C) permet l'utilisation de turbines à gaz donnant ainsi un rendement important, ce qui rend ce genre de réacteur très avantageux par rapport aux autres filières.

- ✓ Si ce réacteur présente les inconvénients d'avoir une puissance spécifique faible (600 W.cm<sup>-3</sup> pour 1000 W.cm<sup>-3</sup> pour un REP) et une complexité du système, ses avantages restent indéniables.
- ✓ Du côté d'une large exploitation électrique, son plus haut avantage se présente au niveau du rendement, aussi bien énergétique que neutronique. Le rendement énergétique peut atteindre 50 % alors qu'un REP (Réacteur à Eau Pressurisée) classique atteint à peine 33 %. Le rendement neutronique est de l'ordre de 75 % et est donc comparable à celui d'un réacteur à neutrons rapides connu pour son important rendement neutronique (le rendement neutronique est défini comme étant la probabilité qu'un neutron absorbé dans le combustible donne une fission ou une capture fertile). D'autre part le taux de combustion dépasse 100 000 MWj/t alors qu'il atteint seulement 60 000 MWj/t pour un REP.
- ✓ D'un point de vue production de déchets nucléaires, certaines études de simulation ont montré qu'il en produisait moins qu'un REP en terme de bilan massique. A cela s'ajoutent ses propriétés dans la transmutation du plutonium en particulier. Des calculs montrent qu'un taux élevé d'incinération (de l'ordre de 90 %) peut être atteint dans la destruction du plutonium<sup>[17]</sup> dans ce réacteur. Ce taux est encore plus élevé dans le cas du couplage d'un GT-MHR avec un accélérateur<sup>[18]</sup>.
- ✓ Enfin, ce réacteur à haute température bénéficie d'un retour d'expérience avec deux prototypes réalisés dans le passé, AVR de 15 MWe en Allemagne, qui a divergé en 1966 et celui de Fort Saint-Vrain de 330 MWe aux Etats-Unis qui est entré en fonctionnement en 1974. Les deux réacteurs sont mis en arrêt en fin des années 1980.

### 2.1.5.3. Caractéristiques d'un GT-MHR

Une partie des caractéristiques et des propriétés de ce réacteur ont été montrées au premier chapitre. Le combustible utilisé dans notre exemple est sous forme du PuO<sub>1,8</sub> constituant les micro-particules dites TRISO du noyau.

Tableau 2-3 : Caractéristiques du GT-MHR

Milieu	Noyau	Buffer	Barrière de confinement		
Matériau	PuO <sub>1,8</sub>	Carbone poreux	Pyrocarbone interne	Carbure de silicium	Pyrocarbone externe
Densité, g/cm <sup>3</sup>	10	1,0	1,8	3,2	1,8
Diamètre ou épaisseur, μm	200	100	35	35	40

L'erbium et l'hélium sont respectivement utilisés comme poison et caloporteur avec du graphite comme modérateur.

Dans cette étude, sont traités les cas du plutonium civil et militaire mais on va s'attarder ici seulement au cas du plutonium civil<sup>[19]</sup>. Le tableau suivant montre le vecteur isotopique de celui-ci correspondant au cycle d'un réacteur REP avec 3,7 % d'enrichissement en <sup>235</sup>U et un taux de combustion de 42 GWj/t<sup>[20]</sup>.

Tableau 2-4 : Vecteur isotopique du plutonium civil utilisé dans les simulations

$^{238}\text{Pu}$	$^{239}\text{Pu}$	$^{240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Pu}$	$^{242}\text{Pu}$
2,7	55,1	23,1	11,8	7,3

Les tableaux suivants présentent les caractéristiques des différents constituants du cœur du réacteur ainsi que ses propriétés dynamiques (puissances, températures et pression).

Tableau 2-5: Caractéristiques dynamiques et géométriques du GT-MHR

Puissance thermique, MW	600
Puissance volumique moyenne, W/cm <sup>3</sup>	6,5
Température d'entrée de l'Hélium, °C	490
Température de sortie de l'Hélium, °C	850
Pression du circuit primaire, bars	71,4
Diamètre équivalent intérieur, cm	295,2
Diamètre équivalent extérieur, cm	483,2
Hauteur, cm	800
Volume, cm <sup>3</sup>	91,9
Diamètre du réflecteur extérieur, cm	684
Hauteur du réflecteur inférieur, cm	160
Hauteur du réflecteur supérieur, cm	130

Tableau 2-6: Différentes régions du cœur du GT-MHR

Composante du cœur du réacteur	matière	Masse, kg	Température, °C
Réflecteur intérieur	Hélium	$5,08 \cdot 10^1$	730
	Graphite	$1,01 \cdot 10^5$	
Interface réflecteur intérieur/cœur actif	Bore	1,42	790
	Graphite	$3,33 \cdot 10^3$	
Cœur actif	Hélium	$5,91 \cdot 10^1$	800
	Graphite	$1,25 \cdot 10^5$	
	Oxygène	$1,42 \cdot 10^2$	
	Silicium	$1,18 \cdot 10^3$	
	Erbium	$4,12 \cdot 10^2$	
	Combustible Pu-C	$1,20 \cdot 10^3$	
Réflecteur extérieur	Graphite	$3,40 \cdot 10^5$	500
Réflecteur inférieur	Hélium	$1,18 \cdot 10^1$	500
	Graphite	$2,59 \cdot 10^4$	
Réflecteur supérieur	Hélium	9,61	500
	Graphite	$2,11 \cdot 10^4$	

**Nota : Outils de calculs**

Cette étude a utilisé les codes suivants :

- MCNP pour le transport de neutrons<sup>[21]</sup>,
- ORIGEN2 pour l'évolution du combustible durant le cycle du réacteur<sup>[22]</sup>,
- MONTEBRUNS qui couple automatiquement les deux codes précédents<sup>[23]</sup>.

#### 2.1.5.4. Effet des divergences entre les bibliothèques

Pour n'étudier que les effets des divergences d'actinides, les trois bibliothèques ont utilisé la même source de produits de fission qui est celle de JENDL étant donné que celle-ci contient le plus grand nombre de produits de fission.

##### 2.1.5.4.a Spectre neutronique et son intensité

En fonction du cycle du réacteur, qui atteint 1250 jours en pleine puissance (JEPP), on présente la variation des écarts maximaux et minimaux entre les différentes bibliothèques dans le calcul des spectres thermique, épithermique et rapide dans le cœur du réacteur, cf. figure 2.1. Alors que les écarts maximaux varient dans une plage de [0,5 % , 10 %] les minimaux sont dans un intervalle de [0 % , 5 %]. Ce sont les spectres thermique et épithermique qui présentent les plus grands écarts. En effet, dans ce réacteur thermique (15 % de neutrons thermalisés au début du cycle contre 30 % en fin du cycle), la sensibilité aux divergences entre les sections efficaces thermiques est encore plus grande. Cela explique également le fait que les limites des écarts sont parfaitement identiques entre les spectres thermique et épithermique. Le spectre de flux est de moins en moins dur durant le cycle.

L'intensité du flux est relativement moins sensible que le spectre à la bibliothèque utilisée, cf. figure 2.2. L'écart maximal entre les bibliothèques ne dépasse pas les 7 %.

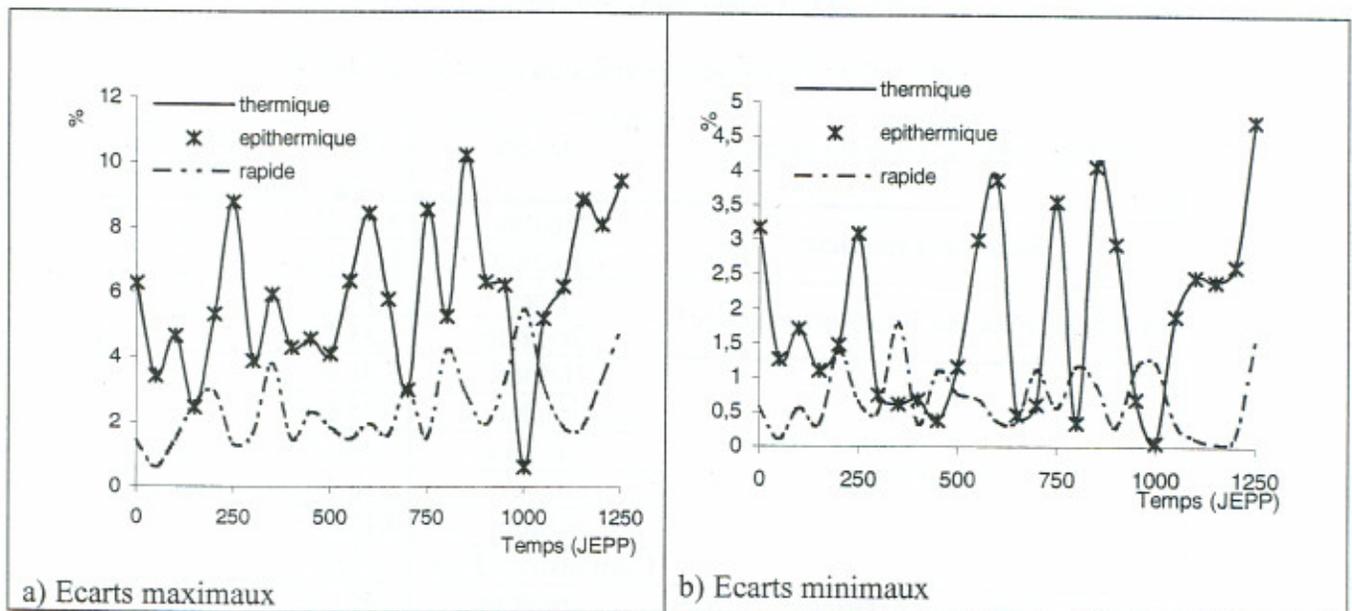


Figure 2.1 : Ecarts relatifs, maximaux et minimaux, entre les différentes bibliothèques dans le calcul de spectres thermique, épithermique et rapide dans le réacteur GT-MHR

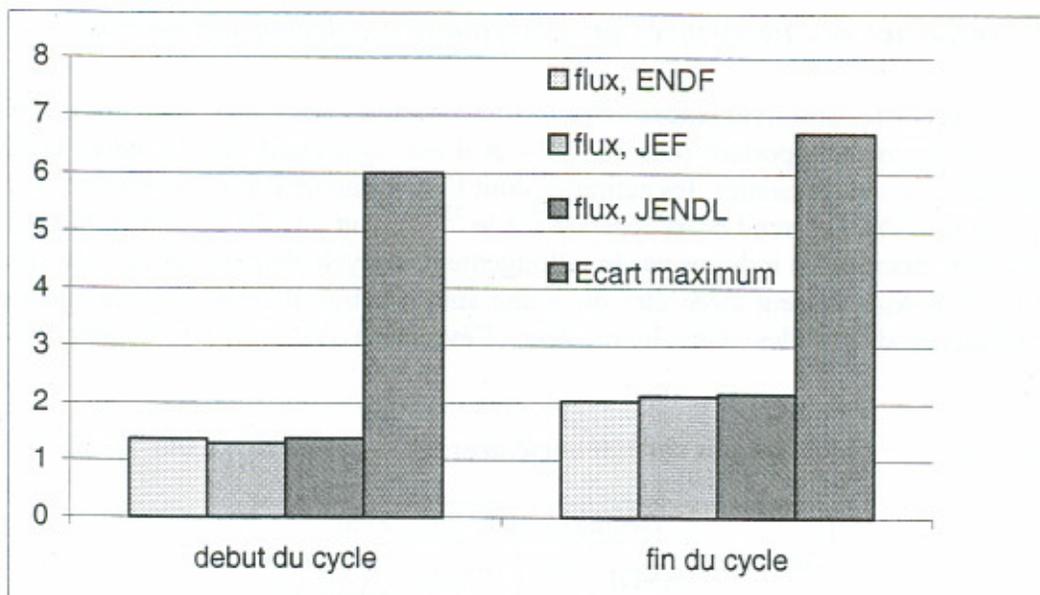


Figure 2.2 : Flux de neutrons dans le cœur du GT-MHR exprimé en  $10^{14} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$  et l'écart maximum en % entre les trois bibliothèques

#### 2.1.5.4.b Evolution des sections efficaces à un groupe, cas de $^{241}\text{Am}$ et du $^{237}\text{Np}$

Si l'écart de la section efficace de capture entre les différentes librairies est inférieur à 10 % durant le cycle du réacteur, ce qui peut être considéré comme un accord entre ces références en tenant compte des erreurs statistiques estimées à 10 %, celui de la section efficace de fission dépasse cette barrière et atteint parfois les 25 %, cf. figure 2.3.

$^{241}\text{Am}$  est l'un des actinides présentant la plus grande divergence durant l'évolution du cycle du réacteur.

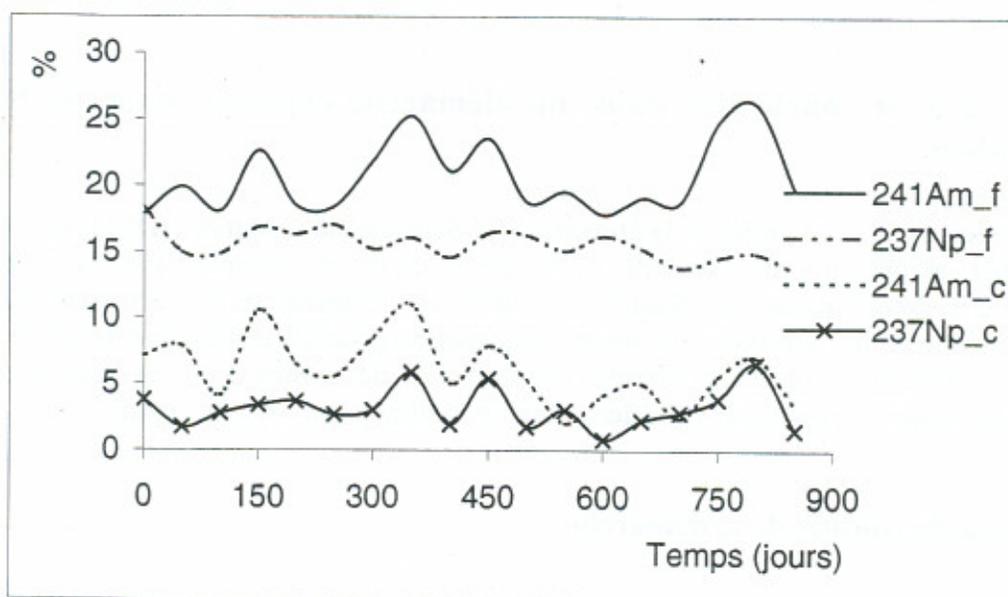


Figure 2.3 : Evolution de l'écart maximum entre les bibliothèques JEF, ENDF et JENDL pour les sections efficace de fission et de capture des actinides  $^{241}\text{Am}$  et  $^{237}\text{Np}$  (f : fission, c : capture)

### 2.1.5.4.c Influence des divergences sur l'inventaire des déchets du réacteur

En fin du cycle, l'effet des divergences entre les bibliothèques sur l'inventaire des déchets du réacteur est notamment important pour le  $^{239}\text{Pu}$  et il est significatif pour d'autres actinides. Dans le tableau 2.7 sont présentés les actinides dont l'écart maximal sur l'inventaire en fin du cycle dépasse les 7 %. Le grand écart constaté sur le  $^{239}\text{Pu}$  peut être dû à d'autres facteurs liés notamment aux incertitudes induites par le rallongement du cycle du réacteur en induisant une incertitude sur le  $k_{\text{eff}}$ . Il peut aussi être dû à une amplification d'erreurs sur le spectre, les sections efficaces d'actinides dans le réacteur, l'évolution du cycle et la génération de neutrons.

Tableau 2-7 : Inventaire des déchets nucléaires après irradiation dans GT-MHR

Actinides	Déchargement, kg			Ecart maximum relatif, %
	ENDF	JEF	JENDL	
$^{239}\text{Pu}$	26,7	23,8	21,0	24,2
$^{240}\text{Pu}$	48,9	49,5	46,1	7,1
$^{241}\text{Pu}$	110	103	99,3	10,3
$^{242}\text{Pu}$	137	144	148	7,7
$^{241}\text{Am}$	7,8	7,0	7,0	10,8
$^{244}\text{Cm}$	35,5	32,9	33,9	7,6

Cet exemple étudié montre que des expériences de mesures de données neutroniques d'actinides, notamment de sections efficaces et de taux de réaction, peuvent constituer une référence pour de nombreuses études de conception ou de simulation ayant besoin de données nucléaires plus fiables.

## 2.2. Les données nucléaires dans une démarche expérimentale : le Projet Mini-Inca

Le projet mini-inca est un projet de la Direction des Sciences de la Matière (DSM) du CEA. Il s'inscrit, par ses objectifs, dans le cadre défini par la loi du 30 décembre 1991. Il cherche à contribuer à la détermination des conditions idéales de la transmutation d'actinides mineurs. Les mesures intégrales constituent la démarche expérimentale caractéristique du projet pour réaliser ces objectifs. Un certain nombre de méthodes de mesure sont étudiées, conçues, testées et développées pour doter cette démarche de sa dimension expérimentale<sup>[24]</sup>.

### 2.2.1. Caractéristiques de la démarche

La démarche expérimentale du projet, basées sur l'irradiation sous flux de neutrons, est caractérisée par les propriétés suivantes :

- Echantillons à très faibles masses : cela diminue toute perturbation locale de flux de neutrons et limite l'auto-absorption des raies  $\alpha$  et  $\gamma$  que l'on mesure après irradiation,

- Flux de neutrons très intense. En effet, il y a deux aspects importants qu'on peut avoir avec un flux neutronique élevé par rapport à un flux faible :
  1. un taux de réaction très important du fait de la fluence neutronique élevée. Ainsi une irradiation de 50 jours dans un flux de  $2 \cdot 10^{15} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$  (dans le réacteur à haut flux de l'ILL/Grenoble) équivaut à 10 ans d'irradiation dans un flux de l'ordre de  $10^{13} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$  dans un REP français classique.
  2. un flux neutronique élevé permet d'avoir accès aux isotopes à vie très courte dans le sens que ces isotopes puissent contribuer au signal électrique mesuré (dans le cas d'une chambre à fission par exemple). En effet, le taux de réaction de ces éléments sous haut flux est beaucoup plus grand que leur taux de disparition. On comprend alors qu'une extrapolation d'une irradiation faite sous faible flux de neutrons pour un flux très élevé ne peut pas être faite. Du point de vue purement mathématique, plusieurs termes d'exponentielles interviennent dans les équations de Bateman qui décrivent les différentes réactions nucléaires entrant en jeu ce qui empêche une telle extrapolation.
- Une analyse rapide (juste après l'irradiation) en utilisant la spectroscopie  $\gamma$  et  $\alpha$ . Cela permet de caractériser les éléments à vie très courte tant qu'ils sont présents,
- L'utilisation de moniteurs de flux irradiés simultanément et dans les mêmes conditions que les échantillons pour mesurer l'intensité de flux ou le caractériser,
- Mesure en ligne de l'incinération de l'actinide en mesurant le nombre de fissions au fur et à mesure qu'elles se produisent. Pour cela une nouvelle génération de micro-chambres à fission est développée.

Ces propriétés permettront à partir des techniques expérimentales développées et utilisées d'étudier d'une part les possibilités de transmutation et d'incinération des éléments irradiés et d'autre part de déterminer quantitativement, d'une façon très précise, certains paramètres nucléaires tels que la section efficace, la période radioactive et les rapports de branchement.

La figure 2.4 présente le schéma général du projet Mini-Inca. On lit également dans ce schéma la possibilité d'utiliser d'autres méthodes pour l'analyse des échantillons irradiés, en l'occurrence la spectrométrie de masse. Cette méthode constitue parfois une façon indépendante de déterminer la composition isotopique. Elle présente l'inconvénient qu'on ne peut pas y avoir recours immédiatement après l'irradiation tant que des éléments à vie très courte sont présents. En effet, un délai d'environ six mois est nécessaire afin de permettre une manipulation des échantillons en conditions de faible radioactivité.

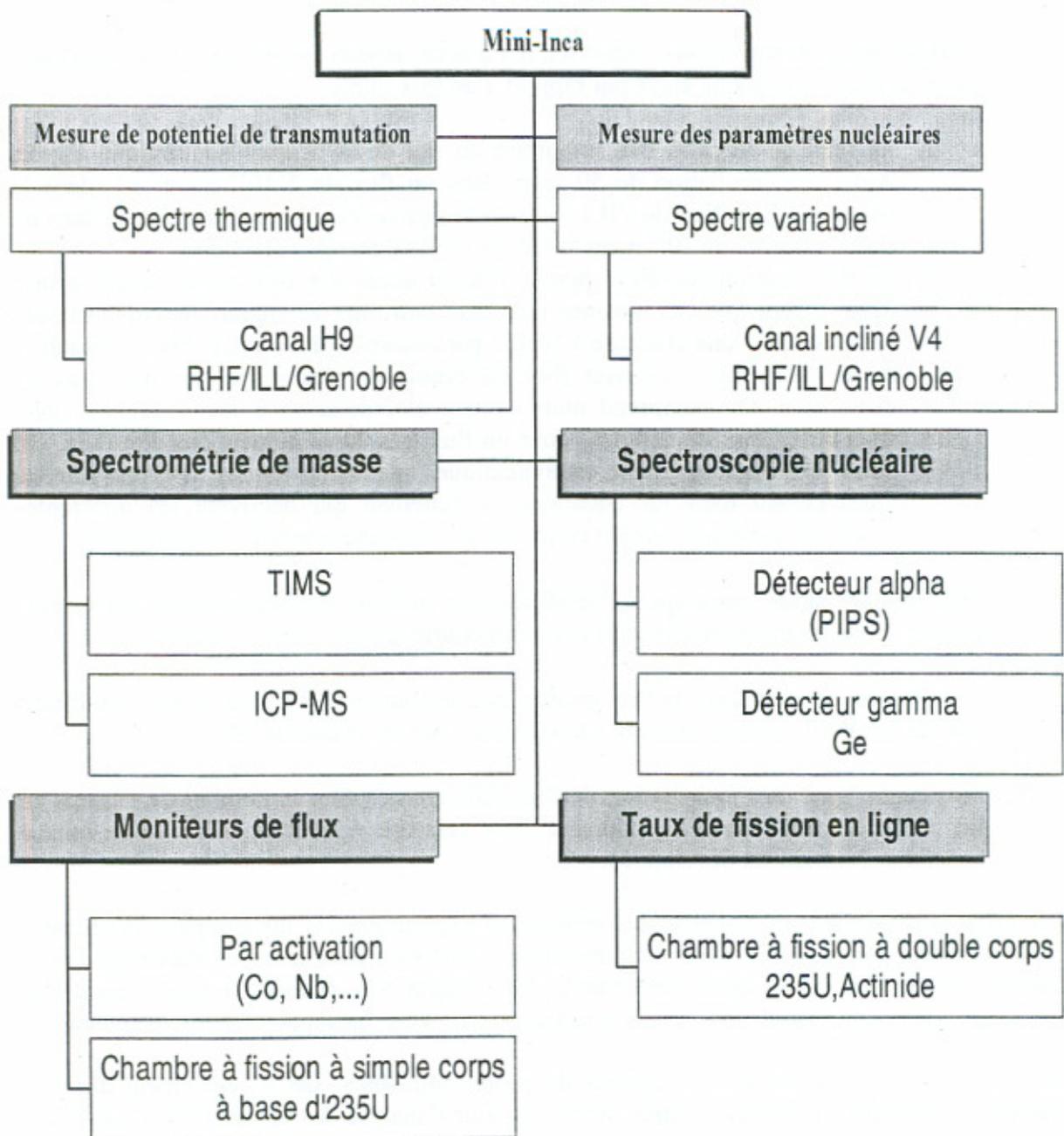


Figure 2.4 : Grandes lignes du projet Mini-Inca

## 2.2.2. Spectroscopie nucléaire

La spectroscopie nucléaire est un moyen puissant pour déterminer la composition isotopique après irradiation d'un échantillon. Cela permet de remonter aux sections efficaces de réactions (notamment de capture radiative et d'absorption totale), de rapports de branchement et de durées de vie des éléments présents. Néanmoins cette détermination peut se heurter, dans certains cas, à une mauvaise connaissance de la structure nucléaire ou aux grandes incertitudes sur les schémas d'évolution.

Le principe de la détection utilisée dans la spectroscopie dans Mini-inca repose sur les propriétés des semiconducteurs. Deux détecteurs sont principalement utilisés: un détecteur Germanium (Ge) pour la spectroscopie  $\gamma$  et un détecteur Silicium (Si) pour la spectroscopie  $\alpha$ .

### 2.2.2.1. Avantages des détecteurs semiconducteurs

Les détecteurs semiconducteurs présentent de nombreux avantages par rapport aux détecteurs classiques à remplissage gazeux ou à scintillations :

- Lorsqu'une particule chargée traverse un semiconducteur elle crée au long de son parcours des paires électron-trou. L'énergie nécessaire pour créer une paire est de l'ordre de 3 eV pour un semiconducteur alors qu'elle est de l'ordre de 30 eV dans le cas d'un détecteur à gaz pour créer une paire électron-ion. Le nombre de porteurs de charge est 10 fois plus élevé pour un détecteur semiconducteur que pour un détecteur à gaz pour la même énergie déposée.
- La résolution en énergie d'un détecteur semiconducteur est largement supérieure à celle d'un détecteur à scintillations. Pour une raie  $\gamma$  de 662 keV, le détecteur classique présente une résolution de 40 keV et un détecteur semiconducteur n'enregistre que 2 keV.
- Ces détecteurs présentent également un avantage par leur volume compact. En effet à cause de leur énergie d'ionisation assez faible, ils ne nécessitent pas de grandes tailles pour augmenter le nombre de charges dans le volume.
- Parmi les avantages, il y a également celui du temps de collection qui est relativement rapide.

### 2.2.2.2. Spectroscopie alpha

Pour la détection des particules alpha et des ions légers en général on utilise un détecteur semiconducteur à base de silicium.

En effet, parce que les particules alpha sont très ionisantes et qu'il suffit d'une faible épaisseur pour qu'elles s'arrêtent complètement dans la matière, l'utilisation d'un semiconducteur dont la bande interdite est plus énergétique semble préférable pour diminuer la possibilité de saturation du détecteur. Le silicium présente cet avantage par rapport au germanium.

De plus, les mobilités des électrons et des trous dans le semiconducteur sont plus faibles pour le silicium que pour le germanium. D'autre part l'énergie de liaison, à 77 K, d'une paire

électron-trou pour le Si est 27 % plus élevée que pour le Ge ce qui diminue le nombre de charge dans le volume sensible du détecteur.

La faible densité du Si par rapport au Ge est aussi un facteur favorisant la diminution de tout effet de saturation pour une même activité.

Le tableau suivant résume les caractéristiques de chacun de ces deux semiconducteurs<sup>25</sup>. A part l'énergie de liaison, ces propriétés correspondent à une température de 300 K.

**Tableau 2.9 : caractéristiques des semiconducteurs : Silicium et Germanium**

	Si	Ge
Densité (g.cm <sup>-3</sup> )	2,33	5,32
Energie de la BI (eV)	1,115	0,665
Mobilité de l'électron (cm <sup>2</sup> .V <sup>-1</sup> .s <sup>-1</sup> )	1350	3900
Mobilité du trou (cm <sup>2</sup> .V <sup>-1</sup> .s <sup>-1</sup> )	480	1900
Energie de liaison à 77 K (eV)	3,76	2,96

### 2.2.2.3. Spectroscopie gamma

Les rayonnements pénétrants, en l'occurrence les rayonnements  $\gamma$ , exigent une zone de déplétion beaucoup plus importante que pour les particules  $\alpha$ . Ainsi les détecteurs à simple jonction destinés à la spectroscopie  $\alpha$  ne sont pas valables pour la spectrométrie  $\gamma$ .

On montre que le carré de la longueur de la zone de déplétion est proportionnel à la tension de polarisation et inversement proportionnel à la concentration des atomes d'impureté (le phosphore par exemple dans le cas d'un atome donneur ou le bore dans le cas d'un atome récepteur).

Puisqu'il est techniquement très délicat d'obtenir une concentration d'impuretés inférieure à  $10^{10}$  atomes.cm<sup>-3</sup>, exigée pour avoir une zone de déplétion de 1 cm comme longueur de fonctionnement pour la détection gamma, on utilise généralement la technique de compensation qui consiste à ajouter au germanium du lithium dans lequel les impuretés résiduelles sont compensées par les atomes dopant du type opposé. Cela conduit à la diminution de la concentrations d'impuretés.

A la température ambiante, le germanium a une étroite bande interdite de 0,7 eV. Cette énergie est facilement franchissable par des électrons de la bande de valence en induisant ainsi une grande perturbation sur le courant dû aux rayonnements pénétrants. Cela rend impossible toute mesure à la température ambiante, d'où la nécessité de refroidir le germanium par l'azote liquide qui a une température d'équilibre, en état liquide, de 77 K.

Etant donné que le nombre de porteurs de charge est généralement bien élevé dans un semiconducteur, le détecteur germanium présente une très bonne résolution pour la spectroscopie  $\gamma$ . Cela constitue la caractéristique la plus importante du détecteur germanium. La résolution du détecteur à une raie de 1333 keV varie de 1,7 à 2,3 keV. Et elle varie de 0,4 keV à 0,6 keV pour 122 keV.

### 2.2.3. Chambre Mini-Inca

#### 2.2.3.1. Principe et constitution

Un système de détection spectroscopique alpha-gamma, appelé Chambre Mini-Inca, a été développé et installé au réacteur à haut flux de l'Institut Laue-Langevin à Grenoble, cf. figure 2.6. Il est destiné à faire des mesures spectroscopiques juste après l'irradiation de l'échantillon ou entre des irradiations successives. Pour que les particules  $\alpha$  ne perdent pas d'énergie avant d'atteindre le détecteur, la chambre est mise sous vide atteignant  $10^{-4}$  mbar. La chambre permet de récupérer un échantillon déjà irradié dans le canal expérimental H9 et le placer ensuite devant le détecteur avec une précision de 1 mm. Les détecteurs peuvent être bougés pour choisir l'angle solide le plus approprié aux mesures en cours<sup>[26]</sup>.

La chambre est entourée d'un mur de plomb de 5 cm d'épaisseur et d'une combinaison de polyéthylène (riche en hydrogène) et du  $B_4C$  pour diminuer le bruit de fond dû aux rayonnements gamma et aux neutrons.

Le détecteur gamma est un détecteur germanium à très haute résolution avec une efficacité relative de 15 %. A une énergie de 122 keV il présente une résolution de 0,825 keV et 1,8 keV à l'énergie 1333 keV. Le détecteur peut bouger dans un intervalle de distance de [40 cm ; 80 cm] de l'échantillon. L'angle solide correspondant varie dans un intervalle de [ $3 \cdot 10^{-4}$  ;  $2 \cdot 10^{-3}$  ;].

Le détecteur alpha utilisé est un PIPS (Passivated Implanted Planar Silicon) à haute résolution. Sa zone active est de  $100 \text{ mm}^2$  avec une région de déplétion de  $300 \mu\text{m}$  de profondeur. Sa résolution est de 11,8 keV pour une particule alpha de 5486 keV. Le détecteur peut bouger dans un intervalle de [1 cm ; 30 cm] de l'échantillon. Cela correspond à un angle solide de [ $10^{-3}$  ;  $10^{-1}$ ].

Concernant le détecteur à germanium, l'électronique associée peut suivre un taux de comptage dépassant les 60 kHz. Les tests montrent que jusqu'à cette fréquence le détecteur a une résolution constante. Cependant elle commence à se dégrader d'une façon progressive au-delà de cette fréquence. Le temps mort reste inférieur à 2 % jusqu'à 60 kHz.

Ces performances sont obtenues grâce à un traitement de signal par un Processeur au Signal Digital (Digital Signal Processor) après pré-amplification.

#### 2.2.3.2. Exemple d'études expérimentales faites avec la chambre Mini-Inca

L'une des principales études faites avec la chambre Mini-Inca est celle du corps  $^{242}\text{Pu}$  et  $^{243}\text{Am}$ . Ces travaux, en plus de ceux de chambres à fissions, ont constitué une partie importante des activités du groupe Mini-Inca pour ces trois dernières années. L'objectif de l'irradiation était la détermination de la section efficace de capture du  $^{242}\text{Pu}$  et de  $^{243}\text{Am}$ . Les deux corps sont d'une grande importance pour les systèmes de transmutation à base de sel fondu ou du graphite modérateur. La figure 2.7 montre l'évolution du  $^{242}\text{Pu}$  et de  $^{243}\text{Am}$  sous un flux de neutrons.

Une masse de  $10 \mu\text{g}$  du  $^{242}\text{Pu}$  a été irradiée, durant 48 heures, dans le canal expérimental H9 du réacteur à haut flux de l'ILL à Grenoble où règne un flux thermalisé à 98 % d'une intensité de  $610^{14} \text{ n.cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ , cf. figure 2.7.

La mesure de flux se fait par activation neutronique. Le moniteur de flux utilisé est le  $^{59}\text{Co}$  de l'alliage Al-1%Co sous forme d'un disque de 6 mm de diamètre et de 0,1 mm d'épaisseur.

Par spectroscopie  $\gamma$  des raies 1173 et 1332 keV du  $^{60}\text{Co}$ , on mesure un flux thermique dans le canal H9 d'une intensité de  $6,00 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$  avec une incertitude de 5 %.

Après un refroidissement de deux jours, la quasi-totalité du  $^{243}\text{Pu}$  s'est transformée en  $^{243}\text{Am}$  par décroissance  $\beta^-$  avec une période radioactive de 4,95 h.

En mesurant les raies 5233 keV et 5275 keV (spectroscopie  $\alpha$ ) de  $^{243}\text{Am}$ , la section efficace de capture du  $^{242}\text{Pu}$  est déterminée, cf. figure 2.8.

Les principaux résultats de ces expériences sont notés dans le tableau 2.8 (les sections efficaces sont données à 293 K). Ces résultats sont en bon accord avec la bibliothèque JEF2.2 [10].

Sur la section efficace du  $^{242}\text{Pu}$  vers  $^{243}\text{Pu}$ , un désaccord de +25 % est marqué par rapport à la bibliothèque ENDF.

Tableau 2-8: Résultats des irradiations de l'actinide  $^{242}\text{Pu}$  sous un flux thermique de  $6,00 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$

Section efficace de capture	Valeur (barns)	Incertitude (barns)
$^{242}\text{Pu} \rightarrow ^{243}\text{Pu}$	26,9	1,29
$^{243}\text{Am} \rightarrow ^{244\text{gs}}\text{Am}$	5,59	1,68
$^{243}\text{Am} \rightarrow ^{244\text{tot}}\text{Am}$	88,6	3,85

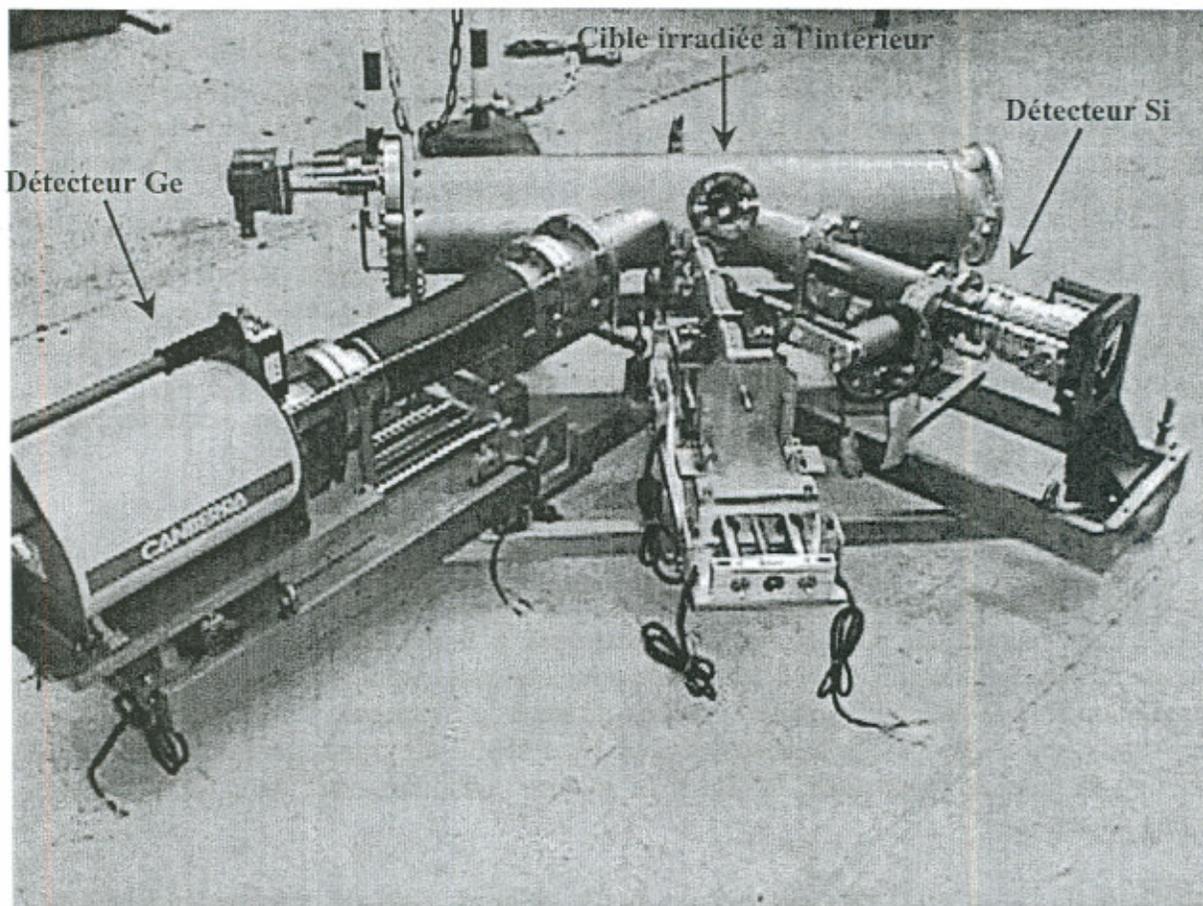


Figure 2.5 : Chambre Mini-Inca

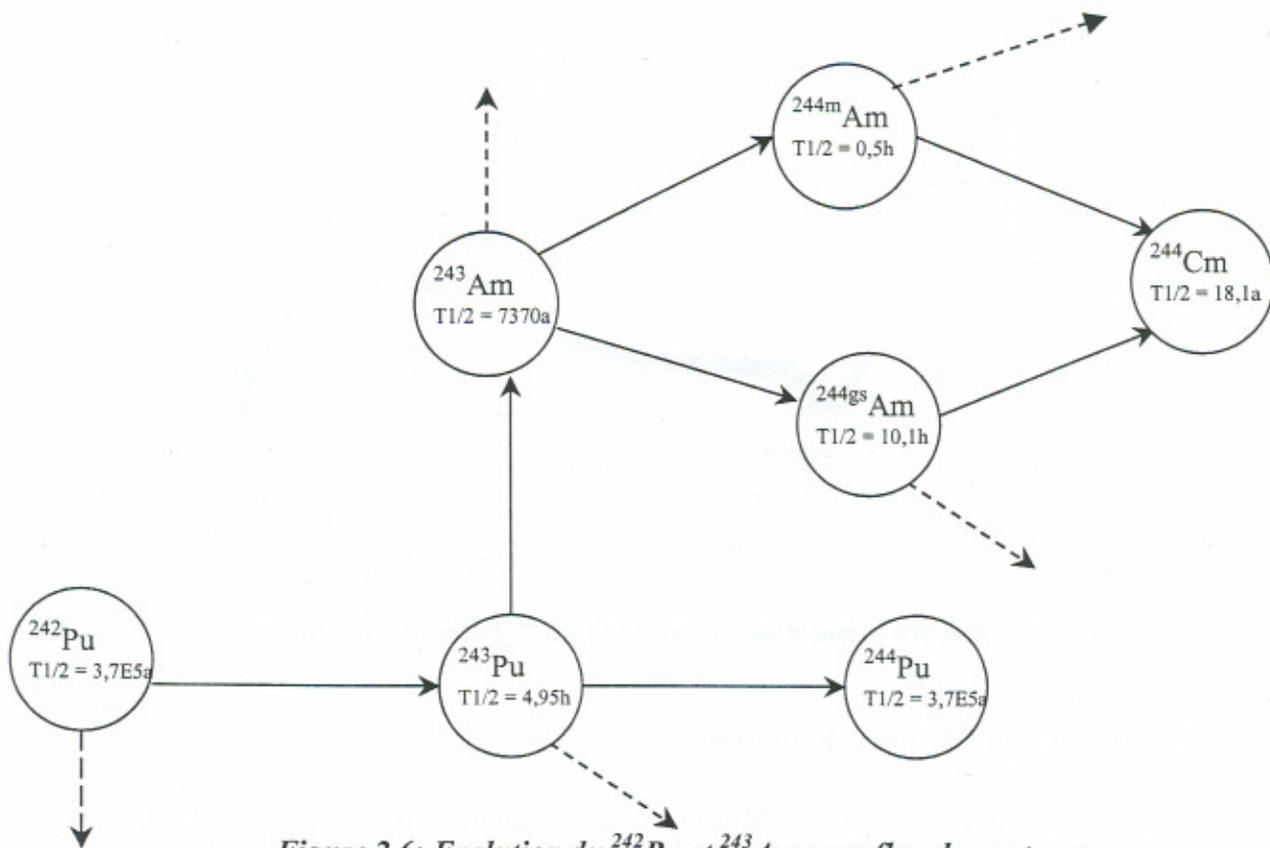


Figure 2.6: Evolution du  $^{242}\text{Pu}$  et  $^{243}\text{Am}$  sous flux de neutrons

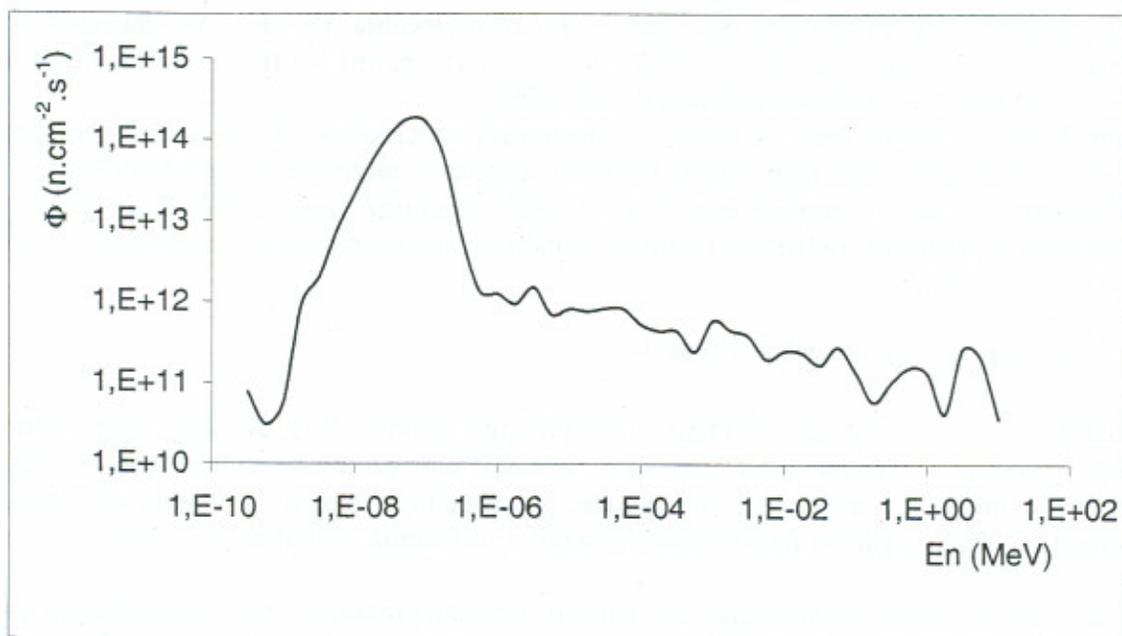


Figure 2.7 : Spectre de neutrons dans le canal expérimental H9 obtenu par simulation du réacteur à haut flux en utilisant le logiciel MCNP

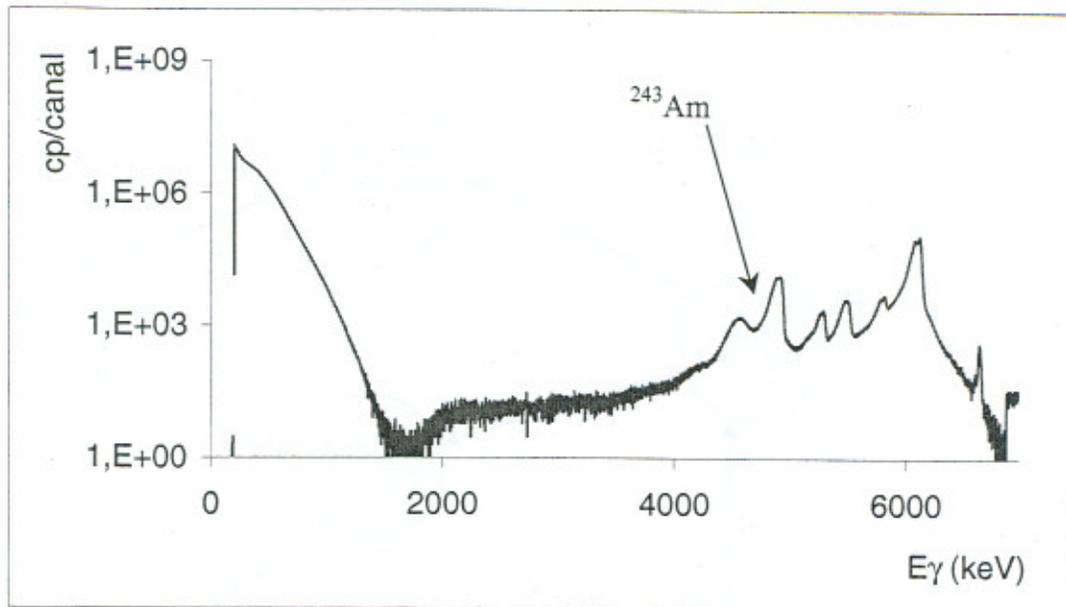


Figure 2.8 : Spectre alpha d'un échantillon de  $^{242}\text{Pu}$  après irradiation

#### 2.2.4. Mesure en ligne de taux de fission

En plus des mesures avec la chambre Mini-Inca, une seconde partie du projet a comme objectif la mesure en ligne de taux de fission d'actinides mineurs. Il s'agit de suivre en fonction du temps d'irradiation les variations de taux de fission qui sont induites par la modification de l'échantillon sous flux de neutrons. Afin que ces mesures soient significatives, le flux de neutrons doit être le plus haut possible. Le canal V4, du réacteur à haut flux de l'ILL, avec ses  $10^{15} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$  qui le placent parmi les flux les plus élevés au monde, constitue un endroit exceptionnel d'irradiations.

Comme nous le verrons dans la suite, des détecteurs spécifiques ont été développés pour réaliser ces irradiations sous haut flux de neutrons, appelés « micro-chambres à fission ».

Les chambres à fission semblent être l'outil le plus approprié pour effectuer ce genre de mesure avec la précision souhaitée et dans les conditions neutroniques correspondant à celles du réacteur à haut flux.

##### 2.2.4.1. Principe d'une chambre à fission

La chambre à fission est un détecteur à remplissage gazeux. Elle est sous forme d'une enceinte métallique étanche constituée, dans le cas d'une géométrie cylindrique, de deux électrodes cylindriques coaxiales : la cathode, généralement liée à la masse, et l'anode supportant un dépôt fissile ou fertile selon l'objectif d'utilisation souhaitée, cf. figure 2.9.

Dans un environnement neutronique, un neutron incident provoque, avec bien-entendu une certaine probabilité, une fission d'un noyau du dépôt fissile. Un des fragments de fission est généralement absorbé dans l'anode, l'autre part dans l'espace inter-électrodes avec une grande énergie cinétique ( $> 80 \text{ MeV}$ ) en laissant ainsi derrière lui une partie de son cortège électronique. Ce noyau chargé positivement crée des paires électrons-ions par ionisation du gaz de remplissage. Ces électrons sont collectés au niveau de l'anode sous l'effet d'un champ

électrique extérieur en donnant ainsi un signal électrique observable à l'aide d'une chaîne électronique.

Cette chaîne électronique peut avoir comme organe d'entrée un préamplificateur d'impulsion se terminant, soit par un discriminateur et une échelle de comptage, soit par un analyseur d'amplitudes. Dans ces deux cas, la chambre fonctionne en mode impulsion. Une chambre à fission peut fonctionner également en mode courant ou en mode fluctuations. Ces points seront détaillés dans un chapitre indépendant.

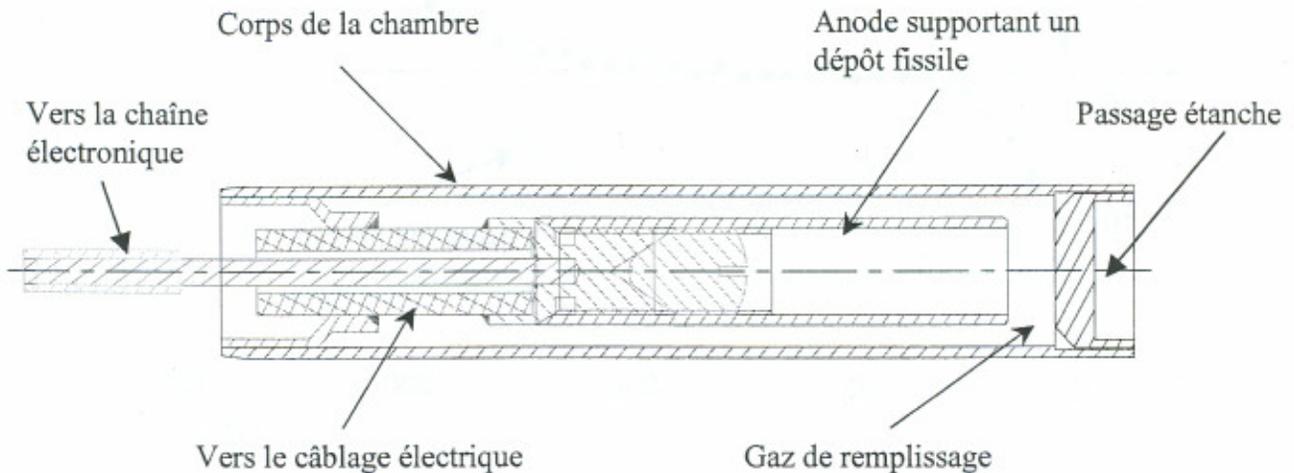


Figure 2.9: Principe d'une chambre à fission

#### 2.2.4.2. Caractéristiques d'une chambre à fission

Les caractéristiques d'une chambre à fission sont celles d'un détecteur à gaz. La figure 2.10 montre les caractéristiques d'une chambre à fission irradiée dans le cadre du projet Mini-Inca dans le canal expérimental V4. Il s'agit d'un résultat obtenu pour la première fois au monde. Des détecteurs similaires n'avaient jamais été utilisés à un niveau de flux aussi élevé.

Pour des tensions faibles, les paires électron-ion ont des énergies cinétiques faibles, ce qui favorise leur recombinaison. Lorsque l'énergie cinétique des électrons est assez suffisante pour qu'ils soient tous collectés au niveau de l'anode, la chambre fonctionne en régime dit « régime de saturation » correspondant au régime de fonctionnement d'une chambre à ionisation. Pour des tensions plus élevées, les électrons acquièrent une forte énergie cinétique qui les rendent à leur tour ionisant. Il s'enclenche ainsi un phénomène d'avalanche et le signal électrique n'est plus proportionnel au nombre de fissions générées.

Le régime de saturation est le mode de fonctionnement d'une chambre à fission. C'est dans ce régime où le signal mesuré est proportionnel au taux de fission et par conséquent au flux de neutrons. De ce fait se déduit l'importance de l'utilisation de chambres à fission dans des expériences d'incinération destinées à déterminer quantitativement l'impact de la fission dans la transmutation.

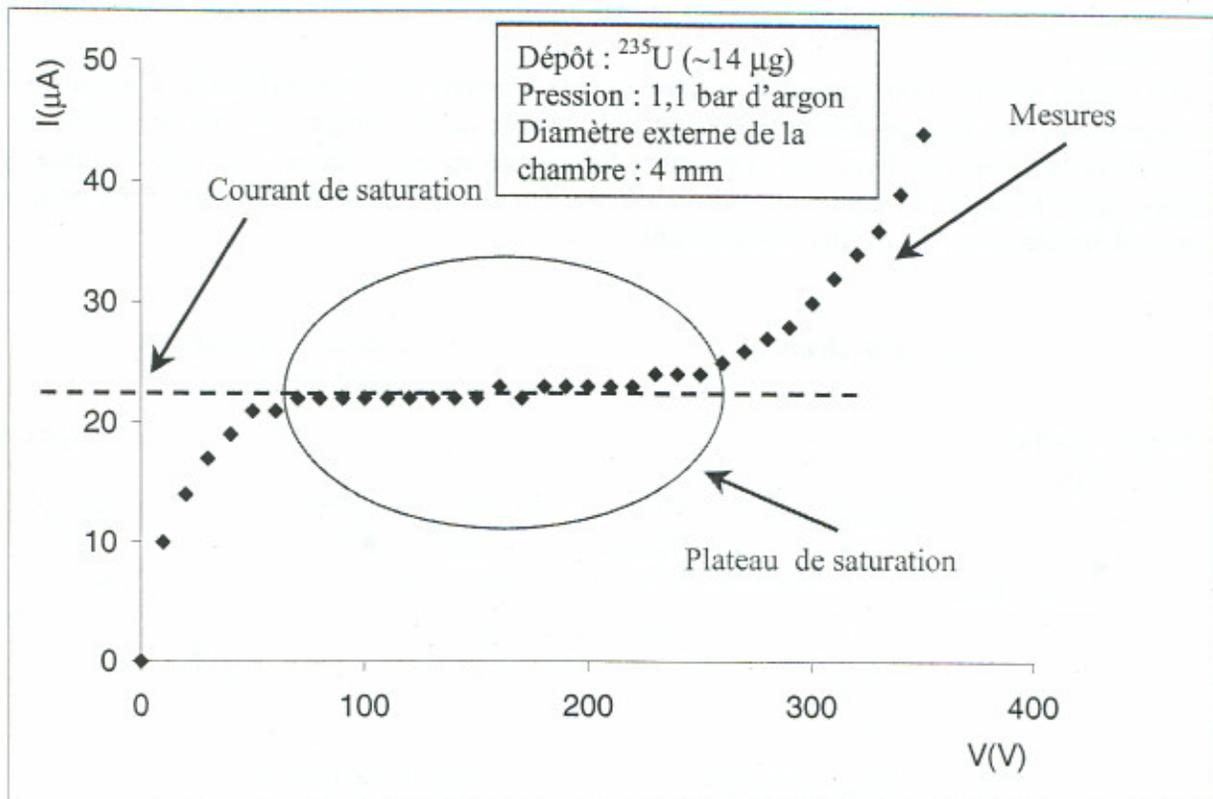


Figure 2.10: Caractéristiques (courant, tension) d'une chambre à fission irradiée dans le canal V4 du réacteur à haut flux de l'ILL à Grenoble en décembre 2001

#### 2.2.4.3. Quelques types de chambres à fission

Les chambres à fission utilisées par Mini-Inca sont des micro-chambres à géométrie cylindrique. Néanmoins, une chambre à fission peut se trouver sous différentes formes selon l'utilisation à laquelle elle est destinée. On en cite à titre d'exemple :

- La chambre-aiguille dont le diamètre est de 1,5 mm pour effectuer généralement des mesures entre les crayons du combustible ou à l'intérieur de l'élément combustible,
- La chambre à fission plate, les électrodes sont sous-forme de disques confinés dans un boîtier cylindrique. Ces chambres sont généralement utilisées pour des mesures de puissance,
- la chambre à fission à haute température pour laquelle le volume du gaz de remplissage est commun à la chambre et à la canne coaxiale, le gaz subit alors des migrations qui dépendent de la répartition de la température. Cette chambre peut fonctionner jusqu'à une température de 850 °C [27].

#### 2.2.5. Applications d'une chambre à fission

- Mesure absolue ou relative de flux de neutrons dans un point d'un réacteur nucléaire. Si la mesure est faite en déplaçant la chambre on obtient une cartographie de flux du réacteur ;
- Mesure d'indice de spectre. Deux chambres est utilisées dans ce cas, une avec un dépôt fissile, l'autre avec un dépôt fertile ;

- Mesure de section efficace de fission, voire d'absorption, en connaissant la masse du dépôt, le spectre de flux et son intensité ;
- Mesure de taux de fission et son évolution en mesurant l'usure de dépôt de la chambre.

Dans Mini-Inca, la chambre à fission est utilisée pour deux objectifs :

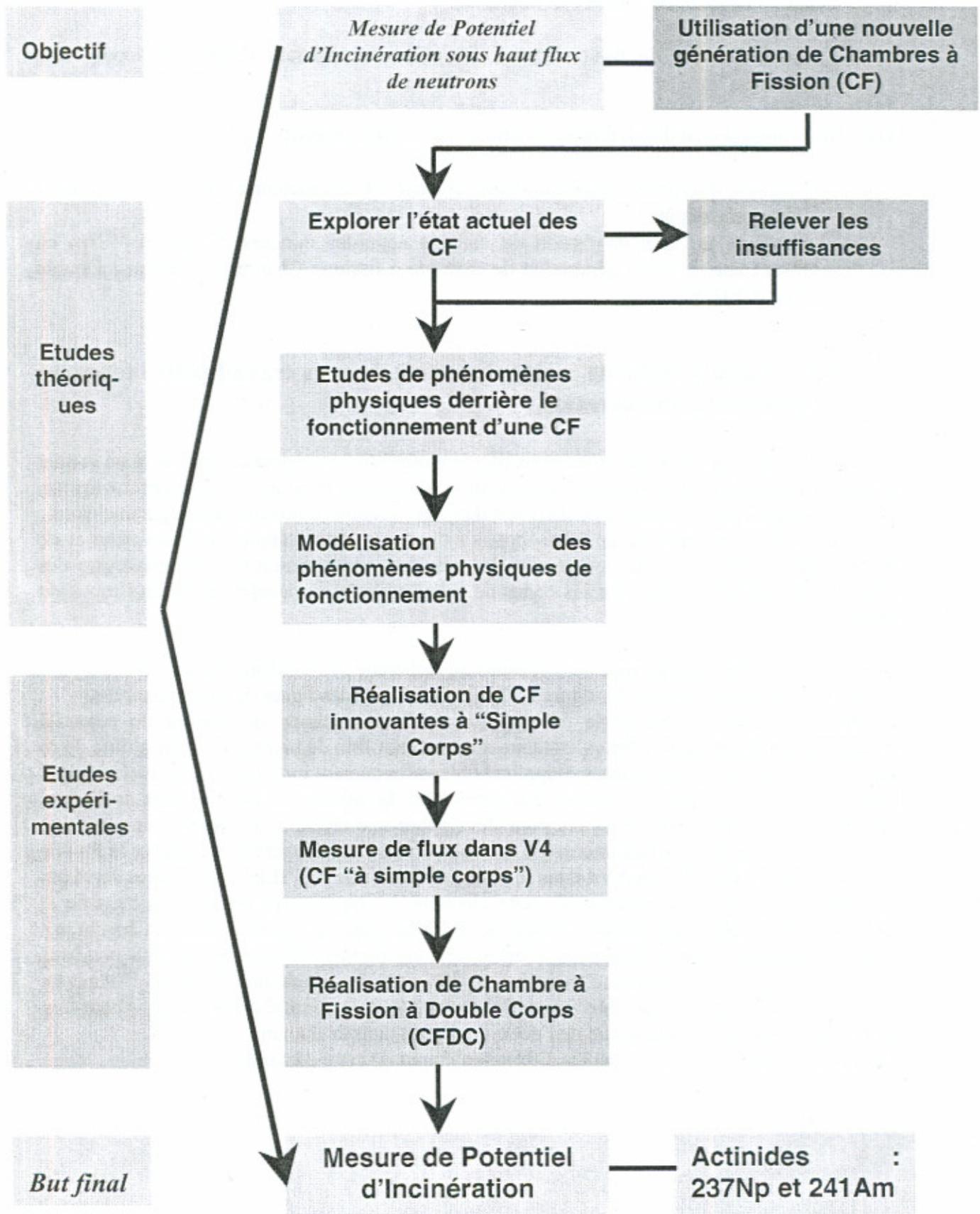
- La mesure de l'intensité de flux dans le canal V4 du réacteur à haut flux en utilisant  $^{235}\text{U}$  comme dépôt ;
- La mesure de taux de fission de certains actinides mineurs ( $^{241}\text{Am}$  et  $^{237}\text{Np}$ ) en utilisant une nouvelle génération de chambre à fission : Chambre à Fission à Double Dépôt (CFDD)<sup>28</sup>.

### **2.3. La démarche de recherche suivie dans ce travail pour la mesure de potentiel d'incinération**

Par sa méthode expérimentale et ses objectifs, le projet Mini-Inca pourra répondre à un certain nombre de questions concernant la transmutation d'actinides mineurs, les données nucléaires, et les conditions neutroniques d'incinération dans les systèmes innovants d'énergie nucléaire. A la méthode expérimentale de Mini-Inca, s'ajoute une série d'études de simulation et de calcul dont l'objectif est de comprendre les résultats expérimentaux et de construire des modèles de validation basés sur les codes de calcul utilisés ou développés selon l'esprit du projet.

C'est dans le cadre général tracé par cet esprit de recherche que la démarche de réflexion dans ce travail a été mise au point. La figure 2.12 montre les grandes lignes de cette démarche. Ce travail a comme objectif le développement d'une méthode de mesure de potentiel d'incinération d'actinides mineurs, notamment sous haut flux de neutrons. La faisabilité de ce genre de mesure et de ses champs d'application sera largement montrée. Après avoir exploré l'état présent des chambres à fission, qui permettent de mesurer en ligne le taux de fission, une étude de modélisation sera faite pour développer une chambre à fission à simple corps fonctionnant sous un flux très intense de neutrons. Cette chambre servira à mesurer le flux de neutrons régnant dans le canal V4 dans le réacteur à haut flux de l'ILL. Ces mesures serviront également pour la caractérisation de cette chambre à simple corps qui sera la base de la nouvelle génération de chambres à fission développées dans ce travail et dites « Chambres à Fission à Double Corps ». Finalement c'est grâce à ces derniers détecteurs que nous pourrons mesurer en ligne le potentiel d'incinération des actinides mineurs :  $^{237}\text{Np}$  et  $^{241}\text{Am}$ . Le potentiel d'incinération mesurable sera défini comme étant le nombre de fission sous haut flux de neutrons créés par noyau initial de l'actinide déposé dans la chambre. Les chapitres suivants illustreront les différentes étapes de cette démarche.

Figure 2.11 : Démarche de recherche suivie dans ce travail



**Partie II :**  
**Mesures du potentiel  
d'incinération :**  
**modélisation théorique et  
développement de détecteurs  
spécifiques**



## Chapitre 3 : Chambre à fission : principe de fonctionnement et sources de perturbation dans un haut flux de neutrons

### 3.1. Détecteurs classiques de neutrons

#### 3.1.1. Chambre à ionisation et compteurs proportionnels

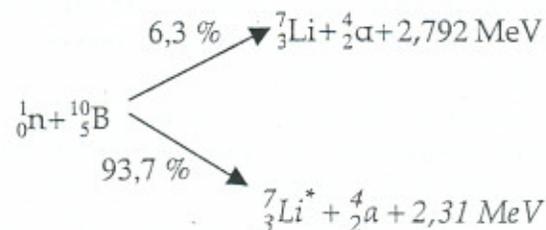
La détection de neutrons se fait classiquement à l'aide de chambres à ionisation ou compteurs proportionnels à dépôt actif, qui est un matériau à forte section efficace de capture de neutrons pour des énergies données. Ce matériau peut également être mélangé avec le gaz de remplissage de telle façon qu'ils constituent un mélange gazeux.

Par réaction nucléaire, des particules chargées sont créées et ionisent le gaz de remplissage en le traversant. Les ionisations créent des paires électrons-ions qui induisent, après leur collection, un signal électrique proportionnel au flux de neutrons incidents.

On peut, d'autre part, collecter directement les particules chargées de la réaction. Les lois cinématiques de la réaction permettent alors facilement de déduire la densité de neutrons cherchée.

Les compteurs les plus utilisés sont à base de bore qui peut être enrichi à plus de 99% en  $^{10}\text{B}$  sous forme d'un mélange gazeux avec le fluor donnant le  $\text{BF}_3$ . D'autres mélanges peuvent être utilisés : l'hydruure de bore  $\text{B}_2\text{H}_6$ , le triméthyl-bore  $\text{B}(\text{CH}_3)_3$  ou le borazole  $\text{B}_6\text{N}_3\text{H}_3$ .

La réaction nucléaire produite sur le bore est la suivante :



Dans 93,7% des cas, la capture sur le  $^{10}\text{B}$  aboutit à un état excité du  $^7\text{Li}$ , qui se désexcite en émettant un photon gamma de 480 keV.

A part la réaction  $^{10}\text{B}(\text{n},\alpha)^7\text{Li}$ , il y a peu de réactions nucléaires exo-énergétiques qui peuvent être utilisées pour la détection de neutrons. Les plus importantes sont :

- $\text{n} + {}^3\text{He} \rightarrow \text{T} + \text{p} + 765 \text{ keV}$
- $\text{n} + {}^6\text{Li} \rightarrow \text{T} + \alpha + 4,78 \text{ MeV}$
- $\text{n} + {}^{14}\text{N} \rightarrow {}^{14}\text{C} + \text{p} + 625 \text{ keV}$

Le bore peut également être utilisé dans une autre application : la chambre à ionisation compensée. En effet, dans un milieu neutronique où les rayonnements gamma sont toujours présents, comme dans le cœur d'un réacteur nucléaire, ceux-ci peuvent influencer sur la mesure de flux photo-ionisation. La chambre à ionisation compensée est conçue pour annuler cette influence. C'est une chambre à dépôt de bore formée de deux parties. L'une de ces parties contient du bore et fournit un courant qui est la somme de la composante due aux neutrons et de la composante due aux gamma. L'autre moitié de la chambre ne contenant pas de bore délivre un courant issu du rayonnement gamma seul. Ce courant est retranché électriquement au précédent.

### 3.1.2. Mesure par activation neutronique

L'une des méthodes les plus répandues actuellement pour la mesure « intégrale » de flux de neutrons est l'analyse par activation neutronique.

Après l'irradiation d'un échantillon dans un milieu neutronique, on mesure l'énergie et la fréquence des gamma émis suite à la décroissance des isotopes produits. On peut remonter ainsi au flux de neutrons dans lequel l'échantillon a été irradié.

Parmi les éléments utilisables pour la détection de neutrons par activation, le sodium  $^{23}\text{Na}$ , le manganèse  $^{55}\text{Mn}$  et l'indium  $^{115}\text{In}$ . Cependant, ils présentent l'inconvénient de produire un élément activé de période radioactive très courte (variant de 54 minutes à 15 heures).

Les éléments largement et fréquemment utilisés sont en particulier :

- Cobalt : l'isotope  $^{60}\text{Co}$  a une période radioactive de 5,27 ans ce qui permet de l'utiliser pour des longues irradiations.
- Or : il présente une section efficace de capture de neutrons thermiques qui est très élevée et bien connue ( $\sigma_c = 98,6$  barn ; l'incertitude est inférieure à 0,1 %). Par contre, l'isotope  $^{198}\text{Au}$  utilisé dans la spectroscopie présente une courte période de décroissance radioactive ( $T_{1/2} = 2,69$  jours).
- Niobium : le  $^{93}\text{Nb}$  se trouve à l'état pur dans la nature. Son produit d'activation, le  $^{94}\text{Nb}$ , possède une période radioactive de l'ordre de  $2,03 \cdot 10^4$  ans. Cela fait du niobium un bon moniteur de flux dans le cas d'une fluence de neutrons très élevée. En effet, la faible activité de l'échantillon empêche la saturation du détecteur utilisé dans la spectroscopie.

D'autres éléments sont également utilisés. On peut citer notamment l'argent, le cuivre, l'aluminium, le fer et le magnésium.

Cette méthode a été utilisée dans le cadre de cette thèse, comme décrit dans la suite, pour caractériser le flux neutronique dans le canal V4.

## 3.2. Chambre à fission

### 3.2.1. Intérêt d'une chambre à fission

Pour le contrôle d'un réacteur nucléaire et pour une meilleure précision dans la mesure du champ neutronique, la chambre à fission reste l'un des meilleurs détecteurs. Elle est en effet plus sensible aux neutrons beaucoup moins sensible aux rayonnements gamma qu'une chambre à ionisation et présente une excellente discrimination neutrons-gamma (notamment dans les modes "impulsion" et "fluctuation"). En plus, elle peut supporter une fluence dépassant  $10^{21}$  n.cm<sup>-2</sup>. Par son volume qui peut être très réduit, la chambre à fission est aussi un détecteur approprié pour des mesures "ponctuelles", comme dans le cas d'un assemblage de crayons de combustible. En effet, une chambre à fission nécessite un volume utile beaucoup plus petit que celui d'une chambre à gaz classique (BF<sub>3</sub>) qui présente un diamètre de plusieurs dizaines de mm. Le diamètre d'une chambre à fission peut être au minimum de 1,5 mm.

La chambre à fission présente aussi l'avantage de détecter les neutrons par le même moyen que ces neutrons ont été créés, à savoir par fission. Cela permet de connaître le taux de fission d'un corps fissile placé dans un milieu multiplicateur.

Par rapport à d'autres procédés s'appuyant sur les réactions (n, α) ou (n, p), la détection par fission présente l'avantage de fournir des signaux électriques plus importants. L'ionisation d'un produit de fission libère plus de charges que celle d'un alpha ou d'un proton. Un gain d'amplification beaucoup plus faible serait suffisant pour traiter les impulsions créées.

### 3.2.2. Parcours de fragments de fission

Un fragment de fission cède son énergie dans l'espace inter-électrodes par interaction avec les électrons des atomes gazeux donnant lieu à des ionisations ou des excitations. Le produit de fission peut également perdre son énergie par chocs contre les noyaux. Cette dernière interaction se produit essentiellement en fin de parcours alors que l'ionisation est surtout importante au début du trajet des fragments de fission.

Par un calcul probabiliste à l'aide du code TRIM[29], dédié au calcul du pouvoir d'arrêt des particules chargées, on estime le pouvoir d'arrêt et le parcours moyen de certains produits de fission dans l'argon à une pression de 1 bar (cf. Tableau 3.1). Le calcul est réalisé pour des énergies de 90 MeV (pour <sup>79</sup>Br et <sup>99</sup>Tc) et 70 MeV (pour <sup>133</sup>I et <sup>149</sup>Sm).

Nous constatons que tous ces différents produits de fission, indépendamment de leur énergie et de leur masse atomique, ont un parcours moyen d'environ 1 cm et un pouvoir d'arrêt de l'ordre de 6 MeV.cm<sup>-1</sup>.

Tableau 3-1 : parcours moyen (R) et pouvoir d'arrêt (dE/dx) de certains produits de fission dans un milieu d'argon à une pression de 1 bar

Produit de fission	<sup>79</sup> Br	<sup>99</sup> Tc	<sup>133</sup> I	<sup>149</sup> Sm
Probabilité d'émission par fission de <sup>235</sup> U (%)	2,03	6,11	6,7	1,08
dE/dx (MeV.mm <sup>-1</sup> )	5,8	6,7	6,1	6,6
R (cm)	1,03	1,05	1,18	1,09

### 3.2.3. Modes de fonctionnement d'une chambre à fission

Il existe trois modes de fonctionnement pour une chambre à fission selon le niveau de flux dans lequel elle est irradiée :

- **Mode "impulsions" :**

Les impulsions sont amplifiées à l'aide d'un amplificateur à large bande passante. A la sortie de l'amplificateur, les impulsions sont discernables les unes des autres. Elles peuvent être discriminées pour être finalement comptées. En effet, on peut soustraire facilement du signal utile les impulsions dues au rayonnement gamma qui sont d'une amplitude beaucoup plus faible. Jusqu'à un flux de  $10^5$  n.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>, une chambre à fission peut fonctionner dans ce mode, dit également « mode comptage ».

- **Mode "fluctuations" :**

A partir d'un certain taux de comptage ( $10^6$  coups/s) il se produit un empilement d'impulsions à la sortie de l'électronique de mesure. Le signal correspondant a les propriétés d'un signal aléatoire. Il est dit « signal de fluctuations ». Il est donc défini par sa variance, sa densité spectrale de puissance et par d'autres moments de degrés supérieurs. Ce mode est valable pour un flux de neutrons variant de  $10^2$  à  $10^{10}$  n.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup> en fonction de la chambre à fission utilisée.

- **Mode "courant" :**

Lorsque les empilements sont tellement importants pour limiter l'étendue de la mesure, un amplificateur à courant continu ayant une bande passante très réduite relaye la mesure en fluctuation. Lorsque le taux de fissions est élevé, la mesure du courant peut être faite directement sans amplification. Ce mode peut être utilisé pour un flux supérieur à  $10^7$  n.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>.

C'est à ce mode de fonctionnement que nous allons nous intéresser dorénavant dans toute l'étude qui va suivre.

### 3.3. Méthodes de mesure en mode courant

#### 3.3.1. Théorème de Campbell

D'une façon générale, le fonctionnement en mode courant de d'une chambre à fission peut utiliser les propriétés du théorème de Campbell. Ce théorème est relatif aux statistiques d'ordre 2 de la réponse aux événements élémentaires distribués suivant une loi de Poisson. Si  $F$  est la fréquence moyenne d'arrivée des événements,  $S$  la sensibilité du détecteur et  $h(t)$  sa réponse impulsionnelle, le courant  $I$  à la sortie de l'étage amplificateur vérifie alors la relation suivante :

$$I = F \times S \times \int_0^{+\infty} h(t) dt$$

Dans le cas où l'étage amplificateur est supprimé, la relation s'écrit :  $I = F \times S$  où  $\int_0^{+\infty} h(t) dt = 1$ .

Pour un environnement neutronique, la fréquence est tout simplement le flux moyen de neutrons au point de mesure ( $\Phi$ ), ce qui permet d'écrire :  $I = \Phi \times S$ .

Pour appliquer le théorème de Campbell à la détection par une chambre à fission, il faut montrer que celle-ci observe l'arrivée de neutrons, et par conséquent les fissions créées, selon une loi de Poisson.

#### 3.3.2. Mesures relative et absolue avec une chambre à fission

##### 3.3.2.1. Mesure sous faible flux de neutrons : cas classique

Un produit de fission émis dans l'espace inter-électrodes ne cède pas toute son énergie dans la chambre. En effet, la perte d'énergie d'un fragment de fission varie de 0 à l'énergie maximale qui est son énergie cinétique totale. C'est pourquoi il est nécessaire, pour une mesure absolue de flux ou de la section efficace de fission, de déterminer l'efficacité du détecteur. Cette efficacité est définie comme étant le rapport du taux de charges collectées par le taux de fission.

Bruno Rossi et Hans Staub[30] ont développé un calcul de l'efficacité des détecteurs à fission. Si l'on applique ce calcul au cas d'une géométrie cylindrique, on montre que l'efficacité peut être exprimée ainsi :

$$\varepsilon(E) = \left\{ 1 - \frac{e}{2(R_0 - R(E))} \right\} \times \left( 1 - \frac{R'(E)}{4d} \right)$$

où :

- $\varepsilon$  : efficacité de la chambre à fission,
- $e$  : épaisseur du dépôt fissile,
- $R_0$  : parcours moyen d'un produit de fission dans le matériau fissile,
- $R(E)$  : parcours d'un produit de fission à l'énergie  $E$  dans le matériau fissile,
- $R'(E)$  : parcours nécessaire du produit de fission dans le gaz pour créer une ionisation,
- $d$  : distance inter-électrode.

Comme le montre cette formule, la détermination de l'efficacité d'une chambre à fission représente un vrai handicap pour l'utilisation de celle-ci pour des mesures absolues. L'impossibilité de déterminer expérimentalement cette efficacité a rendu la chambre à fission efficace seulement dans le cas de mesures relatives.

La mesure en relatif consiste à calibrer la chambre dans un spectre donné de neutrons à intensité bien connue. De cette calibration, on détermine la sensibilité de la chambre définie comme étant le rapport du courant de saturation  $I$  délivré par la chambre par la valeur absolue du flux  $\Phi$ . La sensibilité ( $S = I/\Phi$ ) est donnée en ampère par unité de flux. Elle caractérise la chambre à fission tant que la fluence de neutrons ( $\Phi \cdot t$ : nombre de neutrons par unité de surface) reste faible, telle que l'usure du dépôt fissile peut être négligeable.

### 3.3.2.2. Mesure sous haut flux de neutrons

Dans les conditions d'un flux de neutrons intense, la consommation du dépôt fissile est importante. La détermination de cette consommation, par la mesure régulière du signal délivré par la chambre à fission durant l'irradiation, permet de déduire l'intensité du flux neutronique. Cette méthode n'est applicable que si :

- le spectre de neutrons est invariable durant l'irradiation,
- l'intensité de flux est constante durant toute la période d'acquisition,
- la section efficace d'absorption de l'isotope fissile intégrée sur le spectre neutronique est bien connue.

Pour déterminer, en plus, le taux de fission, il est nécessaire de connaître exactement la masse initiale du dépôt fissile.

Dans un flux  $\Phi$ , la variation du nombre de noyaux  $N$  du dépôt fissile, dans l'absence d'effets secondaires tels que la perte de masse et l'auto-absorption, suit la loi suivante :

$$\frac{dN}{dt} = -\sigma_a \Phi N - \lambda N$$

où  $\sigma_a$  est la section efficace d'absorption de l'élément fissile et  $\lambda$  sa constante de désintégration. Lorsque le corps fissile a une période radioactive relativement longue, le second terme devient négligeable. Dans le cas de l'isotope  $^{235}\text{U}$  dans un flux thermique de  $10^{15}$  n.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>, le rapport  $\lambda/\sigma_a \Phi$  est de l'ordre de  $10^{-7}$ .

Le courant électrique  $I$  délivré par la chambre étant proportionnel à  $N$ , on peut alors écrire :

$$\frac{dI}{I} \cong -\sigma_a \Phi dt$$

En définitive, la mesure du courant de saturation en fonction du temps permet de déterminer la pente  $\sigma_a \Phi$  et la connaissance de la section efficace d'absorption du corps fissile, intégrée sur le spectre neutronique, permet d'en déduire le flux de neutrons (cf. chapitre 8).

### 3.3.2.3. Mesure de taux de fission

Le flux étant mesuré, la connaissance de la masse initiale  $m_0$  du dépôt permet la détermination du taux de fission  $R_f$  (si la section efficace de fission  $\sigma_f$  est bien connue) :

$$R_f(t) = N_{av} \times \frac{m_0}{M} \times \Phi \times \sigma_f \times e^{-\sigma_a \Phi t}$$

où  $N_{av}$  est le nombre d'Avogadro et  $M$  la masse molaire de l'élément fissile.

Cette méthode est applicable dans le cas où le dépôt fissile est mono-isotopique ou dans le cas où il peut être considéré comme tel. C'est le cas de chambres à fission irradiées dans le cadre de ce travail (dépôt d'uranium enrichi à 98,5 % en  $^{235}\text{U}$ ).

## 3.4. Sensibilité d'une chambre à fission au spectre de neutrons

Les mesures effectuées à l'aide d'une chambre à fission sont fortement sensibles à la distribution énergétique de neutrons. La figure 3.1 montre l'évolution de la sensibilité d'une chambre à fission avec l'indice de spectre  $\Phi(0,1\text{eV})/\Phi(1\text{ MeV})$ . La chambre concernée possède un diamètre externe de 4 mm (cf. figure 2.10 du chapitre 5), un rayon cathodique interne de 1,75 mm un rayon anodique de 1,25 mm. La chambre est remplie d'argon à une pression de 1 bar. Le dépôt actif est constitué de 20  $\mu\text{g}$  d' $^{235}\text{U}$ . Cette chambre constituera notre détecteur de référence dans ce chapitre.

Le courant délivré par la chambre est estimé à l'aide d'une modélisation qui sera l'objet du chapitre 4.

On constate que la sensibilité de la chambre augmente considérablement avec l'indice spectral dans la zone correspondant aux neutrons rapides. Cela est dû aux fortes résonances de l' $^{235}\text{U}$  dans la région épithermique.

Au-delà d'un indice d'environ 150, la sensibilité varie très lentement et devient quasi-constante. La composante rapide est trop faible pour que les résonances influent sur la valeur de la section efficace moyenne de fission (cf. figure 3.2). La contribution de la composante rapide du spectre dans le courant délivré par cette chambre à uranium 235 est très négligeable devant celle des neutrons thermiques.

On peut conclure qu'une chambre à  $^{235}\text{U}$  calibrée dans un champ de neutrons caractérisé par un indice  $\Phi(0,1\text{eV})/\Phi(1\text{ MeV}) = 150$  peut être utilisée avec la même sensibilité de calibration dans n'importe quel spectre à indice supérieur. Cet indice dépend évidemment de la nature du dépôt actif.

En conclusion, cela montre que la chambre à fission calibrée dans cette étude peut être utilisée dans d'autres applications satisfaisant cette exigence spectrale.

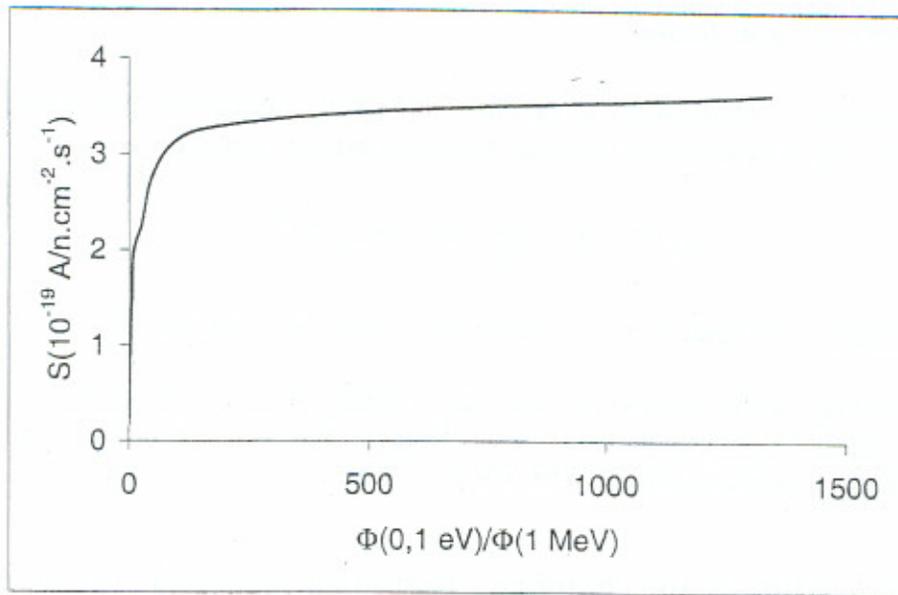


Figure 3.1 : Exemple d'évolution de la sensibilité d'une chambre à  $^{235}\text{U}$  en fonction du spectre neutronique

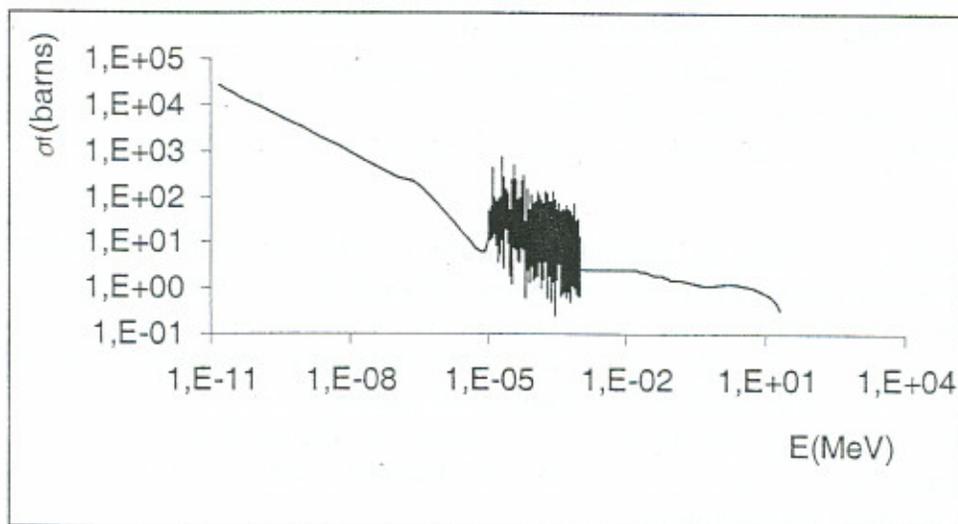


Figure 3.2 : Section efficace de fission de l' $^{235}\text{U}$  à une température de 300 °K  
(réf : bibliothèque JENDL-3.2)

### 3.5. Perturbation des mesures avec une chambre à fission

#### 3.5.1. Perturbations dues à la chambre elle-même

L'introduction d'une chambre à fission dans une région du cœur du réacteur est susceptible d'induire des perturbations locales sur le spectre de neutrons. Cela revient au fait d'introduire de la matière en général, donc une perturbation du bilan matière, et fissile en particulier.

L'ampleur de la perturbation de la chambre peut se mesurer également par son influence sur la réactivité du cœur du réacteur. Pour cela, on peut calculer, voire mesurer, la réactivité « due » à la chambre à fission. Cela déterminera la perturbation globale induite par la chambre.

##### 3.5.1.1. Perturbation locale

Dans ce paragraphe, on présente le résultat du calcul du spectre dans la partie basse du canal V4 du RHF avant et après avoir introduit la chambre à fission.

On considère que le milieu est homogène et qu'il est caractérisé par :

1. sa section efficace d'absorption  $\Sigma_a(v)$ , où  $v$  est la vitesse du neutron,
2. ses sections efficaces de transfert  $\Sigma_s(v \rightarrow v')$  et de diffusion  $\Sigma_s(v) = \int_0^\infty \Sigma_s(v \rightarrow v') dv'$ ,
3. sa section efficace totale  $\Sigma_t(v) = \Sigma_a(v) + \Sigma_s(v)$ ,
4. sa section efficace de production  $\nu \Sigma_f(v)$ ,
5. le spectre de fission  $\chi(v)$  normalisé :  $\int_0^\infty \chi(v) dv = 1$ .

En appliquant la théorie de perturbation à l'équation de Boltzmann qui peut s'écrire sous la forme :  $H\Phi + S = \frac{1}{v} \frac{\partial \Phi}{\partial t}$ , on peut calculer le flux résultant d'un neutron placé au point  $r_0$ , à la vitesse  $v_0$ , dans la direction  $\Omega_0$  et à l'instant  $t_0$ . Cette présence de neutron peut se représenter par le terme "source" :  $S = \delta(\vec{r} - \vec{r}_0) \times \delta(v - v_0) \times \delta(\vec{\Omega} - \vec{\Omega}_0) \times \delta(t - t_0)$  qui ne sera rien d'autre que la chambre à fission elle-même<sup>31</sup>.

On montre (voir détails de calculs dans l'annexe 1) que le flux après l'introduction de la chambre est donné par :

$$\varphi(\vec{r}, v, \vec{\Omega}, t) = \Phi^+(\vec{r}_0, v_0, \vec{\Omega}_0) \times \Phi(\vec{r}, v, \vec{\Omega}) \times e^{-\mu_0(t-t_0)}$$

$\mu_0$  étant la valeur propre de l'état fondamental de l'opérateur thermalisation :

$$H\Phi = \int_0^\infty \Sigma_s(E', E) \Phi(E') dE' - \Phi(E) \int_0^E \Sigma_s(E, E') dE'$$

$\Phi$  étant le flux fondamental régnant au point de mesure sans aucune perturbation (avant l'introduction de la chambre), il est solution de  $H\Phi = 0$ ,

$\Phi^+$  est le flux adjoint du flux fondamental  $\Phi$ . Il est la solution de l'opérateur adjoint de thermalisation :  $H^+ \Phi^+ = 0$ .

On définit le flux adjoint comme étant le nombre qui, multiplié par le flux  $\Phi(r,v,\Omega)$  régnant dans un réacteur critique, donnera le flux résultant asymptotiquement d'un neutron placé au point  $\vec{r}_0$ , à la vitesse  $v_0$ , dans la direction  $\vec{\Omega}_0$ .

Puisque le réacteur est critique, la valeur propre  $\mu_0$  de l'état fondamental est nulle. Finalement, le flux régnant dans la région de mesure après introduction de la chambre à fission est donné par :

$$\tilde{\Phi}(\vec{r},v,\vec{\Omega}) = \Phi^+(\vec{r}_0,v_0,\vec{\Omega}_0) \times \Phi(\vec{r},v,\vec{\Omega})$$

Les calculs de modélisation, à l'aide notamment du logiciel MCNP (cf. figures 3.3 et 3.4) montrent que l'influence locale de la chambre à fission, autant sur le spectre que sur la valeur absolue de flux, est extrêmement faible. Le flux adjoint est encore plus élevé pour les neutrons rapides que pour les neutrons thermiques (cf. fig. 3.4 et Tableau 3.1). Cela peut s'expliquer par la forme intrinsèque du "spectre de fission" de la chambre à fission. En effet, le dépôt fissile de la chambre est une source de neutrons rapides puisque les neutrons issus de la fission suivent un spectre maxwellien d'une énergie moyenne de 2 MeV. Le pic qu'on observe pour une énergie de 10 MeV pourrait être dû à des fluctuations numériques.

En conclusion, la perturbation induite par l'introduction de la chambre à fission sur le spectre neutronique régnant dans le canal V4 est très faible.

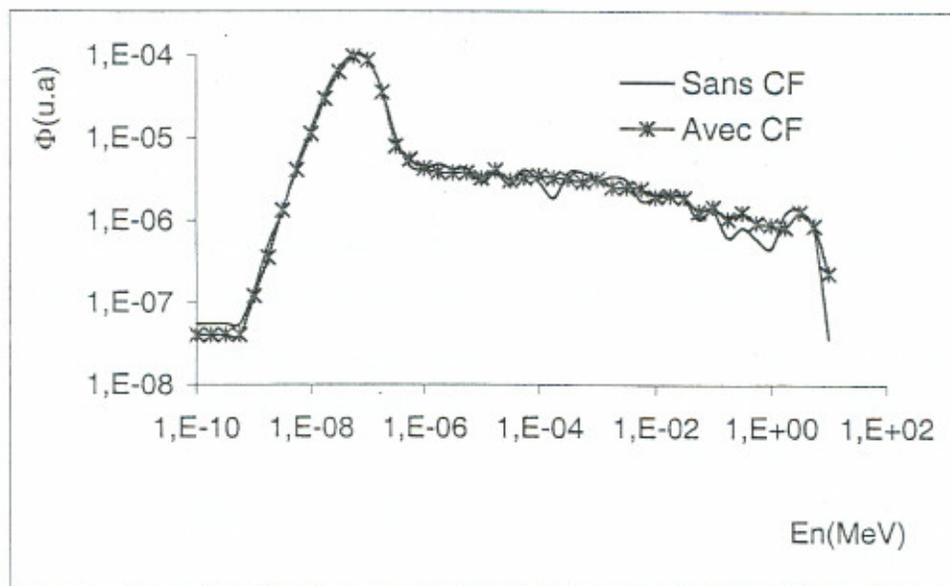


Figure 3.3 : Spectre de neutrons dans le canal V4 du RHF calculé avec et sans chambre à fission (CF)

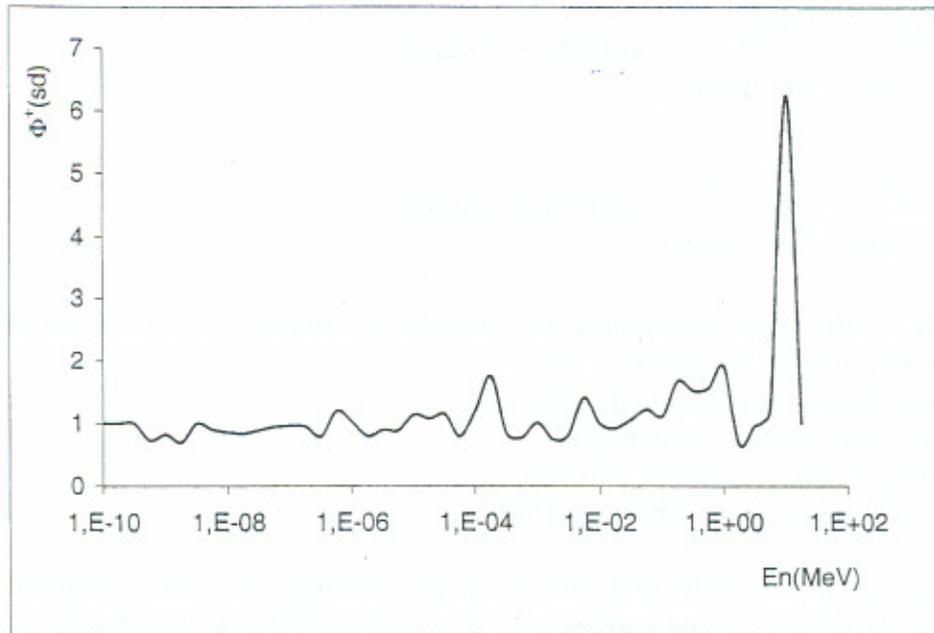


Figure 3.4 : Flux adjoint de la chambre à fission (sans dimension)

Tableau 3.1 : Flux adjoint moyen pour différents groupes d'énergie du neutron

	En < 0,1 eV	0,1 eV < En < 100 keV	En > 100 keV
$\langle \Phi^+ \rangle$	0,89	1,02	1,33

### 3.5.1.2. Perturbation globale

La théorie des perturbation prévoit que toute perturbation locale de réactivité induit directement une perturbation sur la réactivité totale du cœur.

La réactivité d'un matériau est définie comme étant son potentiel d'absorption ou de production de neutrons dans un réacteur. Quantitativement ce potentiel se traduit par l'écart induit sur le facteur de multiplication neutronique.

$$\delta\rho = (\delta\rho)_{cf} \times W,$$

$$W = \frac{\int_{cf} \Phi^2 d^3r}{\int_{Réacteur} \Phi^2 d^3r}$$

Intégration sur le volume de la chambre à fission.

Intégration sur le combustible du réacteur

- $\delta\rho$  : perturbation de la réactivité totale dans le cœur,
- $(\delta\rho)_{cf}$  : perturbation locale due à la chambre à fission,
- W : poids statique neutronique,
- cf : chambre à fission.

Le calcul détaillé de la perturbation cinétique appliquée à la chambre à fission induite dans une région du cœur permet de déterminer la variation de la réactivité de ce dernier :

déterminant d'une matrice carrée

$$(\delta\rho)_{cf} = \frac{1}{K_\infty} \times \frac{\Phi_{cf}}{\Phi_u} \begin{vmatrix} K_{sp} & \frac{mAl_{cf}}{mu_{comb}} \\ K_i & \frac{mu_{cf}}{mu_{comb}} \end{vmatrix}$$

Équation 3.1

$$K_i = \frac{M_{Al}}{M_{u\_comb}} \frac{\sigma_{a_{Al}}}{\sigma_{a_{u\_comb}}} : \text{coefficient de danger,}$$

$$K_{sp} = \frac{\sigma_{f\_cf}}{\sigma_{f\_comb}} - \frac{\sigma_{a\_cf}}{\sigma_{a\_comb}} : \text{coefficient spectral.}$$

$K_\infty$  : facteur de multiplication neutronique sans prendre en compte la fuite de neutrons,

$\Phi_{cf}$  : flux moyen autour de la chambre à fission,

$\Phi_u$  : flux moyen dans le combustible du réacteur,

$m_{u\_comb}$  : masse fissile dans le combustible,

$m_{u\_cf}$  : masse fissile dans la chambre à fission,

$m_{Al\_cf}$  : masse non fissile dans la chambre à fission.

La perturbation de la réactivité peut être également mesurée. En effet, l'introduction du dispositif de la chambre à fission conduit à un déplacement léger de la barre de contrôle du réacteur. La barre étant déjà calibrée, son déplacement est converti en réactivité ou anti-réactivité selon que la perturbation soit positive ou négative (positive si la barre se retire et négative si elle s'enfonce encore plus dans le réacteur pour compenser l'apport neutronique de la chambre).

Le calcul et la mesure donnent quasiment la même valeur de perturbation (cf. Tableau 3.2). On en déduit que la perturbation induite par la chambre est très faible (le combustible présente une réactivité potentielle de plus de 14 000 pcm, 1 pcm = 10<sup>-5</sup>).

La variation de la réactivité est positive, donc le dispositif introduit absorbe plus de neutrons qu'il n'en produit. L'effet de la matière fissile de la chambre à fission est donc négligeable. C'est le dispositif accompagnant la chambre (présentant en total une masse de 2,4 kg d'aluminium) qui est essentiellement responsable de la perturbation globalement induite. Finalement, cette dernière perturbation reste également très faible.

**Tableau 3.2 : Variation de la réactivité en pcm du au dispositif de quatre chambres à fissions à simple corps**

Mesurée grâce à la barre de contrôle du RHF	Calculée grâce avec l'équation 3.1	Rapport mesure/calcul (%)
35,5	33,7	5

### 3.5.2. Perturbations à caractère « externe » à la chambre à fission

#### 3.5.2.1. Effets des rayonnements gammas

Le rayonnement gamma, dans le domaine d'énergie qui nous intéresse, autrement dit autour de quelques MeV, est une source d'ionisation du gaz dans la chambre à fission. On parle dans ce cas de « photo-ionisation ».

### *3521a Processus d'interaction des rayonnements gammas*

Trois principaux processus expliquent cette photo-ionisation :

**L'effet Compton** : C'est un effet de diffusion des photons incidents. Il concerne l'interaction avec les électrons libres, ou très faiblement liés, durant laquelle un photon gamma cède une partie de son énergie à l'électron. Cet effet est prépondérant pour les corps de numéro atomique élevé lorsque le rayonnement gamma a une énergie comprise entre 1 et 5 MeV. Pour les numéros atomiques faibles la probabilité d'interaction Compton concerne un domaine d'énergie de rayonnements gammas beaucoup plus large, allant de 0,1 à 15 MeV.

**L'effet photoélectrique** : Cet effet se produit par une absorption totale du photon gamma. En effet le photon cède entièrement son énergie à l'électron. D'autre part, plus ce dernier est lié à l'atome plus la probabilité de subir un effet photoélectrique est importante. Ce sont en général les noyaux lourds qui sont concernés par cet effet et encore plus les électrons de la couche K. Cet effet prédomine pour des rayonnements gammas à faible énergie et pour des numéros atomiques élevés.

**L'effet de matérialisation** : Lorsque l'énergie d'un photon gamma dépasse un seuil égal à deux fois l'énergie de l'électron au repos (soit 1,02 MeV) il peut créer un effet dit « effet de matérialisation ou de production de paires ». Dans ce cas, le photon absorbé donne naissance à une paire « électron , anti-électron » qui se partagent, d'une façon égale, l'excédent de l'énergie du gamma en énergie cinétique. Cette création de paire a généralement lieu à proximité du noyau ou plus rarement d'un électron atomique. Dans ce cas, ce dernier emporte une fraction de l'énergie en excès. Il s'agit alors d'un triplet.

### *3521b Effet de la photo-ionisation*

Les rayonnements  $\gamma$  émis possèdent une énergie qui ne dépasse guère 2 MeV. Par conséquent, on estime que c'est l'effet Compton qui prédomine.

Un électron projeté par effet Compton a en moyenne une énergie variant de 0,5 à 1 MeV. Ils ionisent le gaz sur leur parcours en créant en moyenne de 6 à 12 paires d'ions dans 1 mm parcouru dans l'argon à une pression de 1 bar. Ces électrons sont collectés de la même façon que ceux ayant comme origine les produits de fission. Cependant le nombre de paires ainsi créées reste extrêmement faible devant celui créé par un produit de fission ayant une énergie cinétique de 80 MeV en moyenne. Celui-ci génère environ, dans les mêmes conditions, environ  $3 \cdot 10^5$  paires d'ions dans 1 mm de parcours, soit un pouvoir d'ionisation  $10^5$  fois environ plus important que celui d'un gamma.

### *3521c Spectre de rayonnements gammas en bas du canal V4*

Par un calcul MCNP, on peut estimer le flux de photons  $\gamma$  dans le canal V4 (cf. figure 3.5). La source principale des rayonnements gamma est constituée des gamma prompts de fission provenant du combustible du réacteur. Les gamma prompts et retardés de la fission du dépôt fissile ainsi que ceux de la décroissance de produits de fissions contribuent eux aussi à cet effet de perturbation mais ils sont négligeables.

La valeur totale du flux  $\gamma$  atteint  $10^{15} \gamma \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ , soit l'équivalent, du point de vue création de paires, d'un flux de neutrons de  $10^{10} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ . Cela montre encore une fois que la perturbation de la photo-ionisation reste faible puisque le flux de neutrons dans la position basse du canal V4 atteint  $2 \cdot 10^{15} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ .

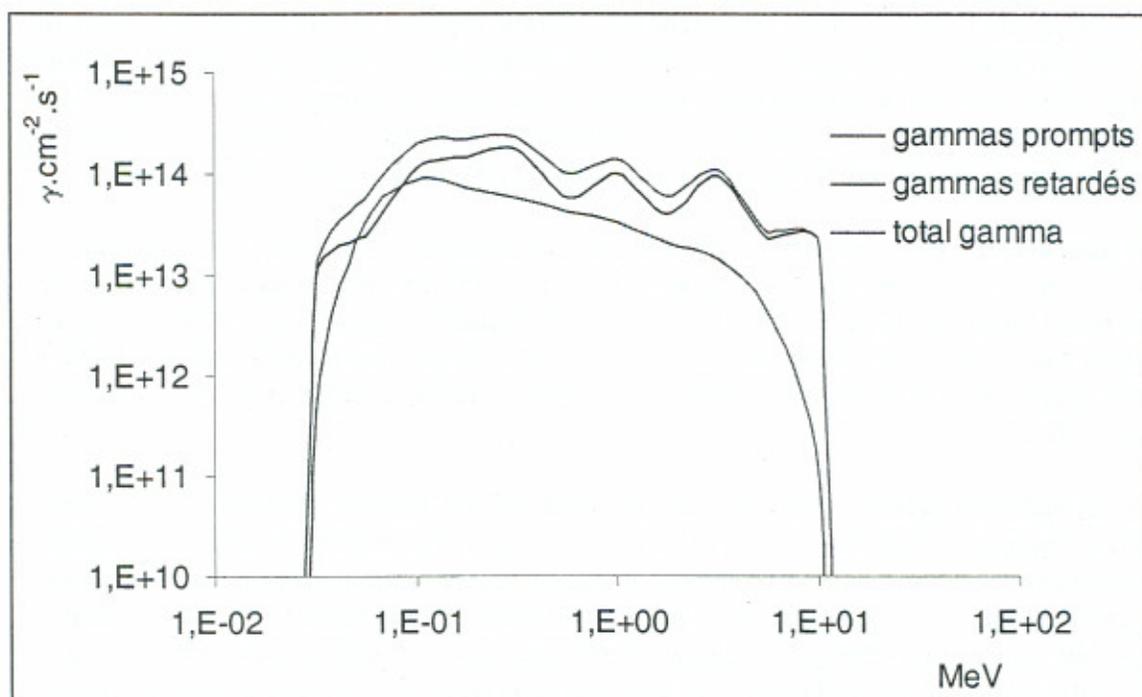


Figure 3.5 : Caractéristiques spectrales du flux gamma en bas du tube V4 du RHF calculées par MCNP

### 3.5.2.2. Effets des particules alpha

On considère une masse de 20  $\mu\text{g}$  d'uranium avec la composition suivante :

- $^{234}\text{U}$  : 0,063 %
- $^{235}\text{U}$  : 98,49 %
- $^{236}\text{U}$  : 0,038 %
- $^{238}\text{U}$  : 1,49 %

Pour cette masse d'uranium, le nombre de particules  $\alpha$  émises par seconde par chaque isotope est :

- $^{234}\text{U}$  : 2,9
- $^{235}\text{U}$  : 1,58
- $^{236}\text{U}$  : 0,0086
- $^{238}\text{U}$  : 0,0037

soit au total environ  $4,5 \alpha \cdot \text{s}^{-1}$ . Ce nombre est à comparer avec  $1,7 \cdot 10^{10}$  fragments de fission créés par seconde dans un flux de  $2 \cdot 10^{15} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ . Les émissions alpha n'ont pratiquement aucune influence sur le courant mesuré dans ces conditions par la chambre à fission.

Si une particule  $\alpha$  d'énergie cinétique moyenne  $T$  traverse une cible d'argon d'épaisseur  $e$  et de densité  $N$ , elle perd une énergie qui peut s'exprimer asymptotiquement ainsi :

$$\Delta T_a = \frac{3,478 \cdot 10^{-20}}{T_a} \ln \left( \frac{5,489 \cdot 10^{-4} \cdot T_a}{I} \right) N.e$$

I étant le potentiel d'ionisation de l'argon.

On peut ainsi estimer le courant dû aux particules alpha dans la chambre à fission à dépôt d'uranium 235 (cf. figure 3.6). Ce courant est calculé en fonction du temps d'irradiation de la chambre. En effet l'évolution du dépôt fissile conduit à l'apparition d'autres actinides qui sont de forts émetteurs  $\alpha$ , notamment les  $^{239}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Pu}$  provenant de l'activation de l' $^{238}\text{U}$  présent dans la composition initiale du lot d'uranium. Le courant ne cesse pas d'augmenter mais il reste toujours faible et négligeable devant un courant de neutrons estimé à 1 mA environ.

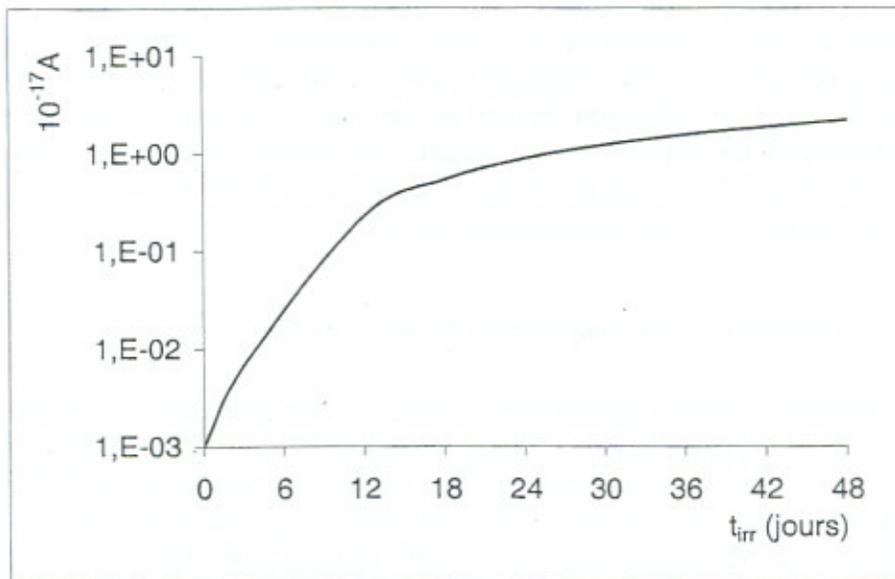


Figure 3.6 : Composante due aux alpha dans le courant délivré par la chambre à fission (~ 20  $\mu\text{g d}^{235}\text{U}$ )

### 3.5.2.3. Effet de la pollution du gaz de remplissage durant l'irradiation

L'un des effets susceptibles d'être gênant dans la mesure à l'aide d'une chambre à fission est la pollution du gaz de remplissage. Cela est notamment dû à deux effets :

- activation du gaz de remplissage (ici de l'argon),
- formation de produits de fissions qui sont dans l'état gazeux.

Ces deux effets ont comme conséquence immédiate une modification, même si elle est légère, des propriétés du gaz. Cela se traduit par une modification des mobilités des ions et des électrons dans le gaz.

Pour une masse d' $^{235}\text{U}$  de 20  $\mu\text{g}$ , on peut calculer la densité de produits de fission gazeux dans la chambre à fission. Avec le code CINDER[32], on trouve qu'elle est de l'ordre de  $7,9 \cdot 10^{-5} \text{ g.cm}^{-3}$ , soit environ 0,04 % de la densité de l'argon et cela pour une durée d'irradiation de 50 jours dans un flux de  $2 \cdot 10^{15} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ . Cela reste effectivement négligeable mais il peut avoir des conséquences sur le champ électrique régnant dans la chambre.

Comme le libre parcours moyen des électrons décroît rapidement lorsque l'énergie d'agitation croît et que celle-ci croît avec la densité du gaz, la vitesse de transit des électrons finit par

décroître. En effet, cette dernière est directement proportionnelle au libre parcours moyen et inversement proportionnelle à la racine carrée de l'énergie d'agitation :

$$\vec{w} = \frac{e}{m} \frac{\lambda}{u} \vec{E}$$

où :  $w$  : vitesse de transit des électrons,  
 $e$  : charge élémentaire de l'électron,  
 $m$  : masse de l'électron,  
 $\lambda$  : libre parcours moyen,  
 $u$  : racine carrée de la moyenne de l'énergie d'agitation,  
 $E$  : champ électrique.

Pour une chambre à fission fonctionnant en mode « impulsions », la décroissance de la vitesse des charges aura comme effet une diminution dans la dynamique de comptage du fait de l'augmentation du temps de collection. En mode « courant », cet effet reste absent puisqu'il s'agit d'une intégration des impulsions de courant. Néanmoins, un effet secondaire apparaît sous forme de distorsion du champ électrique. Cela peut également conduire à l'apparition d'un régime « transitoire » du courant électrique délivré.

#### 3.5.2.4. Effet de l'évolution de la composition du dépôt fissile

Les actinides mineurs fissiles apparaissant durant l'irradiation de la chambre peuvent constituer une source de perturbation. L'uranium considéré dans notre étude comme dépôt actif contient 1,5 % d' $^{238}\text{U}$ . L'activation de l' $^{238}\text{U}$  conduit à la formation de  $^{239}\text{Pu}$  et de  $^{241}\text{Pu}$  qui contribuent également, par leur fission, à l'ionisation du gaz de remplissage. Néanmoins, cette contribution reste très faible jusqu'à un mois d'irradiation. En effet, après 30 jours d'irradiation de la chambre dans V4, le courant dû à tous les actinides, autres que l' $^{235}\text{U}$ , est inférieur à 1 % du courant total (cf. figure 3.7). Cette contribution atteint environ 3,5 % après 45 jours d'irradiation, ce qui représente une source d'erreur non négligeable lorsqu'il s'agit de déterminer le taux de fission de l' $^{235}\text{U}$ . Ces calculs ont été réalisés avec le code MCNP [33] (calcul des spectres neutroniques et de sections efficaces moyennées) et avec le code d'évolution CINDER (détermination de la composition isotopique de dépôt au cours de l'irradiation).

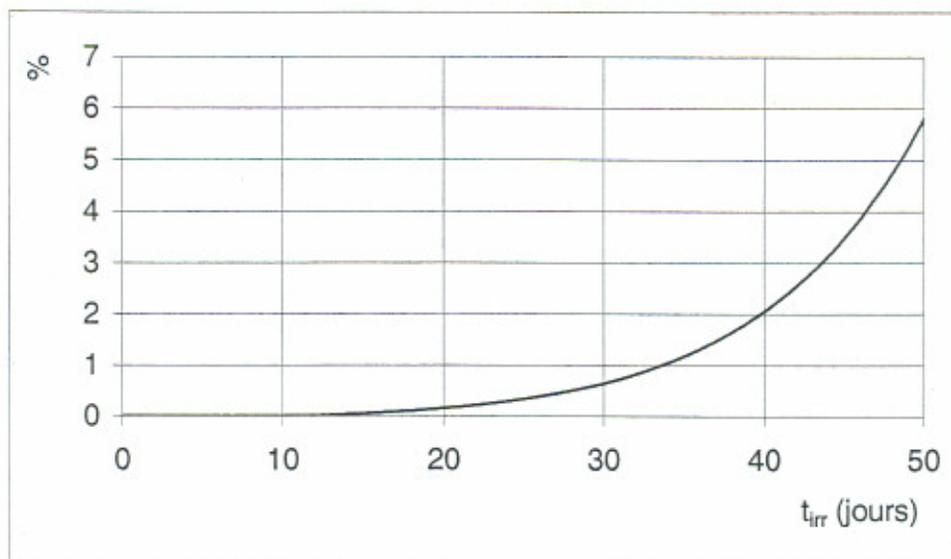


Figure 3.7 : Contribution en % des actinides, à l'exception de l' $^{235}\text{U}$ , au courant total délivré par la chambre à fission étudiée dans le canal V4 du RHF

En conclusion, les perturbations importantes susceptibles d'influer sur le fonctionnement de la chambre à fission sous haut flux de neutrons ou d'induire des sources d'erreurs dans l'analyse des résultats sont la pollution du gaz de remplissage sous irradiation et surtout l'évolution isotopique du dépôt fissile. L'effet de la photo-ionisation comme source de perturbation peut être déterminé en utilisant une chambre à fission sans dépôt irradiée dans les mêmes conditions que la chambre à dépôt fissile. L'effet des particules alpha sur le courant délivré par la chambre ou l'effet de la chambre elle-même sur la perturbation locale du spectre neutronique restent très négligeables.



## Chapitre 4 : Formalisme mathématique du régime de saturation d'une chambre à fission

### 4.1. Introduction

Pour mesurer correctement le taux de fission à l'aide d'une chambre à fission il faut s'assurer de son bon fonctionnement en régime de saturation, (cf. figure 2.11 du chapitre 2). En dehors de ce régime, le courant mesuré n'est pas proportionnel au nombre de fissions créées.

Contrairement à des flux relativement faibles ou moyennes ( $< 10^{14} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ), on n'a aucun retour d'expérience en ce qui concerne le fonctionnement de chambres à fission sous un flux de neutrons très intense ( $> 10^{15} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ).

La problématique posée dans ce chapitre est ainsi définie : « Comment concevoir une chambre à fission qui peut fonctionner en régime de saturation sous un flux de neutrons dépassant  $10^{15} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$  ».

### 4.2. Hypothèses de calcul

Considérons  $N_0$  le nombre de paires ions créées par unité de temps et par unité de volume dans une chambre à fission ayant une géométrie cylindrique ( $r_c$  : rayon extérieur de la cathode et  $r_a$  : rayon interne de l'anode, cf. figure 4.1). Soient  $n^+$  et  $n^-$  respectivement les densités de porteurs des charges positifs (ions) et négatifs (électrons) et  $w^+$  et  $w^-$  leur vitesse respective.

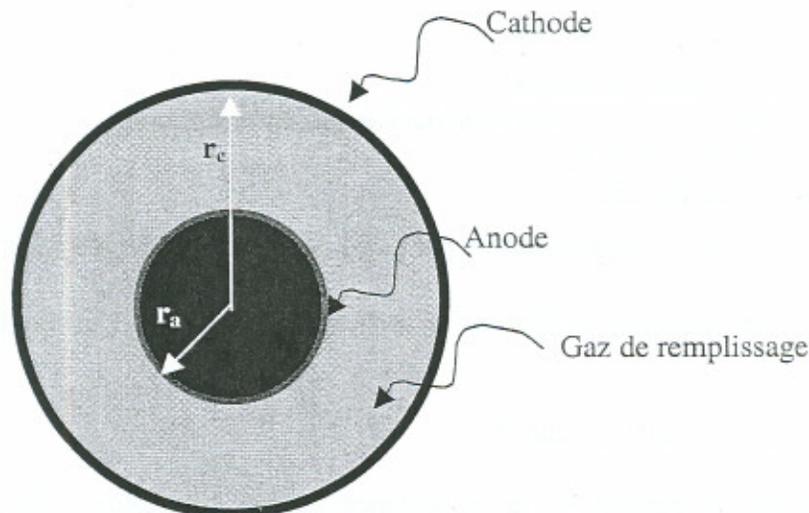


Figure 4.1 : coupe transversale schématique d'une chambre à fission cylindrique

En supposant la diffusion négligeable, on peut montrer que la densité totale du courant vérifie :

$$\text{div} \vec{j} = 0$$

Cette équation signifie que la densité de courant  $j$  est parallèle aux lignes du champ électrique. Cela permet de déduire que le courant total à travers n'importe quelle surface latérale du volume sensible de la chambre a la même valeur  $I$ . On s'attend à ce que ce courant, appelé courant d'ionisation ou de saturation, soit le produit de la charge électronique  $e$  et du nombre de paires par seconde formées dans la chambre :

$$I = e \int_V N_0 dV \quad (1)$$

où  $V$  est le volume sensible de la chambre.

L'écriture de cette égalité suppose que la diffusion et la recombinaison sont négligeables. Une autre hypothèse émise dans ce calcul consiste à considérer constant le pouvoir d'arrêt de produits de fission dans le gaz de remplissage.

### 4.3. Calcul de la densité des paires ions-électrons : $N_0$

En partant au début d'un modèle simple, dit FCD, publié dans [34], nous calculons, avec exactitude, la densité des paires ions-électrons par produit de fission dans une chambre à fission. Nous montrons que cette densité, en fonction de la distance radiale  $r$ , et par unité de pression, s'écrit comme suit :

$$N_0(r) = P \frac{A}{W} R_{fs} \left( 1 + \frac{2}{\pi} \arccos \left( \frac{r_a}{r} \right) \right) \quad (2)$$

où :

$P$  : pression du gaz dans la chambre,

$A$  : pouvoir d'arrêt du produit de fission dans le gaz de remplissage,

$W$  : potentiel d'ionisation du gaz,

$r_a$  : rayon externe de l'anode.

$R_{fs}$  : taux de fission surfacique défini par :  $R_{fs} = \frac{l}{2\pi r_a l} \int_0^\infty \Sigma_f(E) \Phi(E) dE$   $\Sigma_f$  étant la

section efficace macroscopique de fission,  $\Phi$  le flux de neutron et  $l$  la longueur du dépôt fissile.

Le calcul en détail est donné dans l'annexe 2.

La densité de paires est dépendante de la distance radiale (cf. figure 4.2). Par soucis de simplification des calculs d'intégrales, on peut considérer dorénavant la valeur moyenne de la

fonction  $\left( 1 + \frac{2}{\pi} \arccos \left( \frac{r_a}{r} \right) \right)$ . Numériquement, on trouve que cette valeur moyenne est très

proche de  $\pi^3/23$ , ce qui permet d'écrire :

$$No = \frac{\pi^3}{23} P \frac{A}{W} R_{fs} \quad (3)$$

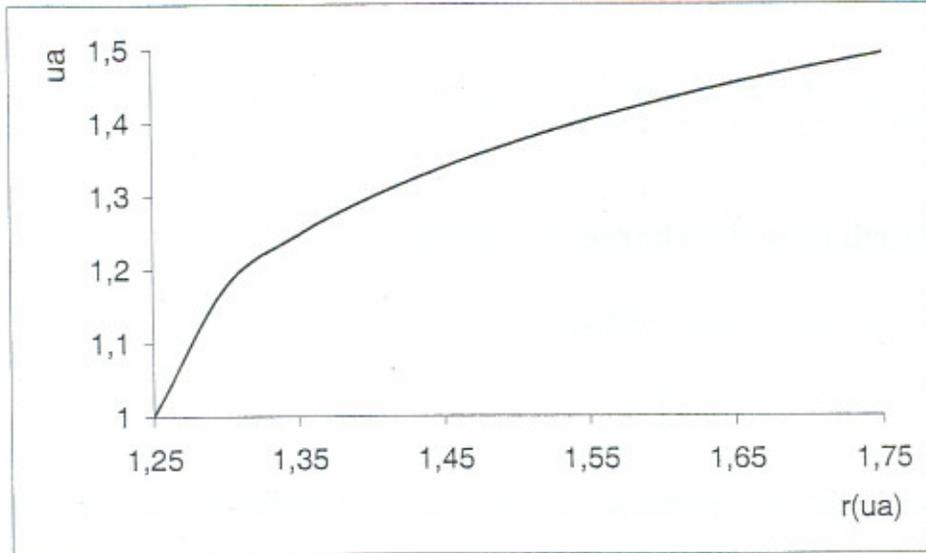


Figure 4.2 : Dépendance de la densité de paires de charges en fonction de la distance radiale

**Remarque :**

Le modèle FCD fait l'hypothèse que la distance inter-électrodes est très inférieure au rayon externe de l'anode. Cela n'est pas toujours vrai. Pour notre chambre à fission par exemple, la distance inter-électrodes est de 0,5 mm et le rayon de l'anode est de 1,25 mm. L'hypothèse n'est pas réalisée. En plus, en faisant cette hypothèse, le modèle considère que chaque élément de surface est assimilé à une charge ponctuelle, puis il calcule le champ résultant en vertu du principe de superposition.

Dans notre calcul, nous avons considéré une distribution volumique  $\rho$  que nous avons appliquée à l'équation de Poisson agissant sur le potentiel  $V$ :  $\epsilon \Delta V = -\rho$ .

#### 4.4. Courant de saturation

En prenant en compte les équations (1) et (2), le courant de saturation peut être développé ainsi :

$$I = 2\pi e l R_{fs} \int_{r_a}^{r_c} r No(r) dr = 2\pi e l P \frac{A}{W} R_{fs} \int_{r_a}^{r_c} r \left( 1 + \frac{2}{\pi} \arccos \left( \frac{r_a}{r} \right) \right) dr$$

En calculant cette intégrale avec le logiciel Mathematica, on peut exprimer le courant d'ionisation (avec l'hypothèse que la diffusion et la recombinaison sont négligeables) par :

$$I = \pi e l P \frac{A}{W} R_{fs} \left( r_c^2 - r_a^2 + \frac{2r_c}{\pi} \left( r_c \arccos \frac{r_a}{r_c} - r_a \sqrt{1 - \frac{r_a^2}{r_c^2}} \right) \right) \quad (4)$$

En comparaison avec le modèle FCD<sup>[35]</sup>, la dépendance de la distance radiale en celui-ci est très simplifiée (I est proportionnel à  $r_c^2 - r_a^2$ ). L'origine de cette dépendance est l'hypothèse, très

discutable, faite dans ce modèle consistant à considérer que le rapport de la distance inter-électrodes et du rayon de l'anode est très inférieur à 1.

L. Vermeeren de SCK/CEN de Belgique a essayé de faire une autre approche pour calculer exactement, partir du même modèle le courant de saturation [36]. Il a alors considéré que le courant varie comme  $(r_a r_c [E(r_a/r_c) - r_a/r_c])$  ou  $E(r_a/r_c)$  est une intégrale elliptique de second ordre.

Nous montrons dans la fin de ce chapitre des comparaisons numériques de notre modèle par rapport aux approches du FCD et de Vermeeren.

#### 4.5. Distribution des charges d'espace

La densité volumique des charges est définie ainsi :

$$\rho = \frac{e}{\epsilon_0} (n^+ - n^-)$$

Le calcul des densités  $n^+$  et  $n^-$ , permet de déduire la densité  $\rho$  en fonction de l'intensité  $E$  du champ électrique :

$$\rho = \frac{1}{2} \frac{e N_0}{\epsilon_0 E} \left[ \left( \frac{1}{\mu^-} + \frac{1}{\mu^+} \right) r - \left( \frac{r_c^2}{\mu^-} + \frac{r_a^2}{\mu^+} \right) \frac{1}{r} \right] \quad (4^{**})$$

Supposons que la chambre à fission est uniformément irradiée de telle façon que le champ électrique créé sous l'effet des charges d'espace soit parallèle au champ électrique externe et indépendant des paramètres  $\theta$  et  $z$  dans le système de coordonnées cylindriques associé. Le problème devient mono-dimensionnel, et on peut alors écrire :

$$\text{div} \vec{E} = \frac{1}{r} d_r (rE) = 4\pi\rho$$

Et en posant :  $a = \frac{1}{\mu^-} + \frac{1}{\mu^+}$  et  $\beta = 2 \left( \frac{r_c^2}{\mu^-} + \frac{r_a^2}{\mu^+} \right)$  on trouve que le champ électrique s'exprime selon la formule suivante :

$$E(r) = \sqrt{\pi \frac{e}{\epsilon_0} N_0 (ar^2 - \beta) + \frac{C}{r^2}} \quad (5)$$

où  $C$  est une constante d'intégration.

La distribution des charges d'espace, au cas où la recombinaison et la diffusion sont négligées, est donnée par :

$$\rho(r) = \frac{1}{2} e N_0 \frac{ar - \frac{\beta}{2r}}{\sqrt{\pi e N_0 (ar^2 - \beta) + \frac{C}{r^2}}}$$

Dans un point donné dans l'espace inter-électrode, nous calculons la densité des charges d'espace et le champ électrique en fonction de la densité des paires dans la chambre (cf. figure 4.3). Le champ électrique reste invariant pour un faible nombre de porteurs de charges puis il augmente considérablement au-delà d'un certain seuil de la densité des charges d'espace. La distorsion du champ électrique devient de plus en plus importante comme le montre la figure 4.4. Pour une faible densité de charges, le champ électrique a une forme radiale ; mais plus cette densité est grande (et par conséquent celle des charges d'espace) plus la forme du champ change.

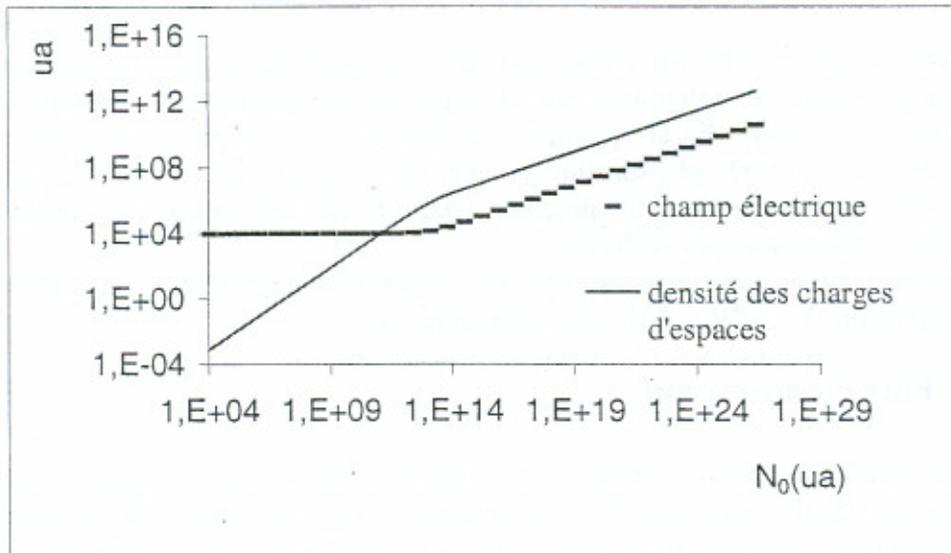


Figure 4.3 : Champ électrique et densité des charges d'espace en fonction de la densité de porteurs de charge

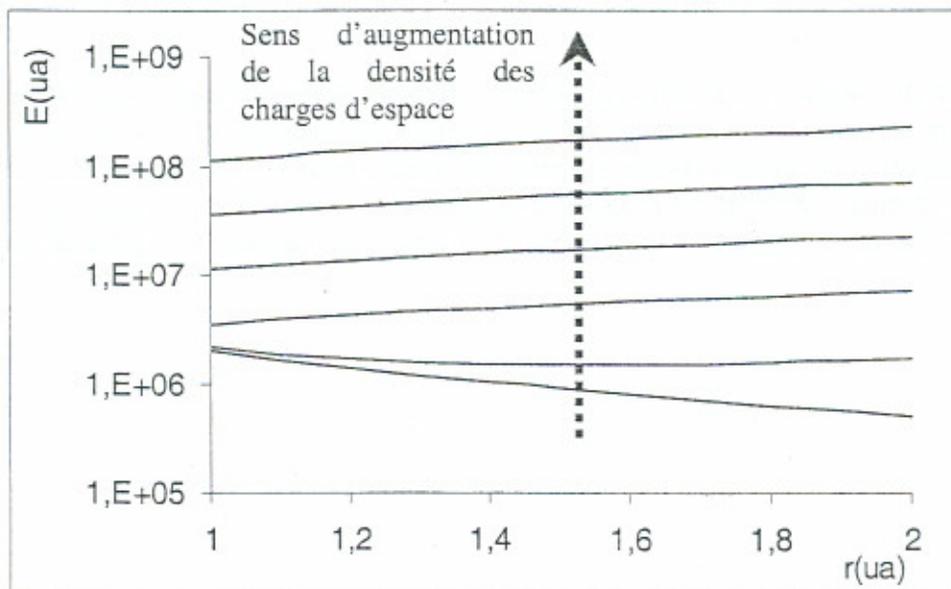


Figure 4.4 : Champ électrique en fonction de la distance radiale pour des densités de porteurs de charge croissantes

#### 4.6. Constante caractéristique d'une chambre à fission

On définit ici comme la constante caractéristique d'une chambre à fission, comme étant le nombre de fissions par seconde nécessaires pour produire un courant de 1 A.

D'après les équations (3) et (4), la constante caractéristique  $\Gamma$  s'exprime ainsi :

$$\Gamma = \frac{R_f}{I} = \left( \frac{\pi^4}{69} e^{(r_c - r_a)^2} (2r_c + r_a) P \frac{A}{W} \right)^{-1}$$

Cette constante ne dépend théoriquement que de la pression du gaz de remplissage, de sa nature et de la géométrie de la chambre. Elle est supposée indépendante du dépôt fissile, de sa masse et du flux de neutrons. En effet, d'après le tableau 3.1 du chapitre 3, le pouvoir d'arrêt des produits de fission est très peu sensible pour de faible distance de la nature du produit de fission. On verra également dans un prochain chapitre que les spectres de rendement de fission de deux actinides sont peu différents.

Pour l'argon, on trouve, par calcul probabiliste du pouvoir d'arrêt A et par tabulation du potentiel d'ionisation W :  $\underline{A/W = 2 \cdot 10^5 \text{ ions-pairs} \cdot \text{mm}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}}$ .

#### 4.7. Flux de saturation

Le plateau de saturation d'une chambre à fission est caractérisé par le courant de saturation, mais aussi par les valeurs minimale,  $V_{\min}$ , et maximale,  $V_{\max}$ , de tension de polarisation. La largeur du plateau de saturation est d'autant plus faible que le flux de neutrons est élevé. La figure 4.5 montre des mesures expérimentales déduites de l'irradiation d'une chambre à fission sous différents flux de neutrons dans le tube V4 du réacteur à haut flux où l'on peut constater la diminution de la plage de saturation de la chambre en fonction du flux de neutrons.

La diminution du plateau de saturation est due à l'effet des charges d'espace qui est de plus en plus important. A partir d'une certaine valeur de densité de charges, et donc de distorsion du champ électrique, la chambre à fission ne peut plus fonctionner en régime de saturation. Pour une chambre donnée, cet effet est d'autant plus important que le flux de neutrons est élevé. On appelle « flux de saturation » l'intensité de flux à partir de laquelle le régime de saturation disparaît.

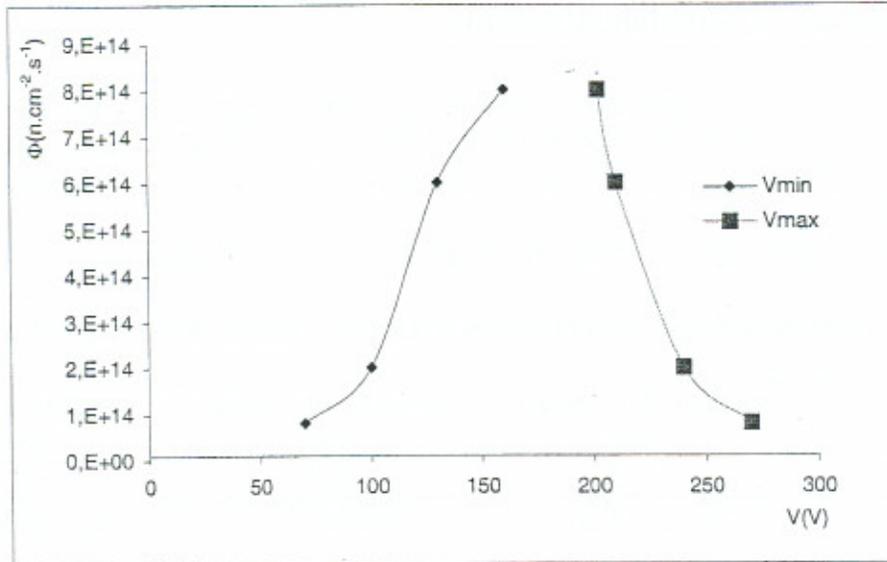


Figure 4.5 : Tensions minimale et maximale du plateau de saturation d'une chambre à fission irradiée dans différents flux de neutrons au RHF de l'ILL

D'après la figure 4.4, le champ électrique, initialement radial, se déforme de plus en plus avec la densité des charges d'espace. A une certaine valeur  $\rho_s$  de cette densité, le champ électrique aux deux électrodes a la même intensité :  $E(r_c) = E(r_a) = E_s$ , appelé champ de distorsion. A cette intensité, la chambre ne peut plus fonctionner en régime de saturation.

L'énergie cinétique  $E_c = \frac{1}{2} m_0 \left( \mu^- \frac{E_s}{P} \right)^2$  donnée à l'électron est alors suffisante pour que des ionisations secondaires aient lieu. Cette énergie est de l'ordre de l'énergie de l'agitation thermique. A une température de 200°C,  $E_c \approx 0,04 \text{ eV}$  et pour l'argon à une pression de 1 bar  $E_s \approx 0,910^6 \text{ V.m}^{-1}$ .

De l'équation (5), on obtient la constante d'intégration en fonction des données géométriques de la chambre, de la densité des porteurs des charges et de la nature du gaz ( $\alpha$ ) :

$$C_s = a \pi e N_0 r_a^2 r_c^2$$

D'où on déduit la densité de paires correspondante :

$$N_0 s = \frac{E_s^2}{\pi e \left( a \left( n^2 - n_i^2 \right) - \beta \right)} \text{ avec } a = \frac{1}{\mu^-} + \frac{1}{\mu^+} \text{ et } \beta = 2 \left( \frac{r_c^2}{\mu^-} + \frac{r_a^2}{\mu^+} \right)$$

Le flux de saturation est finalement donné par :

$$\Phi_s = \frac{N_0 s \cdot 23 W I M I}{N a v \pi^3 A P m \sigma_f}$$

où  $m$  est la masse du dépôt fissile,  $M$  la masse molaire de l'isotope fissile,  $\sigma_f$  sa section efficace de fission,  $P$  la pression de remplissage du gaz dans la chambre et  $N a v$  le nombre d'avogadro.

#### 4.8. Validité du modèle développé

Pour vérifier le modèle développé, on compare les résultats de calcul avec des mesures faites par le Laboratoire de Systèmes et de Mesures Nucléaires de la DEN/Cadarache. Une partie de ces mesures ont été publiés dans [36]. Les irradiations ont eu lieu dans le réacteur BR2 du CEN-SCK en Belgique.

Les caractéristiques des chambres irradiées sont présentées dans le tableau 4.1.

**Tableau 4.1 : Caractéristiques des chambres à fission irradiées par la DEN/Cadarache**

dimensions	rayon de l'anode (mm)	rayon de la cathode (mm)	longueur sensible (mm)
		0,35	0,65
	Pression d'argon (bar)	Masse <sup>235</sup> U (µg)	flux thermique (n.cm <sup>-2</sup> .s <sup>-1</sup> )
SMFC3	1,5	11,32	allant de 6 10 <sup>12</sup> à 3,6 10 <sup>14</sup>
SMFC4	1,1	11,3	allant de 6 10 <sup>12</sup> à 3,6 10 <sup>14</sup>

Les résultats présentés dans le tableau 4.2 (sensibilité de la chambre définie comme étant le rapport du courant en régime de saturation et du flux d'irradiation) montrent un très bon accord entre notre modèle et l'expérience. L'écart que présente le modèle FCD par rapport à l'expérience est réduit en utilisant l'approche de Vermeeren.

On constate également que la prédiction du modèle sous-estime toujours la mesure. Cela pourrait être dû aux hypothèses considérées dans les calculs concernant la diffusion et la recombinaison qui n'ont pas été prises en compte dans le calcul du courant de saturation.

**Tableau 4.2 : Sensibilité obtenue par mesure et comparée à des calculs pour les deux chambres à fission, SMFC3 et SMFC4**

	SMFC3	SMFC4
mesure (10 <sup>-19</sup> A/(n.cm <sup>-2</sup> .s <sup>-1</sup> ))	4,9	3,6
Ce modèle (10 <sup>-19</sup> A/(n.cm <sup>-2</sup> .s <sup>-1</sup> ))	4,3	3,2
modèle/mesure	0,87	0,89
Modèle FCD (10 <sup>-19</sup> A/(n.cm <sup>-2</sup> .s <sup>-1</sup> ))	3,5	2,6
modèle/mesure	0,71	0,72
Approche Vermeeren (10 <sup>-19</sup> A/(n.cm <sup>-2</sup> .s <sup>-1</sup> ))	4,7	3,5
modèle/mesure	0,96	0,97

Le modèle prédit une large marge par rapport au flux dit de saturation (cf. tableau 4.3). On constate que le flux de saturation diminue lorsque la pression du gaz de remplissage augmente. En effet, la distorsion du champ électrique est de plus en plus importante lorsque le nombre de charges d'espace devient plus important. Et celui-ci augmente, entre autres, avec la densité du gaz de remplissage.

**Tableau 4.3 : Flux de saturation déterminé par calcul et flux d'irradiation pour les différentes chambres à fission**

	Pression (bar)	Flux maximal d'irradiation (n.cm <sup>-2</sup> .s <sup>-1</sup> )	Flux de saturation (n.cm <sup>-2</sup> .s <sup>-1</sup> )
SMFC3	1,1	3,6 10 <sup>14</sup>	10 <sup>16</sup>
SMFC4	1,5	3,6 10 <sup>14</sup>	1,4 10 <sup>16</sup>



# Chapitre 5 : Chambre à Fission à Simple Corps : Réalisation

## 5.1. Introduction

L'objectif principal de l'irradiation de la chambre à fission à simple corps est de montrer la faisabilité d'irradiation de ce genre de détecteurs dans des conditions neutroniques caractérisées par un flux de neutrons très intense (environ  $2 \cdot 10^{15} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ).

L'irradiation d'une chambre à fission à simple corps nous permettra :

- d'étudier son comportement sous haut flux de neutrons,
- de caractériser la chambre, c'est à dire déterminer sa constante caractéristique,
- de suivre l'évolution de ses caractéristiques physiques durant l'irradiation,
- de déterminer sa durée de vie,
- d'évaluer une carte du flux de neutrons au long le du canal V4,
- et finalement de comparer les valeurs de flux obtenues avec les résultats de simulations.

La conception de la chambre à fission doit satisfaire aux conditions de fonctionnement et d'irradiation qui sont exceptionnelles dans le cas du réacteur à haut flux. En effet, comme on l'a vu dans le chapitre précédent, sous un haut flux de neutrons, le problème de charges d'espace est encore plus important. Cela peut rendre délicate l'interprétation des signaux de la chambre à fission si elle ne présente pas de plateau de saturation.

L'objectif est alors de réduire le plus fortement possible la densité de charges d'espace dans ce flux neutrons. Comme le montre la formule (4\*\*) du chapitre 4 donnant la densité volumique des charges, minimiser la densité de ces charges revient à optimiser les paramètres suivants :

- les dimensions de la chambre (diamètre, distance inter-électrodes et longueur de l'anode),
- la masse du dépôt fissile,
- la nature du gaz de remplissage,
- la pression de ce gaz.

L'isotope prépondérant constituant le dépôt fissile sera l'uranium 235. Il est choisi comme élément de référence puisque c'est un élément fissile avec les neutrons thermiques et qu'en plus ses données nucléaires, notamment ses différentes sections efficaces de réactions, sont connues avec une grande précision (< 1,5 %). On note également le très bon accord existant entre les différentes bibliothèques d'évaluation (cf. tableau 5.1).

**Tableau 5-1 : Sections efficaces de  $^{235}\text{U}$ , intégrées sur le spectre dans V4, pour les principales bibliothèques d'évaluation des données nucléaires**

Section efficace $d^{235}\text{U}$	ENDF-B/VI.2	JENDL-3.2	JEF 2.2	Écart maximal entre les bibliothèques (%)
Fission (barn)	403,72	404,49	401,69	0,69
Capture (barn)	70,59	70,74	70,23	0,72

## 5.2. Choix entre deux chambres à fission

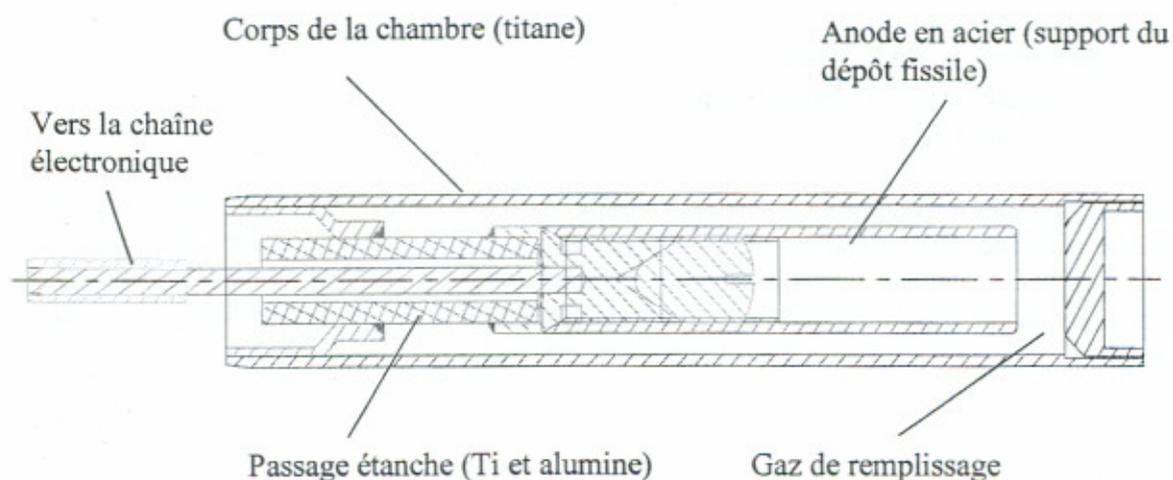
Le Laboratoire de Systèmes et de Mesures Nucléaires (LSMN) du CEA/Cadarache fabrique deux modèles standards de chambres à fissions :

- Celle de 4 mm de diamètre extérieur (cf. figure 5.1), notée CF4 dans ce document,
- Celle de 8 mm de diamètre extérieur (cf. figure 5.2), notée CF8.

Pour faire le choix ces deux chambres, l'objectif est d'étudier, par calcul, l'influence de la distance inter-électrodes sur le comportement de chambre. Pour cela, on fixe le rayon de l'anode à sa valeur réelle et on fait varier le rayon interne de la cathode.

Les autres variables de la chambre sont fixées ainsi :

- Dépôt fissile : 20  $\mu\text{g}$   $d^{235}\text{U}$
- Gaz de remplissage : Argon à une pression de 1 bar.



*Figure 5.1 : Chambre à fission CF4*

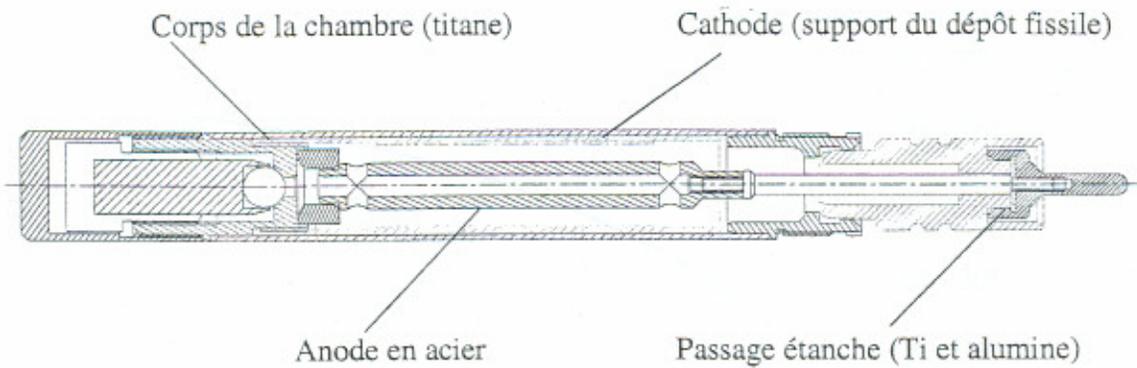


Figure 5.2 : Chambre à fission CF8

Nous constatons que le flux de saturation diminue lorsque la distance inter-électrode augmente, (cf. figure 5.3). Cela signifie tout simplement qu'il y a un lien entre la distorsion du champ électrique et la distance inter-électrodes. On voit clairement cet effet dans la figure 5.4 qui présente la densité de charges dans la chambre en fonction de la distance inter-électrodes. Cela pourrait être expliqué par l'évolution du temps de collection de charges dans la chambre à fission. En effet, plus la distance inter-électrodes est grande plus le temps de collection est important (cf. figure 5.5).

Cela explique également le courant délivré par CF8 qui est plus grand que celui de CF4 pour le même flux (cf. figure 5.6). La distorsion du champ électrique conduit à l'apparition rapide de phénomène d'avalanche ou de multiplication de charges ce qui réduit le régime de saturation.

En conclusion, la chambre CF4 admet un régime de saturation beaucoup plus important que celui de la CF8.

**Nota :** On montre que le temps de collection d'un électron varie ainsi  $t_c = \frac{r_0^2 - r_a^2}{2\mu - E_a n}$ .  $r_0$  étant la distance radiale à laquelle une ionisation a eu lieu,  $E_a$  l'intensité du champ électrique à l'anode et  $\mu$  la mobilité des électrons dans le gaz de remplissage.

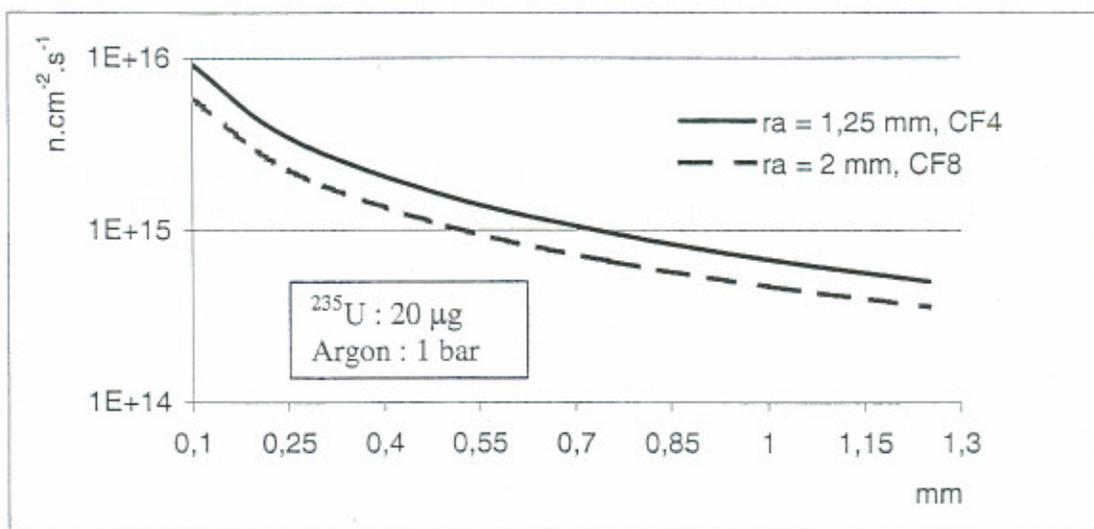


Figure 5.3 : Flux de saturation en fonction de la distance inter-électrodes

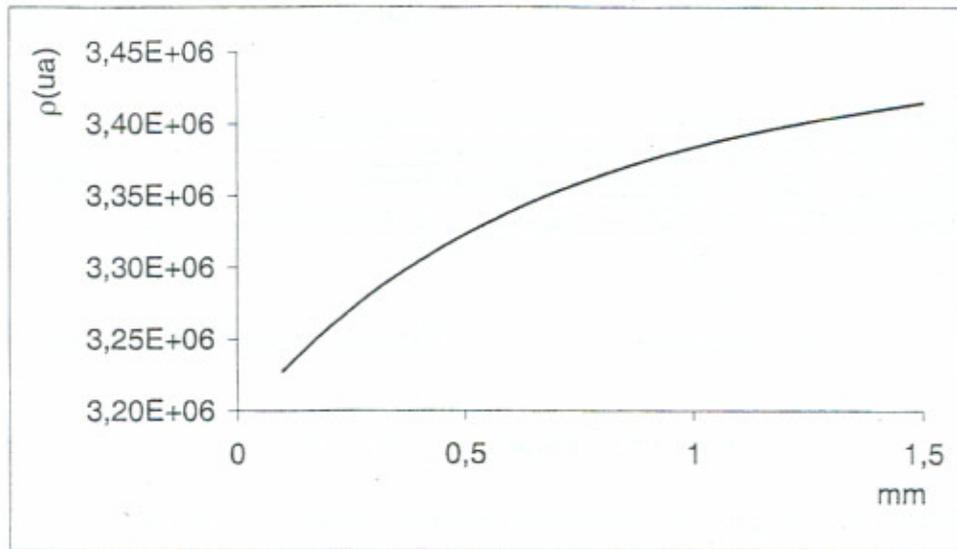


Figure 5.4: Densité de charges dans la chambre à fission en fonction de la distance inter-électrodes

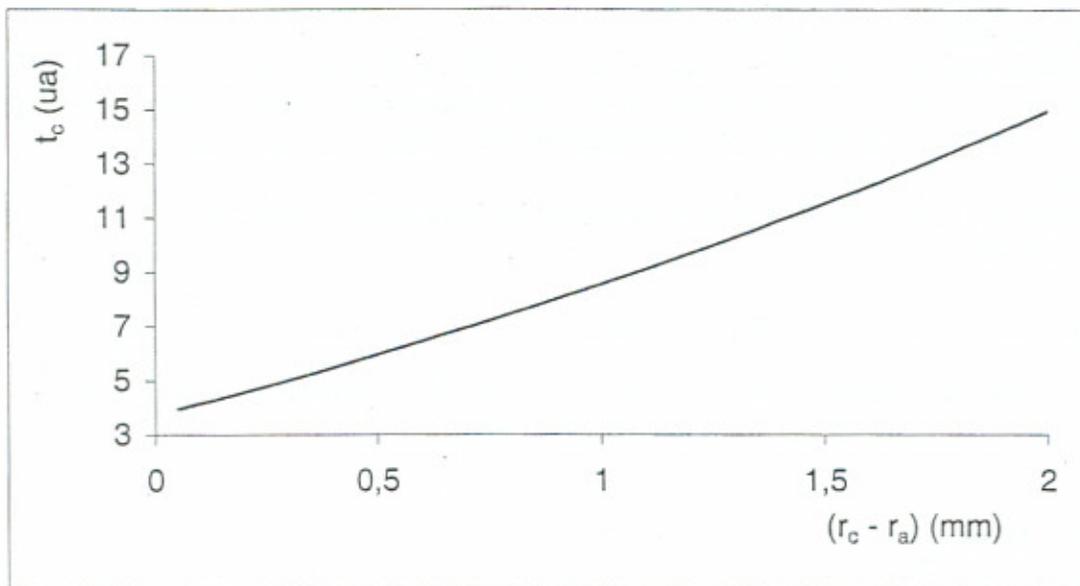


Figure 5.5: Temps de collection d'une chambre à fission en unité arbitraire en fonction de la distance inter-électrode pour une charge créée au point  $((r_c+r_a)/2, l/2)$

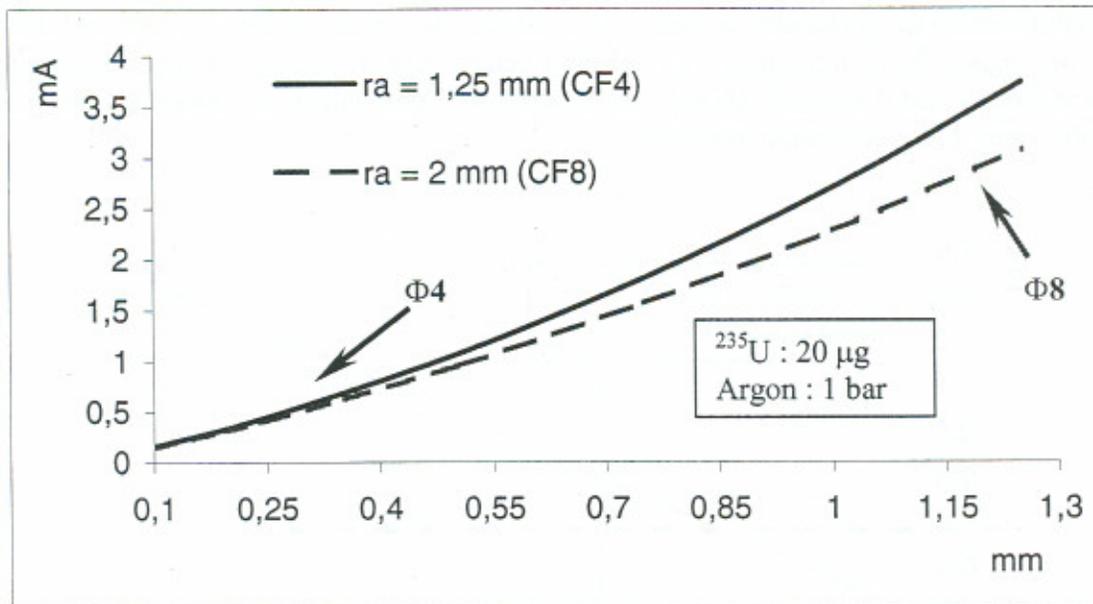


Figure 5.6: Courant de saturation délivré par les deux chambres en fonction de la distance inter-électrode (application de l'équation 4, chapitre 4)

### 5.3. Choix de la masse du dépôt fissile ( $^{235}\text{U}$ )

L'objectif est de connaître la masse maximale autorisant la chambre CF4 à fonctionner en régime de saturation ce qui revient à déterminer la masse maximale d'uranium 235 telle que le flux de saturation reste supérieur au flux présent dans le canal V4.

De la même façon que précédemment, on calcule le flux de saturation pour une CF4 avec, comme gaz de remplissage, de l'argon à une pression de 1 bar.

La densité des porteurs de charge augmentant avec la masse de matière fissile dans la chambre, cela conduit à une distorsion du champ électrique plus importante et par conséquent à une marge de fonctionnement en régime de saturation plus réduite (cf. figure 5.7).

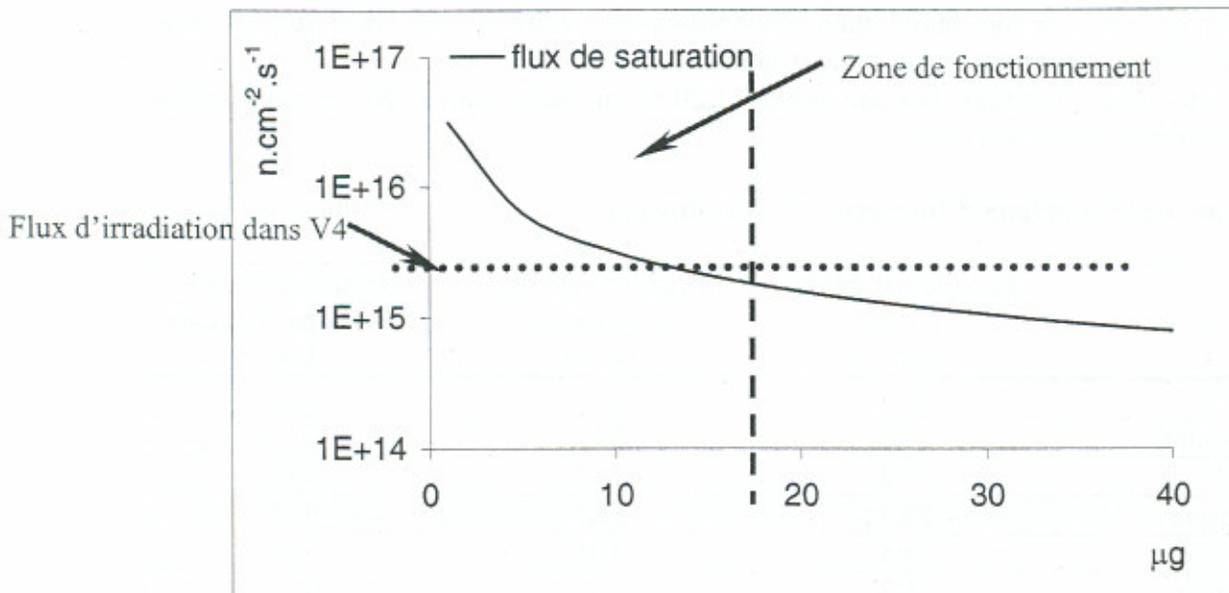


Figure 5.7: Flux de saturation en fonction de la masse de dépôt fissile

Le fonctionnement de la chambre à fission dans un flux de  $1,5 \cdot 10^{15} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$  contraint donc à choisir une masse fissile inférieure à  $18 \mu\text{g}$ . Pour cette masse, le courant de saturation, estimé par notre modèle, est d'environ  $0,6 \text{ mA}$  (cf. figure 5.8). Cette valeur de courant est tout à fait mesurable avec de l'électronique standard.

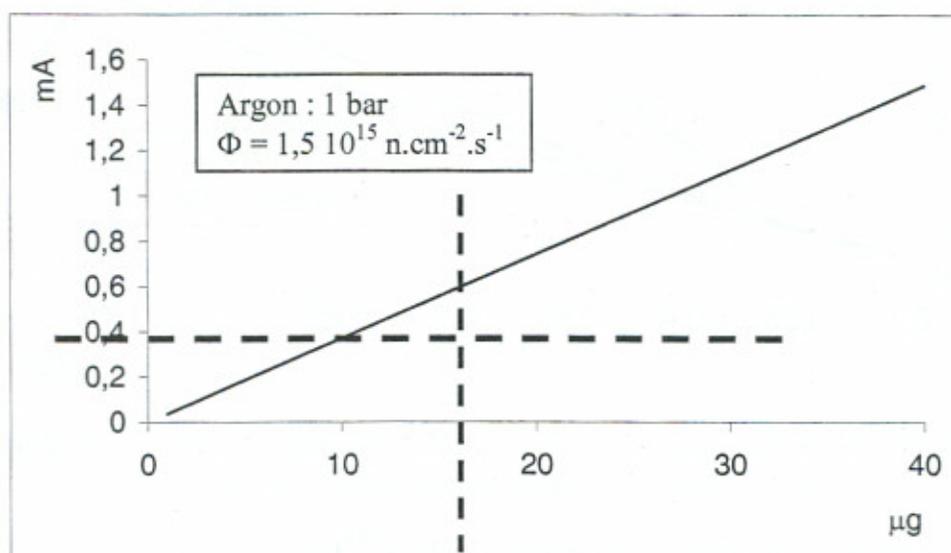


Figure 5.8: Courant électrique de saturation délivré par  $\Phi 4$  en fonction de la masse d' $^{235}\text{U}$

#### 5.4. Choix du gaz de remplissage

Nous allons comparer dans ce paragraphe l'argon avec d'autres gaz qui pourraient également servir de gaz de remplissage.

L'argon est un gaz très largement utilisé pour la constitution des chambres à fission. En effet, il présente deux avantages principaux par rapport aux autres gaz :

- une importante fraction d'énergie est utilisée pour l'ionisation, (cf. tableau 4.2). Cela permet d'utiliser un faible gain d'amplification, voire de n'utiliser aucun étage amplificateur notamment en mode courant,
- il est le plus abondant des gaz nobles (1,29 % en masse dans l'air), ce qui diminue considérablement son coût.

Tableau 5-2: Propriétés d'ionisation de certains gaz

Gaz	Energie par paires d'ions W(eV)	Premier potentiel d'ionisation I(eV)	Fraction d'énergie utilisée pour ioniser I/W
H <sub>2</sub>	36,3	15,6	0,43
Hélium	46,0	24,5	0,53
N <sub>2</sub>	36,3	16,7	0,46
<b>Argon</b>	<b>26,4</b>	<b>15,7</b>	<b>0,59</b>
Néon	36,8	21,5	0,58
Xénon	21,2	12,1	0,57
Krypton	24,6	14	0,57

A une pression de remplissage de 1 bar et pour une masse de 15  $\mu\text{g}$  d'uranium 235 plusieurs gaz peuvent théoriquement correspondre à un état de fonctionnement en régime de saturation (cf. figure 5.9).

L'hélium présente un fort potentiel d'ionisation (celui-ci est défini comme étant l'énergie nécessaire pour arracher un électron périphérique). Par conséquent le nombre de porteurs de charge est beaucoup moins élevé que pour les autres gaz et donc la distorsion du champ électrique est beaucoup moins importante. Cependant, ce gaz a un coefficient de diffusion très élevé ce qui augmente le risque de micro-fuites difficiles à contrôler.

Les gaz poly-atomiques sont à éviter dans le cas d'un flux de neutrons très intense à cause du risque de dissociation moléculaire. Dans le cas d'un mélange gazeux à base d'un gaz rare, le même risque est présent. En plus, certains gaz tels que l'oxygène, les halogènes ou la vapeur d'eau ont tendance à capter des électrons libres pour former des ions négatifs lourds. Cela est susceptible de conduire à une augmentation des charges d'espace.

En ce qui concerne l'hydrogène  $\text{H}_2$ , en plus qu'il soit sous forme moléculaire, il diffuse facilement entre les métaux. Il est également difficile à manipuler sur le plan de la sécurité puisqu'il s'agit d'un gaz extrêmement inflammable.

Parmi les gaz étudiés, seuls l'argon et le néon semblent les plus convenables à l'utilisation dans un flux de neutrons intense.

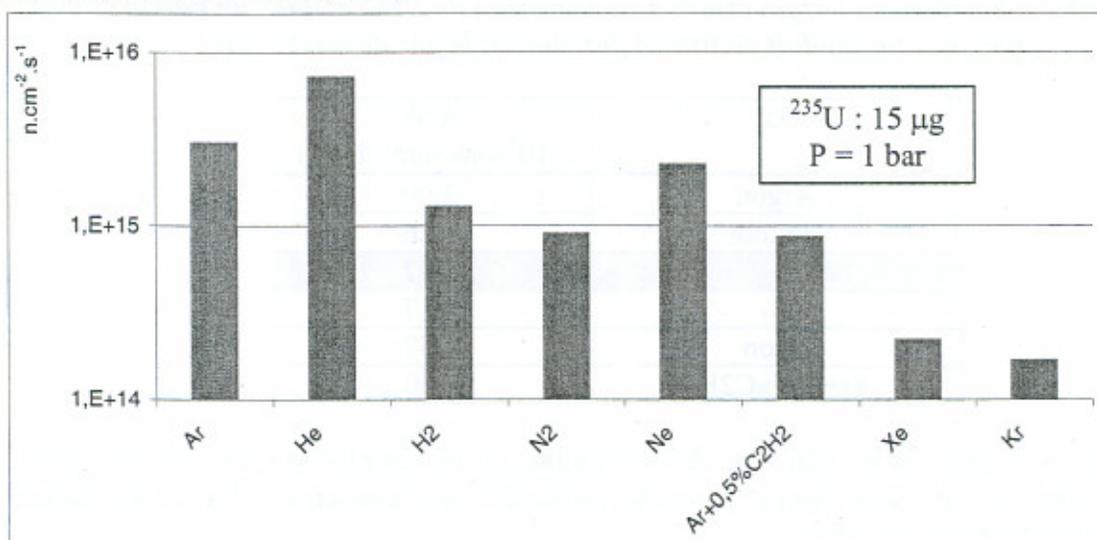


Figure 5.9: Flux de saturation de la chambre  $\text{CF}_4$  pour différents gaz (1 bar)

Dans le flux en bas de V4, le courant de saturation, selon le gaz de remplissage, varie de 0,3 à 1,3 mA, (cf. figure 5.10). C'est une marge considérée raisonnable pour une mesure où le signal dû à la photo-ionisation (estimé de quelques  $\mu\text{A}$ ) reste négligeable.

Le courant est proportionnel au rapport  $W/A$  (rapport du potentiel d'ionisation sur le pouvoir d'arrêt) exprimant le nombre de paires électrons-ions créées par unité de pression et par un millimètre de parcours du produit de fission dans le gaz. Cela explique le courant très important créé dans le gaz d'hydrogène (cf. tableau 5.3). On constate qu'un mélange gazeux, constitué d'un gaz rare et d'une très faible teneur d'un gaz poly-atomique, conduit à une libération de plus de charges dans le gaz. Cela peut être également expliqué du fait de l'augmentation des mobilités des paires électrons-ions dans le gaz. Cet effet est bien connu dans l'augmentation des performances des détecteurs gazeux.

Le pouvoir d'arrêt est calculé par le code TRIM et le potentiel d'ionisation est donné dans les tabulations de référence [37].

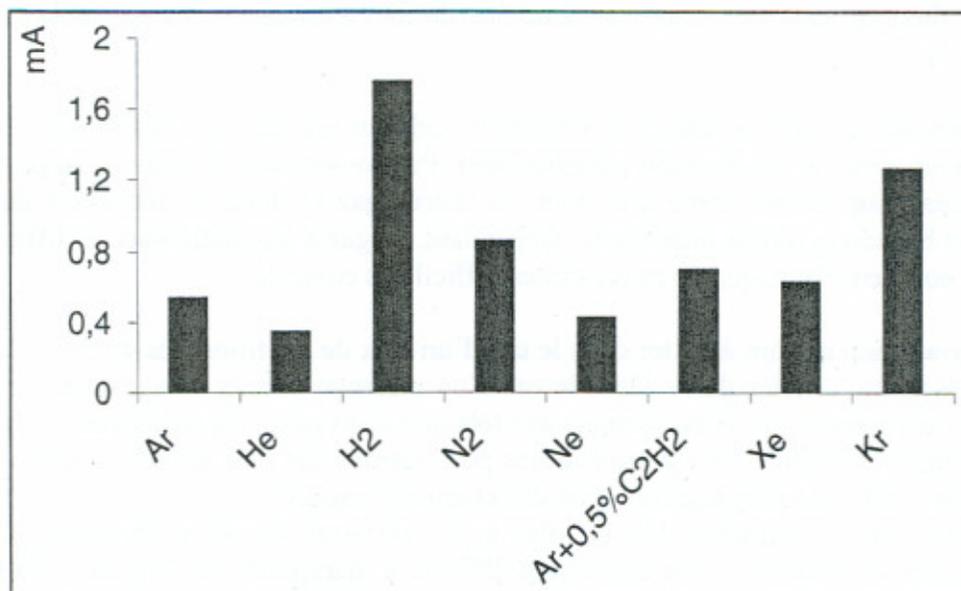


Figure 5.10: Courant de saturation délivré par CF<sub>4</sub> pour différents gaz (1 bar)

Tableau 5-3 : Nombre de charges créées à une pression de 1 bar et dans un parcours de 1 mm, par un produit de fission parcourant le gaz de remplissage

Gaz	A/W (10 <sup>5</sup> ions.mm <sup>-1</sup> .bar <sup>-1</sup> )
Argon	2,00
Hélium	1,26
H <sub>2</sub>	6,37
N <sub>2</sub>	3,17
Néon	1,57
Ar+0,5%C <sub>2</sub> H <sub>2</sub>	2,60

En conclusion, l'argon et le néon sont choisis comme gaz de remplissage des chambres CF<sub>4</sub>. Ces gaz sont utilisés sous forme naturelle présentant successivement les compositions suivantes pour l'argon et le néon :

Argon	Abondance	Néon	Abondance
Isotope	(%)	Isotope	(%)
<sup>40</sup> Ar	99,6003	<sup>20</sup> Ne	90,48
<sup>36</sup> Ar	0,3365	<sup>21</sup> Ne	0,27
<sup>38</sup> Ar	0,0632	<sup>22</sup> Ne	9,25

## 5.5. Choix de la pression de remplissage

Le flux de saturation est inversement proportionnel à la pression de remplissage gazeux. En effet, la distorsion du champ électrique est d'autant plus importante que la densité du gaz est élevée. Pour la chambre à fission CF4 remplie d'argon (ou de néon), pour une masse de 15  $\mu\text{g}$  de  $^{235}\text{U}$ , une pression de remplissage de 1 bar semble suffisante pour un fonctionnement sous haut flux (cf. figure 5.11). A cette pression, le courant électrique délivré par la chambre est de l'ordre de 0,5 mA.

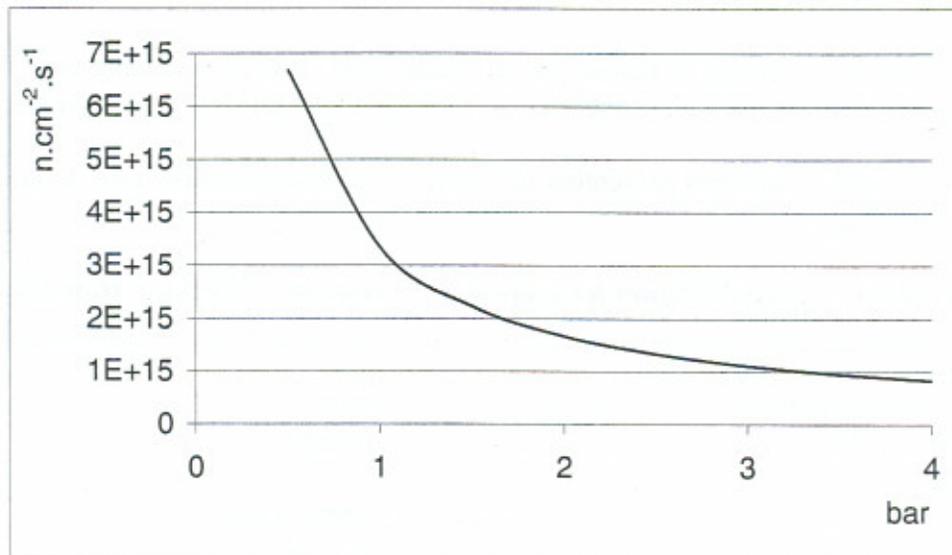


Figure 5.11: Flux de saturation en fonction de la pression d'argon dans la chambre CF4

Un autre effet à considérer concerne l'effet de l'échauffement de la chambre dû au dépôt d'énergie gamma (échauffement gamma). Les calculs de simulation thermique montrent que la température à l'intérieure de la chambre atteint, en bas du canal V4, environ 155 °C. Cette croissance de température conduira donc à une augmentation de la pression du gaz. Mais à une densité de gaz constante, cela n'aura pas d'effet sur le niveau du courant de saturation. Cependant cela pourrait conduire à un déplacement du début du plateau de saturation vers une tension plus élevée.

En conclusion, la chambre à fission conçue pour fonctionner sous haut flux de neutrons dans V4 est la chambre CF4 avec les caractéristiques suivantes :

Dépôt : uranium 235, masse = 20  $\mu\text{g}$ ,  
Gaz : deux gaz seront utilisés : l'Argon et le néon,  
Pression de remplissage : 1 bar.

## 5.6. Chambre à fission CF4 : constitution et câblage

La chambre à fission CF4, fabriquée au CEA/Cadarache, est constituée (cf. figure 5.1) :

- D'un corps de chambre en titane (cathode),
- D'un porte dépôt en acier inoxydable (anode),
- D'un passage étanche en alumine et en titane pour garantir l'étanchéité de la chambre et également l'isolement électrique des deux électrodes,
- D'un bouchon en titane.

Un montage particulier, étudié et réalisé par la société PHOTONIS, a ensuite été nécessaire pour connecter la chambre CF4 en titane avec un câble à isolant minéral en acier inoxydable.

Les tableaux 5.4 et 5.5 suivants présentent les caractéristiques technologiques de la chambre fabriquée et du câblage associé.

*Tableau 5-4 : Caractéristiques techniques de la chambre CF4 pour Mini-Inca*

<b>Dimensions</b>	
Diamètre externe nominal .....	4 mm
Longueur sensible .....	10 mm
<b>Dépôt fissile</b>	
Nature .....	Uranium 235
Masse .....	~ 22 µg
<b>Matériaux</b>	
Electrodes .....	Titane et acier inoxydable
Gas de remplissage .....	Argon, Néon
Pression .....	1,1 bar ou 1 bar
<b>Câble coaxial</b>	
Diamètre .....	∅ 1 mm
Matériau .....	Acier
Isolant .....	Alumine
<b>Connecteur</b>	
Type .....	BNC

*Tableau 5-5 : Caractéristiques technologiques de la CF4 après câblage*

<b>Dimensions</b>	
Diamètre extérieur .....	4,7 mm
<b>Câble coaxial</b>	
Diamètre .....	∅ 1 mm
Matériau .....	Acier
Isolant .....	Alumine
<b>Connecteur</b>	
Type .....	BNC

## 5.7. Chambres destinées à l'irradiation

Quatre chambres à simple corps ont été ainsi fabriquées avec des masses et des gaz différents en vue d'une irradiation dans le tube V4 du RHF.

*Tableau 5-6 : Chambres CF4 destinées à l'irradiation*

Chambre	Gaz de remplissage	Pression (bar)	Masse ( $\mu\text{g}$ )
CFSC1	Argon	1,0	$22,60 \pm 0,06$
CFSC2	Argon	1,1	$22,21 \pm 0,06$
CFSC3	Néon	1,1	Sans dépôt
SFSC4	Néon	1,1	$22,78 \pm 0,06$

La chambre sans dépôt, CFSC3, permettra de mesurer le signal dû à tous les effets autre que la fission de l'uranium 235 (signal utile).

## 5.8. Electrodeposition de l'uranium 235

### 5.8.1. Solution mère d'uranium 235 et milieu d'électrolyse

La fabrication du dépôt d'uranium a été réalisée par électrolyse au CEA/Cadarache.

Les caractéristiques de la solution mère d'uranium 235 sont les suivantes :

- $[^{235}\text{U}] \approx 4 \text{ g/l}$
- $[\text{HNO}_3] = 0,5 \text{ M}$

La composition isotopique d'uranium utilisé est présentée dans le tableau ci-dessous :

*Tableau 5-7: Composition isotopique (atomique) du lot d'uranium 235*

$^{233}\text{U}$	$^{234}\text{U}$	$^{235}\text{U}$	$^{236}\text{U}$	$^{238}\text{U}$
-	0,063 %	98,49 %	0,038 %	1,49 %

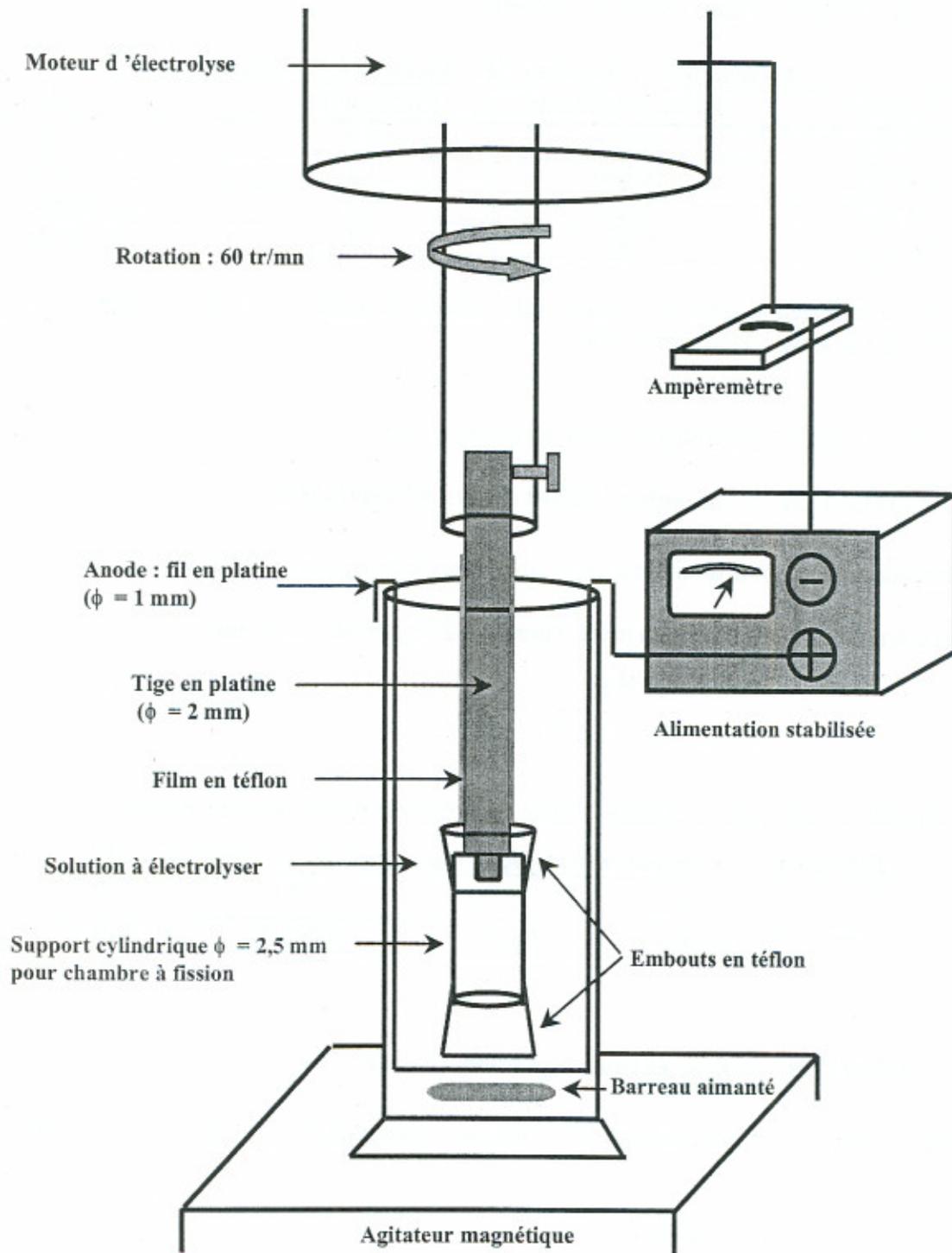
### 5.8.2. Milieu d'électrolyse et montage d'électrolyse

Le milieu d'électrolyse est constitué d'un mélange d'acide nitrique et d'oxalate d'ammonium tel que :

- $[\text{HNO}_3] : 0,1 \text{ M}$
- $[(\text{NH}_4)_2\text{C}_2\text{O}_4, \text{H}_2\text{O}] : 0,1 \text{ M}$

Le montage d'électrolyse est présenté par la figure 5.12.

Figure 5.12 : Montage d'électrodéposition pour un porte-dépôt de la chambre CF4



### 5.8.3. Masse d'uranium déposée sur un porte-dépôt

On note  $[U]_i$  et  $[U]_f$  les concentrations en gramme d'uranium 235 par gramme de solution avant et après électrolyse. Ces analyses ont été effectuées par dilution isotopique en spectrométrie de masse à thermo-ionisation (TIMS) par le CEA/Saclay (SCPA/LAIE).

La masse d'uranium déposée est alors égale à :

$$m_{\text{dépôt}} = M_3 \cdot [U]_i - (M_4 - M_2) \cdot [U]_f \quad (1)$$

On peut exprimer l'incertitude de la mesure de la masse de dépôt par la relation suivante liée à

sa variance  $\sigma_m^2$ : 
$$\sigma_m^2 = \sum_i \left( \frac{\partial m}{\partial X_i} \right)^2 \sigma_{X_i}^2 \quad \text{où} \quad \sigma_{X_i}^2 = \frac{(\Delta X_i)^2}{3}$$

On trouve alors :

$$(\Delta m_{\text{dépôt}})^2 = M_3^2 \Delta [U]_i^2 + [U]_i^2 \Delta M_3^2 + (M_4 - M_2)^2 \Delta [U]_f^2 + [U]_f^2 (\Delta M_2^2 + \Delta M_4^2) \quad (2)$$

Le résultat de la résolution numérique des équations (1) et (2) pour chaque porte-dépôt est donné dans le tableau ci-dessous :

N°	M <sub>3</sub>	ΔM <sub>3</sub>	[ <sup>235</sup> U] <sub>i</sub>	Δ [ <sup>235</sup> U] <sub>i</sub>	M <sub>4</sub>	ΔM <sub>4</sub>	M <sub>2</sub>	ΔM <sub>2</sub>	[ <sup>235</sup> U] <sub>f</sub>	Δ [ <sup>235</sup> U] <sub>f</sub>	Dépôt <sup>235</sup> U			Rendement (%)
											m	Δm	Δm/m	
	(g)	(g)	(g/g)	(g/g)	(g)	(g)	(g)	(g)	(g/g)	(g/g)	(μg)	(μg)	(%)	
CFSC1	5,054	10 <sup>-3</sup>	3,32.10 <sup>-6</sup>	1.10 <sup>-8</sup>	37,4	0,01	31,7	10 <sup>-3</sup>	1,63.10 <sup>-8</sup>	1.10 <sup>-10</sup>	22,66	0,06	0,3	99,5
CFSC2	5,056	10 <sup>-3</sup>	3,42.10 <sup>-6</sup>	1.10 <sup>-8</sup>	37,4	0,01	31,7	10 <sup>-3</sup>	1,92.10 <sup>-8</sup>	2.10 <sup>-10</sup>	22,21	0,06	0,3	99,6
CFSC4	5,042	10 <sup>-3</sup>	3,26.10 <sup>-6</sup>	3.10 <sup>-8</sup>	37,2	0,01	31,7	10 <sup>-3</sup>	1,72.10 <sup>-8</sup>	1.10 <sup>-10</sup>	22,78	0,06	0,3	99,6%



## Chapitre 6 : Chambres à Fission à Double Corps (CFDC)

### 6.1. Principe d'une CFDC

Nous avons vu dans le chapitre 4 qu'une chambre à fission peut être caractérisée par une constante, appelée "constante caractéristique  $\Gamma$ ", définie comme étant le nombre de fissions par seconde nécessaire pour produire un courant de 1 A.

L'expression théorique de  $\Gamma$  est donnée par la formule suivante, reprise du chapitre 4 :

$$\Gamma = \frac{R_f}{I} = \left( \frac{\pi L^4}{69} e^{-\pi(r_c - r_a)^2} (2r_c + r_a) P \frac{A}{W} \right)^{-1}$$

où :

- P : pression du gaz,
- A : pouvoir d'arrêt moyen des produits de fission dans le gaz,
- W : potentiel d'ionisation du gaz,
- $r_c$  : rayon intérieur de la cathode,
- $r_a$  : rayon extérieur de l'anode.

La constante  $\Gamma$  dépend donc des facteurs suivants :

- dimensions géométriques de la chambre,
- nature et pression du gaz de remplissage,
- nature des particules chargées ionisantes (nature du dépôt fissile).

L'objectif de l'utilisation d'une CFDC est de mesurer en ligne la constante caractéristique d'un isotope de référence  $\Gamma_{ref}$  (uranium 235) et de l'appliquer, dans certaines conditions, à une chambre ayant comme dépôt un actinide mineur pour déterminer en ligne le taux de fission de ce dernier. Cette expérience pourrait être réalisée à l'aide de deux chambres à fission à simple corps (CFSC) irradiées côte à côte ; mais pour s'affranchir d'une erreur possible engendrée par deux pressions d'argon différentes dans les deux CFSC, nous avons souhaité développer un nouveau détecteur contenant deux dépôts fissiles contenus dans une seule enceinte à la même pression d'argon : c'est le principe de la chambre à fission à double corps (cf. figure 6.1).

Dans ces conditions, et d'après la formule ci-dessus, le taux de fission du dépôt de l'une des chambres peut être déduit en déterminant le taux de fission de la chambre adjacente et en mesurant leurs courants de saturation :

$$R_{fact} = \frac{I_{act}}{I_{ref}} R_{ref} \quad (\text{Équation 6.1})$$

Cela laisse évidemment supposer que les pouvoirs d'arrêt des produits de fission dans les deux chambres sont identiques.

Le taux de fission de l'élément de référence (uranium 235) est donné par :

$$R_{fref}(t) = N \times \sigma_f \times \Phi = N_{av} \frac{m_{ref0}}{M_{ref}} \frac{\sigma_f}{\sigma_a} \gamma_a \frac{I_{ref}(t)}{I_{ref0}} \quad (\text{Équation 6.2})$$

où :

- $\sigma_f$  et  $\sigma_a$  : respectivement les sections efficaces de fission et d'absorption de l' $^{235}\text{U}$ , moyennées sur le spectre de V4,
- $m_{ref0}$  : masse initiale de l' $^{235}\text{U}$ ,
- $M_{ref}$  : masse molaire de l' $^{235}\text{U}$ ,
- $I_{ref}(t)$  : courant mesuré par la chambre de référence à l'instant  $t$ ,
- $I_{ref0}$  : courant mesuré par la chambre de référence à l'instant  $t = 0$ ,
- $\gamma_a$  : coefficient directeur expérimental de la droite  $\ln(I_{ref}(t)) = \gamma_a t + b$ ,
- $N_{av}$  : nombre d'avogadro.

## 6.2. Schéma d'une chambre à fission à double corps

La figure 6.1 ci-dessous présente un schéma de principe d'une chambre CFDC telle qu'elle a été imaginée au début de ce travail. Chaque porte-dépôt est relié via un câble minéral à une chaîne électronique. Les deux chaînes électroniques sont identiques mais indépendantes.

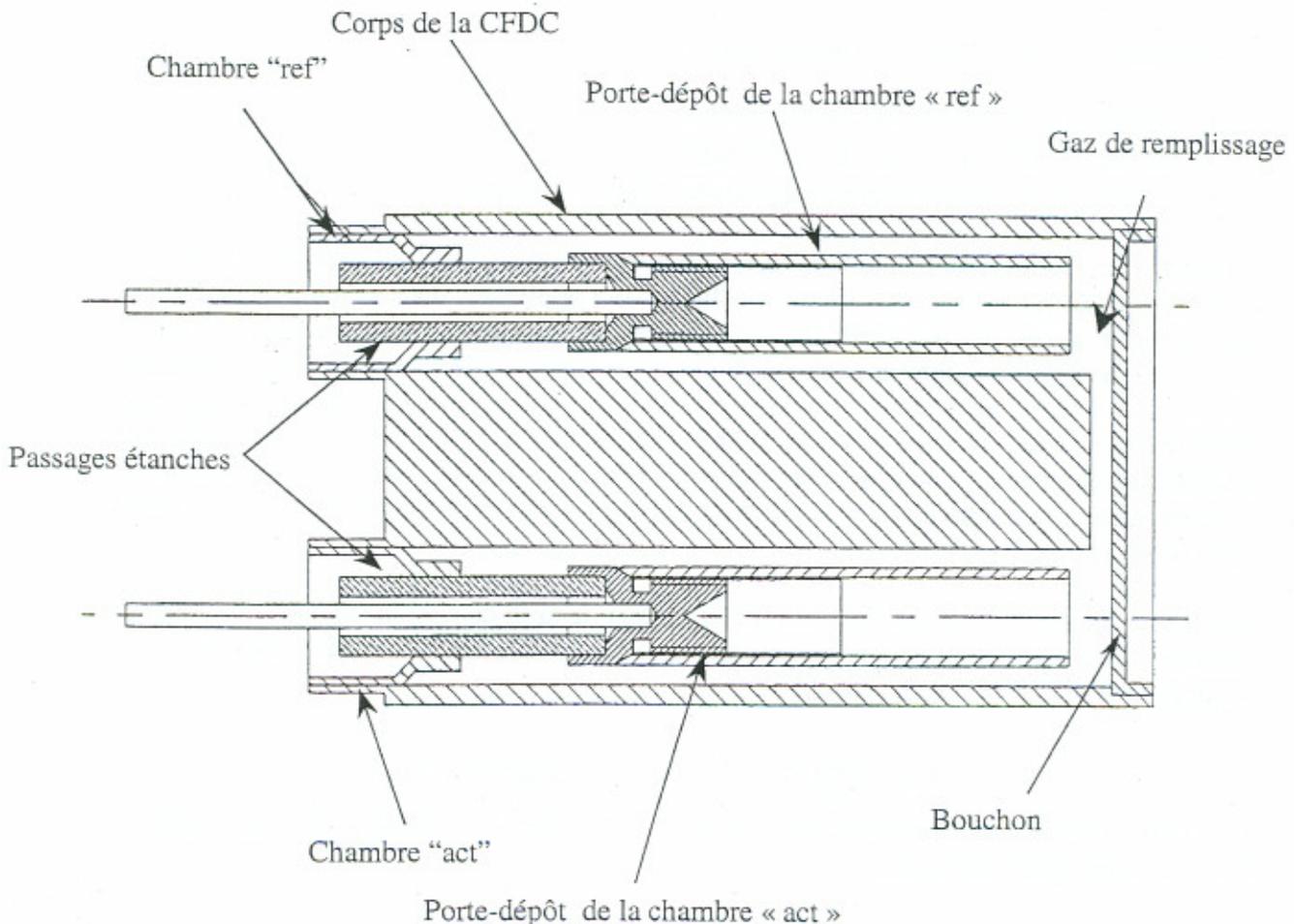


Figure 6.1: Schéma de principe d'une Chambre à Fission à Double Corps (CFDC)

### 6.3. Rendement de fission

Techniquement, il est possible de réaliser une CFDC caractérisée par deux parties semblables avec le même gaz à la même pression. La vérification de la quatrième condition du § 10.1 (même nature de particules chargées) n'est pas immédiate. Cette problématique peut être également traitée au niveau du pouvoir d'arrêt. En effet, comme le montre la formule de la constante caractéristique  $\Gamma$ , l'application de la constante déterminée par la chambre de référence sur celle d'actinide suppose que les particules chargées ionisantes, en l'occurrence les produits de fission, cèdent, en moyenne, la même énergie, par ralentissement et ionisation, dans la chambre à fission. L'énergie cédée dans la chambre est proportionnelle au pouvoir d'arrêt du produit de fission dans l'espace gazeux. H. Bethe a montré que le pouvoir d'arrêt d'une particule chargée de numéro atomique  $Z$  et de vitesse  $V$  dans un milieu donné s'écrit ainsi [38] :

$$A = - \frac{4\pi e^4 Z^2}{m_0 V^2} Nl B1$$

$m_0$  étant la masse de l'électron,  $Nl$  dépend du milieu traversé,  $B1$  est un coefficient de correction quantique et  $e$  la charge élémentaire électronique.

Si l'on accepte l'hypothèse que l'énergie cinétique d'un produit de fission est très peu dépendante de l'isotope fissile, il nous reste à comparer les «  $Z^2$  » moyennés sur le spectre de rendement de fission pour les isotopes fissiles concernés.

Dans la chambre de référence, le dépôt est toujours de l' $^{235}\text{U}$ . Dans les autres cas à étudier, les isotopes à considérer sont :

- $^{237}\text{Np}$ ,
- $^{241}\text{Am}$ ,
- $^{239}\text{Pu}$ .

Les principaux éléments fissiles apparaissant durant l'évolution de ces isotopes sont :

- $^{239}\text{Pu}$ ,
- $^{241}\text{Pu}$ ,
- $^{238}\text{Np}$ ,
- $^{242}\text{Am}$ .

C'est à ces isotopes que nous allons nous intéresser.

Pour un élément donné, la bibliothèque ENDF-349 donne pour chaque isotope la probabilité d'être émis d'une fission de l'élément considéré. A partir de ces fichiers, nous calculons la valeur de  $Z^2$  moyennée sur la probabilité d'émission lors d'une fission.

Dans le tableau 6.1 sont présentées les valeurs moyennes de  $Z^2$  pour les isotopes fissiles qui nous intéressent en particulier. L'écart en  $\langle Z^2 \rangle$  de ces isotopes par rapport à celui de l'uranium 235 varie de +1,5 à +5 %. Cela représentera une source d'erreur dans la détermination de taux de fission de l'actinide mineur étudié par application de l'équation 1. Cette erreur est à prendre en compte dans le calcul d'erreur globale sur le taux de fission expérimental.

Tableau 6-1: Valeur moyenne de  $Z^2$  des actinides fissiles et leurs écarts par rapport à l'élément de référence ( $^{235}\text{U}$ ).

Actinide	$^{235}\text{U}$	$^{239}\text{Pu}$	$^{241}\text{Pu}$	$^{238}\text{Np}$	$^{242}\text{Am}$
$\langle Z^2 \rangle$	$2,33 \cdot 10^3$	$2,39 \cdot 10^3$	$2,41 \cdot 10^3$	$2,37 \cdot 10^3$	$2,44 \cdot 10^3$
Ecart par rapport à l' $^{235}\text{U}$ (%)	-	+ 2,6	+ 3,4	+ 1,5	+ 4,7

Si maintenant nous considérons que l'énergie cinétique dépend du produit de fission émis, ce qui est vrai, nous pouvons montrer que la perte d'énergie d'un PF peut se paramétrer ainsi en fonction de sa masse et de celle du noyau fissile :

$$\Delta E_i \approx \frac{M_i^2 \cdot M}{(M - M_i)^2} \quad \text{Équation 6.3}$$

où M est la somme des masses des deux produits de fission émis lors d'une même fission et M<sub>i</sub> la masse du PF considéré.

Ainsi on peut écrire que l'énergie moyenne déposée pour une fission est :

$$\langle \Delta E \rangle = \sum_{PF} \Delta E_i Y_i$$

où Y<sub>i</sub> est le rendement massique de fission pour le fragment i (tabulé dans la bibliothèque ENDF-349), et ΔE<sub>i</sub> sa perte d'énergie calculée par l'équation 6.3.

Dans le tableau ci-dessous sont présentées les énergies moyennes déposées par les PF en fonction des noyaux fissiles et les écarts relatifs par rapport à l' $^{235}\text{U}$ .

Noyau fissile	$\langle \Delta E \rangle$ (u.a)	Écarts % / $^{235}\text{U}$
$^{235}\text{U}$	39183	-
$^{239}\text{Pu}$	37181	-5,1
$^{238}\text{Np}$	38918	-0,7
$^{242}\text{Am}$	37578	-4,1

En conclusion, on observe une dépendance de quelque % de la perte d'énergie en fonction de la nature du dépôt fissile. Il semble apparaître que plus la masse fissile augmente et plus la perte d'énergie moyenne des PF diminue et donc plus les courants mesurés diminuent à taux de fission donné. Par conséquent, dans le cas des chambres à fission à double corps, l'équation 6.1 peut être utilisée à condition d'appliquer une incertitude systématique de 5 %.

## 6.4. Interférence de champs électriques

Une condition externe mais nécessaire pour appliquer l'équation 1 est l'indépendance électrique entre les deux chambres « ref » et « act ». En effet, le champ électrique régnant dans « ref » ne doit avoir aucune influence sur les particules chargées dans « act ». Or, dans la zone de communication entre les deux parties de la CFDC règne un champ électrique de fuite  $E_f$ . La problématique réside dans la recherche de conditions qui conduisent à ce que le champ électrique résultant de la somme des deux champs de fuite créés par chaque chambre s'annule par compensation (cf. figure 6.2).

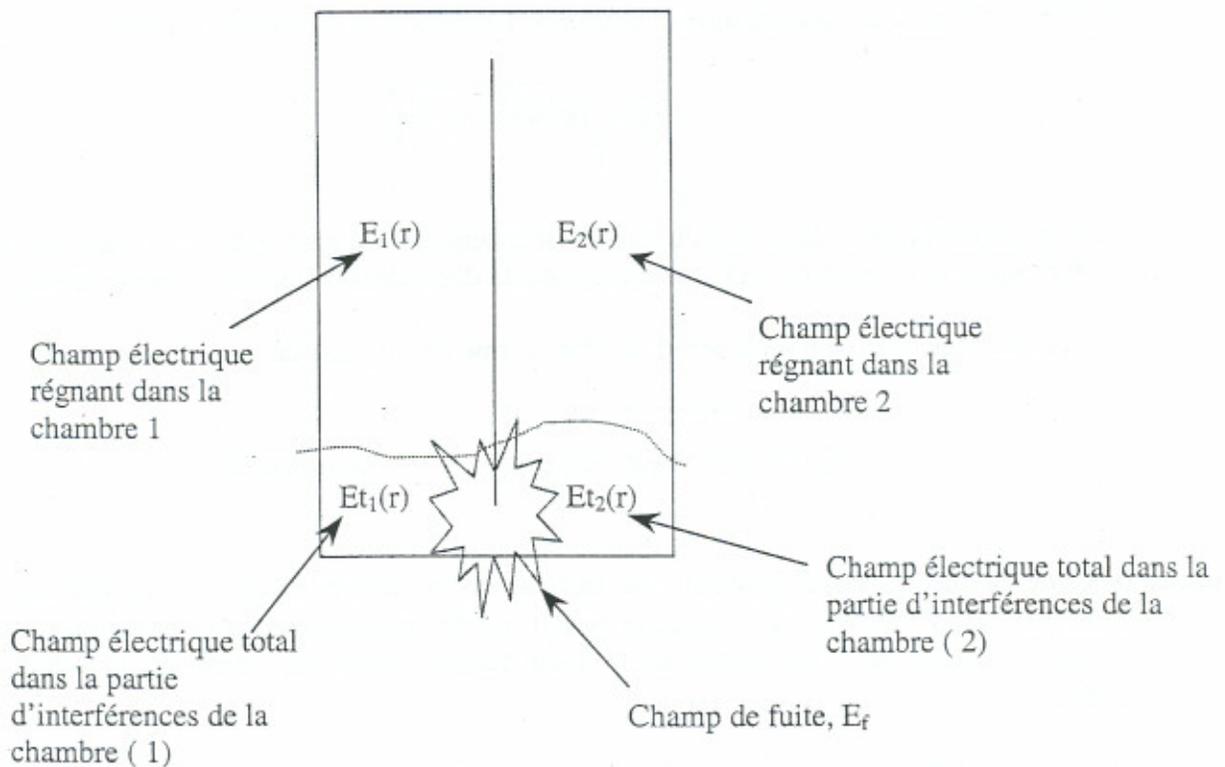


Figure 6.2 : Schéma de la CFDC montrant l'évidence de la zone d'interférences électriques

Dans un point de la zone d'interférences, le champ électrique total ( $\vec{E}_t$ ) est la somme du champ électrique en absence de fuite ( $\vec{E}$ ) et le champ de fuite ( $\vec{E}_f$ ).

$$\vec{E}_t(r) = \vec{E}(r) + \vec{E}_f(r)$$

L'intensité du champ de fuite en fonction des autres composantes électriques est exprimée ainsi :

$$E_f^2 = E_t^2 + E^2 - 2E_t E \quad (\text{Équation 6.4})$$

on va mettre :  $E_{f0}^2 = E_t^2 + E^2$

Le champ électrique total de fuite est la somme des deux champs de fuite créés par chaque chambre :

$$\vec{E}_f = \vec{E}_{f1} + \vec{E}_{f2}$$

Les deux champs  $\vec{E}_{f1}$  et  $\vec{E}_{f2}$  sont soumis à l'équation 6.4 et sont de sens opposés, ainsi l'intensité du champ total de fuite est donnée par :

$$E_f = E_{f1} - E_{f2}$$

D'après le formalisme du chapitre 4, le champ électrique E s'écrit sous la forme :

$$E(r) = \sqrt{\alpha e N_0 (\alpha r^2 - \beta) + \frac{C}{r^2}}$$

où  $\alpha$  ne dépend que de la nature du gaz,  $\beta$  est fonction de la nature du gaz et des dimensions géométriques de la chambre et C est une constante dépendant de la haute tension appliquée.

On suppose que le champ total prend la même forme en fonction de la distance radiale :

$$E_t(r) = \sqrt{\alpha e N_0 t (\alpha r^2 - \beta_t) + \frac{C_t}{r^2}} \quad \text{Équation 6.5}$$

$\alpha$  garde la même valeur puisqu'il ne dépend de la nature du gaz de remplissage. Les constantes  $N_0$ ,  $\beta$  et C varient puisque la zone d'interférence présente une géométrie différente et que le champ électrique déduit de la haute tension influe lui-même sur la valeur de la constante C.

Pour que la zone d'interférence soit électriquement neutre, il faut que  $E_f = 0$ . L'un des états où cette condition se réalise, d'après l'équation 6.4, est :

$$E_{f01} = E_{f02} \quad (\text{Équation 6.6}) \quad \text{et} \quad E_{t1} E_1 = E_{t2} E_2 \quad (\text{Équation 6.7})$$

Le développement de calcul d'après les expressions des champs E et  $E_t$  montre que l'égalité (équation 6.7) se réalise si :

- $C_{t1} = C_{t2}$ ,            (\*\*1)
- $C_1 = C_2$ ,                (\*\*2)
- $N_{01} = N_{02}$             (\*\*3)

Avec ces conditions, l'égalité (Equation 6.6) se vérifie systématiquement.

Les conditions (\*\*1) et (\*\*2) se réalisent lorsque les hautes tensions appliquées dans chacune des chambres sont identiques. La condition (\*\*3) se vérifie si les taux de fission dans chacune

de ces deux chambres sont du même ordre de grandeur. La signification physique de ces deux conditions apparaît dans le fait que le champ de fuite dépend aussi bien du champ électrique externe appliqué que du champ interne créé par les charges d'espace dans l'espace gazeux.

## 6.5. Choix des caractéristiques de la CFDC

Quatre CFDC ont été fabriquées en collaboration avec le CEA/Cadarache et la société Photonis :

- $^{235}\text{U} + ^{239}\text{Pu}$
- $^{235}\text{U} + ^{241}\text{Am}$
- $^{235}\text{U} + ^{237}\text{Np}$
- $^{235}\text{U} + \text{sans dépôt}$

Le gaz de remplissage, dans toutes ces chambres, est de l'argon à une pression de 1,1 bar.

### 6.5.1. CFDC $^{241}\text{Am} - ^{235}\text{U}$

#### 6.5.1.1. Evolution de l' $^{241}\text{Am}$ dans un flux de neutrons

Durant l'évolution de l' $^{241}\text{Am}$ , les éléments fissiles les plus importants, par leur contribution dans le courant délivré par la chambre à fission, qui sont créés, sont principalement l' $^{242\text{m}}\text{Am}$ , le  $^{243}\text{Cm}$  et le  $^{239}\text{Pu}$ . Leurs caractéristiques neutroniques sont présentées dans le tableau 6.2. Leur processus de formation à partir de  $^{241}\text{Am}$  est présenté dans la figure 6.3.

Tableau 6-2: Sections efficaces moyennées sur le spectre dans V4 calculée par MCNP

Actinide	$^{242\text{m}}\text{Am}$	$^{243}\text{Cm}$	$^{239}\text{Pu}$
fission (barn)	5033,71	521,83	602,22
capture (barn)	1497,47	44,95617731	252,38
T1/2 (ans)	141	29,1	24110
Bibliothèque	endl85 LLNL	endf60 B-VI.0	endf60 B-VI.2

Pour calculer l'évolution du signal de la chambre à  $^{241}\text{Am}$  en fonction de la fluence, la première étape consiste à évaluer celle de la composition isotopique. Ensuite le courant total délivré par le détecteur est la somme de toutes les contributions dues à chaque isotope fissile calculées avec notre modèle.

On trouve par simulation que le courant délivré par la chambre d'américium 241 continue de croître jusqu'au 3<sup>ème</sup> jour d'irradiation puis il décroît jusqu'à ce qu'il atteigne 50 % de sa valeur maximale au bout de 20 jours (cf. figure 6.4). Ce comportement est dû à l'apparition de l' $^{242\text{m}}\text{Am}$  dans les premiers jours de l'irradiation puis à sa disparition progressive. L' $^{242\text{m}}\text{Am}$  se consomme plus qu'il ne se forme du fait des sections efficaces mises en jour (calculées par le code MCNP) (cf. tableau 6.2).

L' $^{242\text{m}}\text{Am}$  est le principal contributeur au signal délivré par la chambre dès les premières heures d'irradiation. Après 20 jours de séjour dans V4, la fission de cet isotope donne environ

50 % du signal total, 25 % de celui-ci provenant de la fission de l'isotope  $^{243}\text{Cm}$  et 17 % du  $^{239}\text{Pu}$  (cf. figure 6.5). D'autres éléments participent, mais très faiblement, au signal total (notamment le  $^{242}\text{Cm}$  qui a une section efficace de fission moyennée de 2 barns).

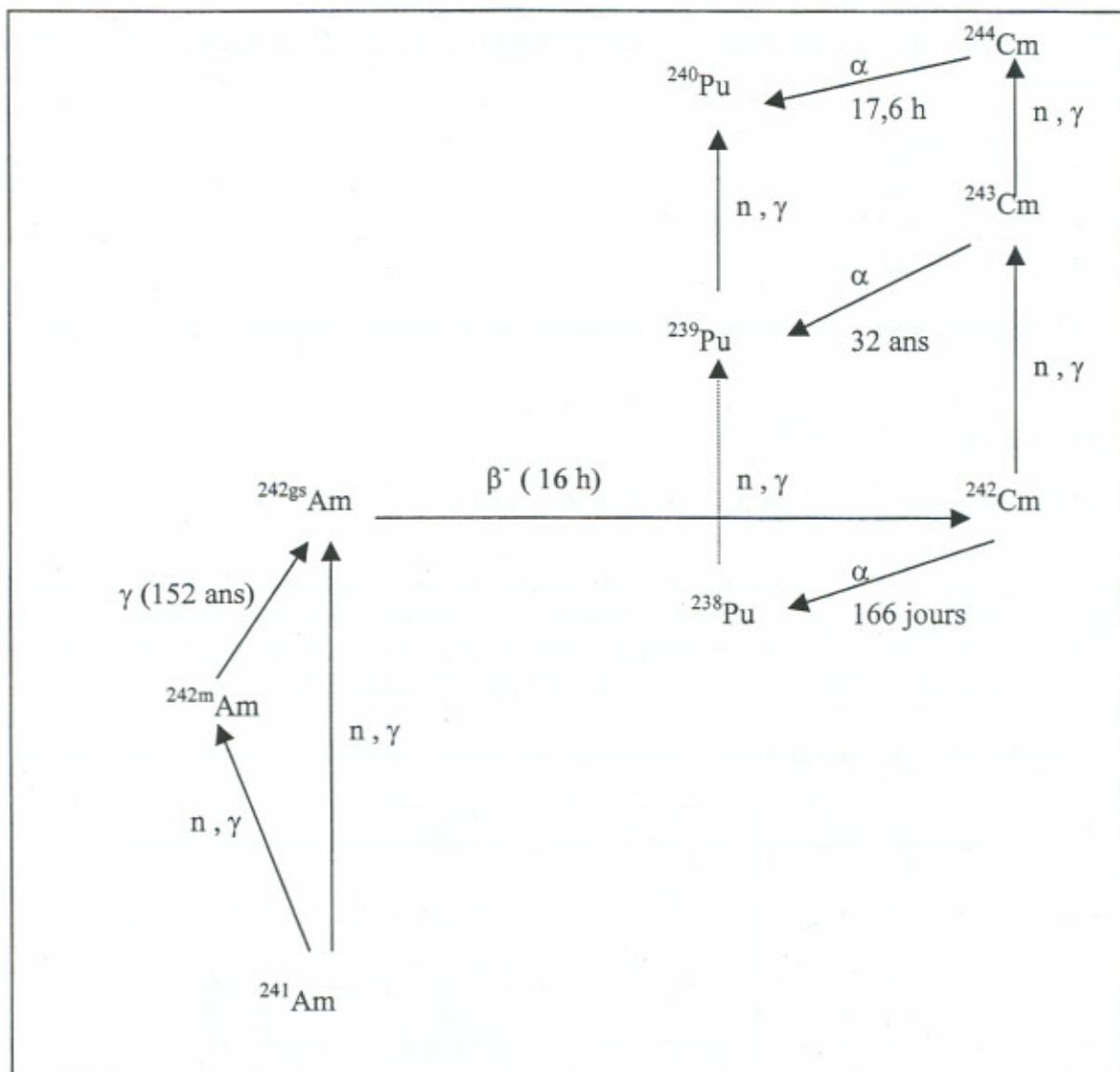


Figure 6.3: Chaîne d'évolution de l'américium 241

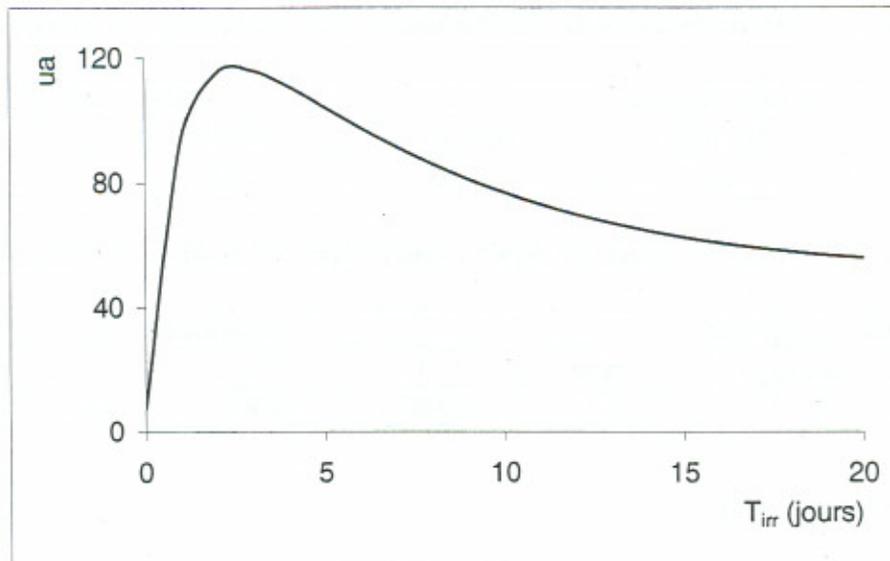


Figure 6.4: Simulation du courant électrique délivré par la chambre d'<sup>241</sup>Am durant son irradiation dans V4, déterminé par simulation

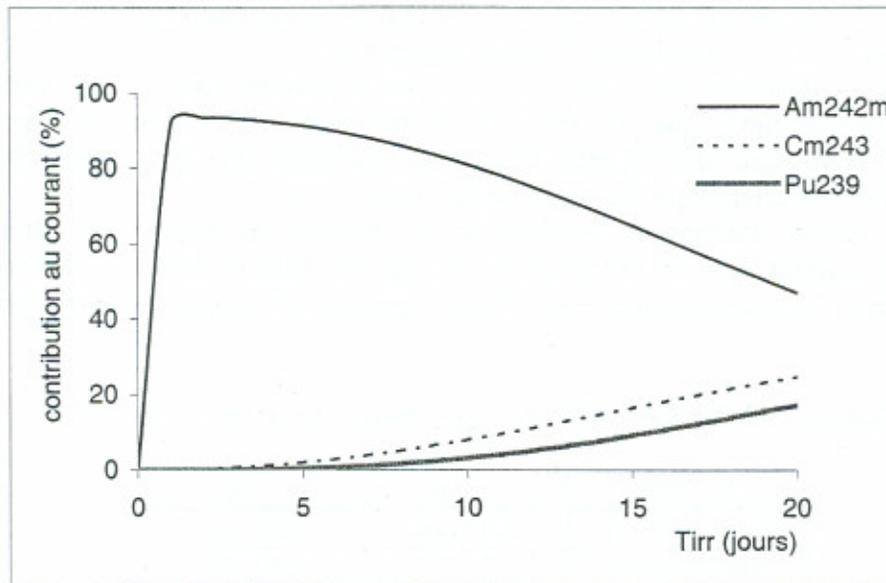


Figure 6.5: Evolution simulée des principales contributions au signal total délivré par la chambre d'<sup>241</sup>Am

### 6.5.1.2. La masse déposée de l'américium 241

On estime qu'une masse de 70  $\mu\text{g}$  d'<sup>241</sup>Am donne un taux de fission maximal comparable à celui de 15  $\mu\text{g}$  d'<sup>235</sup>U dans le flux du RHF ( $\sim 10^{10}$  fissions. $\text{s}^{-1}$ ) et un flux de saturation supérieur à celui de l'irradiation, ce qui permettra à la chambre de fonctionner en régime de saturation. Le dépôt présente un pourcentage d'environ 0,4 % de <sup>237</sup>Np (cf. tableau 6.3).

L'uranium déposé sur le porte-dépôt de la chambre « act » est issu du même lot que celui utilisé pour les chambres à simple corps décrites dans le chapitre précédent. La masse d'<sup>235</sup>U déposée est de 16,34  $\mu\text{g}$  (cf. tableau 6.4).

**Tableau 6-3: Caractéristiques du dépôt d'américium 241 réalisé par électrolyse**

masse déposée			Constituants (%)	
m (µg)	Δm (µg)	Δm/m	Am241	237Np
68,04	0,26	0,4 %	99,6	0,4

**Tableau 6-4: Caractéristiques du dépôt d'américium 241 réalisé par électrolyse**

masse déposée			Constituants (%)			
m (µg)	Δm (µg)	Δm/m	<sup>234</sup> U	<sup>235</sup> U	<sup>236</sup> U	<sup>238</sup> U
16,34	0,15	0,9 %	0,063	98,49	0,038	1,49

## 6.5.2. CFDC <sup>237</sup>Np – <sup>235</sup>U

### 6.5.2.1. Evolution de du <sup>237</sup>Np sous haut flux de neutrons

Au cours de l'évolution sous flux d'un échantillon de <sup>237</sup>Np, l'élément fissile prépondérant formé est le <sup>238</sup>Np. Il apparaît également du <sup>239</sup>Pu mais sa contribution au courant reste faible au début d'irradiation devant celle du <sup>238</sup>Np (cf. figure 6.6).

La section efficace de fission du <sup>238</sup>Np moyennée sur le spectre dans V4 est 1498 barn, soit plus de deux fois plus élevée que celle du <sup>239</sup>Pu (cf. tableau 6.5). Cependant la contribution du <sup>239</sup>Pu atteint 17 % du signal délivré après 10 jours d'irradiation, puis 30 % après 15 jours dans le flux de neutrons caractéristique du canal V4 (cf. figure 6.7).

La figure 6.8 montre l'allure du courant de la chambre du neptunium déterminé par simulation. Ce courant suit en fait l'allure de taux de fission total de l'échantillon qui augmente au fur et à mesure que des corps fissiles apparaissent au cours d'évolution du dépôt du neptunium.

**Tableau 6-5: Sections efficaces moyennées sur le spectre dans V4**

Actinide	<sup>238</sup> Np	<sup>239</sup> Pu
fission (barn)	1498,44	602,22
capture (barn)	71,2	252,38
T1/2	2,1 jours	24110 ans
Bibliothèque	endl85 LLNL	endf60 B-VI.2

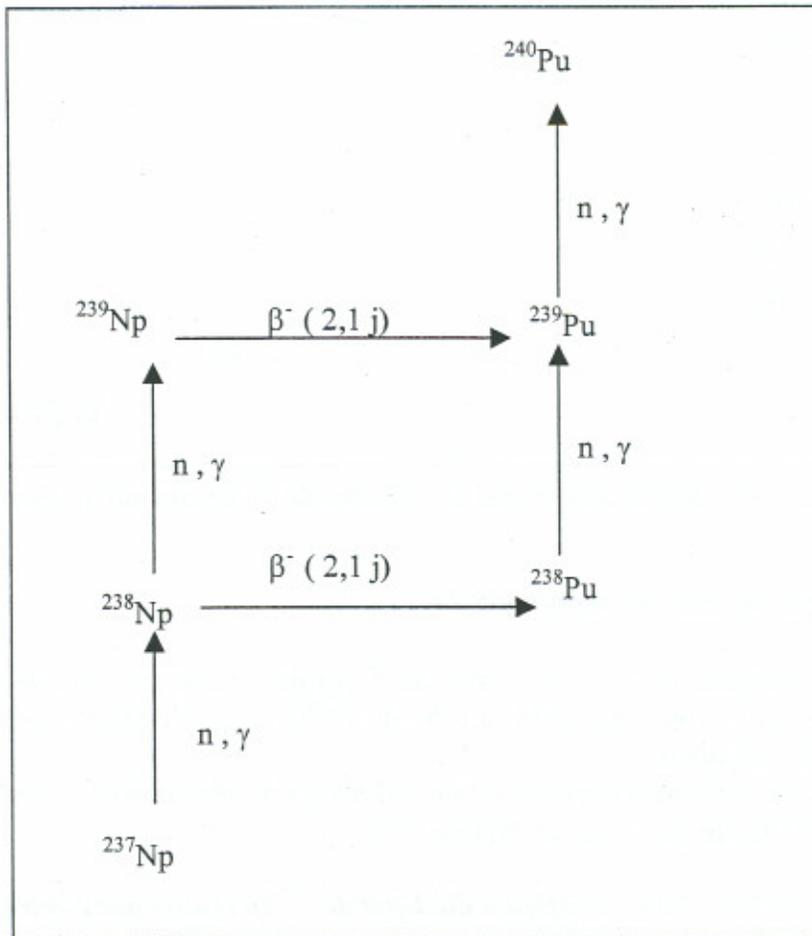


Figure 6.6: Chaîne d'évolution du  $^{237}\text{Np}$

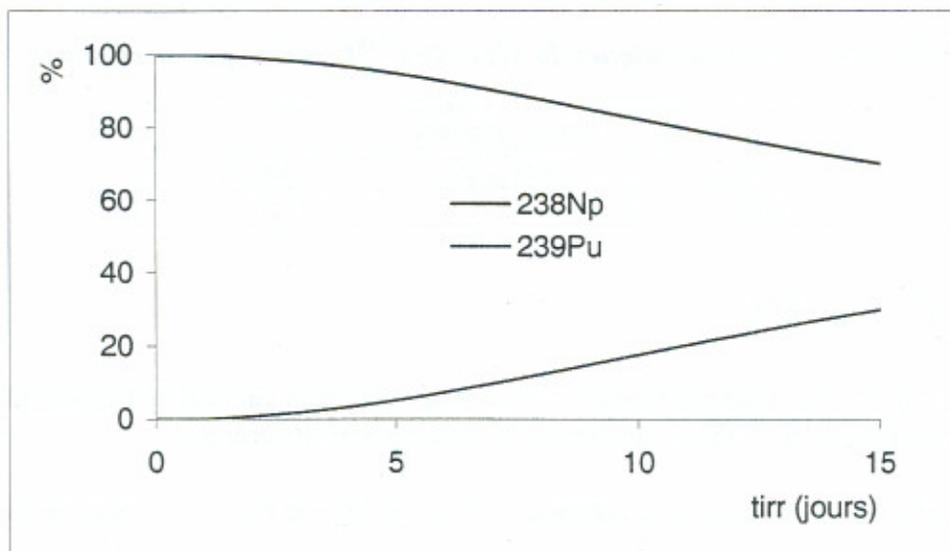


Figure 6.7 : Evolution des contributions du  $^{238}\text{Np}$  et du  $^{239}\text{Pu}$  au courant total de la chambre au  $^{237}\text{Np}$

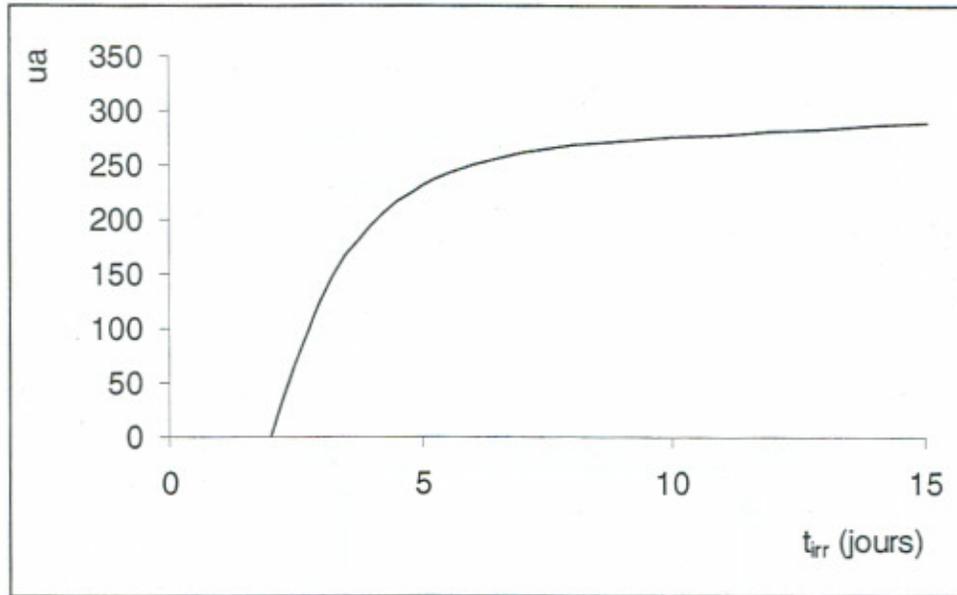


Figure 6.8: Signal délivré par la chambre de  $^{237}\text{Np}$  en unité arbitraire

#### 6.5.2.2. La masse déposée du neptunium 237

Comme pour la chambre d' $^{241}\text{Am}$ , la masse de  $^{237}\text{Np}$  est choisie telle que le taux de fission maximal de neptunium soit comparable à celui de l' $^{235}\text{U}$ , et que le régime de saturation de la chambre soit toujours atteint.

La masse de  $^{237}\text{Np}$  réellement déposée est de 103,9  $\mu\text{g}$  (cf. tableau 6.6) et celle de l'uranium est, pour cette CFDC, de 14,27  $\mu\text{g}$  (cf. tableau 6.7).

Tableau 6-6 : Caractéristiques du dépôt de  $^{237}\text{Np}$  réalisé par électrolyse

masse déposée			Composition isotopique (%)
m ( $\mu\text{g}$ )	$\Delta m$ ( $\mu\text{g}$ )	$\Delta m/m$	$^{237}\text{Np}$
103,9	2,6	2,5 %	100

Tableau 6-7: Caractéristiques du dépôt de  $^{235}\text{U}$  réalisé par électrolyse

masse déposée		
m ( $\mu\text{g}$ )	$\Delta m$ ( $\mu\text{g}$ )	$\Delta m/m$
14,27	0,15	1,1 %

#### 6.5.3. CFDC $^{239}\text{Pu} - ^{235}\text{U}$

Le rôle de la CFDC dont l'actinide est le  $^{239}\text{Pu}$ , est de vérifier la validité de l'équation 6.1. En effet, le taux de fission du  $^{239}\text{Pu}$  est déterminé de deux façons différentes :

- En appliquant l'équation 6.1, autrement dit en relatif par rapport au taux de fission de l' $^{235}\text{U}$ ,
- En considérant seulement les données nucléaires de cet isotope qui sont connues également avec une grande précision.

La masse du  $^{239}\text{Pu}$  déposée est de 21,81  $\mu\text{g}$  (cf. tableau 6.8) et celle d'uranium 235 est de 16,69  $\mu\text{g}$  (cf. tableau 6.9).

**Tableau 6-8 : Caractéristiques du dépôt du  $^{239}\text{Pu}$  réalisé par électrolyse**

masse déposée			Constituants (%)			
m ( $\mu\text{g}$ )	$\Delta\text{m}$ ( $\mu\text{g}$ )	$\Delta\text{m}/\text{m}$	$^{238}\text{Pu}$	$^{240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Pu}$	$^{242}\text{Pu}$
21,81	2,6	2,5 %	0,0025	0,893	0,0035	0,01

**Tableau 6-9: Caractéristiques du dépôt de  $^{235}\text{U}$  réalisé par électrolyse**

masse déposée		
m ( $\mu\text{g}$ )	$\Delta\text{m}$ ( $\mu\text{g}$ )	$\Delta\text{m}/\text{m}$
16,69	0,05	0,3 %

#### 6.5.4. CFDC « sans dépôt »

La chambre CFDC « sans dépôt » est telle que la partie « act » ne possède aucun actinide (la partie « ref » présente toujours de l'uranium 235). Elle a comme objectif la mesure du « bruit », c'est à dire le courant qui ne provient pas de fissions (photo-ionisation dans la partie sensible, réactions diverses dans le câble,...).

La masse d'uranium 235 déposée est, pour cette dernière chambre, de 17,18  $\mu\text{g}$  (cf. tableau 6.10).

**Tableau 6-10: Caractérisation du dépôt de  $^{235}\text{U}$  réalisé par électrolyse**

masse déposée		
m ( $\mu\text{g}$ )	$\Delta\text{m}$ ( $\mu\text{g}$ )	$\Delta\text{m}/\text{m}$
17,18	0,05	0,3 %

## 6.6. Fabrication de la chambre CFDC

La Chambre à Fission à Double Corps a pour élément de base deux chambres à simple corps de 4 mm de diamètre externe (CF4). La CFDC a un diamètre global de 17 mm et de 60 mm de longueur (cf. figure 6.9). Cette chambre a été réalisée par la société Photonis en collaboration avec CEA/Cadarache.

La figure 6.10 présente une photographie de la CFDC avec le câblage associé.

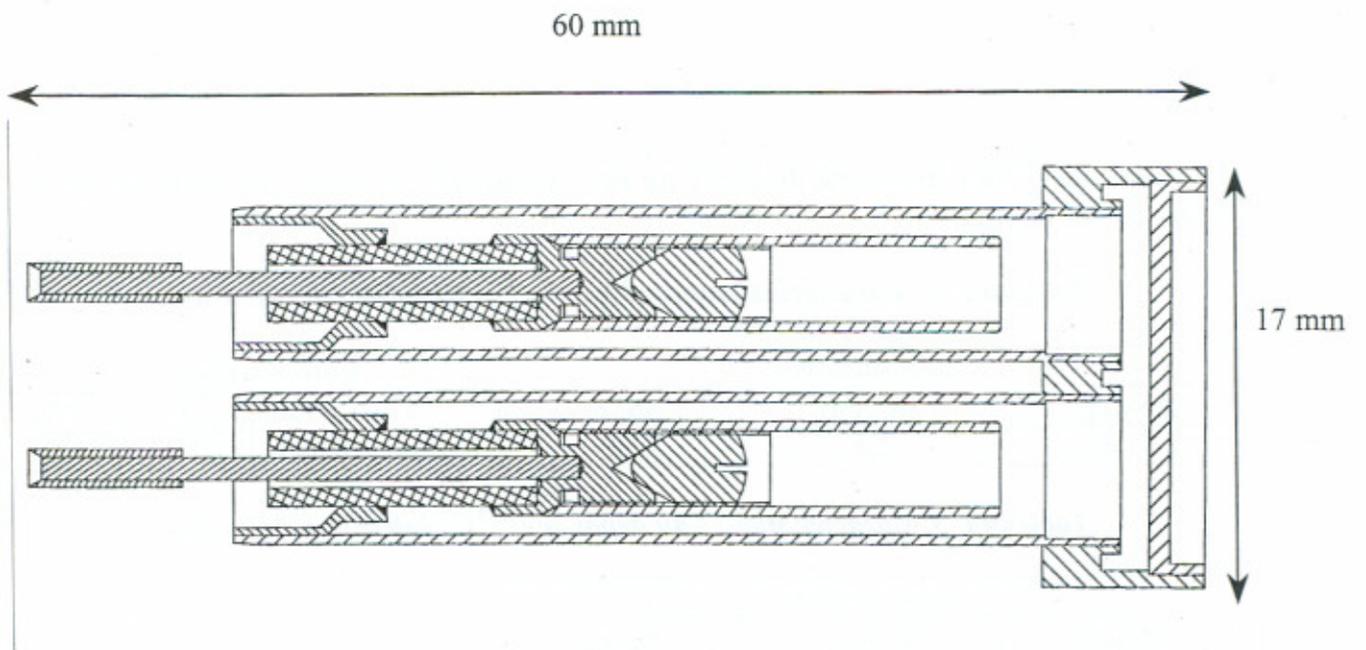


Figure 6.9: Partie basse de chambre à fission à Double Corps telle qu'elle a été réalisée

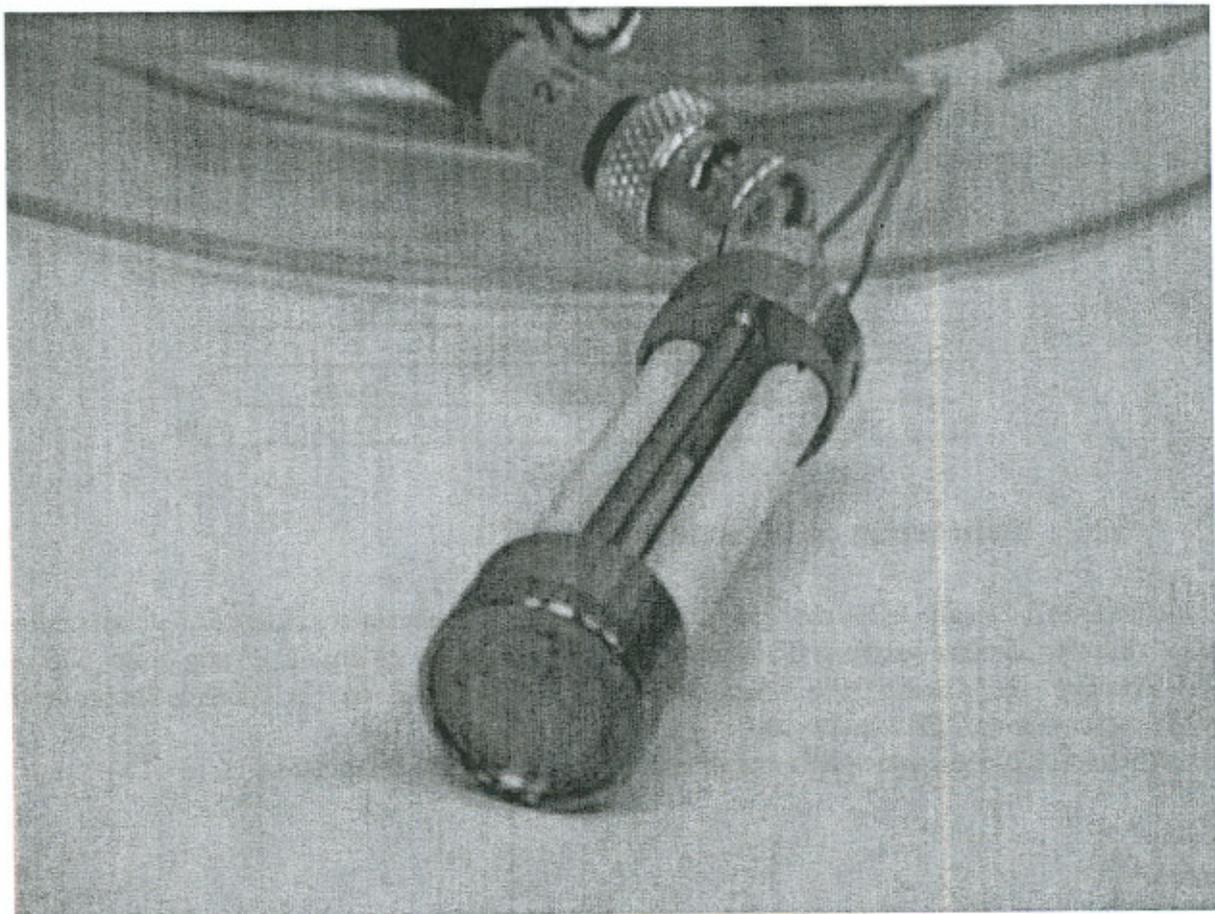


Figure 6.10: Photographie de la CFDC avec le câblage associé

**Partie III :**  
**Expériences dans le réacteur à haut**  
**flux**  
**commentaires et analyses**



# Chapitre 7 : Réacteur à haut flux : structures, modélisation et mesures thermiques

## 7.1. Présentation générale

L'Institut Laue-Langevin a été créé en 1967. Il fut le résultat d'une longue discussion entre les scientifiques, les ingénieurs et les diplomates de deux pays : l'Allemagne et la France [39]. L'institut a eu comme but la mise en œuvre, puis l'utilisation d'un réacteur à haut flux de neutrons. Les domaines de recherche auxquels le réacteur était destiné au début de sa création étaient principalement la physique nucléaire, la physique des solides (solides parfaits et imparfaits, substances amorphes et cristallographie) et la biologie macromoléculaire.

Pour satisfaire ces besoins, le réacteur a été, dès le début, conçu et équipé de telle façon à avoir accès aux différentes valeurs de flux de neutrons et cela pour des spectres neutroniques très variés :

- Dans le réflecteur à eau lourde tout près du combustible, le flux de neutrons est plutôt épithermique (~80 % de neutrons thermalisés) et atteint une valeur qu'on estime, par mesures et par calculs, de  $1,8 \cdot 10^{15} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ,
- A quelques dizaines de centimètres du combustible, toujours dans le réflecteur, le spectre est totalement thermalisé (98 % de neutrons thermiques) avec une intensité de l'ordre de  $6 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ .
- Un spectre de neutrons froids d'énergie inférieure à environ 5 meV est obtenu à l'aide d'une source ultra-froide à base de deutérium liquide à  $-250 \text{ }^\circ\text{C}$ .
- Une source chaude constituée d'un cylindre de graphite dont la température est maintenue à  $2000 \text{ }^\circ\text{K}$  par chauffage nucléaire.

Le flux de neutrons élevé est obtenu avec un cœur hautement enrichi en  $^{235}\text{U}$  (93%). Le niveau de puissance est fixé à 57 MW pour obtenir le flux maximal souhaité.

## 7.2. Principaux constituants du cœur du réacteur

### *Cœur du réacteur :*

Le cœur du réacteur est constitué de trois régions concentriques :

1. La région centrale de 26 cm de diamètre qui est utilisée pour contrôler le réacteur à l'aide d'une barre de nickel cylindrique, commandée par le dessous.
2. La région combustible constituée d'un élément unique annulaire entoure la région précédente. Cet élément, de 40 cm de diamètre extérieur et de 90,3 cm de longueur, contient 280 plaques courbes entre deux viroles d'alliage d'aluminium. La zone combustible uniforme de 80 cm de haut contient 8,6 kg d' $^{235}\text{U}$ . Les plaques

combustibles se terminent en haut et en bas par une petite zone contenant au total 5,8 g de bore  $^{10}\text{B}$ . Ce bore a une durée de vie telle qu'il permet de diminuer l'efficacité de la barre de pilotage, (cf. figure 7.1).

3. Un réflecteur d'eau lourde qui ralentit et thermalise les neutrons rapides du cœur.

Le combustible et le réflecteur sont contenus dans un bidon d'eau lourde de 1,25 m de diamètre. Ce bidon est placé au fond d'une piscine d'eau légère déminéralisée de 6 m de diamètre et 14 m de profondeur. Cette piscine est au centre d'un bâtiment cylindrique de 60 m de diamètre constitué par une double enceinte de sécurité : la première est en béton de 40 cm d'épaisseur l'autre en acier. Une surpression d'air propre est maintenue en permanence entre les deux enceintes pour éviter les fuites non contrôlées vers l'extérieur. L'enceinte béton repose sur un radier général alvéolé qui assure une assise stable à l'ensemble.

#### ***Dimensions des plaques combustibles :***

La plaque combustible a les caractéristiques dimensionnelles suivantes [40] :

- Hauteur : 903 mm
- Epaisseur : 1,27 mm
- Epaisseur de l'âme : 0,51 mm
- Epaisseur de la gaine : 0,38 cm

La zone active a pour dimensions :

- Hauteur : 813 mm
- Rayon intérieur : 140 mm
- Rayon extérieur : 195 mm
- Surface d'échange : 10,77 dm<sup>2</sup>

Deux noyaux borés sont situés de part et d'autre du noyau combustible. Chacun a une hauteur de 30 mm.

Entre les plaques, le canal d'eau a une épaisseur nominale de 1,8 mm. La section de passage de l'eau est 3,82 dm<sup>2</sup>.

#### ***Embouts de l'élément combustible :***

Quatre embouts terminent l'élément :

- L'embout intérieur qui porte l'élément sur son siège,
- L'embout intérieur supérieur qui sépare le débit alimentant les canaux entre plaques, la barre de contrôle et le trou central,
- L'embout extérieur inférieur qui guide l'eau à la sortie des plaques,

L'embout extérieur supérieur qui centre l'élément dans la cheminée et détermine le débit de fuite qui passe directement de la cheminée vers le réflecteur sans traverser le cœur. Il comporte 3 verrous anti-envol qui assurent le positionnement de l'élément et évitent son envol en cas d'inversion de débit.

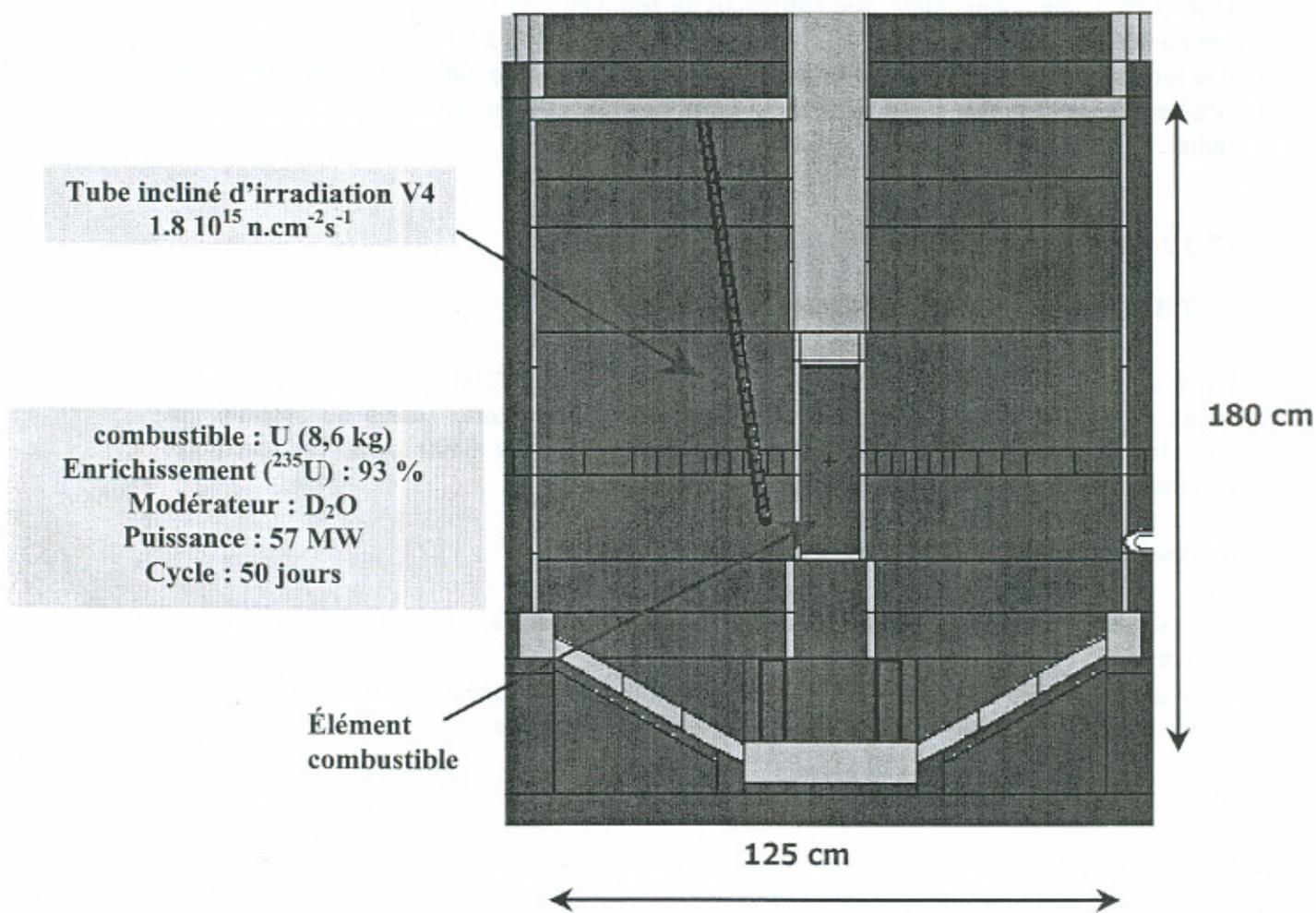


Figure 7.1: Schéma du réacteur à haut flux, utilisé pour les simulations avec le code MCNP

## 7.3 Contrôle du réacteur

Le contrôle de la réactivité durant le cycle du réacteur, se répartit entre un contrôle mécanique assuré par la barre de pilotage central et un contrôle par poison consommable.

### 7.3.1 Bore consommable

Le bore est placé dans chaque plaque combustible de part et d'autre de l'uranium. C'est ainsi que le pic de puissance qui se forme à l'extrémité des plaques en début de vie est éliminé, lorsque les conditions thermodynamiques sont les plus défavorables. Le gain est d'environ 20°C sur la température du point chaud. La masse de bore introduite apporte une antiréactivité de 4500 pcm. Cette valeur évite une antiréactivité résiduelle en fin de vie trop importante : elle est de 400 pcm pour 41,5 % de  $^{235}\text{U}$  consommé et correspond à 90 % de bore brûlés (99% pour le noyau supérieur, 80 % pour le noyau inférieur). La compensation prise en charge par le bore permet de diminuer l'efficacité de la barre centrale et donc de diminuer le facteur de pic radial.

### 7.3.2 Barre de contrôle

#### 7.3.2.1 Caractéristiques de la barre de contrôle

La barre de contrôle centrale en nickel a une efficacité de 17300 pcm. Elle remplit les fonctions de pilotage et de compensation. Entièrement introduite, barres de sécurité en position haute et cœur froid, elle assure une sous-criticité de 3100 pcm. La réactivité différentielle maximale est de 275 pcm/cm.

Il y a deux fonctions que doit remplir la barre de pilotage :

- Assurer le pilotage du réacteur et la compensation de la combustion de l'élément cœur,
- Assurer un rôle de sécurité, c'est-à-dire introduire la barre dans le cœur, dans le sens de la montée, sur un signal de baisse de puissance contrôlée.

La vitesse de la barre peut atteindre, en pilotage normal,  $2,5 \text{ mm.s}^{-1}$ , et en sécurité  $6 \text{ mm.s}^{-1}$ .

La barre est en nickel avec des traces de manganèse, de fer, de silicium, de magnésium, de cuivre, de cobalt et de carbone, présentes avec un pourcentage total de 0,295 %.

La barre a une durée de vie de 1064 JEPP ce qui correspond à 21 cycles de fonctionnement du réacteur de 50 jours en pleine puissance.

Dans le tableau suivant, on peut comparer l'antiréactivité de la barre de contrôle aux autres sources de réactivité ou d'antiréactivité dans le réacteur :

**Tableau 7-1: Différentes sources de réactivité potentielle dans le cœur du réacteur**

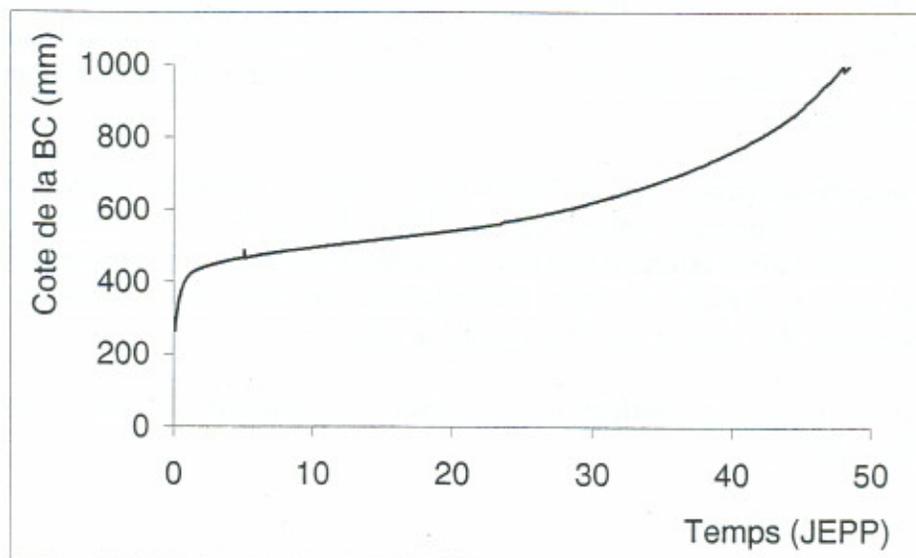
Elément ou effet	Réactivité (pcm)
Combustible à 20 C sans barre de pilotage, avec dispositifs expérimentaux et barres de sécurité en position haute	14 200
Dispositifs expérimentaux	-4 650
Bore 10	-4 500
Barre de pilotage	-17 300
Température	-350
Coefficient de vide	-0,3 pcm.cm <sup>-3</sup> de vide
Barres de sécurité avec barre de pilotage sortie	-28 800
Neutrons retardés	710

### 7.3.2.2 Efficacité de la barre de contrôle durant le cycle du réacteur

L'efficacité de la barre de contrôle n'est ni linéaire ni homogène au long de sa hauteur. La distribution de flux non homogène au long de l'élément combustible et la « vieillesse » de la barre sont à l'origine de cette non-linéarité.

Les figure 7.2 et 7.3 montrent l'évolution mesurée de la cote de la barre durant le cycle du réacteur et l'efficacité de cette barre telles qu'elles nous étaient fournies par l'ILL.

La barre de contrôle présente, lorsqu'elle neuve, un potentiel d'antiréactivité de 17 300 pcm. Sur la figure 7.3, nous lisons l'« efficacité intégrale » de la barre c'est à dire l'antiréactivité de la partie de la barre émergée dans le cœur du réacteur.



*Figure 7.2: Cote de la barre de contrôle durant le cycle du réacteur (Au début du cycle toute la barre est enfoncée dans la région annulaire centrale du cœur. En fin du cycle, la barre est totalement en dehors de la zone active du combustible)*

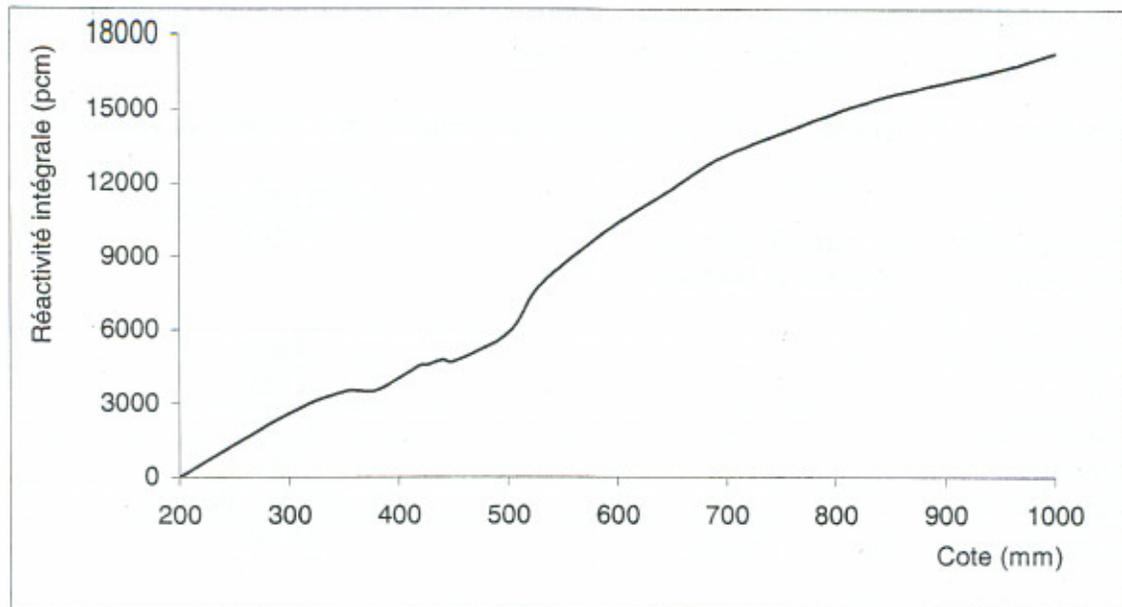


Figure 7.3 : Réactivité intégrale de la barre de contrôle en fonction de la cote de la barre.

### Barres de sécurité :

A ces éléments de contrôle, s'ajoutent les barres de sécurités qui sont en nombre de 5. Elles sont disposées légèrement inclinées par rapport à la verticale ( $10^\circ$  maximum) autour du cœur, de sorte que les éléments absorbants qu'elles déplacent viennent tangenter l'élément combustible.

Elles sont propulsées par de l'air comprimé, les éléments absorbants étant dans l'eau lourde, tandis que la partie du mécanisme assurant le mouvement émerge du bidon réflecteur et baigne dans l'eau légère de la piscine.

La barre, maintenue en position haute lors du fonctionnement, est constamment sollicitée vers le bas sous l'effet d'une réserve d'air comprimé. Elle reste accrochée en position haute malgré cette sollicitation, par l'intermédiaire d'un électro-aimant qui, par manque de courant, permet la propulsion des barres.

Une barre de sécurité comprend essentiellement deux parties : l'élément absorbant et l'organe manœuvre. L'élément absorbant est un tube en alliage d'argent (80 %), indium (15 %) et cadmium (5 %), de diamètre extérieur 100 mm, d'épaisseur 4 mm et de longueur 2 000 mm. Il est revêtu d'un gainage étanche en nickel électrolytique, de 0,07 mm d'épaisseur, destiné à empêcher la corrosion de l'alliage par l'eau lourde du réacteur.

Le temps de chute mesuré est inférieur à 250 ms pour une course de 800 mm. La vitesse de remontée est de  $12 \text{ mm.s}^{-1}$ .

## 7.4 Caractéristiques thermiques du cœur du réacteur

Le tableau suivant présente les différentes caractéristiques thermiques et de puissance du réacteur :

Tableau 7-2 : Caractéristiques thermiques du RHF

Puissance nominale du réacteur	57 MW
Puissance dégagée dans le réacteur	53 MW
Surface d'échange totale du cœur	30,17 m <sup>2</sup>
Puissance spécifique moyenne	1,14 MWdm <sup>-3</sup>
Flux calorifique moyen dans le cœur	174 W.cm <sup>-2</sup>
Flux calorifique au point chaud	500 W.cm <sup>-2</sup>
Température d'entrée d'eau	30 °C
Température moyenne de sortie d'eau	48,25 °C
Température de sortie d'eau du filet chaud	91,5 °C
Température de paroi au point chaud	147 °C

## 7.5 Fluctuations de la puissance dans le réacteur

La puissance du réacteur connaît des fluctuations durant le cycle du réacteur. Ces fluctuations sont dues à l'usure du combustible, à l'évolution de la composition isotopique de celui-ci, à la consommation du bore solide et au mouvement de la barre de contrôle. Cependant, ces fluctuations restent très faibles comme le montre la figure 7.4.

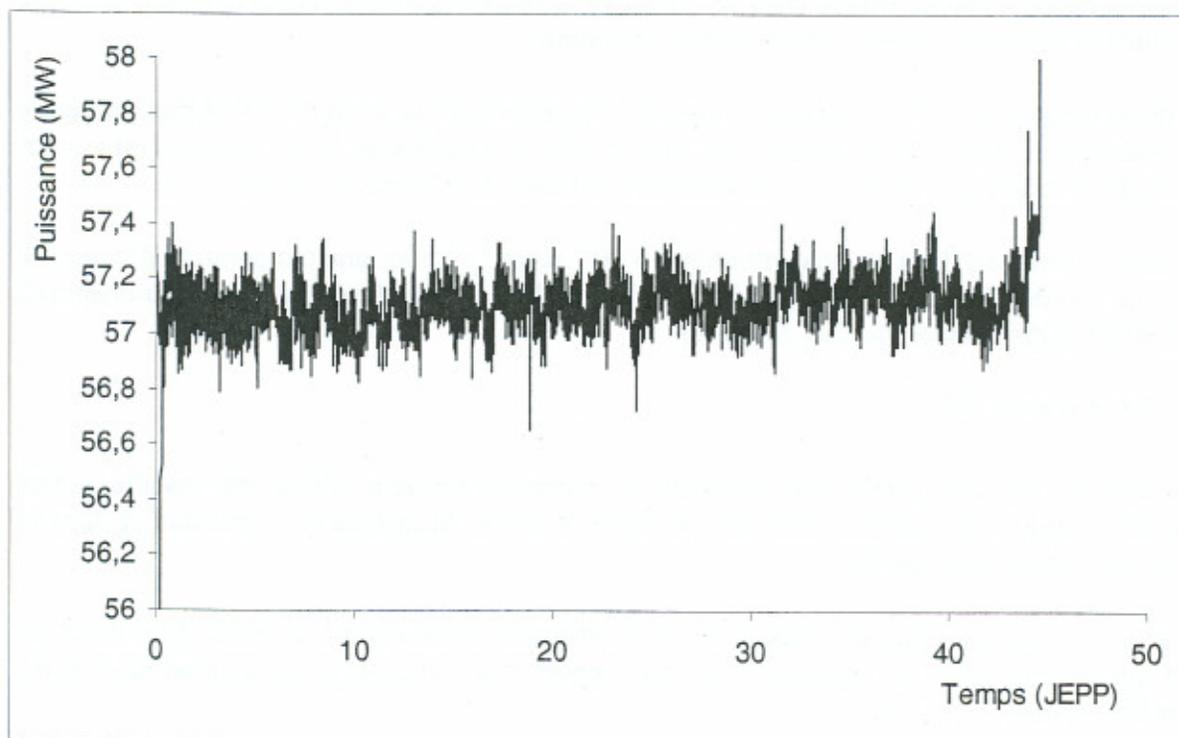


Figure 7.4 : Puissance du cœur du réacteur mesurée par l'ILL à l'aide d'une chambre à fission

D'après ces mesures, effectuées par l'ILL, on déduit la puissance moyenne du réacteur :

$$P = (57,1 \pm 1,9) \text{ MW}$$

Pour mesurer la puissance du réacteur, on utilise une chambre à fission avec un dépôt de masse  $m$  de même nature que le corps fissile (ici l' $^{235}\text{U}$ ) présent en quantité  $M$  dans la pile. La chambre est placée à un endroit où l'on connaît  $\Phi_m/\Phi$ , rapport du flux moyen dans le combustible au flux au point de mesure.

La puissance, en watts, est donnée par :

$$P = a \times C \times \frac{M}{m} \times \frac{\Phi_m}{\Phi}$$

$a$  est une constante de normalisation et  $C$  le nombre de coups par seconde mesuré par la chambre à fission.

## 7.6 Canaux expérimentaux V4 et H9

Le réacteur à haut flux est équipé de nombreux canaux expérimentaux permettant d'extraire du réflecteur le faisceau de neutrons désirés. Ces canaux sont au nombre de 16 dont 12 dans des plans horizontaux et 4 inclinés de quelques degrés par rapport à la verticale.

### 7.6.1 Canal H9

Le but de ce canal est de faire de la spectrométrie de produits de fission à l'aide d'un système d'optique ionique utilisant une déviation magnétique suivie d'une déviation électrostatique.

L'extrémité du canal se trouve dans le réflecteur. Elle présente une forme hémisphérique de 200 mm de diamètre intérieur et de 3 mm d'épaisseur.

Le doigt de gant de H9 vise la source chaude. Son extrémité se trouve à 247,4 mm du centre de cette source dont le plan médian est situé à 150 mm au-dessus du plan médian du cœur. L'axe de la source chaude et l'axe du cœur sont distants de 520 mm (cf. figure 7.7).

Le flux de neutrons dans le canal H9 atteint  $6 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$  pour une température d'équilibre de l'eau lourde d'environ 50 °C. Le flux est thermalisé à 98 % (voir figure 2.8 du chapitre 2 présentant la distribution de flux dans H9)

### 7.6.2 Canal V4

Le canal V4, qui était prévu dans le dossier de sûreté du réacteur, n'était pas installé depuis plus de vingt ans. Il a été remonté dans le cadre du projet Mini-Inca et en particulier dans le cadre des travaux de cette thèse.

Le canal V4 est constitué de deux tubes concentriques introduits à l'intérieur d'un doigt de gant qui pénètre, avec un angle de  $8^{\circ}30'$  par rapport à la verticale, jusqu'au plan médian du cœur (cf. figures 7.7 et 7.8).

Le canal présente les caractéristiques dimensionnelles suivantes :

- diamètre intérieur du tube intérieur : 28 mm (épaisseur = 1,5 mm)
- diamètre extérieur du tube extérieur : 42 mm (épaisseur = 1,5 mm)
- diamètre intérieur du doigt de gant : 44 mm
- diamètre extérieur du doigt de gant : 48 mm
- distance de l'extrémité de V4 à l'axe du cœur : 360 mm

C'est au fond du canal V4 que le flux thermique atteint sa valeur maximale dans le réflecteur :  $\sim 1,8 \cdot 10^{15} \text{ n.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ .

L'échauffement dû aux rayonnements gamma dans V4 est estimé, par calcul, égal à  $3,2 \text{ W.g}^{-1}$ .

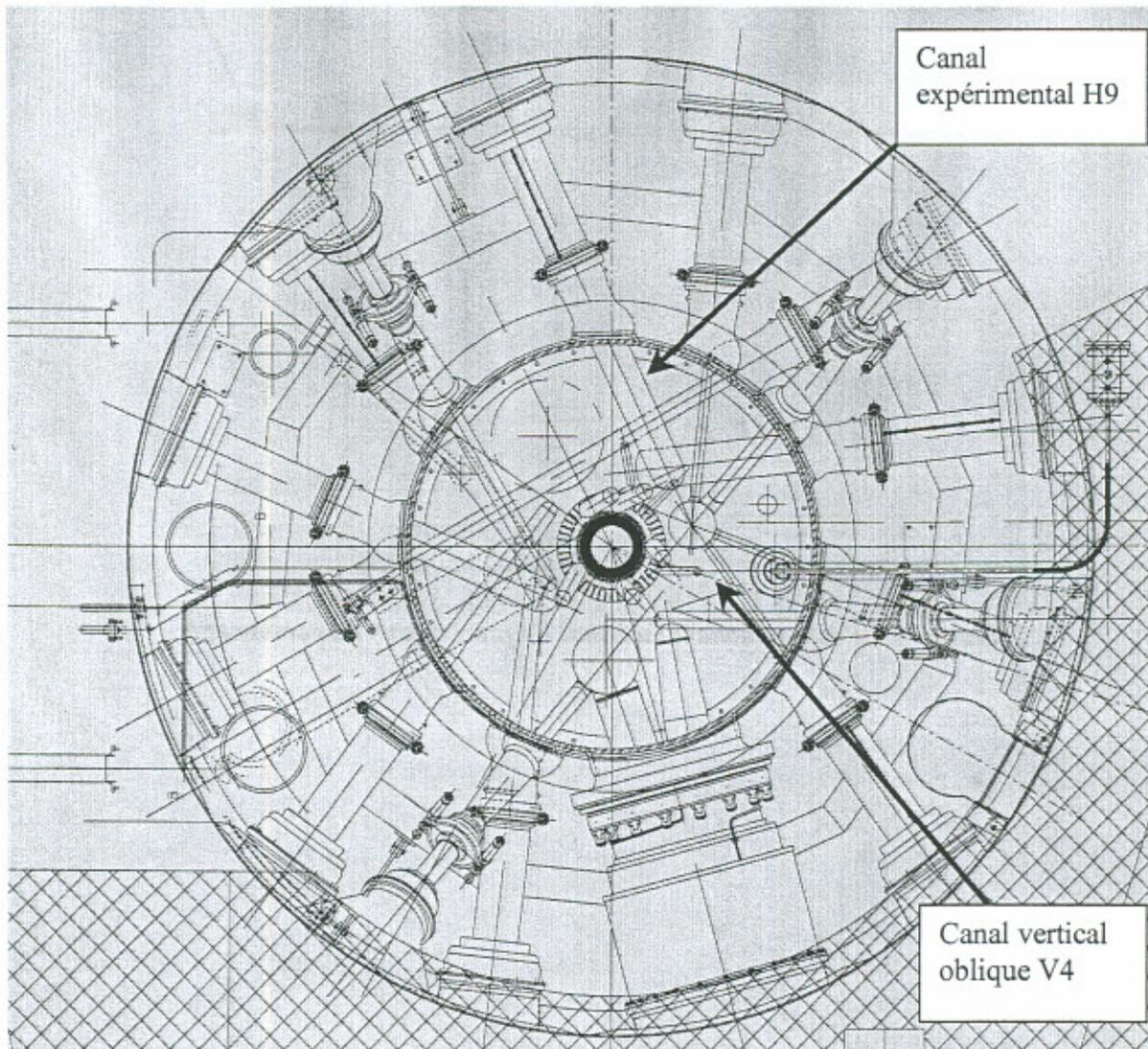


Figure 7.5 : Distribution des différents instruments du RHF autour du cœur et du réflecteur où l'on peut distinguer les canaux H9 et V4

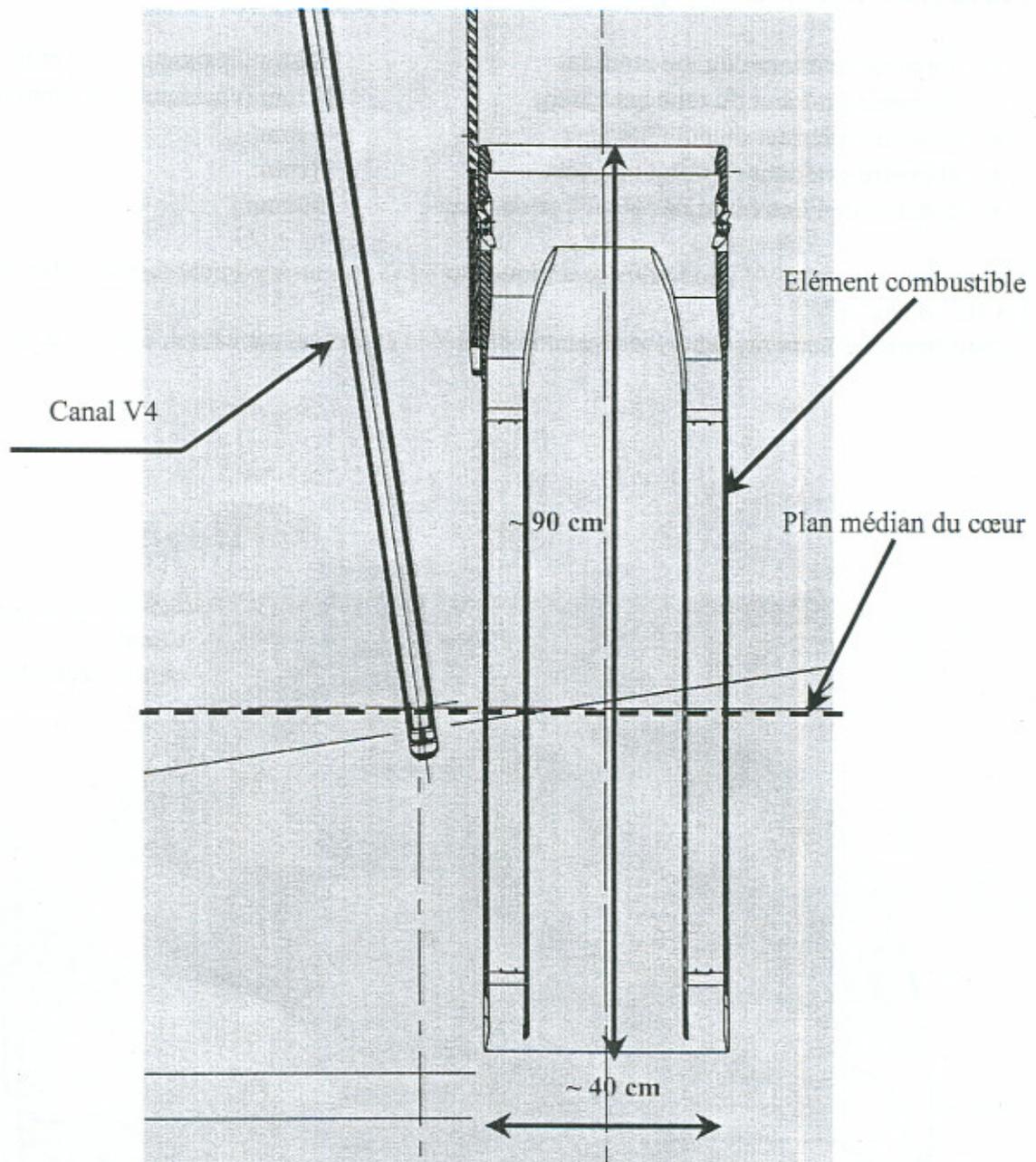


Figure 7.6 : Positionnement du canal V4 par rapport au combustible

## 7.7 Mesures thermiques dans le canal V4

### 7.7.1 Objectifs

L'utilisation de chambres à fissions dans V4 a du faire l'objet d'une demande à l'autorité de sûreté (DGSNR). Des calculs détaillés ont été fait pour déterminer la thermique et le comportement dynamique et le comportement dynamique de l'installation du V4.

Des mesures thermiques étaient alors nécessaires pour valider les calculs avant l'utilisation des chambres à fission. Ces mesures avaient également comme objectif la détermination du comportement thermique de l'eau dans le canal et la vérification d'absence de toute éventualité d'ébullition à la paroi.

Pour effectuer ces mesures, trois thermocouples de type K de 1 mm de diamètre, ont été fixés dans deux endroits de la canne qui servirait comme porte-échantillons lors des prochaines mesures. Deux thermocouples, indicés 1 et 3, ont été fixés à un angle  $\pi$  l'un de l'autre en bas de la canne. Le troisième, indicé 2, a été placé à 115 mm au-dessus de ceux-ci.

Des premières mesures ont été faites lors de la montée du réacteur en puissance jusqu'au palier 15 MW. Les mesures se sont poursuivies le lendemain lors de la remontée en puissance par paliers jusqu'à la puissance nominale (57 MW).

### 7.7.2 Rappels sur le principe de thermométrie par thermocouple

Lorsqu'un conducteur électrique seul est soumis à un gradient de température, la conversion d'énergie crée un mouvement d'électrons et génère à l'intérieur de ce conducteur une force électromotrice ; c'est la f.é.m. de Thomson dont l'importance et la direction sont fonction du matériau du conducteur et dépendent de l'amplitude et la direction du gradient de température.

La tension existant théoriquement aux bornes du conducteur est la somme algébrique des f.é.m. générées le long de ce conducteur. Mais, dans la pratique, la tension de sortie d'un conducteur unique n'est pas mesurable. En revanche, en joignant à une extrémité deux conducteurs A et B préalablement choisis dans deux métaux de caractéristiques différentes, on obtient en présence d'un gradient de température une tension de sortie mesurable ; c'est la f.é.m. de Seebeck. On nomme thermocouple ce circuit thermoélectrique.

La relation liant la tension de sortie d'un thermocouple à la température n'est pas linéaire. La méthode d'interpolation qui tient compte de ces variations fait appel à des polynômes d'approximation complexes. Toutefois il n'est pas nécessaire de mettre en œuvre ces polynômes si la plage de température mesurée est très étroite ou si l'on ne recherche pas une grande précision.

La plupart des matériaux conducteurs possèdent des caractéristiques thermoélectriques. Encore faut-il pour qu'ils soient effectivement utilisables qu'ils satisfassent à certains critères : bonne stabilité, valeur de f.é.m./°C suffisante et plage de température étendue ; les matériaux qui répondent à ces critères sont peu nombreux.

On classe habituellement les thermocouples en deux catégories selon la rareté des métaux qui les composent : métaux précieux (thermocouple platine rhodié – platine) ou métaux communs (chrome, fer, nickel). Les thermocouples à base de métaux précieux sont généralement les plus stables. Leur plage de température utile s'étend de la température ambiante à 2600°C. La plage de thermocouples courants, fabriqués à partir de métaux communs, est plus restreinte : de 0 à plus de 1200°C.

Parmi les thermocouples fabriqués à partir de métaux communs, le plus utilisé, le type K, se caractérise par une certaine instabilité thermoélectrique. Cette dernière se manifeste soit au cours du temps, soit autour de températures connues. Le thermocouple de type N (Nicrosil-Nisil) offre la stabilité des couples à base de métaux précieux.

Les thermocouples utilisés dans nos mesures sont de type K, le conducteur positif étant en Nickel-Chrome et le négatif en Nickel-Aluminium. Ce thermocouple couvre une étendue de mesure allant de  $-270\text{ °C}$  à  $1372\text{ °C}$ .

### 7.7.3 Etude d'erreurs et de précision

#### 7.7.3.1 Etalonnage des thermocouples

Les thermocouples étaient délivrés avec un certificat d'étalonnage effectué par le fournisseur. Les capteurs ont été placés dans un bain d'huile pour les points  $0\text{ °C}$ ,  $80\text{ °C}$  et  $150\text{ °C}$ . L'étalonnage constitue une référence de détermination de la température « réelle » vue par le thermocouple. Cela constitue bien-entendu une source d'erreur. Pour déterminer l'erreur due à l'étalonnage on s'est référé aux résultats des tests effectués par le fournisseur.

Si l'on considère  $f_{et}$  la fonction d'étalonnage du thermocouple et  $T_c$  la température moyennée dans le temps lue par le thermocouple. Le température moyenne  $T$  peut s'écrire comme étant :

$$T = T_c \pm f_{et}(T_c)$$

En partant des résultats d'étalonnage fait par le constructeur, on peut estimer numériquement les fonctions d'étalonnage dans l'intervalle de température qui nous intéresse, comme le montre le système suivant, où les indices  $\{1,2,3\}$  indiquent les thermocouples 1, 2 et 3 :

$$\begin{cases} f_{et1}(T) = -2,4163 \cdot 10^{-5} T^2 - 1,7113 \cdot 10^{-3} T + 3,0103 \cdot 10^{-2} \\ f_{et2}(T) = -2,1763 \cdot 10^{-5} T^2 - 2,7075 \cdot 10^{-4} T + 1,0005 \cdot 10^{-2} \\ f_{et3}(T) = -2,1380 \cdot 10^{-5} T^2 - 9,2840 \cdot 10^{-4} T + 4,0019 \cdot 10^{-2} \end{cases}$$

$T$  étant exprimée en  $\text{°C}$ .

#### 7.7.3.2 Fonction de décalage électronique

La température supposée être lue par le thermocouple ne l'est effectivement qu'à travers une chaîne électronique. Pour étalonner cette chaîne, des tests ont été faits pour quatre points de température indiqués dans le tableau ci-dessous.

Pour les trois thermocouples, le test n'a été fait qu'au point  $0\text{ °C}$  et à la température ambiante. Pour les points  $50\text{ °C}$  et  $100\text{ °C}$ , le test a été fait avec un quatrième thermocouple de la même série. On fera l'hypothèse qu'ils sont tous identiques vis-à-vis du système électronique.

**Tableau 7-3 : Températures de test de la chaîne de mesure**

Température de test (C)	Température d'affichage (C)
0	0,13
24,3	24,7
50,1	49
100,1	99,7

Numériquement on trouve que la fonction de décalage suit la loi empirique suivante :

$$f_{\text{offset}}(T) = 2,5059 \cdot 10^{-5} T^3 - 3,3381 \cdot 10^{-3} T^2 + 7,5804 \cdot 10^{-2} T + 1,1985 \cdot 10^{-1}$$

T étant exprimée en °C.

Si l'on appelle  $S(T)$  la fonction de précision intrinsèque du thermocouple à la température T, l'erreur sur la mesure sera donnée par la fonction :

$$\Delta(T) = \left( f_{\text{ét}}^2(T) + f_{\text{offset}}^2(T) + S^2(T) \right)^{1/2}$$

On suppose que la précision relative du thermocouple est indépendante de la température mesurée, et qu'elle est égale à 1%.

## 7.7.4 Mesures de températures et analyses

### 7.7.4.1 Montée partielle en puissance (palier 15 MW)

Une montée en puissance jusqu'au palier de 15 MW a eu lieu la veille de la divergence du réacteur jusqu'à la puissance nominale.

Avant le démarrage du réacteur on a mesuré les températures suivantes (moyennées dans le temps) :

TC1 :  $(25,12 \pm 0,4)$  °C

TC2 :  $(24,89 \pm 0,41)$  °C

TC3 :  $(24,47 \pm 0,42)$  °C

A 15MW, on mesure les températures suivantes :

TC1 :  $(33,27 \pm 0,36)$  °C

TC2 :  $(28,85 \pm 0,32)$  °C

TC3 :  $(32,33 \pm 0,33)$  °C

On remarque que les thermocouples TC1 et TC3, placés au même niveau azimutal, donnent effectivement la même température dans leurs intervalles d'erreur.

La figure suivante montre les variations de température lors de la montée en puissance. La température mesurée par le thermocouple TC1 majore toujours celle mesurée par TC3. Cela peut être dû à la différence de résistances de ligne liées à chaque capteur (720Ω pour TC1 et 732Ω pour TC2.) Cette résistance, servant à lire la tension du thermocouple, a été déterminée par étalonnage. L'erreur induite est donc bien prise en compte dans ces analyses.

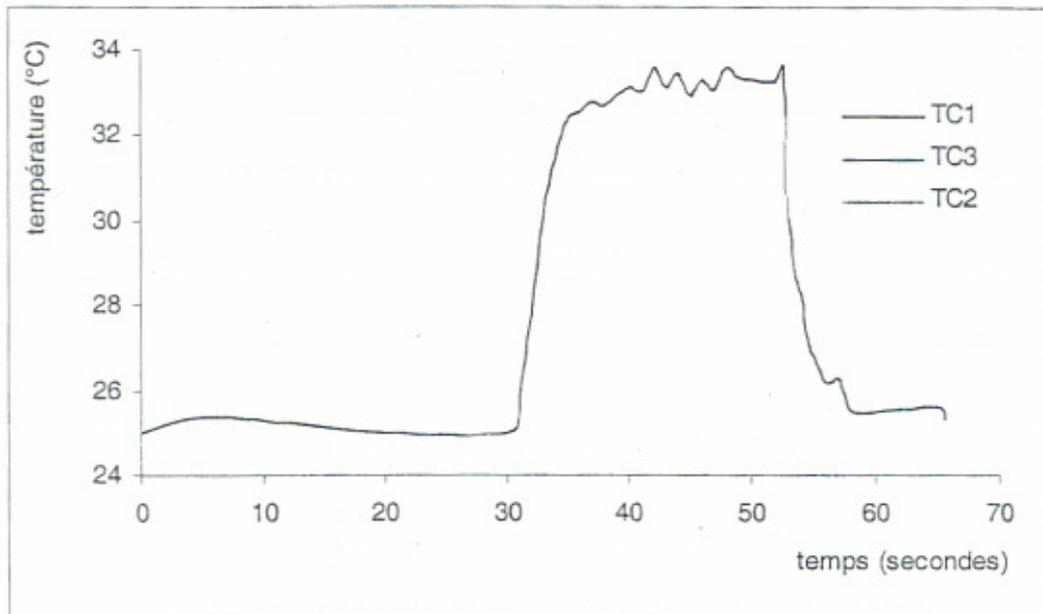


Figure 7.7 : Températures lues par les thermocouples avant, durant et après la montée en puissance ( palier 15 MW)

L'équation de diffusion de la chaleur montre qu'aux gradients de température comparables, la vitesse de variation de la température:  $\left[ \text{div}(k.\text{grad}(T)) + \dot{q} = \rho c(dT/dt) \right]$  augmente avec la puissance calorifique volumique. Cela explique la montée rapide en température pour les TC1 et TC3 par rapport à TC2. En effet, étant positionné à 115 mm au-dessus du plan médian du cœur le TC2 reçoit une puissance déposée inférieure à celle reçue par TC1 et TC3. Les fluctuations de température en puissance (moins de 1°C) peuvent être attribuées aux fluctuations de puissance du réacteur. Il faut considérer également l'électronique comme un facteur attribuant à ces variations.

Grâce à ces mesures on peut prévoir les températures à mesurer aux différents paliers. En effet la loi de Poisson prévoit une variation linéaire de la température avec la puissance, d'où les résultats du tableau suivant :

Tableau 7-4 : Prévisions de températures aux différents paliers

Palier (MW)	Température prévue au point « Bas » (°C)	Température prévue au point « Haut » (°C)
10	30,56	27,53
30	41,42	32,82
45	49,57	36,79
57	56,10	39,97

### 7.7.4.2 Divergence du réacteur à la puissance nominale (57 MW) :

La montée en puissance se fait progressivement et par quatre paliers, (voir Tableau 7.3). La relevée de température a été faite à pas de 4 secondes, cf. figure 7.10.

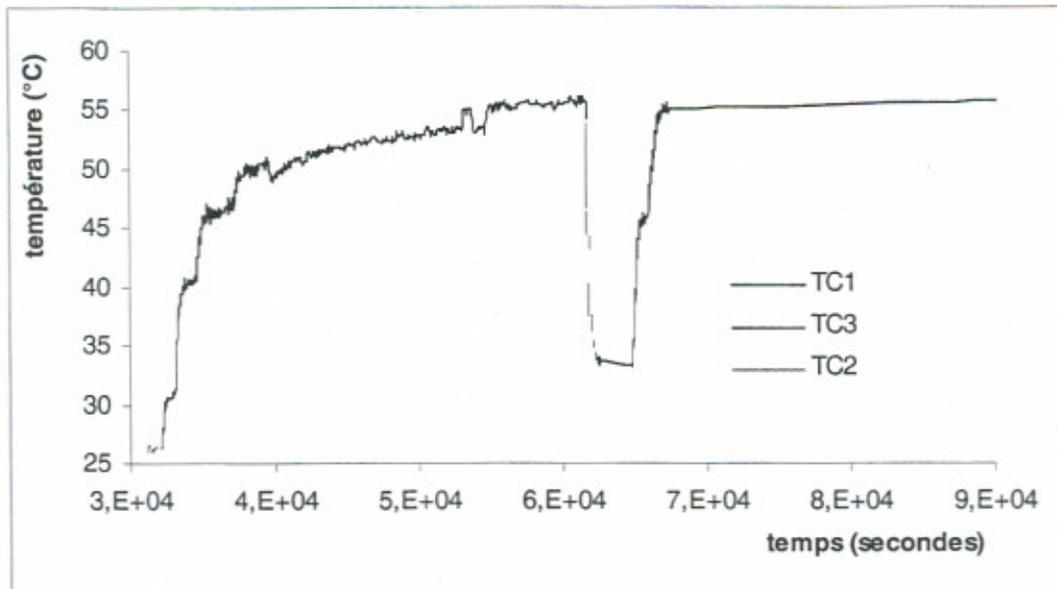


Figure 7.8 : Températures mesurées durant la montée par paliers en puissance

Le trou en température observé sur ces courbes est dû à un arrêt du réacteur qui a duré 75 minutes environ (arrêt sans rapport avec les mesures effectuées dans V4).

Dans le tableau suivant, on présente les températures moyennes à chaque palier :

Tableau 7-5 : Températures mesurées aux différents paliers

Palier (MW)	TC1	TC2	TC3
10	$30,50 \pm 0,31$	$27,68 \pm 0,34$	$30,04 \pm 0,31$
30	$40,43 \pm 0,74$	$33,04 \pm 0,35$	$38,74 \pm 0,63$
45	$46,35 \pm 1,14$	$37,97 \pm 0,57$	$44,29 \pm 1$
57	$56,15 \pm 1,81$	$46,95 \pm 1,18$	$54,44 \pm 1,69$

On remarque que l'incertitude sur la mesure augmente avec la température. Cela est probablement dû au problème d'étalonnage électronique de la chaîne de mesure induisant ainsi des problèmes de décalage en mesure par rapport à l'étalonnage fait chez le fabricant. Cela conduit également à l'augmentation de l'écart de plus en plus important entre les thermocouples TC1 et TC3.

### 7.7.4.3 Variation de la température avec la puissance

A partir des points de mesures dans le tableau 7.4 et des mesures précédentes, on peut créer une fonction asymptotique de la variation de température en fonction de la puissance du réacteur. On prendra comme référence le thermocouple TC1.

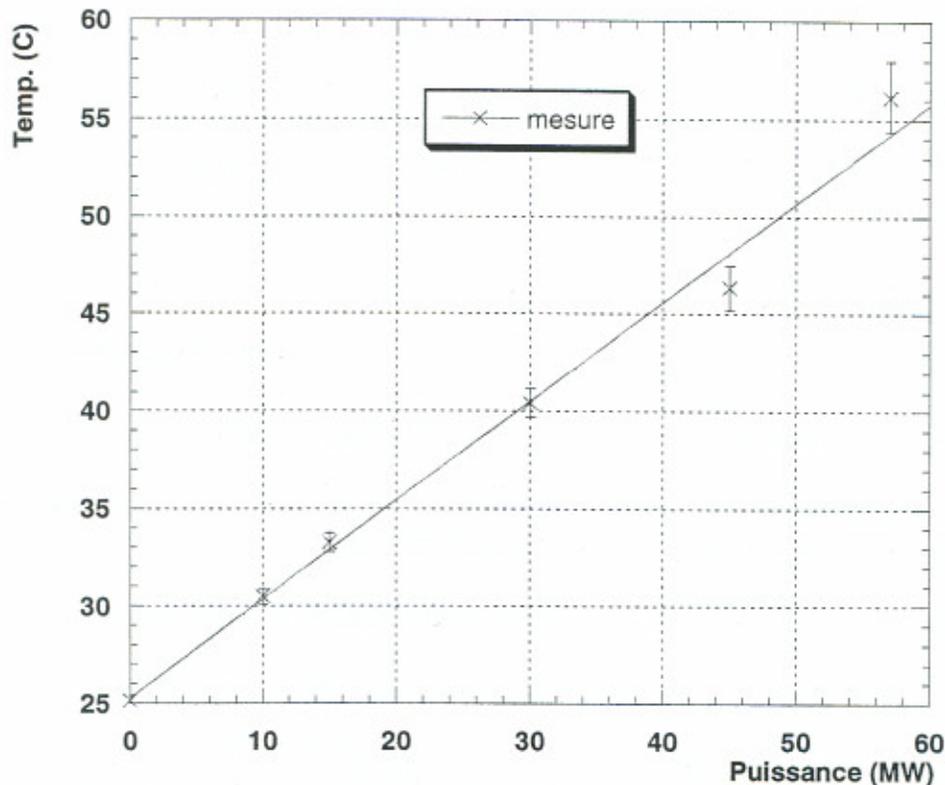


Figure 7.9 : Variation de la température de l'eau au point « Bas » de V4 avec la puissance du réacteur

Numériquement, on trouve que la température de l'eau varie avec la puissance, exprimée en MW, selon la fonction suivante :

$$T(^{\circ}C) = 4,9886 \cdot 10^{-1} P + 25,12$$

Sur la figure 7.11, on remarque que cette fonction asymptotique décrit parfaitement la variation de température dans l'intervalle de puissance du réacteur étudié. Une interpolation de cette fonction pour d'autres valeurs de puissance semble alors acceptable.

## 7.8 Flux et spectres neutroniques dans le cœur du réacteur à haut flux : modélisation

### 7.8.1 Les calculs déterministes

Pour calculer le niveau de flux de neutrons dans le réacteur, on résout l'équation de transport qui traduit le bilan neutronique détaillé du système. Cette équation a pour inconnue le flux angulaire dépendant des variables : position, angle et énergie. Elle utilise comme données, dans les codes "déterministes", les sections efficaces multigroupes constantes sur des bandes d'énergie, dites « groupes », obtenues après traitement des évaluations des bibliothèques de données nucléaires (JEF, ENDF, JENDL,...).

Le schéma géométrique est divisé en plusieurs éléments dans lequel l'équation de transport est résolue pour chaque groupe d'énergie. Les mailles « géométriques » de calcul déterminent le niveau de convergence de flux de neutrons. Plus elles sont petites plus la convergence est bonne. Ces mailles géométriques sont généralement plus petites que les mailles physiques définissant les différents matériaux constituant le réacteur.

Le code utilisé pour ce calcul déterministe est APOLLO2 [41]. Puisqu'on ne s'intéresse qu'à la distribution de flux dans le cœur, des méthodes simples telles que le calcul de constantes de réflecteur suffisent pour calculer les sections efficaces du milieu combustible. Ce calcul ne nécessite qu'une description simplifiée du cœur du réacteur selon une géométrie à deux dimensions.

Les bibliothèques de sections efficaces utilisées sont à 172 groupes ce qui permet de mieux prendre en compte les réactions à hautes énergies du neutron sur la matière en particulier les réactions à seuil ((n, 2n), (n,  $\alpha$ ),...)

Le schéma de calcul d'APOLLO2 pour résoudre l'équation de transport à 2 dimensions se base sur la méthode des ordonnées discrètes dite « méthode Sn » [42]. Elle est basée sur la discrétisation angulaire et spatiale de l'équation de transport. Elle permet de décrire l'anisotropie de diffusion du neutron et elle est adaptée aux géométries à grand nombre de mailles.

### 7.8.2 Flux et spectres de neutrons dans le cœur du réacteur

Avec APOLLO2 nous avons notamment calculé le spectre dans l'eau lourde du réflecteur à une distance d'environ 35 cm de l'axe du cœur autour du point bas du canal V4 (cf. figure 7.11). Même si ces calculs montrent un spectre à une forte dominance thermique (~ 84 % du spectre) la composante épithermique reste non négligeable (~ 15 % du spectre). Nous pouvons donc parler dorénavant d'un « spectre épithermique » au fond du canal V4.

*Composantes du spectre dans V4 :*

Energie de neutrons	Thermique	Epithermique	Rapide
	(<0,5 eV)	(0,5 eV<<100 keV)	(> 100 keV)
Pourcentage dans le spectre au fond du V4 (%)	83,9	15,4	0,7

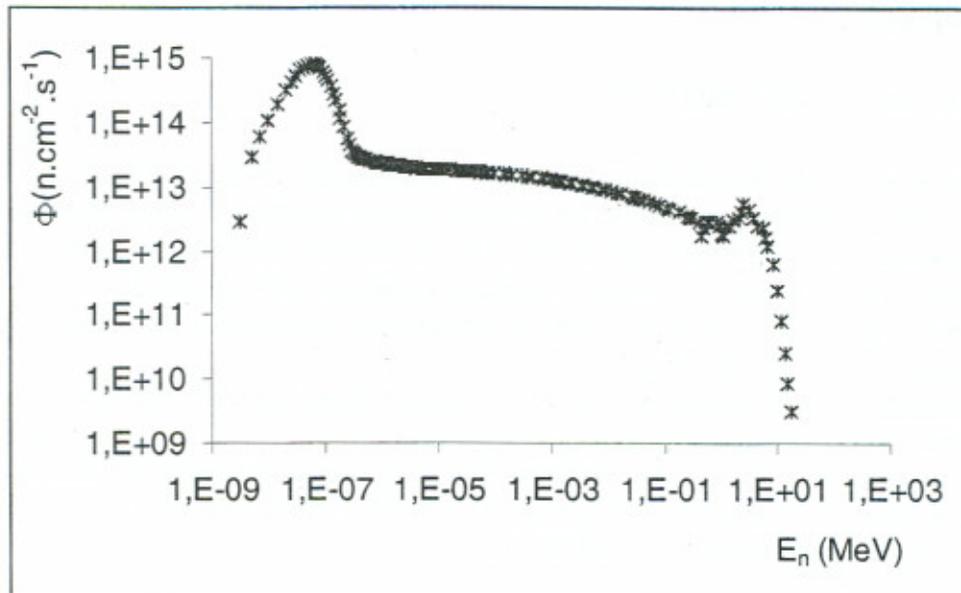


Figure 7.10 : Spectre de neutron au fond du canal V4 calculé par APOLLO2 ;  
L'intensité absolue du flux est normalisée par rapport à celle donnée par les calculs MCNP

### 7.8.3 Changement spectral durant le cycle

Durant le cycle du réacteur, celui-ci subit deux types de modifications :

- Modification de sa géométrie du fait du mouvement de la barre de contrôle,
- Modification du combustible, due à l'usure de l' $^{235}\text{U}$ , et à l'apparition de produits de fission et de transuraniens (cf. figure 7.14). L'usure du combustible atteint 41 % environ en fin du cycle.

Ces modifications sont théoriquement susceptibles d'induire des changements sur le spectre de neutrons durant le cycle de fonctionnement, ce qui peut être très nuisible à toute expérience de transmutation dans le réflecteur. En effet, toute évolution spectrale conduira à une évolution des sections efficaces de réaction. Cela pourrait rendre délicat toute exploitation d'une irradiation faite dans de telles conditions.

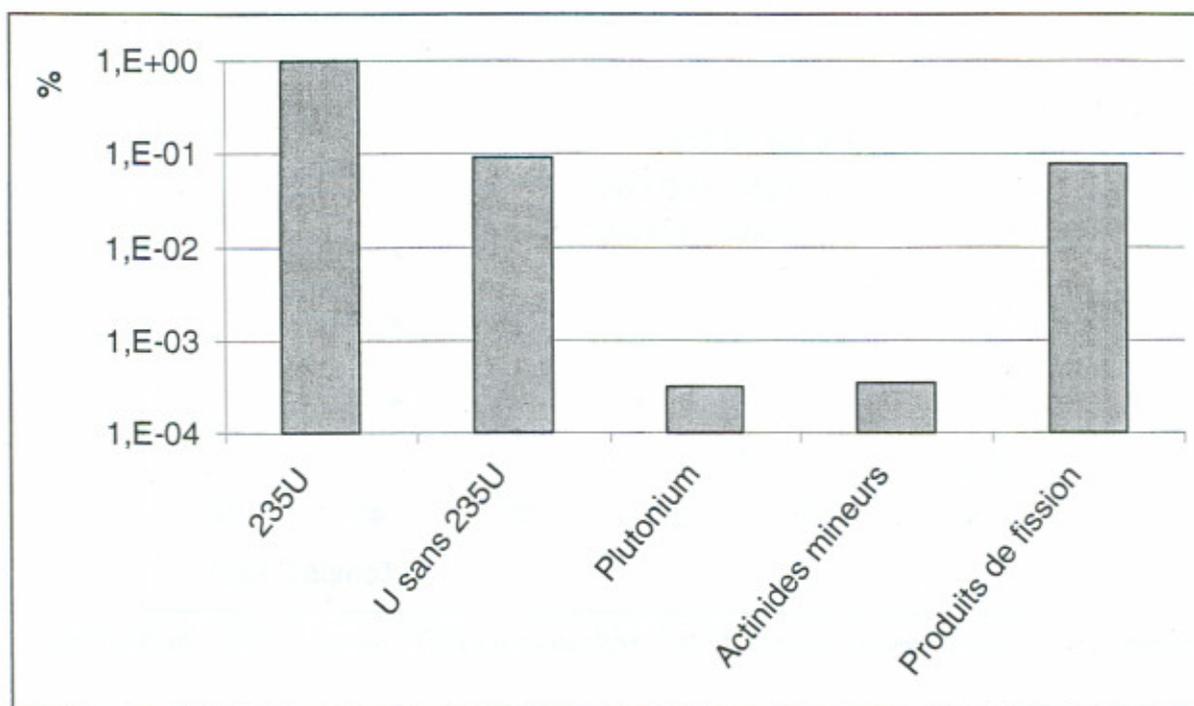


Figure 7.11 : Constitution du combustible du RHF par catégorie en fin du cycle exprimée en (atomes/atome d' $^{235}\text{U}$ )

Sur la figure 7.13 on présente la différence spectrale, par rapport au début du cycle, du flux de neutrons dans le réflecteur, au fond du canal V4, au long du cycle du réacteur pour trois gammes d'énergie : [0 eV ; 0,5 eV], [0,5 eV ; 100 keV] et [100 keV ; 20 MeV].

On constate que cette différence croît avec le temps de fonctionnement du réacteur. Le spectre neutronique dans le réflecteur est de plus en plus durci (les neutrons sont moins thermalisés) en fonction du temps d'opération du réacteur. La composante thermique subit une variation dont l'intensité maximale ne dépasse pas 3,5 %. Ce maximum est atteint en fin du cycle. Les composantes épithermiques et rapides subissent des variations plus importantes, atteignant les 8 % en fin du cycle.

Le durcissement du spectre est dû à l'apparition d'actinides et de transuraniens et à la formation de poisons neutroniques. La variation spectrale est due également au mouvement quasi-continu durant tout le cycle de la barre de contrôle qui se trouve en plein centre du modérateur. Les « poisons » de neutrons sont principalement le xénon et le samarium. La figure 7.14 présente l'évolution de ces deux poisons durant le cycle du réacteur.

On peut alors conclure que l'influence de l'évolution de la composition isotopique du cœur du réacteur sur le spectre neutronique, notamment thermique, reste négligeable. En effet, le changement spectral induit sur les sections efficaces moyennées une variation maximale inférieure à 2,5 % pour la fission et pour la capture entre le début et la fin du cycle (cf. tableau 7.5). Le grand écart montré par l' $^{238}\text{U}$  et d'autres éléments non fissiles n'est pas significatif étant donné que la section efficace de fission de ces isotopes est extrêmement faible.

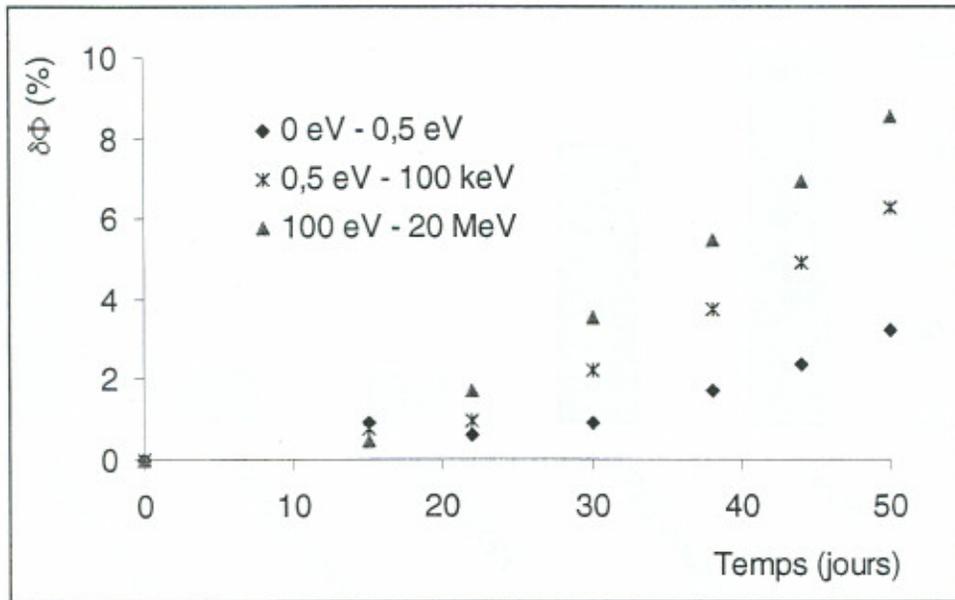


Figure 7.12 : Changement spectral dans le réflecteur du RHF durant le cycle du réacteur

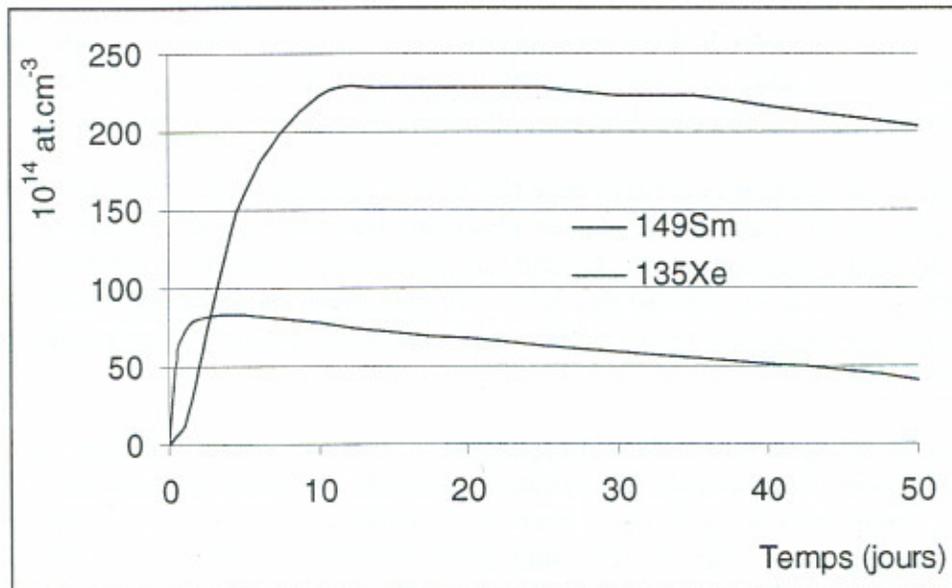


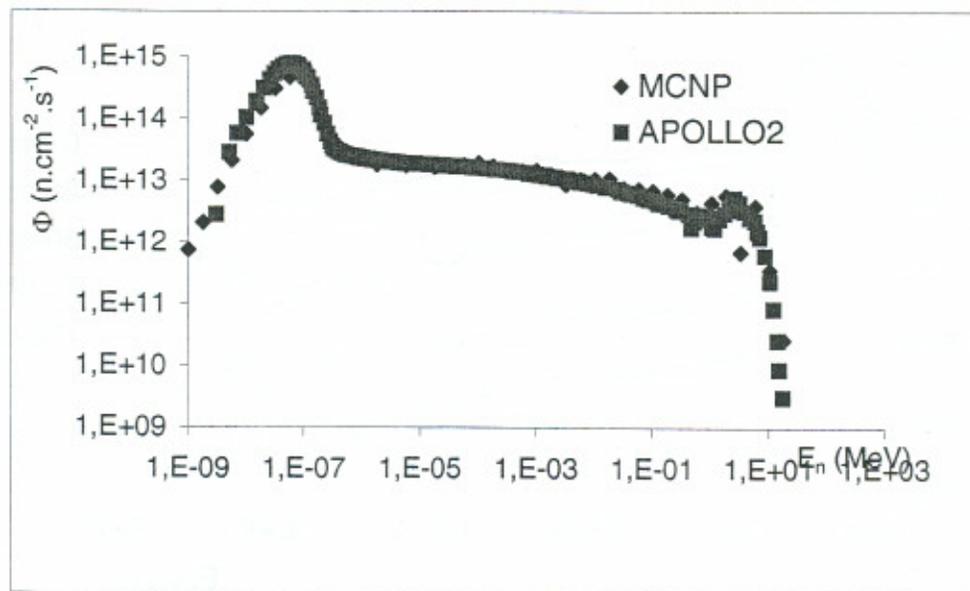
Figure 7.13 : Concentrations du <sup>149</sup>Sm et du <sup>135</sup>Xe dans le combustible du RHF durant le cycle d'opération du réacteur.

**Tableau 7-6 : Certaines Sections efficaces moyennée sur le spectre neutronique dans le réflecteur au début (dc) et en fin du cycle (fc) du RHF (APOLLO2)**

	fission			capture		
	dc (barn)	fc (barn)	(fc-dc)/dc (%)	dc (barn)	fc (barn)	(fc-dc)/dc (%)
<sup>235</sup> U	404,9	395	2,4	70,5	68,8	2,4
<sup>238</sup> U	2,2 10 <sup>-3</sup>	4 10 <sup>-3</sup>	-81,8	6,2	6,7	8,1
<sup>239</sup> Pu	602,2	593	1,5	252,4	250,5	0,7
<sup>237</sup> Np	2,7 10 <sup>-2</sup>	3,2 10 <sup>-2</sup>	-18,5	142,5	140,3	1,5
<sup>238</sup> Np	1498,4	1467	2,1	71,8	70,2	2,2
<sup>241</sup> Am	2,6	2,6	0	494,3	487,7	1,3
<sup>242m</sup> Am	5033,7	4946,8	1,7	1497,5	1465,1	2,2

#### 7.8.4 Comparaison des calculs APOLLO2 avec ceux de MCNP

Le calcul de spectre de neutrons dans la position basse du canal V4 a été également réalisé avec un logiciel totalement différent, MCNP. Le schéma de calcul adopté dans le calcul MCNP du RHF est présenté dans la figure 7.1. Les deux codes ont montré une convergence dans le calcul du spectre dans V4 (cf. figure 7.15)



*Figure 7.14: Spectre en bas du V4 déterminé avec MCNP et APOLLO2*

La comparaison de sections efficaces moyennées de l'élément de référence, l'<sup>235</sup>U, déterminées par les calculs APOLLO2 et MCNP montre également une convergence des résultats (cf. tableau 7.6). L'écart entre les deux calculs est inférieur à 2 %.

Tableau 7-7 : Sections efficaces de  $^{235}\text{U}$

	APOLLO2	MCNP	Ecart (APOLLO2 ; MCNP) (%)
$\sigma_f$ (barn)	404,9	398,0	2
$\sigma_c$ (barn)	70,5	69,1	2

On peut finalement conclure que l'erreur commise sur le calcul de spectre neutronique est très faible étant donné que les deux méthodes de calculs sont très différentes. Ce calcul pourra donc nous servir comme référence pour la détermination de sections efficaces moyennées, notamment de  $^{235}\text{U}$ , dont on aura besoin dans les analyses des résultats expérimentaux réalisés dans V4 avec les chambres à fission.

On note également que la détermination du spectre de neutrons dans V4 a été également calculée dans d'autres altitudes dans le canal avec MCNP (calculs non réalisés avec APOLLO2) (cf. figure 7.16). Ces calculs serviront également de références spectrales pour la détermination de certaines sections efficaces pour exploiter des mesures effectuées dans plusieurs altitudes dans V4 à l'aide de nos détecteurs.

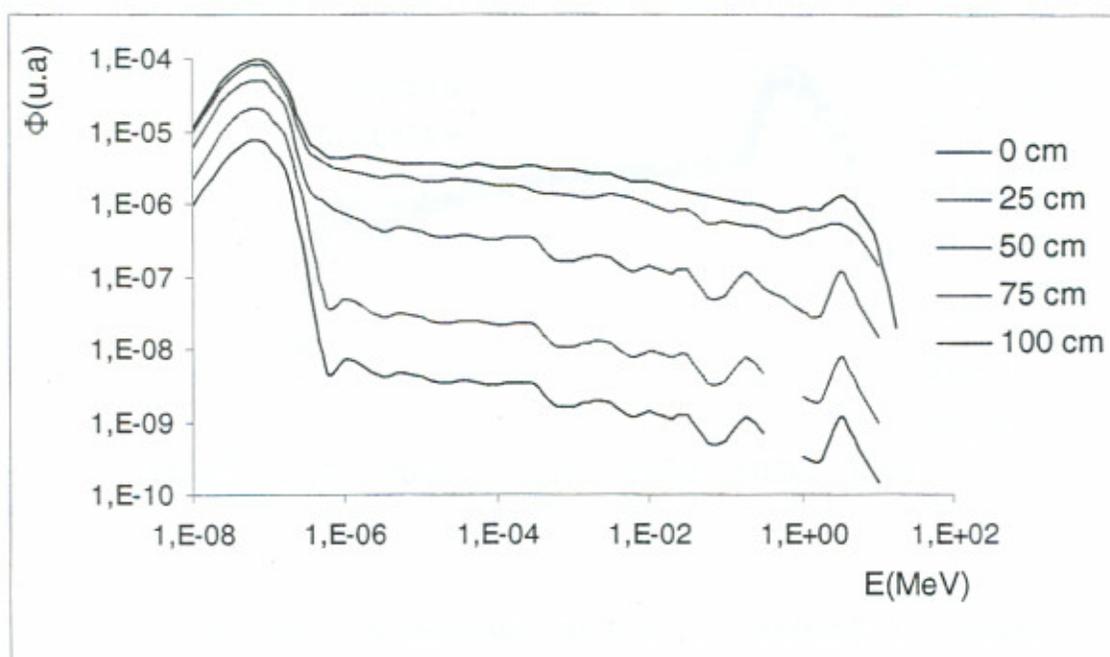


Figure 7.15 : Calcul MCNP des spectres de neutrons dans différentes altitudes dans V4. La position 0 cm correspond au fond du canal (dans le plan médian du cœur). Le flux varie en spectre et en intensité, tout au long du canal V4. En effet, l'inclinaison de  $8^{\circ}30'$  de ce canal par rapport à la verticale rend le spectre de neutrons de plus en plus thermique du fait de l'éloignement croissant du canal du combustible.

Avec MCNP, nous avons également déterminé (par normalisation par rapport à la puissance du réacteur) la valeur absolue de flux dans la position basse du V4. Le flux atteint une valeur de  $1,7 \cdot 10^{15} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ . Les erreurs statistiques liées à ces calculs donnent une incertitude de l'ordre de 2 % sur cette valeur absolue.

#### 7.8.5. Calcul (MCNP) des sections efficaces de $^{235}\text{U}$ à 50°C

La température d'équilibre de l'eau lourde dans le réacteur à haut flux est de 50°C. Les fichiers de données nucléaires utilisés par le logiciel MCNP donnent les sections efficaces aux températures 20°C, 120°C et aux températures supérieures. Le calcul des sections efficaces est alors fait aux températures 20°C et 120°C, et par interpolation nous déduisons les valeurs de ces données nucléaires à 50°C (cf. tableau 7.8).

Altitude dans V4 (cm)	Section efficace de fission (* section efficace de capture dans la position 0 cm)			Flux de neutrons ( $\text{n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ )
	20°C	120°C	50°C	
0	398	350	387	$1,7 \cdot 10^{15}$
	96*	61*	67*	
25	433	372	419	$1,35 \cdot 10^{15}$
50	473	406	458	$7,30 \cdot 10^{14}$
75	495	422	478	$2,95 \cdot 10^{14}$
100	501	424	483	$9,60 \cdot 10^{13}$



## Chapitre 8 : Mesures et caractérisation de flux de neutrons dans le réacteur à haut flux

### 8.1. Mesures de flux à l'aide de chambres à fission

#### 8.1.1 Scénario des irradiations

Trois chambres à fission à simple corps (CFSC) à dépôt d'uranium (enrichi à 98,5 % en  $^{235}\text{U}$ ) et une chambre sans dépôt ont été irradiées dans le canal V4 du réacteur à haut flux. C'est également le cas pour quatre chambres à fissions à double corps (CFDC). La présentation détaillée de ces CFSC et CFDC est donnée dans les chapitres 5 et 6.

Les principales caractéristiques de ces chambres à fission, simple corps (CFSC) et à double corps (CFDC), sont rappelées dans le tableau 8.1.

Les quatre chambres à fission à simple corps ont été placées dans le même support mécanique, appelé « canne », comme le montre la figure 8.1. Les chambres à fission à double corps ont été quant à elles, introduites chacune dans leur propre canne d'irradiation. L'irradiation de ces cinq cannes dans V4 a eu lieu successivement lors de plusieurs cycles de fonctionnement du RHF, puisque le canal V4 ne peut recevoir qu'un seul dispositif à la fois. Les durées d'irradiation des différentes chambres sont présentées au tableau 8.2. Plusieurs fois durant les irradiations des chambres, le réacteur a été arrêté pour des raisons diverses liées au fonctionnement du RHF lui-même. Ces arrêts ont eu bien-entendu des effets sur nos mesures à cause notamment de la décroissance radioactive du dépôt actif des chambres mais qui restent négligeables pour  $^{235}\text{U}$ .

Dans ce chapitre, nous n'allons nous intéresser qu'aux chambres à fission à simple corps.

Les chambres à fission ont été irradiées au fond du canal V4, correspondant à la position au niveau du plan médian du cœur à 12 cm du bord du combustible, que nous désignerons dans la suite « 0 cm ». Des mesures ont été régulièrement réalisées dans les positions 25, 50, 75 et 100 cm au-dessus de la butée basse du canal V4. Le dispositif d'irradiation des chambres à fission revient après chaque série de mesures dans des positions hautes (qui dure généralement environ 20 minutes) à la position basse où les chambres sont effectivement irradiées. Le courant mesuré dans les positions hautes du V4 est évidemment proportionnel à la masse résiduelle du dépôt fissile dont la l'usure se fait dans la position basse ( position 0 cm) du canal.

Avant chaque campagne d'irradiation, des dossiers de sûreté ont été préparés et présentés au responsable d'exploitation du réacteur à l'ILL pour avoir l'autorisation de « mise en pile » des échantillons. Ces dossiers comprenait notamment des calculs d'activité des échantillons après la fin d'irradiation. En effet, les autorités de sûreté exigent, après l'irradiation et une durée de refroidissement de 48 heures, que l'activité totale de la canne irradiée soit inférieure à  $2,0 \cdot 10^{10}$  Bq. Nos calculs ont montré une activité des échantillons irradiés inférieure à  $1,3 \cdot 10^{10}$  Bq.

D'autres critères étaient également exigés, notamment sur le plan thermique. Il a fallu présenter des calculs thermiques, validés par sociétés extérieures spécialisées, montrant qu'aucun incident thermique (fusion de certains solides par exemples) ne pouvait avoir lieu

durant l'irradiation. Pour effectuer ce genre de calculs nous avons souvent exploité un code de calcul thermique dit « Charade » écrit par le CEA/Grenoble et auquel nous avons ajouté certaines modifications.

En plus des calculs d'activation et de thermique, le dossier de sûreté complet comprenait tous les certificats justifiant la constitution des cannes irradiées, les éléments utilisés et les matériaux constitutifs. Un exemple de calculs de dossier de sûreté est donné dans l'annexe 2.

**Tableau 8-1 : Chambres à fission irradiées dans V4**

	Nature du dépôt	Gaz de remplissage	Masse d' $^{235}\text{U}$ ( $\mu\text{g}$ )	Masse d'actinide ( $\mu\text{g}$ )
Chambres à fission à simple corps				
CFSC1	$^{235}\text{U}$	Argon (1 bar)	22,66	-
CFSC2	$^{235}\text{U}$	Argon (1,1 bar)	22,21	-
CFSC3	Sans dépôt	Néon (1 bar)	-	-
CFSC4	$^{235}\text{U}$	Néon (1 bar)	22,78	-
Chambres à fission à double corps				
CFDC1	$^{235}\text{U} + ^{237}\text{Np}$	Argon (1,1 bar)	14,27	103,9
CFDC2	$^{235}\text{U} + ^{241}\text{Am}$	Argon (1,1 bar)	16,34	68,04
CFDC3	$^{235}\text{U} + ^{239}\text{Pu}$	Argon (1,1 bar)	16,69	21,81
CFDC4	$^{235}\text{U}$ + sans dépôt	Argon (1,1 bar)	17,18	-

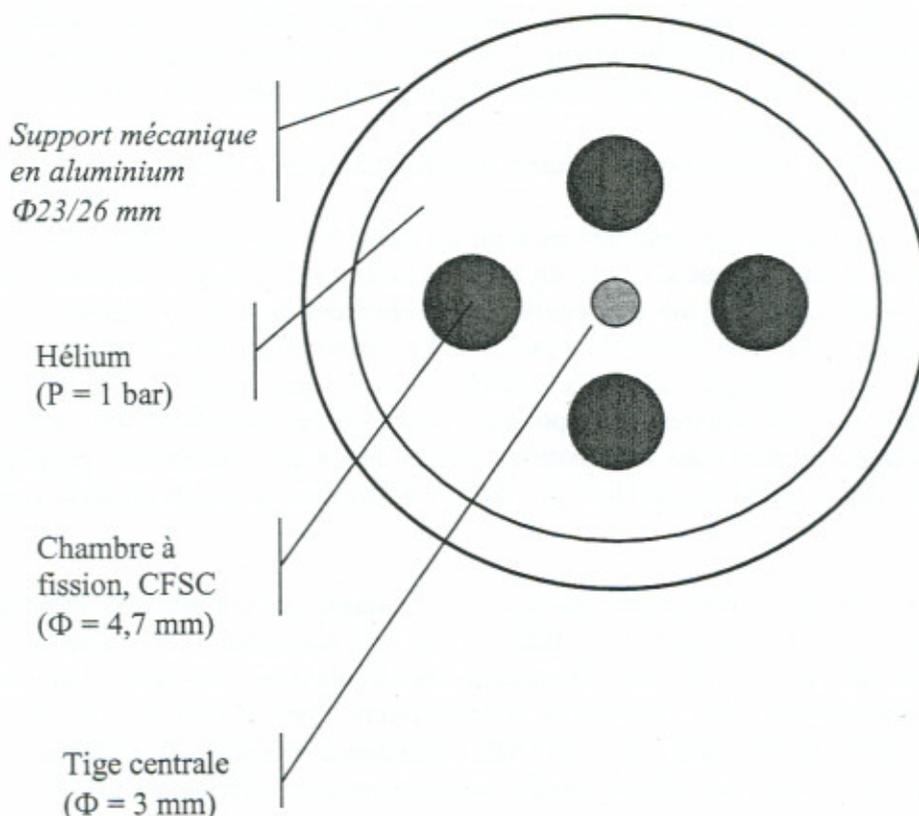


Figure 8.1 : Positions des chambres à fission à simple corps dans la canne d'irradiation (Echelle non respectée)

Tableau 8-2 : Historique d'irradiation des différentes chambres à fission dans le canal V4

DéTECTEUR	Début d'irradiation	Fin d'irradiation	Arrêts du réacteur			Durée d'irradiation en « Jours Equivalents en Pleine Puissance (JEPP)
			Début	Fin	Durée (jours)	
CFSC1, CFSC2, CFSC3 et CFSC4	07/11/2001 13 :53	04/12/2001 18 :18	Aucun arrêt			27,18
CFDC1 « <sup>235</sup> U, <sup>237</sup> Np »	16/07/2002 09:13	31/07/2002 11:24	24/07/2002 01:11	26/07/2002 08:30	2,30	12,78
CFDC3 « <sup>235</sup> U, <sup>239</sup> Pu »	02/08/2002 16:06	12/08/2002 14:24 sortie du réacteur	05/08/2002 14:22	08/08/2002 08:47	2,77	10,95
	02/12/2002 15:10 réintroduction dans le réacteur	06/12/2002 10:12	Aucun arrêt			
CFDC2 « <sup>235</sup> U, <sup>241</sup> Am »	21/10/2002 15:09	25/11/2002 10:24	23/10/2002 15:03	24/10/2002 09:53	0,78	23,93
			31/10/2002 10:11	04/11/2002 08:45	3,94	
			08/11/2002 11:00	14/11/2002 14:35	6,15	
CFDC4 « <sup>235</sup> U, sans dépôt »	27/11/2002 14:00	28/11/2002 08:57	Aucun arrêt			0,79

## 8.1.2. Fonctionnement des chambres à fission sous argon

### 8.1.2.1. Cas d'un plateau de saturation bien prononcé

Un fonctionnement correct d'une chambre à fission sous flux est notamment caractérisé par la présence de paliers de saturation. C'est ce que nous avons observé pour toutes les mesures avec les chambres à fission dans la position 100 cm dans le canal V4. La figure 8.2 présente l'exemple du fonctionnement de la chambre à fission à simple corps CFSC1. Cette chambre à fission a présenté un domaine de saturation dans la position 100 cm du V4, depuis sa première irradiation jusqu'à une fluence supérieure à  $4 \cdot 10^{21}$  n.cm<sup>-2</sup>.

Le courant délivré par la chambre diminue normalement avec le taux d'usure de l'<sup>235</sup>U. Celui-ci est proportionnel au taux d'absorption de l'uranium, lui-même proportionnel au flux neutronique. Il est donc possible, par la mesure du courant de saturation durant la période d'irradiation, de déduire le flux de neutrons local.

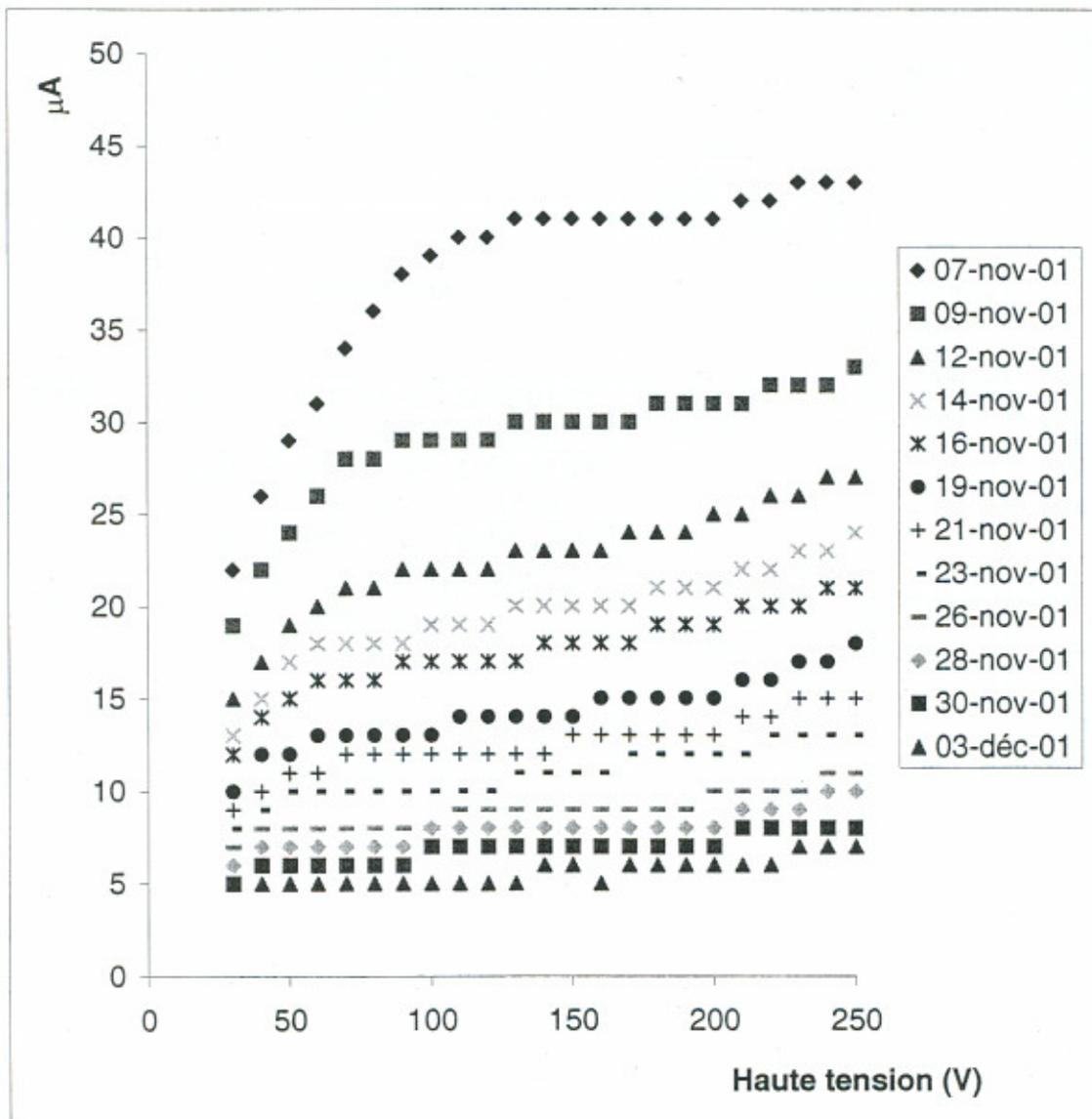


Figure 8.2 : Courbes de saturation de la CFSC1 (cas du dépôt d'uranium 235) dans la position 100 cm du canal V4

### 8.1.2.2. Cas de micro-plateau de saturation

Si toutes les chambres ont montré un large plateau de saturation dans la position 100 cm du canal V4, elles n'ont montré qu'un micro plateau de saturation (un plateau de saturation très étroit) dans la position 75 cm alors il n'y avait aucun plateau de saturation dans les positions 50, 25 et 0 cm. Nous constatons par contre la présence de points d'inflexions dans ces positions, notamment au début d'irradiation ce qui pourrait indiquer une proportionnalité entre le courant correspondant à ce point et le flux de neutrons (cf. figure 8.3).

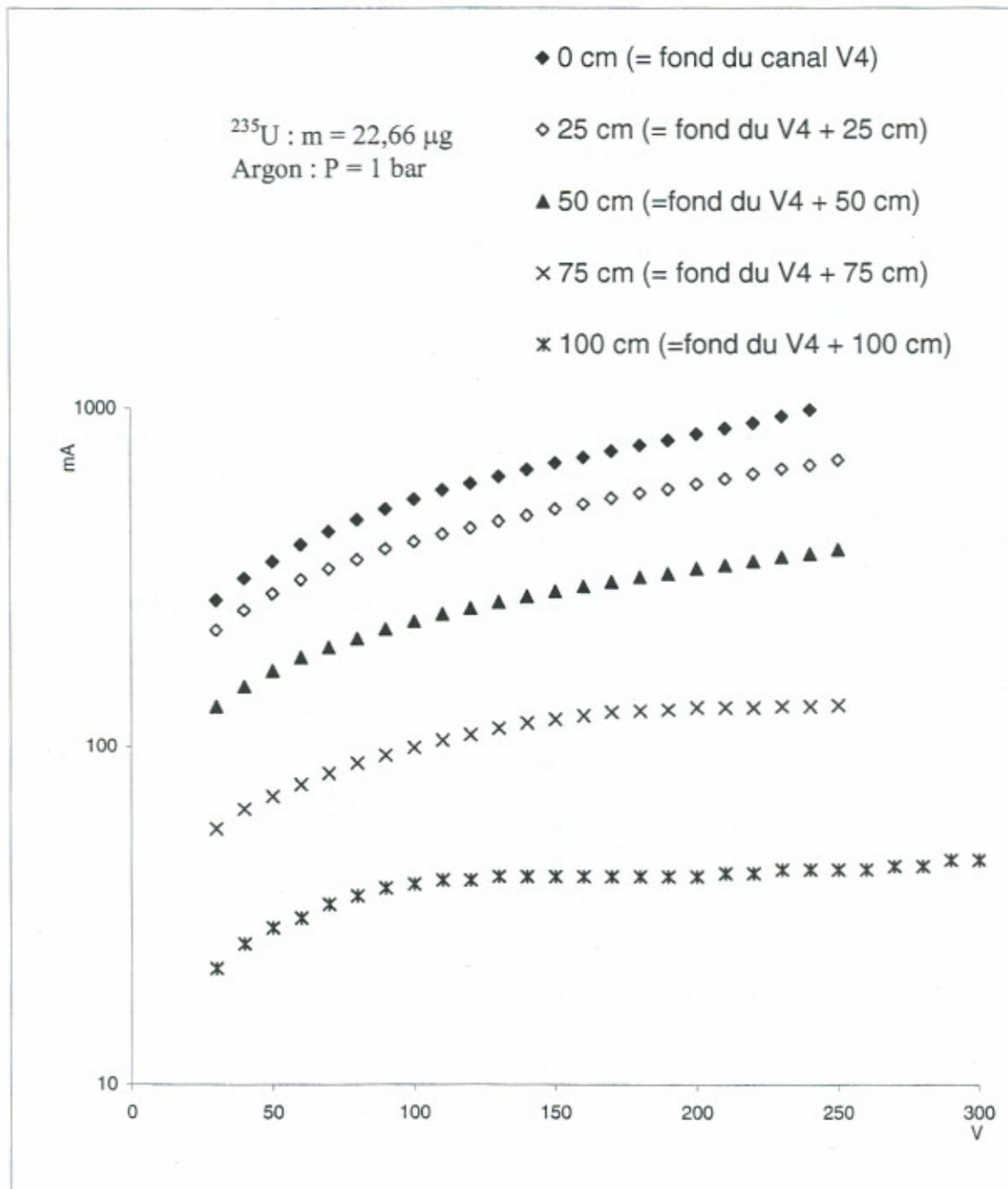


Figure 8.3 : Caractéristique (courant , tension) de la CFSC1 (cas du dépôt d'uranium 235) en fonction de la position dans le canal V4

### 8.1.2.3. Résultats expérimentaux des chambres à fissions à simple corps

Dans ce paragraphe, on présente les résultats des mesures effectuées à l'aides des chambres CFSC1 et CFSC2.

Dans les tableaux des résultats expérimentaux dans la position 100 cm, les valeurs de courant indiquées correspondent à des plateaux de saturation bien prononcés (valeurs moyennes prises sur tout le plateau de saturation).

Pour les positions 0, 25, 50 et 75 cm, on note les valeurs de courant correspondant au point d'inflexion de la fonction  $I(V)$  lorsque ce point existe.

Le point d'inflexion est déterminé par ajustement de la courbe  $I(V)$ . En effet, lorsque cette courbe peut être ajustée avec un polynôme d'ordre 3, qu'on note  $P_i$ , le point d'inflexion est immédiate correspond à la solution de l'équation  $I''(V) = 0$ , où  $I''$  est la dérivée seconde de la fonction  $I(V)$ . Si la tension, notée  $V_0$ , vérifie l'équation  $I''(V) = 0$ , le courant d'inflexion est donné par  $I_0 = P_i(V_0)$ .

On retient les symboles suivants dans les tableaux des résultats :

APS : Absence de Plateau de Saturation,

API : Absence de Point d'Inflexion.

#### 8.1.2.3.a Bilan des mesures effectuées avec la chambre à fission CFSC1

On présente ci-dessous l'ensemble des courants mesurés avec la chambre CFSC1. Les valeurs tabulées sont brutes sans soustraction du bruit.

Pour la position 100 cm, les courbes de saturation sont présentées dans la figure 8.2.

Tableau 8-3 : Courants de saturation de la CFSC1 dans la position 100 cm

100 cm		
Date	heure	I ( $\mu$ A)
07/11/01	15h23mn	41,5
09/11/01	14h01mn	30,4
12/11/01	15h11mn	23
14/11/01	09h52mn	19,5
16/11/01	14h29mn	18
19/11/01	14h37mn	14
21/11/01	14h39mn	12,4
23/11/01	10h22mn	11,2
26/11/01	14h44mn	8,8
28/11/01	14h55mn	8,5
30/11/01	09h53mn	7,2
03/12/01	14h49mn	6

**Tableau 8-4 : Courants d'inflexion de la CFSC1 dans la position  
75 cm du V4**

75 cm			
		I (μA)	
date	heure	PS	PI
07/11/01	14h58mn	134	Pas assez de points de mesures
09/11/01	13h47mn	APS	API
12/11/01	14h55mn	96	98,6
14/11/01	09h33mn	APS	API
16/11/01	14h11mn	73	74,9
19/11/01	14h21mn	APS	API
21/11/01	14h21mn	63	64,9
23/11/01	10h07mn	APS	API
26/11/01	14h27mn	56	56,3
28/11/01	14h39mn	APS	API
30/11/01	09h29mn	46	47,6
03/12/01	14h30mn	APS	API

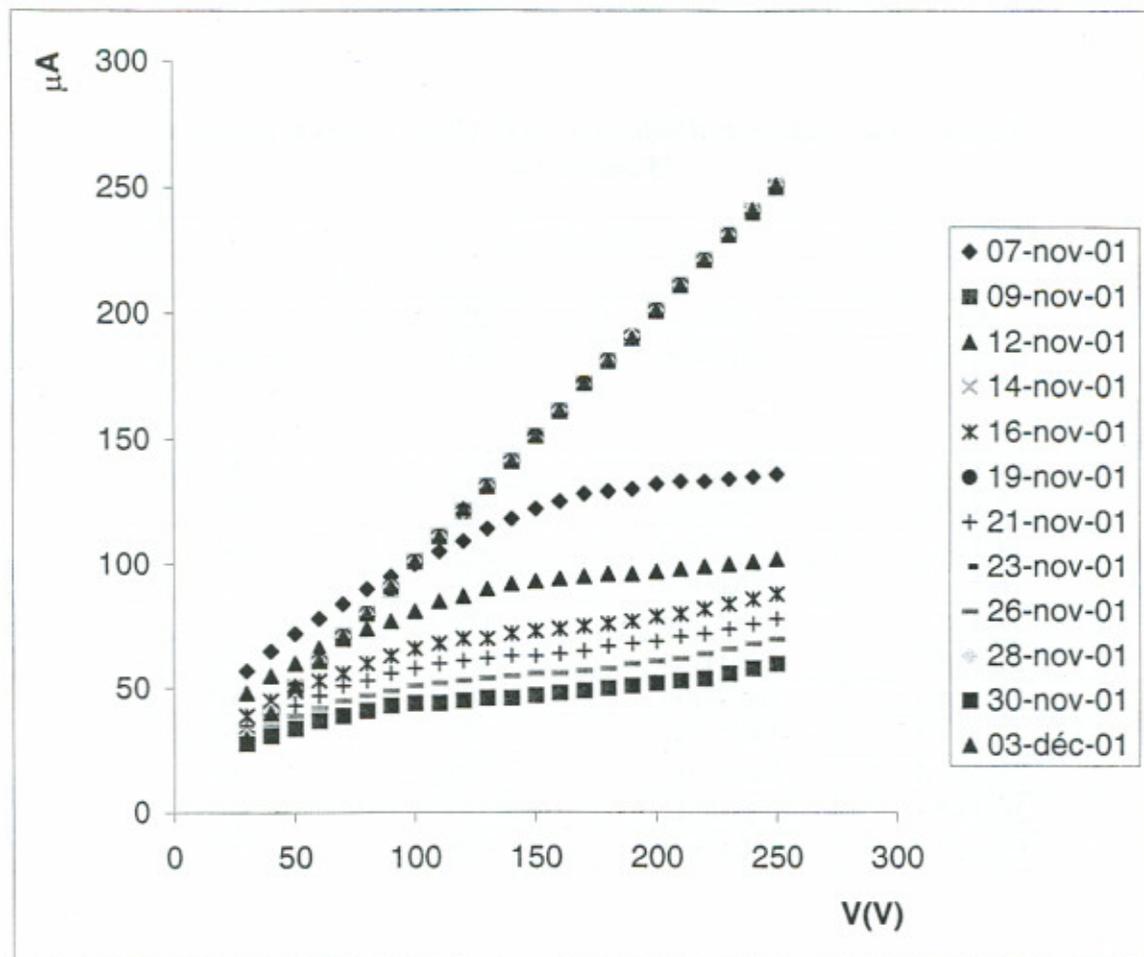


Figure 8.4 : Caractéristiques (Courant ,Tension) de la CFSC1 dans la position 75 cm du V4

Tableau 8-5 : Courants d'inflexion de la CFSC1 dans la position 50 cm du V4

50 cm		
Date	heure	I (μA)
07/11/01	14h40mn	323,0
09/11/01	13h30mn	282,3
12/11/01	14h38mn	251,6
14/11/01	09h17mn	216,4
16/11/01	13h35mn	173,0
19/11/01	14h03mn	145,1
21/11/01	14h05mn	133,1
23/11/01	09h50mn	112,8
26/11/01	14h13mn	93,1
28/11/01	14h25mn	83,8
30/11/01	09h11mn	63,9
03/12/01	14h12mn	63,1

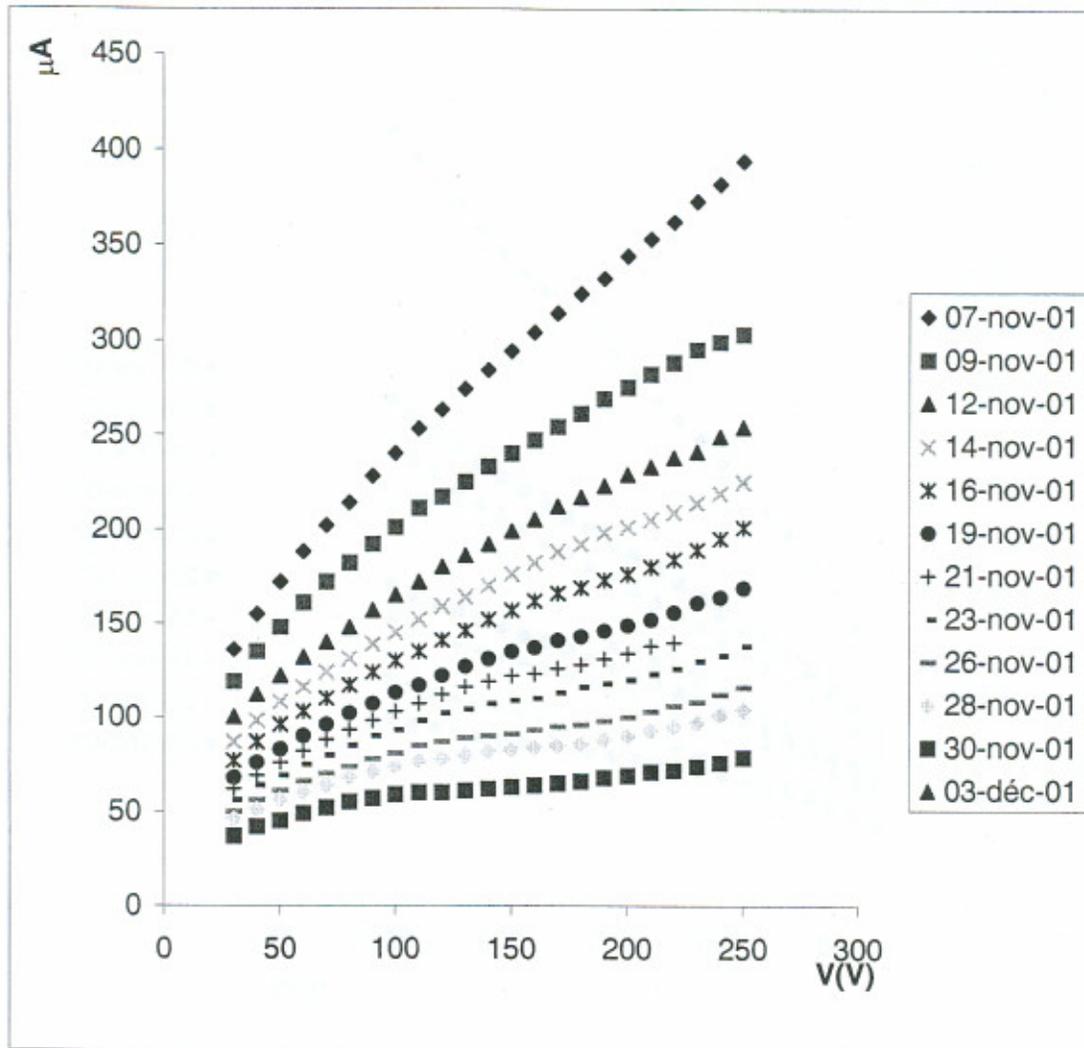


Figure 8.5 : Caractéristiques (Courant ,Tension) de la CFSC1 dans la position 50 cm du V4

Tableau 8-6 : Courants d'inflexion de la CFSC1 dans la position 25 cm du V4

25 cm		
date	heure	I (μA)
07/11/01	14h58mn	536,2
14/11/01	09h33mn	343,4
16/11/01	14h11mn	315,5
19/11/01	14h21mn	272,0
23/11/01	10h07mn	249,2
26/11/01	14h27mn	213,4
28/11/01	14h39mn	170,9
30/11/01	09h29mn	171,7
03/12/01	14h30mn	146,2

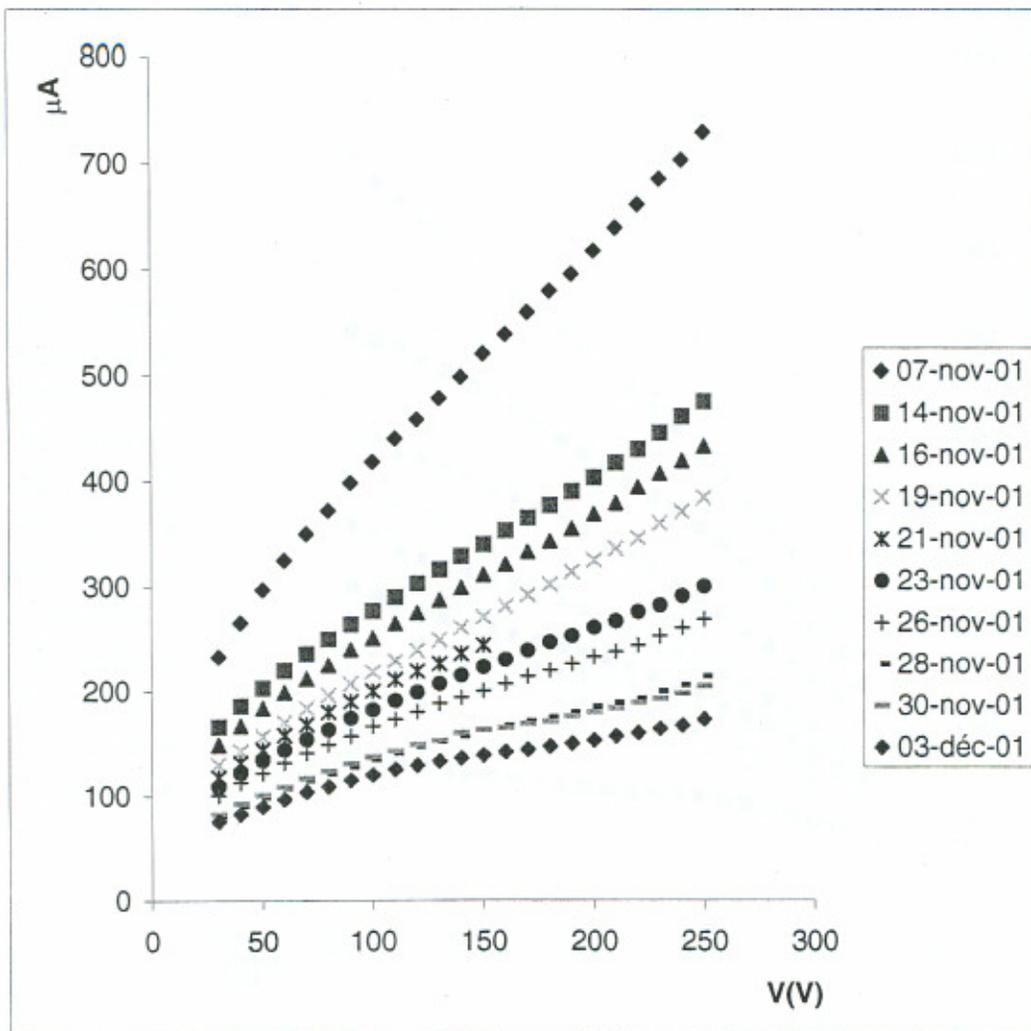


Figure 8.6 : Caractéristiques (Courant ,Tension) de la CFSC1 dans la position 25 cm du V4

Tableau 8-7: Courant d'inflexion de la CFSC1 dans la position 0 cm du V4 le premier jour d'irradiation ( seule mesure présentant un point d'inflexion)

0 cm		
Date	heure	I ( $\mu\text{A}$ )
07/11/01	14h02mn	689,6

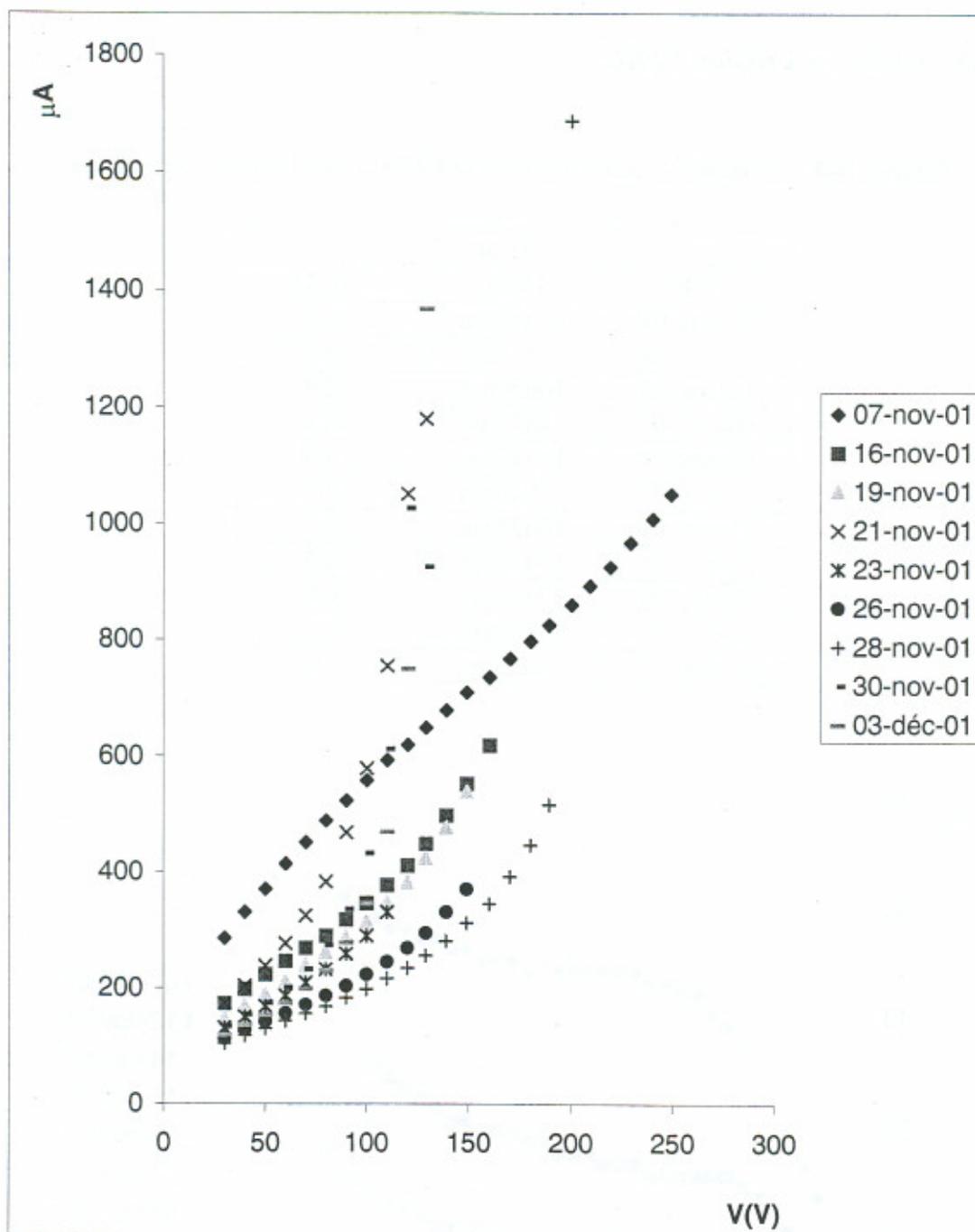


Figure 8.7 : Caractéristiques (Courant, Tension) de la CFSCI dans la position 0 cm du V4

8.1.2.3.b *Chambre à fission CFSC2*

Tableau 8-8 : Courants de saturation de la CFSC2 dans la position 100 cm

100 cm		
Date	heure	I ( $\mu\text{A}$ )
07-nov-01	15h29mn	45,2
12-nov-01	15h18mn	25,8
14-nov-01	10h00mn	22,4
16-nov-01	14h35mn	19,8
19-nov-01	14h43mn	16,0
21-nov-01	14h46mn	14,1
23-nov-01	10h28mn	12,7
26-nov-01	14h51mn	10,3
28-nov-01	15h01mn	9,5
30-nov-01	10h00mn	8,1
03-déc-01	14h57mn	6,5

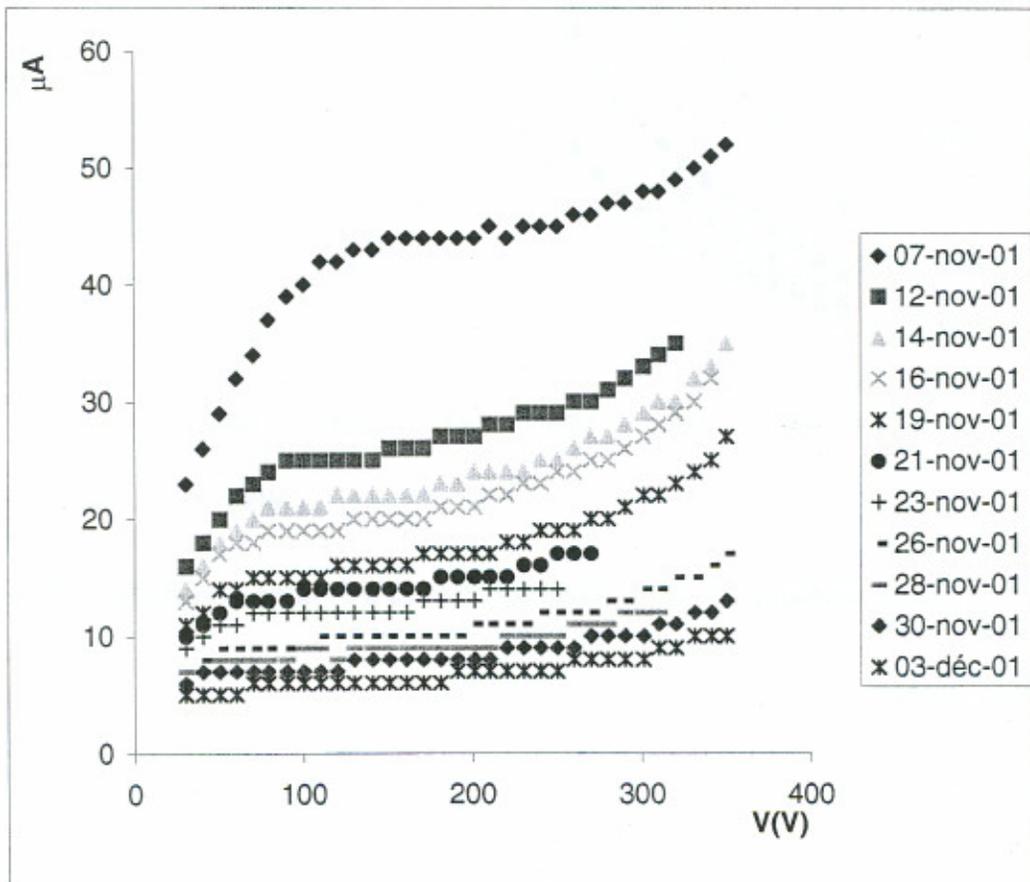


Figure 8.8 : Caractéristiques (Courant ,Tension) de la CFSC2 dans la position 100 cm du V4

Tableau 8-9 : Courants d'inflexion de la CFSC2 dans la position 75 cm du V4

75 cm		
Date	heure	I ( $\mu\text{A}$ )
07-nov-01	14h58mn	146,7
12-nov-01	14h55mn	84,9
14-nov-01	09h33mn	73,7
16-nov-01	14h11mn	64,0
19-nov-01	14h21mn	53,6
21-nov-01	14h21mn	46,2
23-nov-01	10h07mn	40,6
26-nov-01	14h27mn	34,5
28-nov-01	14h39mn	30,4
30-nov-01	09h29mn	27,0
03-déc-01	14h30mn	22,0

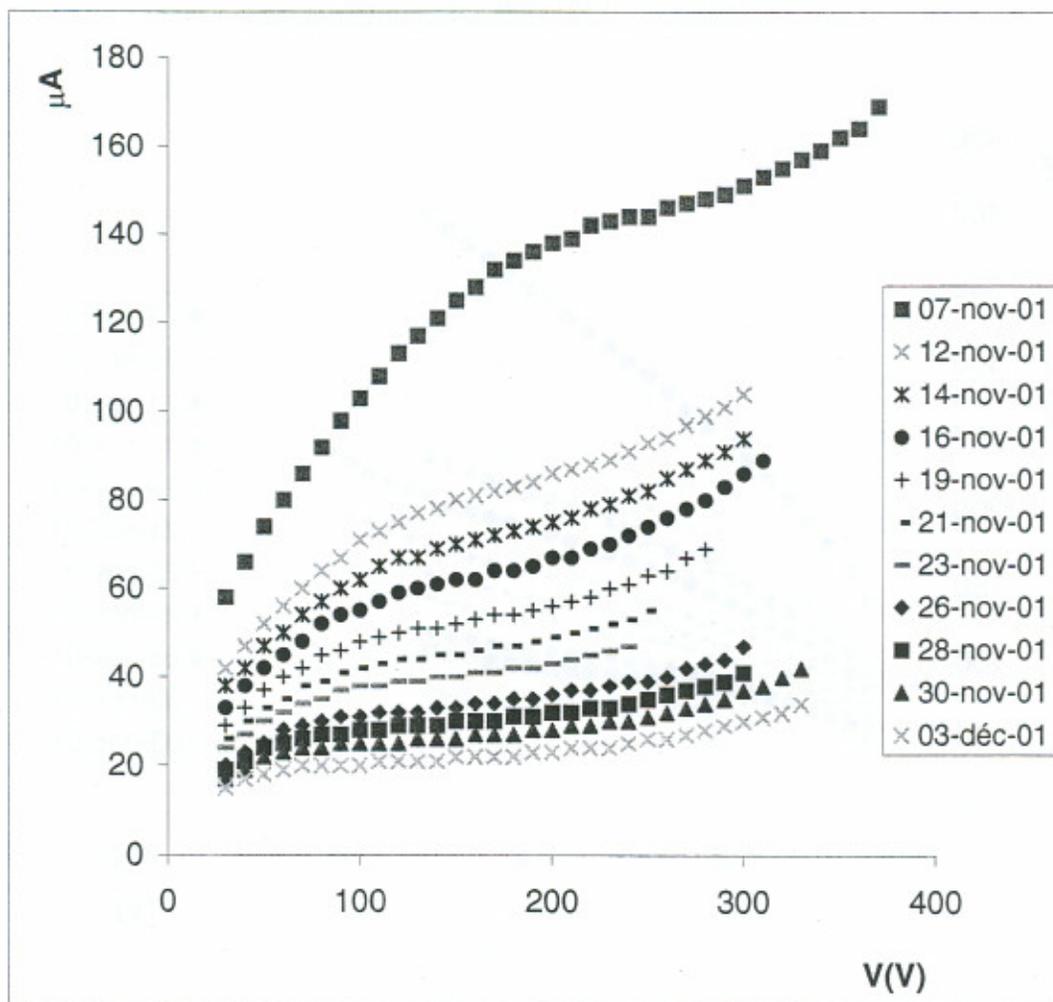


Figure 8.9 : Caractéristiques (Courant ,Tension) de la CFSC2 dans la position 75 cm du V4

Tableau 8-10 : Courants d'inflexion de la CFSC2 dans la position 50 cm du V4

50 cm		
Date	heure	I ( $\mu\text{A}$ )
07-nov-01	14h40mn	338,4
12-nov-01	14h38mn	245,9
14-nov-01	09h17mn	222,2
16-nov-01	13h35mn	184,3
19-nov-01	14h03mn	154,3
21-nov-01	14h05mn	143,0
23-nov-01	09h50mn	126,7
26-nov-01	14h13mn	104,5
28-nov-01	14h25mn	92,3
30-nov-01	09h11mn	84,4
03-déc-01	14h12mn	70,7

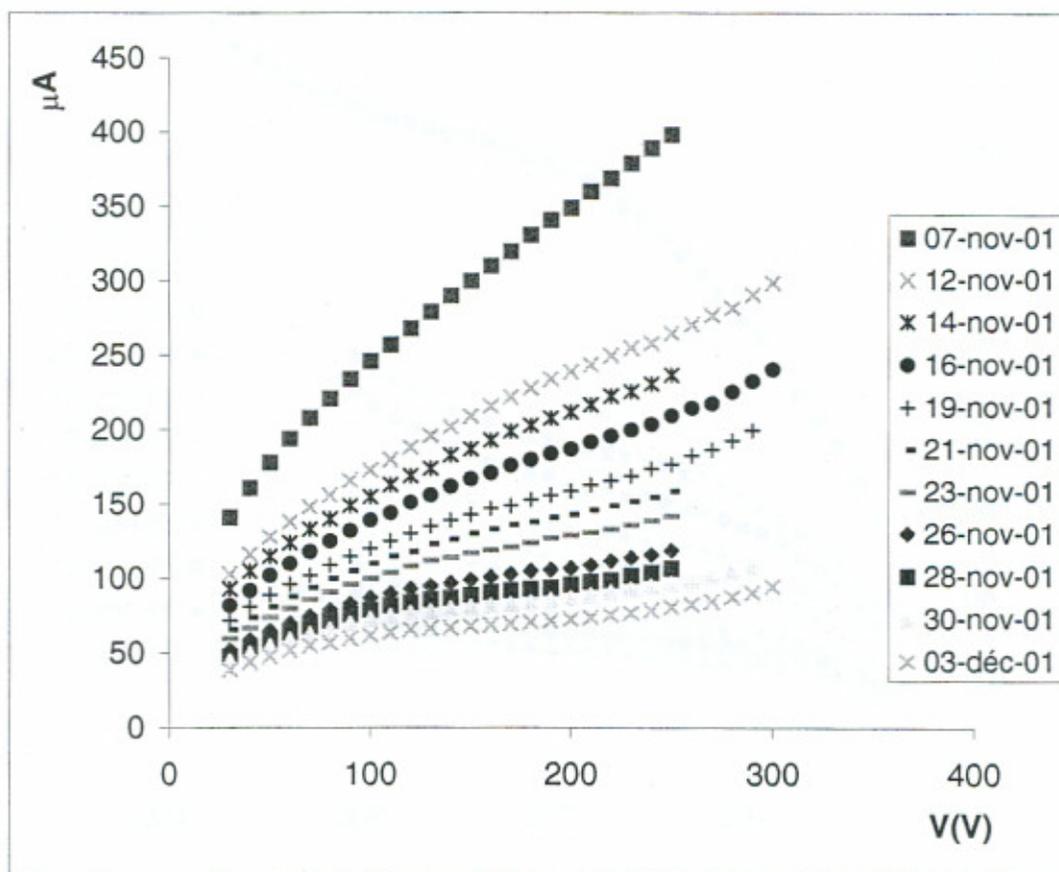


Figure 8.10 : Caractéristiques (Courant, Tension) de la CFSC2 dans la position 50 cm du V4

Tableau 8-11 : Courants d'inflexion de la CFSC2 dans la position 25 cm du V4

25 cm		
Date	heure	I ( $\mu\text{A}$ )
07-nov-01	14h58mn	531,2
14-nov-01	09h33mn	386,3
16-nov-01	14h11mn	349,4
19-nov-01	14h21mn	298,1
21-nov-01	14h21mn	239,4
23-nov-01	10h07mn	247,7
26-nov-01	14h27mn	201,4
28-nov-01	14h39mn	187,2
30-nov-01	09h29mn	349,0
03-déc-01	14h30mn	144,7

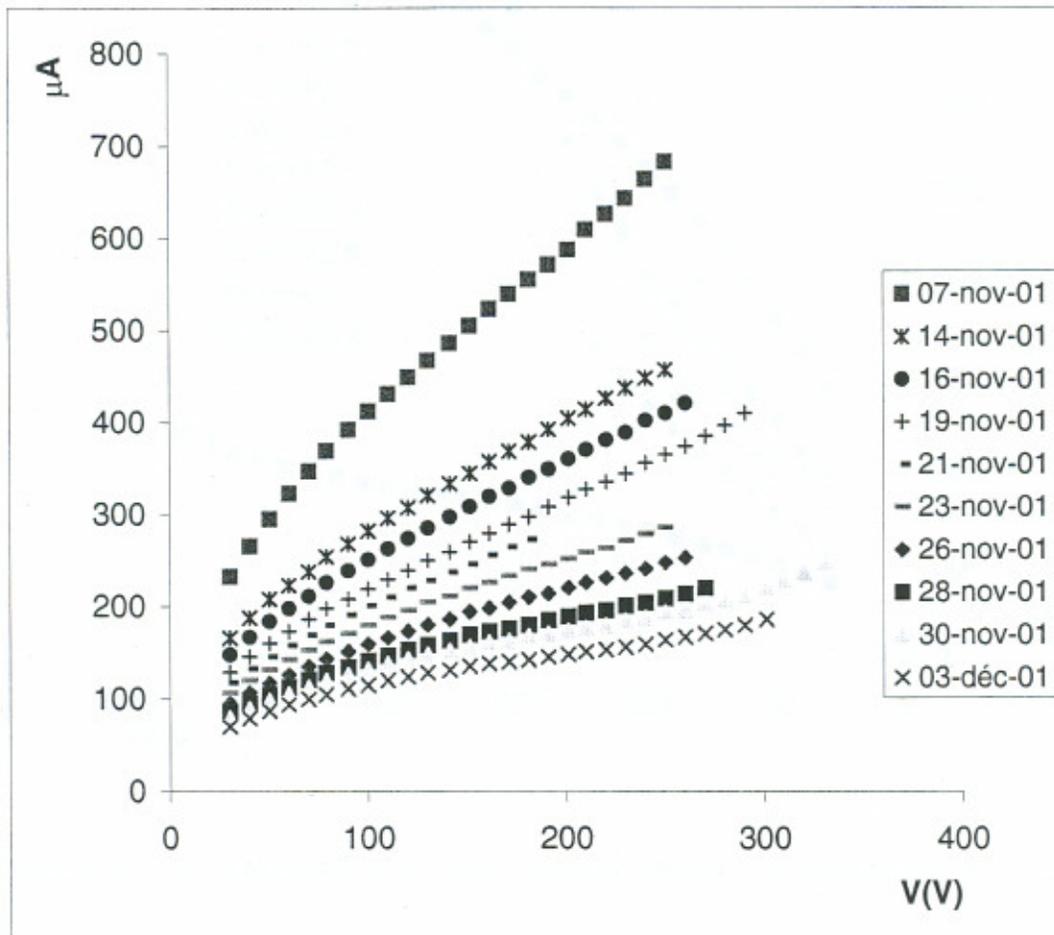


Figure 8.11 : Caractéristiques (Courant ,Tension) de la CFSC2 dans la position 25 cm du V4

Tableau 8-12 : Courant d'inflexion de la CFSC2 dans la position 0 cm du V4 le premier jour d'irradiation ( seule mesure présentant un point d'inflexion)

0 cm		
Date	heure	I ( $\mu\text{A}$ )
07-nov-01	14h02mn	687,9

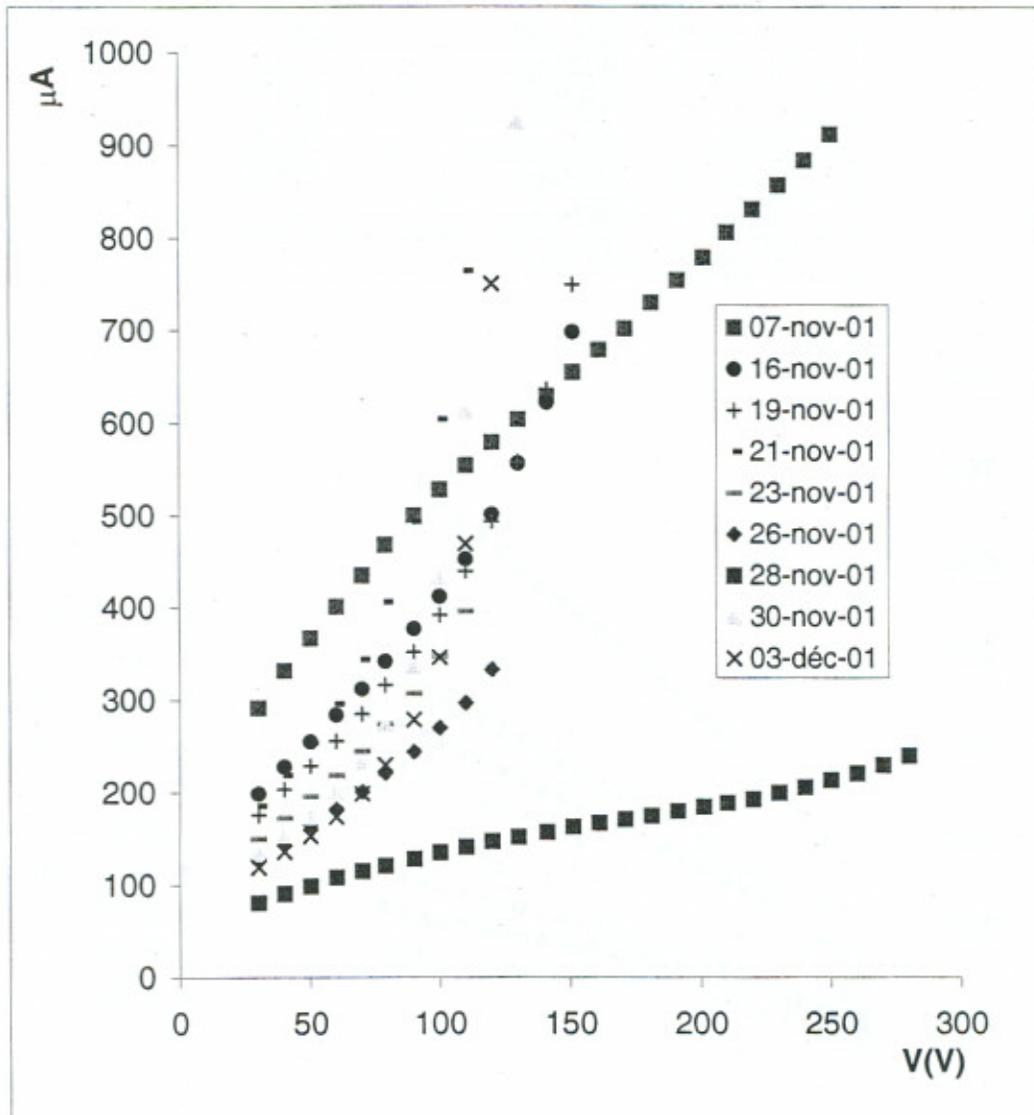


Figure 8.12 : Caractéristiques (Courant ,Tension) de la CFSC2 dans la position 0 cm du V4

### 8.1.3. Fonctionnement de chambres à fission sous néon

Contrairement aux chambres à fission sous argon, la chambre à fission remplie de néon n'a présenté aucun plateau de saturation quelle que soit la valeur du flux (cf. figure 8.14). La forme quasi-exponentielle des courbes indique que les caractéristiques de la chambre (courant, tension) n'ont aucune tendance vers une zone de saturation. Au-delà d'une tension appliquée de 110 V, on remarque même des phénomènes de claquage suivis de fortes décharges de courant (courant dépassant 2 mA). Pour une même tension et pour une masse comparable d'uranium 235, la chambre sous argon délivre un courant inférieur à 200  $\mu\text{A}$ .

La figure 8.14, par le biais des caractéristiques (courant, tension) de la chambre CFSC4 dans la position 100 cm du V4 durant toute la durée d'irradiation, confirme le fonctionnement incohérent de ce détecteur.

La chambre sans dépôt CFSC3, remplie également de néon, montre le même fonctionnement incohérent durant son irradiation (cf. figure 8.15). Cela laisse supposer que le mauvais fonctionnement de ces chambres est dû au comportement intrinsèque du néon irradié par les neutrons, plutôt qu'à l'effet du dépôt actif et notamment des produits de fission gazeux (pollution du gaz de remplissage).

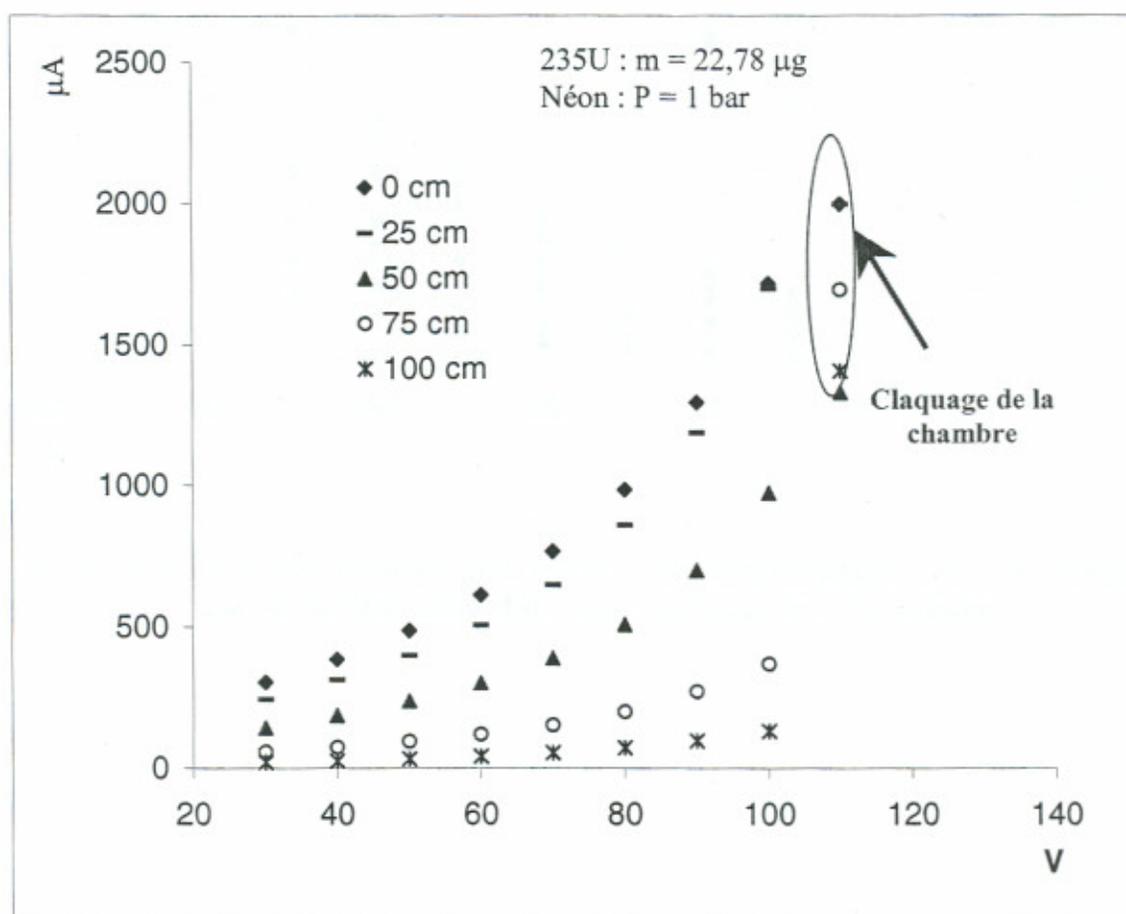


Figure 8.13 : Caractéristiques (courant, tension) de la chambre à fission CFSC4 dans le canal V4 du RHF

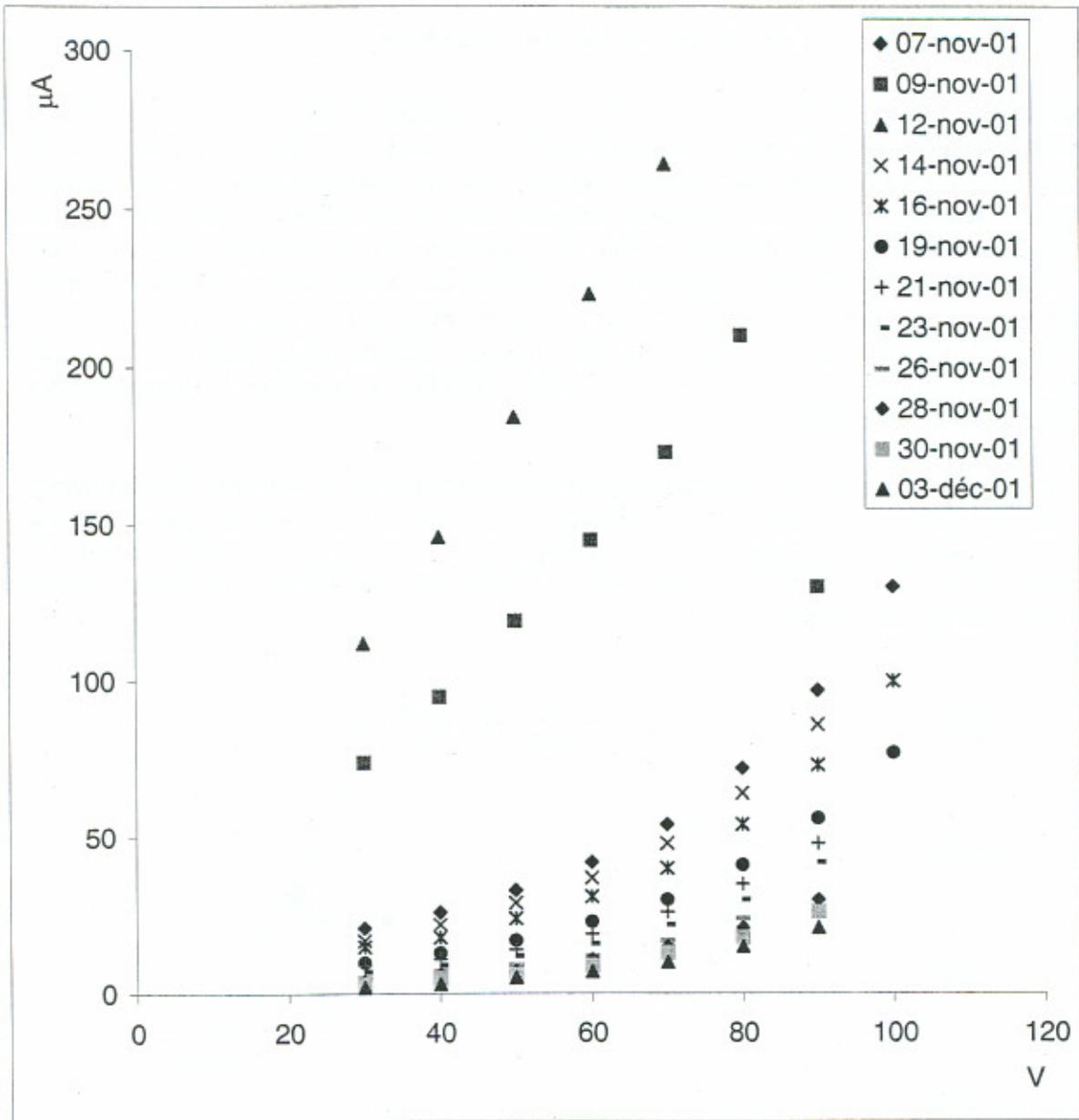


Figure 8.14 : Caractéristiques (courant , tension) de la chambre à fission CFSC3 dans la position 100 cm du canal V4 pour différentes dates de mesure

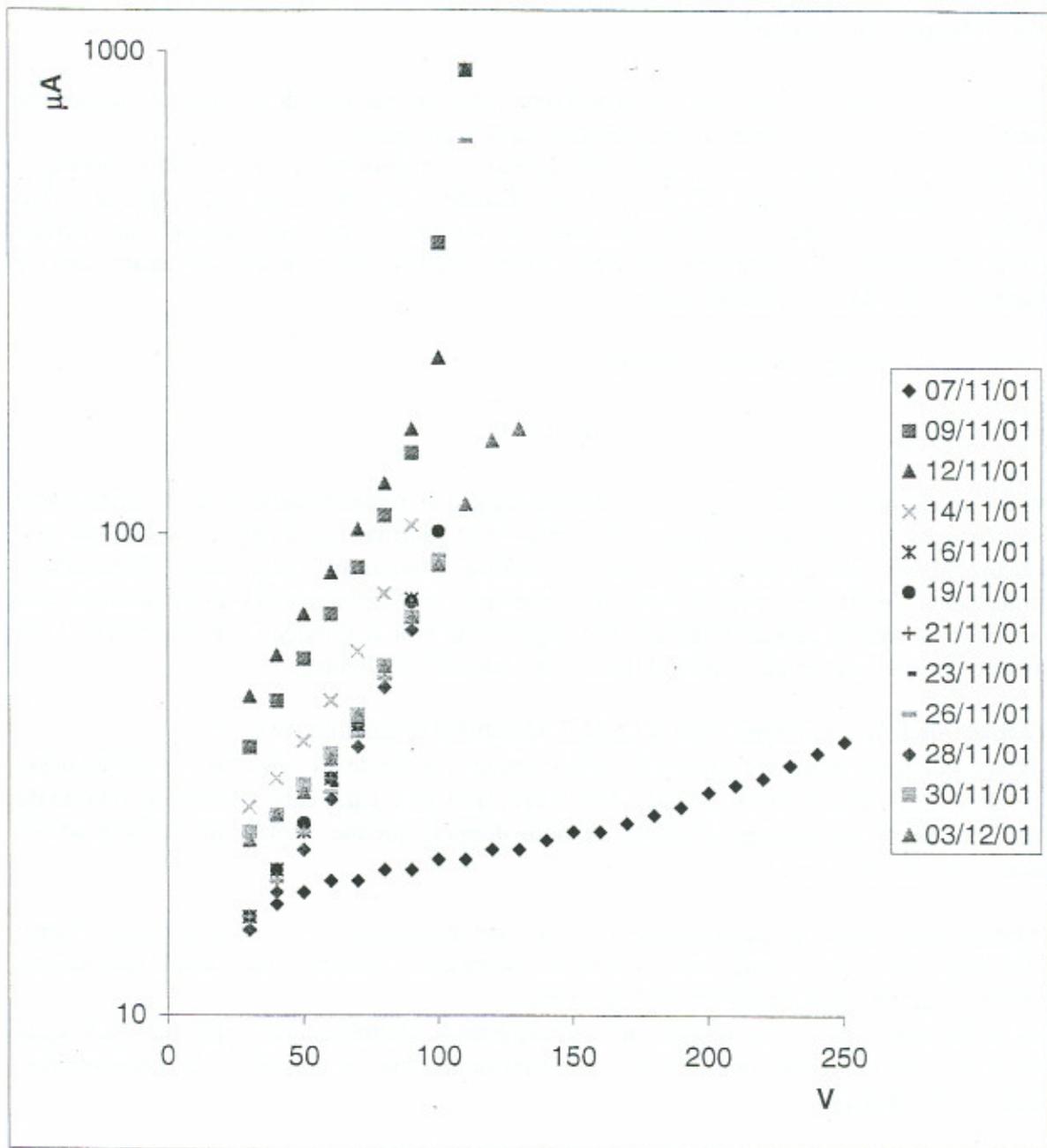


Figure 8.15 : Caractéristiques (courant , tension) de la chambre sans dépôt CFCS3 dans la position 0 cm du canal V4 pour différentes dates de mesure

### 8.1.4. Mesure du " bruit "

Pour mesurer le "bruit", c'est à dire le signal total qui n'est pas issu de fissions, on utilise une chambre identique aux chambres à fission mais sans dépôt fissile.

Deux chambres sans dépôt ont ainsi été fabriquées : une chambre à simple corps remplie de néon à une pression de 1 bar (CFSC3), et une chambre à double corps sous argon à 1,1 bar (CFDC4). Etant donné que les chambres à double corps ont montré un certain "disfonctionnement" (cf. chapitre 9), nous allons exclusivement nous intéresser dans ce paragraphe à la chambre à simple corps.

Le bruit  $I_b$  est la somme de deux courants :

$$I_b = I_\gamma + I_c$$

où  $I_\gamma$  est la composante due à la photo-ionisation du gaz de remplissage et  $I_c$  est la composante du courant due à l'effet des rayonnements (neutrons et gamma) sur le câble à isolant minéral. En effet, la résistance du câble (qui vaut, par mesure, environ  $10^{10} \Omega$  au début d'irradiation) diminue sous l'effet des rayonnements (par exemple, les déplacements atomiques dus aux chocs par les neutrons rapides induisent une augmentation de la conductivité électrique). Cela conduit à l'augmentation du courant de fuite, une des sources du bruit.

On admet que le fonctionnement de la CFSC3 au début d'irradiation est correct.

Le courant de bruit, pour une tension de 150 V, est de l'ordre de 24  $\mu A$  dans la position basse du canal V4 (cf. figure 8.16 et tableau 8.13). Il est inférieur à 1  $\mu A$  dans la position 100 cm du canal. Cependant, les mesures effectuées ne nous donnent aucune information sur le poids de chaque composante,  $I_\gamma$  et  $I_c$ .

Le rapport Bruit/Signal ne dépasse pas 4 % pour une tension de 150 V dans la position basse du V4. Cependant, cette comparaison est à considérer avec prudence étant donné que les gaz de remplissage des deux chambres sont différents.

Dans la position 100 cm, on mesure un courant pour la chambre sans dépôt de 0  $\mu A$ . Cela signifie qu'il est en réalité inférieur à 1  $\mu A$  étant donné que la sensibilité de l'électronique utilisée est de  $\pm 1 \mu A$ .

**Tableau 8-13 : Bruit mesuré dans différentes positions du V4 avec la chambre sans dépôt fissile à une tension de polarisation de 150 V. Comparaison avec le courant délivré par la chambre à fission CFSC1 à la même tension.**

Position dans V4 (cm)	0	25	50	75	100
CFSC3 (sans dépôt - néon) ( $\mu A$ )	24	17	7	2	0
CFSC1 (235U - argon) ( $\mu A$ )	709	520	294	122	41
CFSC3/CFSC1	0,034	0,033	0,024	0,016	-

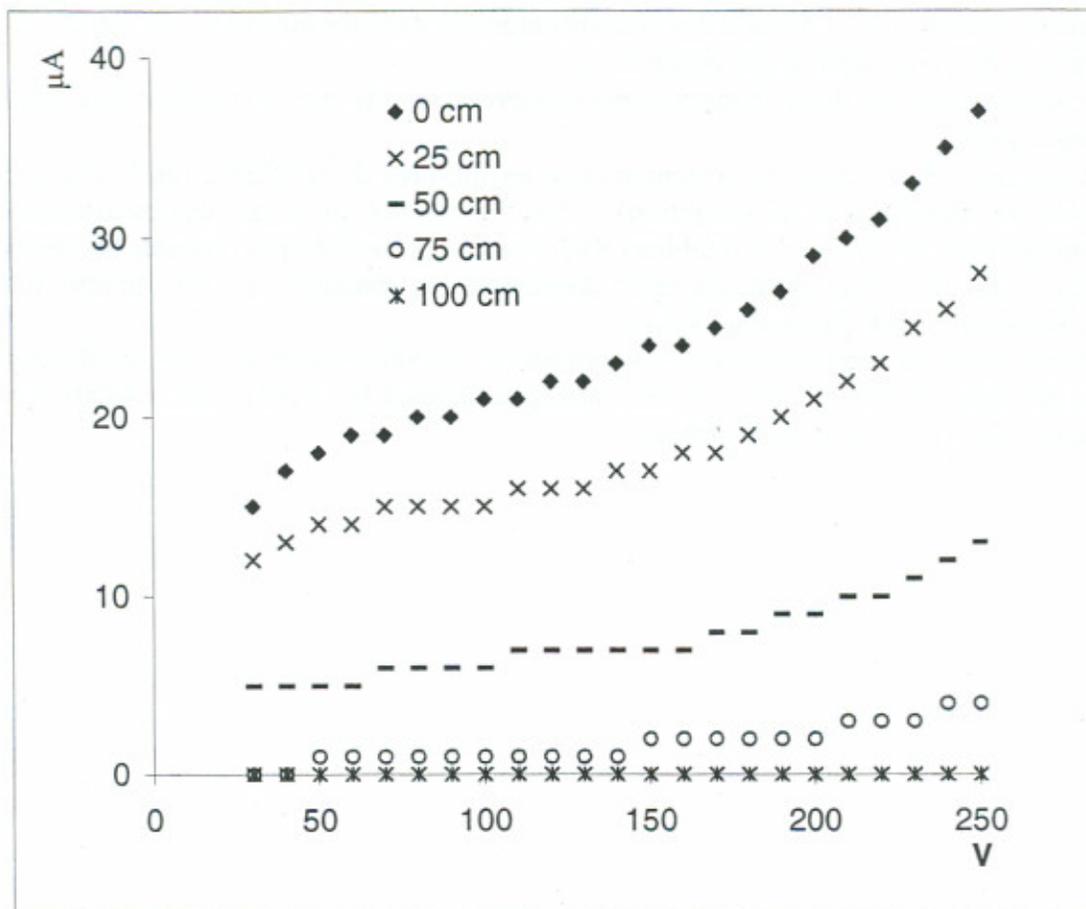


Figure 8.16 : Signal mesuré à l'aide de la CFSC3 sans dépôt dans cinq positions verticales du canal V4 (lors de la première irradiation)

### 8.1.5. Méthode de détermination du flux neutronique

#### 8.1.5.1 Comparaison des valeurs absolues de courant de CFSC1 et CFSC2

Pour pouvoir exploiter de la même façon les mesures effectuées par les deux chambres à fission à simple corps CFSC1 et CFSC2, il est nécessaire de comparer les mesures absolues du courant de saturation effectuées par ces chambres. Pour faire cette comparaison, on normalise le courant de saturation, mesuré dans la position 100 cm du canal V4, par le produit de la masse du dépôt et de la pression de remplissage :  $I_{\text{sat}}/(m \cdot P)$ . En effet, la chambre CFSC1 est remplie à une pression de 1 bar alors que la pression dans CFSC2 est de 1,1 bar. Les masses du dépôt actif sont respectivement 22,66 et 22,21 µg.

Le bon accord des mesures normalisées (cf. figure 8.17 et tableau 8.14) confirme le fonctionnement cohérent des deux chambres à fission. Cela prouve également que ces chambres se sont comportées de la même façon durant toute la période d'irradiation dans le réacteur à haut flux. Ce résultat est précieux puisqu'il nous renseigne d'une part sur la reproductibilité des mesures et d'une autre part sur la similitude des phénomènes physiques auxquels les deux chambres à fission étaient exposées.

Nous remarquons également que les combustion des chambres à fission (combustion ayant lieu dans la position 0 cm) déduite des courants mesurés dans les positions 100 cm et 75 cm montrent une bonne cohérence (cf. figure 8.18).

Le bon accord entre ces deux chambres sera également montré par le calcul de la constante caractéristique  $\Gamma$ .

Pour la position 75 cm, nous ne présentons que les mesures de la CFSC2 (où la chambre a fonctionné en micro-plateau de saturation) ; CFSC1 a montré un certain dysfonctionnement dans cette position (cf. figure 8.4 et tableau 8.4). Nous ne présentons pas non plus les résultats de mesure dans les autres positions étant donné que les chambres n'y ont montré aucun plateau de saturation (cf. paragraphe 8.2.1).

Etant donné le bon accord entre les comportements et les valeurs mesurées de ces chambres, nous ne présenterons par la suite que les courbes relatives à la CFSC1. Les résultats seront cependant donnés pour les deux chambres.

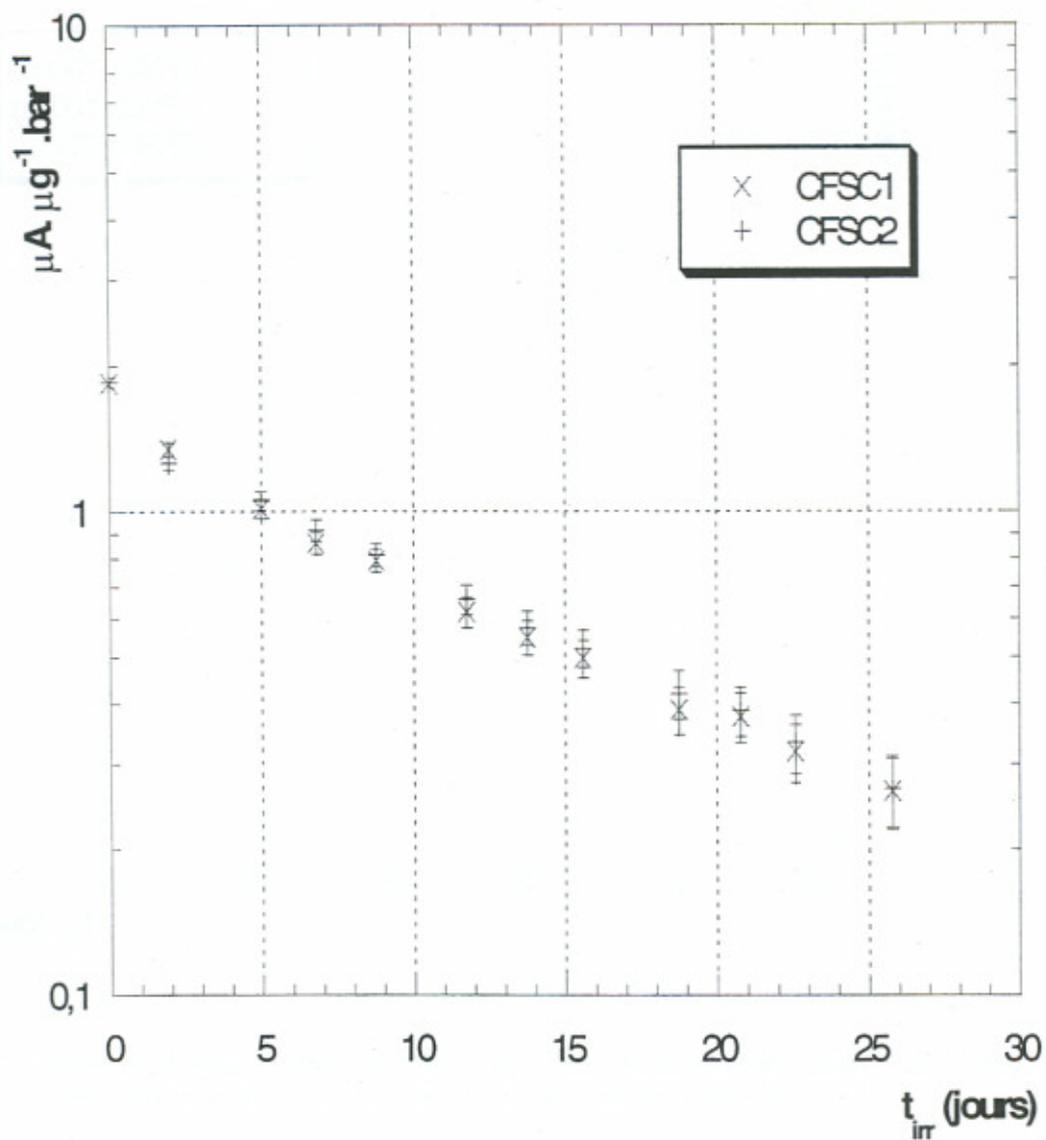


Figure 8.17 : Rapport  $[I_{sat}/(m \cdot P)]$  des deux chambres à fission à simple corps en fonction de la durée d'irradiation

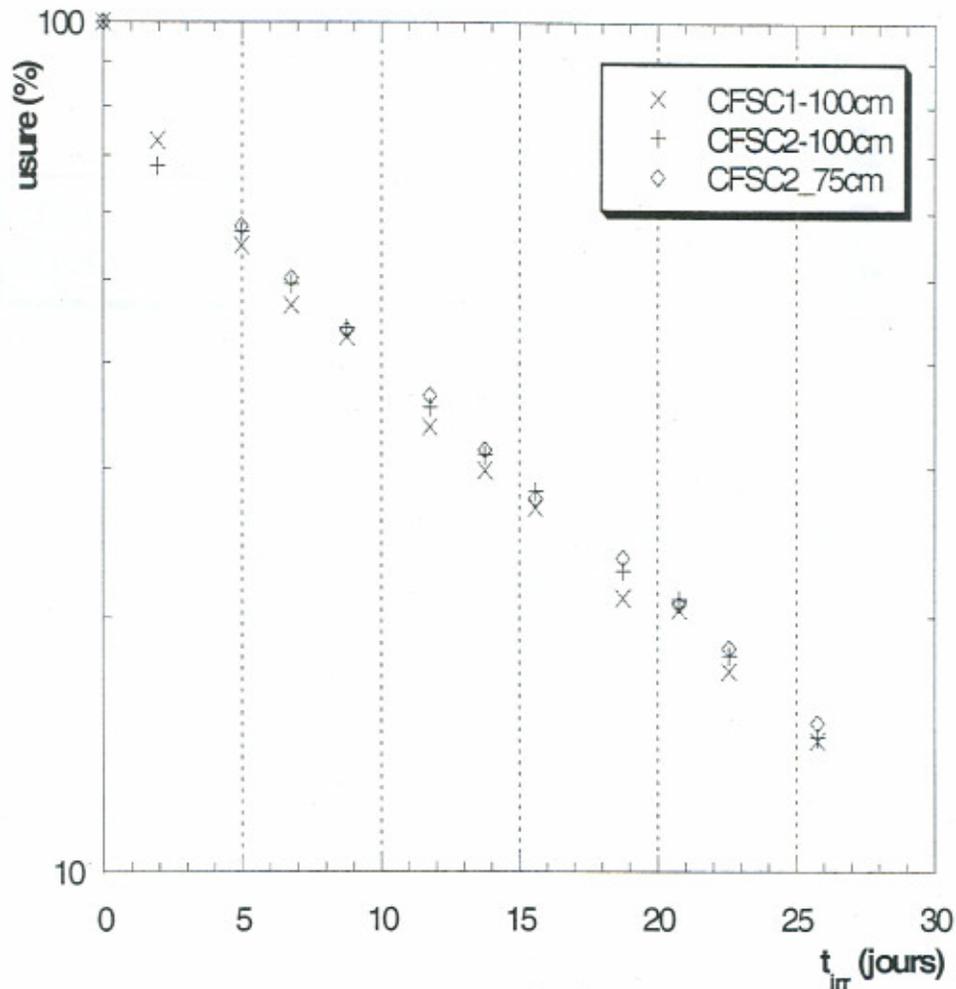


Figure 8.18 : Taux d'usures de la CFSC1 ( $I(t)/I(t=0)$ ) mesuré dans la position 100 cm et de la CFSC2 mesuré dans les positions 100 et 75 cm du canal V4.

Tableau 8-14 : Rapport [ $I_{sat}/(m \cdot P)$ ] pour différente durée d'irradiation. Le courant de saturation est mesuré dans la position 100 cm du canal V4

Durée d'irradiation (jours)	0,0	1,9	5,0	6,8	8,8	11,8	13,8	15,6	18,8	20,8	22,6	25,8
CFSC1	1,85	1,34	1,01	0,86	0,79	0,62	0,55	0,50	0,39	0,38	0,32	0,26
CFSC2	1,85	1,26	1,05	0,92	0,81	0,66	0,58	0,52	0,42	0,39	0,33	0,27

### 8.1.5.2. Cas d'usure du dépôt fissile sans interférence d'autres effets

#### 8.1.5.2.a Flux dans la position basse du canal V4

Une mesure possible du flux à l'aide d'une chambre à fission consiste à évaluer l'usure du dépôt fissile (burn-up). Si l'on suppose qu'il n'y a aucun effet secondaire qui peut intervenir dans le signal électrique, notamment pas de grandes modifications des propriétés du gaz de remplissage et absence de la perte de la matière (sputtering) à cause des neutrons ou des produits de fission, alors l'évolution de cette usure en fonction de la durée d'irradiation suit l'évolution du rapport  $I/I_0$  écrit ci-dessous, où  $I$  est le courant délivré par la chambre à l'instant  $t$  et  $I_0$  le courant délivré au début d'irradiation :

$$\frac{I(t)}{I_0} = e^{-\sigma_a \Phi t} \quad \text{Équation 8.1}$$

Le coefficient  $\sigma_a \Phi$ , produit de la section efficace moyennée d'absorption de l'isotope fissile et du flux de neutron, est déterminé expérimentalement en traçant tout simplement la courbe  $I(t)/I_0$ .

Connaissant avec une bonne précision la section efficace d'absorption (multigroupes) de  $^{235}\text{U}$ , et supposant le spectre neutronique connu, par calcul, et constant durant la période d'irradiation, la détermination du flux total  $\Phi$  est alors immédiate.

Le résultat du calcul de la section efficace de  $^{235}\text{U}$  moyennée sur le spectre au fond du canal V4 est présenté dans le tableau 8.15. Cette section efficace est calculée à 20 °C à l'aide du logiciel MCNP. La température dans le réflecteur du RHF est environ 50 °C. La composante maxwellienne dans la position basse du V4 constitue environ 85 % du spectre. On peut donc multiplier la section efficace d'absorption à 20 °C par le facteur  $g$  correspondant à la température 50 °C. Ce facteur vaut 0,968 pour cette température [43].

Un calcul plus précis sera fait ultérieurement pour valider cette hypothèse.

**Tableau 8-15 : Section efficace moyennée d'absorption de  $^{235}\text{U}$  calculée avec MCNP au fond du canal V4 (bibliothèque ENDF/B-VI)**

$^{235}\text{U}$	
$\sigma_a$ à 50 °C (barns)	Incertitude (barns)
454	~ 6,9

Sur la figure 8.19, nous constatons que les premiers quatre points de mesures n'appartiennent pas à l'exponentielle ajustant la courbe  $I(t)/I_0$ . La prise en compte de ces points dans l'ajustement conduit à un  $\chi^2$  de 24. Cela signifie que la détermination de l'ajustement par une exponentielle n'est pas correcte. En effet, pour le nombre de points de mesure que nous avons (12 points de mesures), cette valeur de  $\chi^2$  signifie statistiquement, selon la notion elle-même du test  $\chi^2$ , que la probabilité que les points de mesure appartiennent à une exponentielle parfaite est de l'ordre de 0,0128!

Si par contre on élimine les quatre premiers points, nous obtenons un ajustement reproduisant avec une exponentielle parfaite les mesures expérimentales (cf. figure 8.20). Le  $\chi^2$  obtenu a une valeur de 0,69, soit une probabilité de reproduction supérieure à 0,994!

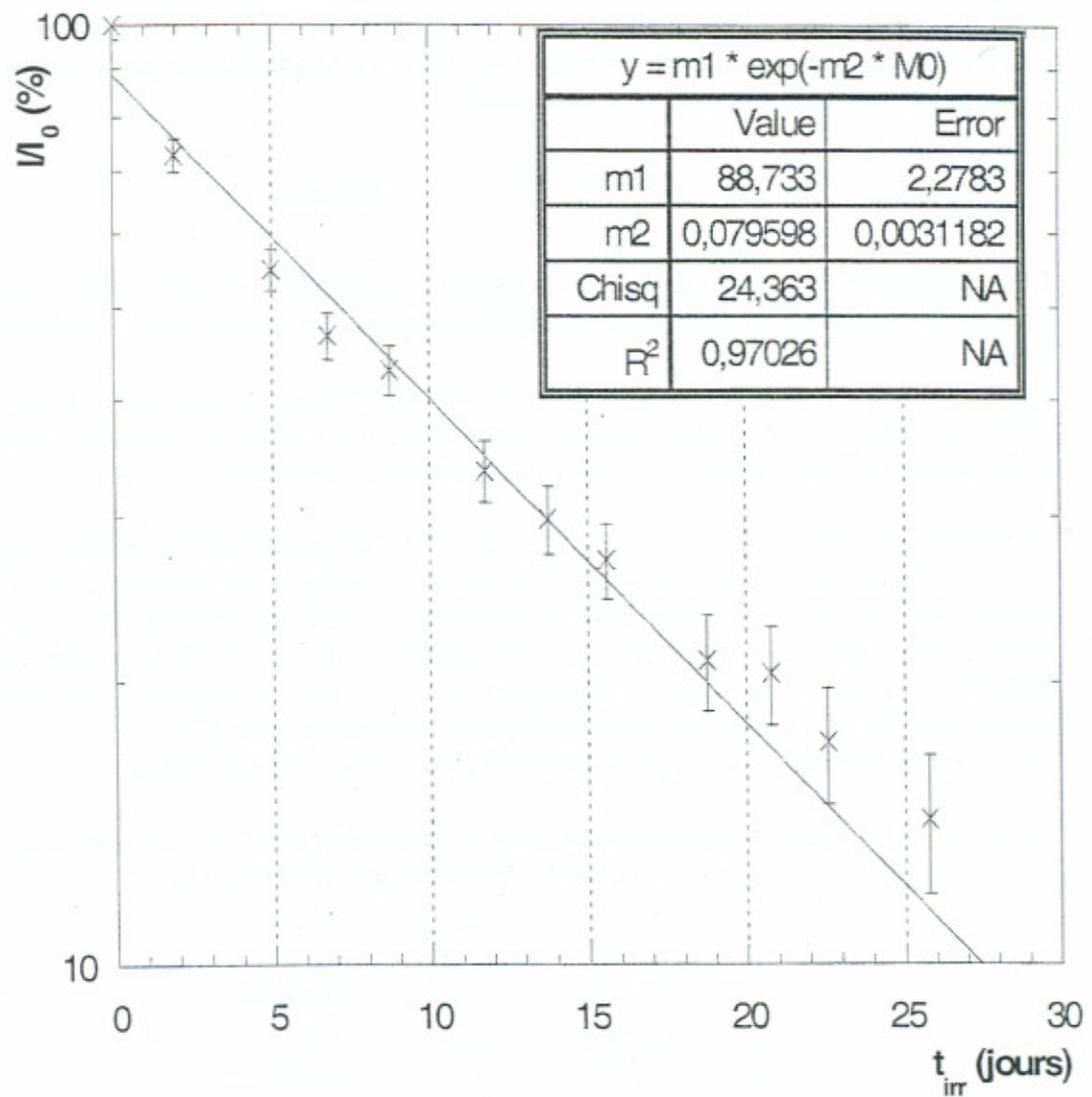


Figure 8.19 : Ajustement, par une exponentielle, des points de mesure de la CFSC1 en considérant tous les points

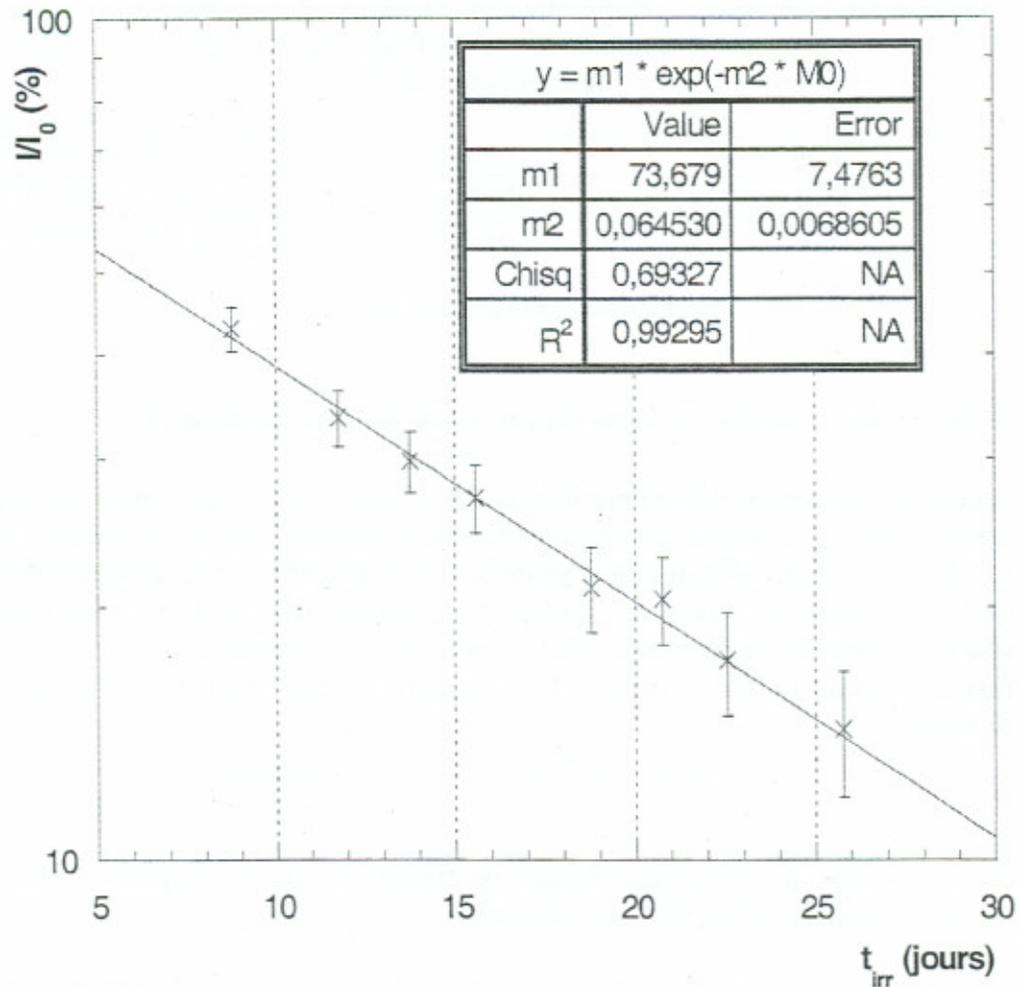


Figure 8.20 : Ajustement avec une exponentielle des points de mesure de la CFSC1 en éliminant les quatre premiers points de mesure

Si l'on considère que l'exponentielle reproduisant les derniers points de mesure est due exclusivement à l'usure du dépôt actif, l'application de l'équation 8.1 de ce paragraphe, permet de déduire l'intensité totale du flux de neutrons dans la position basse du canal V4, autrement-dit au plan médian du cœur à 12 cm du bord du combustible (cf. tableau 8.16).

Le flux moyen obtenu est de  $1,60 \cdot 10^{15} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$  avec une erreur relative associée de l'ordre de 4 %.

Avec cette incertitude, la valeur du flux mesuré est en accord avec celle déterminée par simulation à l'aide du logiciel MCNP. Cette simulation a donné un flux dans la position basse du V4 de l'ordre de  $1,7 \cdot 10^{15} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$  (cf. chapitre 7).

Tableau 8-16 : Flux de neutron dans la position basse du V4 : détermination à partir des mesures des CFSC1 et CFSC2

Chambre à fission	Position dont les mesures de courants sont exploitées pour la détermination de flux	Flux de neutrons dans la position basse du V4 ( $n.cm^{-2}.s^{-1}$ )
CFSC1	100 cm	$(1,63 \pm 0,066) 10^{15}$
CFSC2	100 cm	$(1,59 \pm 0,065) 10^{15}$
CFSC2	75 cm	$(1,58 \pm 0,064) 10^{15}$

$$\Phi_{moy} = (1,60 \pm 0,04) 10^{15} n.cm^{-2}.s^{-1}$$

#### 8.1.5.2.b Flux de neutrons dans les positions hautes du canal V4

Le courant de saturation délivré par la chambre à fission est proportionnel au taux de fission du dépôt fissile. La constante de proportionnalité ne dépend que de la nature et de la pression du gaz de remplissage ainsi que de la géométrie de la chambre. Cette propriété nous permet de déduire, connaissant le flux à une altitude de référence ( $\Phi_0$ ), le flux à toute altitude ( $\Phi_x$ ) en mesurant les courants de saturation dans les positions concernées,  $I_0$  et  $I_x$ .

Le flux à l'altitude  $x$  ( $\Phi_x$ ) du canal V4, en fonction de celui mesuré au fond du canal V ( $\Phi_0$ ), est donné par :

$$\Phi_x = \Phi_0 \frac{I_x \sigma_{f0}}{I_0 \sigma_{fx}} \quad \text{Équation 8.2}$$

où  $\sigma_{fx}$  et  $\sigma_{f0}$  sont les sections efficaces de fission de  $^{235}\text{U}$  moyennées sur les spectres respectifs aux cotes  $x$  et  $0$  à  $50^\circ\text{C}$  (cf. chapitre 7).

Sachant que les chambres à fission n'ont montré de plateaux de saturation bien prononcés que dans la position 100 cm du V4, pour déterminer les intensités de flux dans d'autres positions du V4, nous considérons les résultats des calculs MCNP. Ainsi, le flux déduit dans la position  $x$  ( $\Phi_x$ ) en fonction de celui mesuré dans la position  $0$  ( $\Phi_0$ ) du canal V4 est donné par :

$$\Phi_x = \lambda \Phi_0 \quad \text{Équation 8.3}$$

où  $\lambda$  exprime le rapport calculé entre les flux dans les positions  $0$  et  $x$  du V4.

Nous pouvons également utiliser les courants d'inflexion dans les positions où la chambre à fission n'a pas montré de plage de saturation pour appliquer l'équation 8.2. Cependant, il faut prendre ces résultats avec prudence car, en appliquant cette méthode, on admet que le courant d'inflexion est directement proportionnel au taux de fission ce qui reste une hypothèse à vérifier.

Les résultats sont présentés dans le tableau 8.17. A l'exception de la valeur de flux dans la position 100 cm, le flux dans les autres positions est assez cohérent pour les deux méthodes. Cela pourrait donner une certaine légitimité au fait de considérer les courants correspondant au point d'inflexion pour les caractéristiques (courant , tension) ne présentant pas de plateau de saturation.

L'écart sur la valeur dans la position 100 cm pourrait être d'origine statistique dans le logiciel MCNP. Les calculs sont alors à refaire avec beaucoup plus de neutrons (plus d'un million). Les résultats finaux seront présentés dans la version finale de cette thèse.

**Tableau 8-17 : Flux de neutrons dans différentes altitudes du canal V4 ; L'incertitude sur les valeurs de flux est de l'ordre de 4 %**

Position dans V4 (cm)	Rapport de simulation $\lambda = \Phi_x / \Phi_0$	Intensité de flux à partir du rapport de simulation $\lambda$ et du flux mesuré dans la position 0 cm (n.cm <sup>-2</sup> .s <sup>-1</sup> )	Intensité de flux déterminée à partir des courants d'inflexion (à l'instant t = 0) et du flux mesuré dans la position 0 cm (n.cm <sup>-2</sup> .s <sup>-1</sup> )
0	1	(1,60 ± 0,07) 10 <sup>15</sup>	(1,62 ± 0,07) 10 <sup>15</sup>
25	0,79	(1,27 ± 0,09) 10 <sup>15</sup>	(1,22 ± 0,09) 10 <sup>15</sup>
50	0,43	(6,87 ± 0,48) 10 <sup>14</sup>	(7,11 ± 0,50) 10 <sup>14</sup>
75	0,17	(2,78 ± 0,19) 10 <sup>14</sup>	(2,88 ± 0,20) 10 <sup>14</sup>
100	0,056	(9,03 ± 0,64) 10 <sup>13</sup>	(8,30 ± 0,59) 10 <sup>13</sup>

### 8.1.5.3. Origines des perturbations des mesures avec les chambres à fission

#### 8.1.5.3.a Reproduction des points expérimentaux de la chambre à fission

Dans le paragraphe précédent on a montré que les mesures de la chambre à fission à simple corps ne sont pas reproduites par une exponentielle contrairement à ce qu'on s'attendait. En effet, les premières mesures montrent une pente beaucoup plus forte que la pente de l'exponentielle prévue.

On peut déduire de cette constatation qu'un effet (ou plusieurs effets) intervient dans l'usure de la chambre, notamment au début d'irradiation.

Pour comprendre cet effet, nous avons essayé d'ajuster les mesures avec plusieurs fonctions composées d'exponentielles. La fonction qui arrive à reproduire les points expérimentaux avec un  $\chi^2$  correct est sous la forme :

$$\frac{I(t)}{I_0} = a I e^{-a_2 t} \times \frac{1 + a_3 e^{-a_4 t}}{1 + a_3} \quad \text{Équation 8.4}$$

Il semble évident que la première exponentielle est due à la fission, ce qui revient à écrire :

$$\frac{I(t)}{I_0} = \left( \frac{I(t)}{I_0} \right)_{\text{fission}} \times \frac{1 + a e^{-\beta t}}{1 + a} \quad \text{Équation 8.5}$$

La figure 8.21 montre la reproduction des points expérimentaux avec cette fonction. Le  $\chi^2$  vaut 0,86, ce qui signifie une probabilité de reproduction supérieure à 0,998.

Les valeurs de flux ajustés avec cette fonction sont identiques à celles présentés précédemment (au tableau 8.16).

D'autre part, ces valeurs sont « robustes » vis-à-vis de cette fonction de correction car un ajustement avec une fonction du type  $1/(1 + \alpha t^2)$  donne les mêmes valeurs de flux.

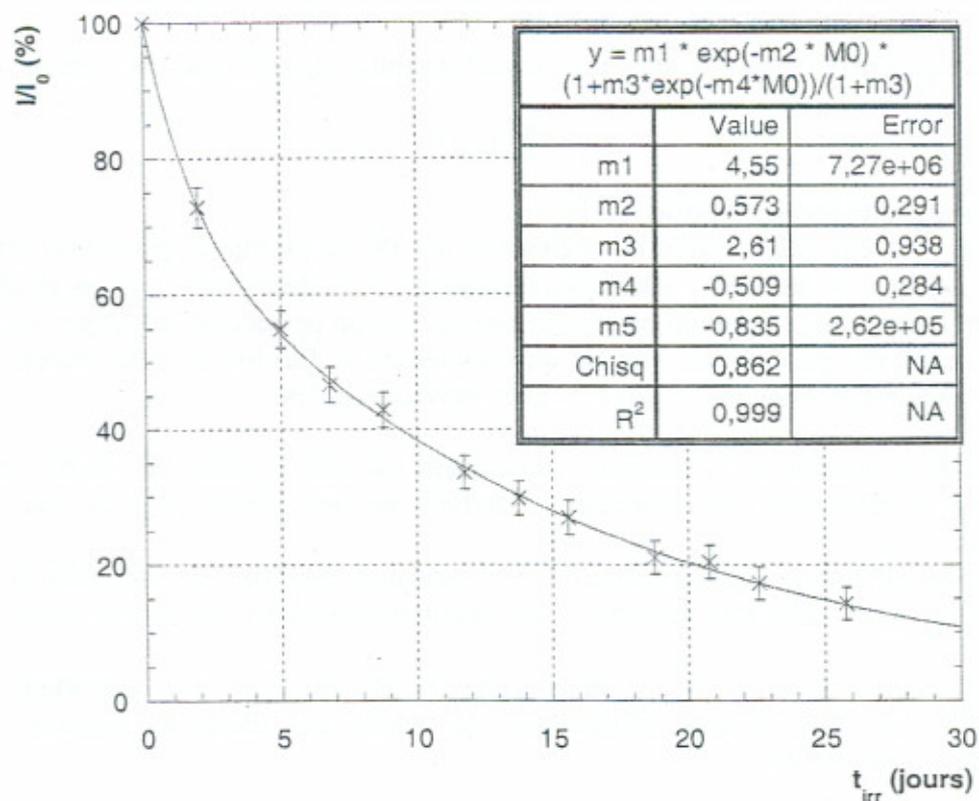


Figure 8.21 : Ajustement des points de mesure de la CFSC1 avec une fonction du type :

$$e^{-a_2 t} \times \frac{1 + a_3 e^{-a_4 t}}{1 + a_3}$$

### 8.1.5.3.b Interprétation de la reproduction des points expérimentaux

Le signal produit dans une chambre à fission provient de l'ionisation du gaz par un fragment de fission émis après la capture puis la fission de l'élément fissile déposé. Un grand nombre d'électrons est généré par produit de fission (environ  $2 \cdot 10^5$  électrons/PF) ce qui donne un courant mesurable. Cependant, plusieurs facteurs peuvent intervenir pour dégrader le signal :

- l'activité des PF qui sont émetteurs  $\beta$ ,
- la nature du gaz qui peut varier selon les concentrations de PF gazeux,
- et le dépôt qui peut se dégrader en fonction du temps notamment à cause du recul des atomes induit par les PF ou par les neutrons eux-mêmes (phénomène dit « perte de la matière » ou sputtering en anglais.

Analysons chacune de ces sources de bruit afin d'établir celle qui peut potentiellement perturber le signal mesuré.

### 8.1.5.3.c Activité des PF

Dans cette hypothèse, on suppose que l'activité des produits de fissions génère un grand nombre d'électrons qui pourraient s'ajouter au signal d'ionisation.

L'activité d'un PF est proportionnelle à son taux de décroissance et à sa quantité formée qui est liée au taux de fission du dépôt.

D'une manière générale, on peut écrire l'activité de l'ensemble des PF produits comme :

$$A(t) = \sum_i \lambda_i N_i(t)$$

où  $N_i(t)$  est la quantité formée pour le  $i^{\text{ème}}$  PF.

Cette écriture peut être hiérarchisée en regroupant les PF de première génération (produits directs de la fission), de deuxième génération (provenant de la décroissance  $\beta$  des produits de première génération), etc... Cette procédure de hiérarchisation permet de moyenner les durées de vie de chacune des générations, sachant que l'évolution se fait toujours des durées de vie les plus courtes aux durées de vie les plus longues (noyaux stables).

Le calcul jusqu'à la génération 5 nous montre que quelle que soit la valeur des durées de vie (à condition que la hiérarchie soit respectée), l'activité ne peut décroître plus vite que la combustion de  $^{235}\text{U}$ .

Cette conclusion est en parfait désaccord avec la constatation faite sur la combustion de  $^{235}\text{U}$  où l'on voit une décroissance plus importante que la combustion dans les premiers jours.

De plus, les électrons produits par la décroissance des PF, bien que plus important que le nombre de PF eux-même, restent négligeables par rapport aux électrons produits lors de l'ionisation du gaz par un PF.

En conclusion, l'activité générée par les PF ne peut expliquer le phénomène observé.

### 8.1.5.3.d Modification de la nature du gaz par les produits de fission

Dans cette hypothèse, on suppose que l'accumulation de PF gazeux dans l'enceinte de la chambre peut modifier la nature du gaz présent et donc modifier ses qualités d'ionisation. La mesure au temps  $t = 0$  serait donc une bonne mesure puisque les PF n'ont pas eu le temps de s'accumuler, et on verrait progressivement se détériorer le signal au fur et à mesure que les PF s'accumulent. Compte tenu de l'allure de la courbe de combustion (cf. figure 8.21), ce phénomène doit saturer avec le temps.

Une manière de formaliser ces hypothèses est d'exprimer la constante caractéristique de la chambre  $\Gamma$  dépendante du temps et plus particulièrement dépendante de la concentration de PF gazeux dans l'enceinte. Ceci peut s'écrire :

$$\Gamma(t) = \frac{\Gamma_0}{(1 - a f([PF]))}$$

où  $f([PF])$  est une fonction exprimant l'évolution de la collection des charges en fonction de la concentration de PF gazeux. Celle-ci, en supposant en première approximation, qu'elle suit la même évolution que l'ensemble des PF s'exprime comme :

$$[PF] = \frac{\sigma f x \Phi x}{\sigma_{a0} \Phi_0} (1 - e^{-\sigma_{a0} \Phi_0 t})$$

où :

$\sigma_{fx}$  : section efficace de fission de l' $^{235}\text{U}$  dans la position  $x$ ,

$\sigma_{a0}$  : section efficace d'absorption dans la position 0,

$\Phi_x$  : flux dans la position  $x$ ,

$\Phi_0$  : flux dans la position 0.

La seule façon de reproduire les données de manière satisfaisante (avec un faible  $\chi^2$ ) et d'obtenir une valeur de flux cohérente avec ce à quoi on s'attend, est d'exprimer la variation de la collection des charges en fonction de la concentration de PF gazeux comme une variation exponentielle :

$$f([PF]) = 1 - e^{-\gamma[PF]}$$

L'ajustement des données avec cette paramétrisation donne les résultats suivants :

un flux de  $(1,64 \pm 0,09) 10^{15} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ,

$\alpha = (0,29 \pm 0,04)$  ;  $\beta = (164 \pm 46)$ ,

$\chi^2 = 0,029$ .

Néanmoins il reste à trouver une signification satisfaisante à cette expression qui signifie que la collection des charges varie très rapidement avec une faible concentration pour saturer et donc ne plus dépendre de cette concentration !

#### 8.1.5.3.e Dégradation du dépôt.

Une autre hypothèse tout à fait cohérente compte tenu des taux de fission élevés et de ce qui a pu être observé par ailleurs notamment sur les cibles d'irradiations de Lohengrin avec des dépôts de masses équivalentes et un flux moindre ( $6 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ), consiste à considérer une perte de masse du dépôt en fonction du temps par le biais du phénomène de « la perte de la matière » ou la pulvérisation » (sputtering). Ce phénomène a lieu lorsqu'un fragment de fission créé dans le dépôt éjecte un atome d' $^{235}\text{U}$  en traversant ce dépôt. Le noyau ainsi éjecté devient moins « disponible » pour le fonctionnement de la chambre ce qui pourrait expliquer la réduction du signal avec le temps puis une stabilisation car le processus devient négligeable lorsque la masse de dépôt n'est plus suffisante.

La modélisation du processus de la perte de la matière n'est malheureusement pas aussi simple que les cas étudiés précédemment et demande une résolution numérique des équations d'évolutions de la densité surfacique d'atomes d' $^{235}\text{U}$  en fonction du temps. Cette évolution peut s'écrire ainsi :

$$\frac{d\rho(x,t)}{dt} = -(\sigma_f \Phi + \sigma_s Q_{PF}) \rho(x,t) dx$$

où  $\sigma_s$  est la probabilité de la perte de la matière exprimée par atome d' $^{235}\text{U}$  et par PF incident.  $Q_{PF}$ , le nombre de PF traversant la position  $x$ , est exprimé comme :

$$QPF(x,t) = \int_0^x \left[ \sigma_f \Phi \rho(u,t) \left( 1 - e^{-\int_u^x \rho(v,t) dv} \right) \right] du$$

Pour suivre l'évolution de la masse de dépôt dans le temps, il suffit d'intégrer la densité surfacique sur toute l'épaisseur X.

Dans l'expression de la perte de la matière décrite ci-dessus, on suppose que la probabilité de fissionner pour un noyau ne dépend pas de sa position dans le dépôt et que tous les atomes « déplacés » sous l'effet du phénomène étudié ne peuvent plus participer au signal. Cette condition est certainement trop drastique, et il faut certainement introduire une fonction de la pondération.

Le résultat de l'intégration numérique de cette équation montre qu'en prenant une probabilité  $\sigma_s = 8 \cdot 10^{-17}$ , l'évolution de la masse suit une exponentielle dont la pente est la même que celle mesurée dans les premiers instants de mesure, mais qu'après 6 jours d'irradiation, la masse ne suit plus une exponentielle et décroît plus rapidement que celle-ci.

### 8.1.6. Evaluation des constantes caractéristiques des chambres à fission

La constante caractéristique, rapport entre le taux de fission et le courant de saturation, est donnée par la relation suivante (cf. chapitre 6) :

$$\Gamma = N_{av} \frac{m_0}{M} \sigma_{fx} \frac{\Phi_x}{I_{sx}} \quad \text{Équation 8.6}$$

- Nav : Nombre d'Avogadro,
- m<sub>0</sub> : masse d'uranium 235 déposé,
- M : masse molaire de <sup>235</sup>U,
- σ<sub>fx</sub> : section efficace de fission de <sup>235</sup>U moyennée sur le spectre dans la position x du canal V4,
- Φ<sub>x</sub> : flux de neutrons total dans la position x du canal V4,
- I<sub>sx</sub> : courant de saturation délivré par la chambre à fission mesuré dans la position x du canal V4 en début d'irradiation.

La chambre à fission n'a montré de plateau de saturation bien prononcé que dans la position 100 cm dans V4. Ce sont donc les mesures effectuées dans cette position qui seront exploitées pour déterminer la constante caractéristique de la chambre.

Si l'on considère que c'est l'effet de la perte de la matière qui est responsable de la forte pente constatée au début des mesures, le courant considéré dans l'équation 8.4 sera celui qui correspond effectivement à l'instant t = 0 et non la valeur extrapolée à partir de la courbe 8.23. En effet, la perte de la matière n'est pas encore importante dans les toutes premières secondes de mesure, nous considérons que le courant mesuré au temps t = 0 est dû au dépôt fissile non encore endommagé.

La masse m<sub>0</sub> est la masse fissile, donc celle de <sup>235</sup>U. <sup>235</sup>U présente 98,5 % des constituants du dépôt actif.

Le tableau suivant montre les valeurs utilisées pour chaque paramètre :

Grandeur	$m_0$ ( $\mu\text{g}$ )	Pression (bar)	$\sigma_{f100}$ (50 °C) (barn)	$\Phi_{100}$ ( $\text{n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ )	$I_{sx}$ (mesuré à $t = 0$ dans la position 100 cm) ( $\mu\text{A}$ )	$\Gamma$ ( $10^{13}$ fissions. $\text{A}^{-1}.\text{s}^{-1}$ )
CFSC1	22,66	1	483	$9,1 \cdot 10^{13}$	41,5	$6,00 \pm 0,30$
CFSC2	22,21	1,1	483	$9,1 \cdot 10^{13}$	45,2	$5,40 \pm 0,28$

Les deux constantes caractéristiques sont en accord dans le rapport des pressions (- 10 %).

### 8.1.7. Comparaison des mesures avec les modèles

Nous calculons la sensibilité des deux chambres à fission CFSC1 et CFSC2, définie comme étant le rapport du courant de saturation et le flux d'irradiation, d'après les modèles cités dans le chapitre 4 (notre modèle, le modèle FCD du LSMN et le modèle FCD avec l'approche Vermeern) pour comparer ces derniers avec les résultats expérimentaux obtenus dans ce chapitre. Les courants de saturation considérés sont ceux mesurés dans la position 100 cm dans V4 comme cela est indiqué dans le tableau ci-dessus. Nous constatons, d'après les valeurs des sensibilités présentées dans le tableau ci-dessous, que le modèle FCD amélioré par Vermeern présente d'excellent résultats par rapport à la mesure.

Sensibilité ( $10^{-19}$ A/ $\text{n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ )	mesure	Modèles		
		Notre modèle	FCD	FCD/Vermeern
CFSC1	4,6	5,1	5,4	4,6
CFSC2	5,0	5,5	5,8	4,9

Il y a une autre grandeur calculée par ces modèles que nous pouvons également comparer avec les résultats des mesures, c'est le flux de saturation défini comme étant la valeur minimale du flux pour un spectre de neutrons et une chambre donnés pour que cette dernière ne fonctionne plus en régime de saturation (cf. tableau de la page suivante). Les mesures effectuées dans ces travaux ne donnent, bien-entendu, que des indications sur l'intervalle de ce flux et non la valeur exacte. Comme nous l'avons vu dans ce chapitre, les CFSC n'ont montré de plateau de saturation bien prononcé que dans la position 100 cm du V4. Cela signifie que pour le spectre neutronique de cette position et pour une chambre identique à une de nos deux chambres, le flux de saturation est supérieur à l'intensité de flux dans la position 100 cm. Dans la position 75 cm du V4, le spectre est très légèrement différent (il est moins thermique) que celui dans 100 cm. Le plateau de saturation des CFSC dans la position 75 cm est très étroit ce qui laisse penser que la valeur de flux dans cette position est très proche du flux de saturation. Dans les autres positions, les chambres n'ont pas fonctionné en régime de saturation ce qui signifie que les flux d'irradiation sont supérieurs aux flux de saturation.

La comparaison entre les modèles et les conclusions des mesures montre que les prédictions des calculs restent relativement acceptables. Les résultats des calculs effectués avec le modèle FCD sous forme de figures sont donnés dans l'annexe 3.

Flux de saturation ( $\text{n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ )		mesure	Notre modèle	Calcul FCD
CFSC1	100	$> 9,6 \cdot 10^{13}$	$5,7 \cdot 10^{14}$	$6,1 \cdot 10^{14}$
	75	$\sim 2,7 \cdot 10^{14}$	$5,8 \cdot 10^{14}$	$6,2 \cdot 10^{14}$
	50	$< 6,9 \cdot 10^{14}$	$6,0 \cdot 10^{14}$	$6,4 \cdot 10^{14}$
	25	$< 1,3 \cdot 10^{15}$	$6,6 \cdot 10^{14}$	$7,0 \cdot 10^{14}$
	0	$< 1,6 \cdot 10^{15}$	$7,0 \cdot 10^{14}$	$7,6 \cdot 10^{14}$
CFSC2	100	$> 9,6 \cdot 10^{13}$	$5,7 \cdot 10^{14}$	$6,2 \cdot 10^{14}$
	75	$\sim 2,7 \cdot 10^{14}$	$5,9 \cdot 10^{14}$	$6,2 \cdot 10^{14}$
	50	$< 6,9 \cdot 10^{14}$	$6,2 \cdot 10^{14}$	$6,6 \cdot 10^{14}$
	25	$< 1,3 \cdot 10^{15}$	$6,9 \cdot 10^{14}$	$7,2 \cdot 10^{14}$
	0	$< 1,6 \cdot 10^{15}$	$7,2 \cdot 10^{14}$	$7,7 \cdot 10^{14}$

### 8.1.8. Conclusion

En conclusion, les mesures effectuées par les chambres à fissions à simple corps sont en parfait accord entre elles durant toute la période d'irradiation.

Cependant, contrairement à ce qu'on s'y attendait, l'usure de ces chambres ne suit pas une loi exponentielle parfaite. Les mesures effectuées les premiers jours d'irradiation montrent une pente de décroissance très forte par rapport à l'ensemble des points expérimentaux. Cela a laissé supposer l'intervention d'autres phénomènes dans l'usure de la chambre ou dans la perturbation du signal mesuré. Vu le retour d'expérience que le groupe Mini-Inca possède concernant les mesures sous haut flux de neutrons, notamment dans le canal H9 du Lohengrin à l'ILL et vues les constatations faites dans des conditions neutroniques moins sévères, nous pensons que le phénomène le plus probable dans la perturbation des mesures des chambres à fission est « la perte de la matière ». L'intervention de ce phénomène reste encore à détailler.

En prenant en compte les observations effectuées, et en ajustant « correctement » les points expérimentaux, on mesure un flux de neutrons dans la position basse du canal V4 qui vaut :  $(1,60 \pm 0,07) \cdot 10^{15} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ , soit une incertitude relative de l'ordre de 4 %.

## 8.2. Mesure de flux par dosimétrie de moniteurs activés

### 8.2.1. Dosimètres utilisés

La mesure du flux de neutrons dans V4 a également été effectuée par une seconde méthode expérimentale utilisant des intégrateurs de dose en cobalt, ( $^{59}\text{Co}$ ), et en niobium, ( $^{93}\text{Nb}$ ), analysés après irradiation par spectroscopie gamma.

Nous avons choisi de ces deux éléments pour leur sensibilité différente aux neutrons épithermiques. En effet, les calculs montrent que dans la position basse du canal V4, 12 % de taux de réaction du niobium est d'origine épithermique alors que ce sont seulement 2 % pour le cobalt (cf. tableau 8.18). Cela permettrait de caractériser le spectre neutronique, notamment dans la position basse. Si la composante épithermique est très faible devant celle de neutrons rapides, on devra obtenir les mêmes résultats d'intensité de flux avec les deux moniteurs.

Dans le tableau 8.19, on présente les raies  $\gamma$  des isotopes  $^{94}\text{Nb}$  et  $^{60}\text{Co}$  et leurs intensités.

**Tableau 8-18 : Contribution de la composante épithermique du flux ( $E_n > 1 \text{ eV}$ ) au taux de réaction  $\sigma_c \Phi$ , pour les moniteurs de flux aux différentes positions du canal V4**

Position (cm)	$^{93}\text{Nb}$ (%)	$^{59}\text{Co}$ (%)
0	12	2,5
25	6	1,6
50	1,4	0,6

**Tableau 8-19: Raies  $\gamma$  des isotopes produits par activation des moniteurs**

	$^{94}\text{Nb}$		$^{60}\text{Co}$	
	$T_{1/2}$ (ans)	20300		5,27
Raies $\gamma$ (keV)	702	871	1173	1332
Intensité (%)	99,81	99,89	99,89	99,98

Les masses des moniteurs ont été choisie de telle façon d'avoir une activité mesurable par notre détecteur « germanium » au bout de 5 heures d'irradiation sous haut flux, sans pourtant dépasser la limite d'activité autorisée dans le RHF (soit  $2 \cdot 10^{10}$  Bq). D'autres contraintes sont également à prendre en compte, notamment avoir un bon rapport signal sur bruit et avoir des taux de comptages élevés pour avoir une bonne précision en évitant pourtant de saturer l'électronique et en évitant également des corrections de temps mort.

Le niobium utilisé est dans son état pur (99,9 % de pureté) avec une masse d'environ 0,96 g. L'isotope  $^{94}\text{Nb}$  a une période de décroissance radioactive de  $2,03 \cdot 10^4$  ans, donc il n'y a aucun risque de saturation de l'électronique.

Le cobalt est utilisé avec une masse d'alliage d'aluminium à 0,1 % de cobalt de l'ordre de dizaines de milligrammes. La masse de l'alliage est de l'ordre de 7,6 mg.

Les moniteurs sont sous formes de disques découpés au laser pour éviter toute contamination. Ils étaient fournis par Advent Research Materials d'Oxford.

	Epaisseur (mm)	Diamètre (mm)
Al-Co	0,1	6
Nb	1	12

### 8.2.2. Capsules et navettes d'irradiation

Les pastilles des moniteurs ont été placées dans des capsules en aluminium qui seront remplies d'hélium par la suite pour augmenter la conductivité thermique et éviter la formation de « point chaud » dans la capsule sous l'échauffement  $\gamma$  (cf. figure 8.25 et tableau 8.21).

Chaque capsule contient un moniteur du cobalt et un autre du niobium décalés entre eux par la laine de roche.

Avant le sertissage de la capsule, le bouchon (qui sert à fermer la capsule) et le corps de celle-ci sont dépolis grâce à une brosse métallique montée sur une perceuse. Les deux parties sont ensuite dégraissées puis séchées.

Pour appliquer le sertissage, on utilise une presse constituée principalement d'un vérin hydraulique (200 bars) qui permet d'appliquer une force d'environ 10 tonnes sur le couvercle. Le sertissage est effectué à l'aide de deux outils successifs, le deuxième servant à découper l'anneau extérieur formé lors du sertissage.

Pour remplir la capsule d'hélium, la presse est placée dans une chambre étanche en plastique. La capsule ouverte est introduite dans la chambre sous la presse par une porte qui est refermée par la suite. Afin de s'assurer du remplissage de la capsule en He, les deux étapes suivantes sont répétées trois fois avant le sertissage :

1. La chambre est mise à une dépression de -40 cm de Hg par rapport à la pression atmosphérique grâce à une pompe primaire sèche.
2. Remplissage de la chambre en He jusqu'à la pression atmosphérique. (L'He, qui provient d'une bouteille sous pression, est introduit dans la chambre par le haut)

Le sertissage est effectué avec une légère surpression d'He dans la chambre ( $< 10\text{g/cm}^3$ ). Avec cette procédure le taux de remplissage de la capsule en He est d'au moins 85%.

Après le sertissage des capsules, celle-ci sont placées dans des tubes d'irradiation (appelés "navettes") (cf. figure 8.23 et tableau 8.22). Cette opération a lieu à l'ILL.

Chaque navette comporte trois capsules. Celles-ci ont été placées dans les navettes de telle façon qu'elles correspondent, une fois dans V4, aux positions 0, 25 et 50 cm du canal (cf. figures 8.22 et 8.23).

Six capsules ont été finalement irradiées. Leurs contenus sont présentés dans le tableau 8.20. Les masses des moniteurs sont mesurées avec une micro-balance électronique d'une précision de  $\pm 0,01$  mg.

**Tableau 8-20 : Masse des moniteurs irradiés dans V4 et position de capsules dans le tube d'irradiation**

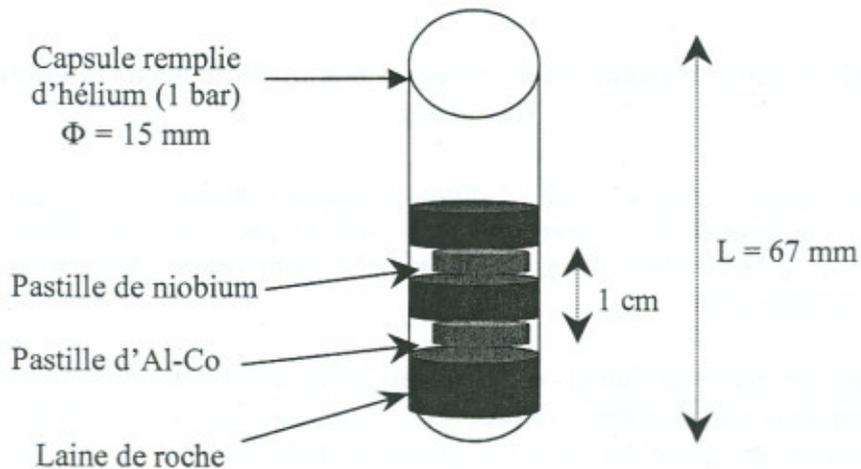
	Capsules					
	1	2	3	4	5	6
Position dans V4 (cm)	0	25	50	0	25	50
Masse Al-Co (0,1 %) (mg)	7,56	7,66	7,67	7,70	7,88	7,46
Masse Nb (g)	0,966	0,966	0,973	0,968	0,966	0,970

**Tableau 8-21 : Dimensions de la capsule**

Diamètre externe	Diamètre interne	Longueur
cm	cm	m
2,2	2	0,067

**Tableau 8-22 : Dimensions de la navette d'irradiation**

Diamètre externe	Diamètre interne	Longueur	Epaisseur
cm	cm	cm	m
2,6	2,3	62,6	0,0015



**Figure 8.22 : Schéma d'une capsule munie des moniteurs  $^{59}\text{Co}$  et  $^{93}\text{Nb}$**

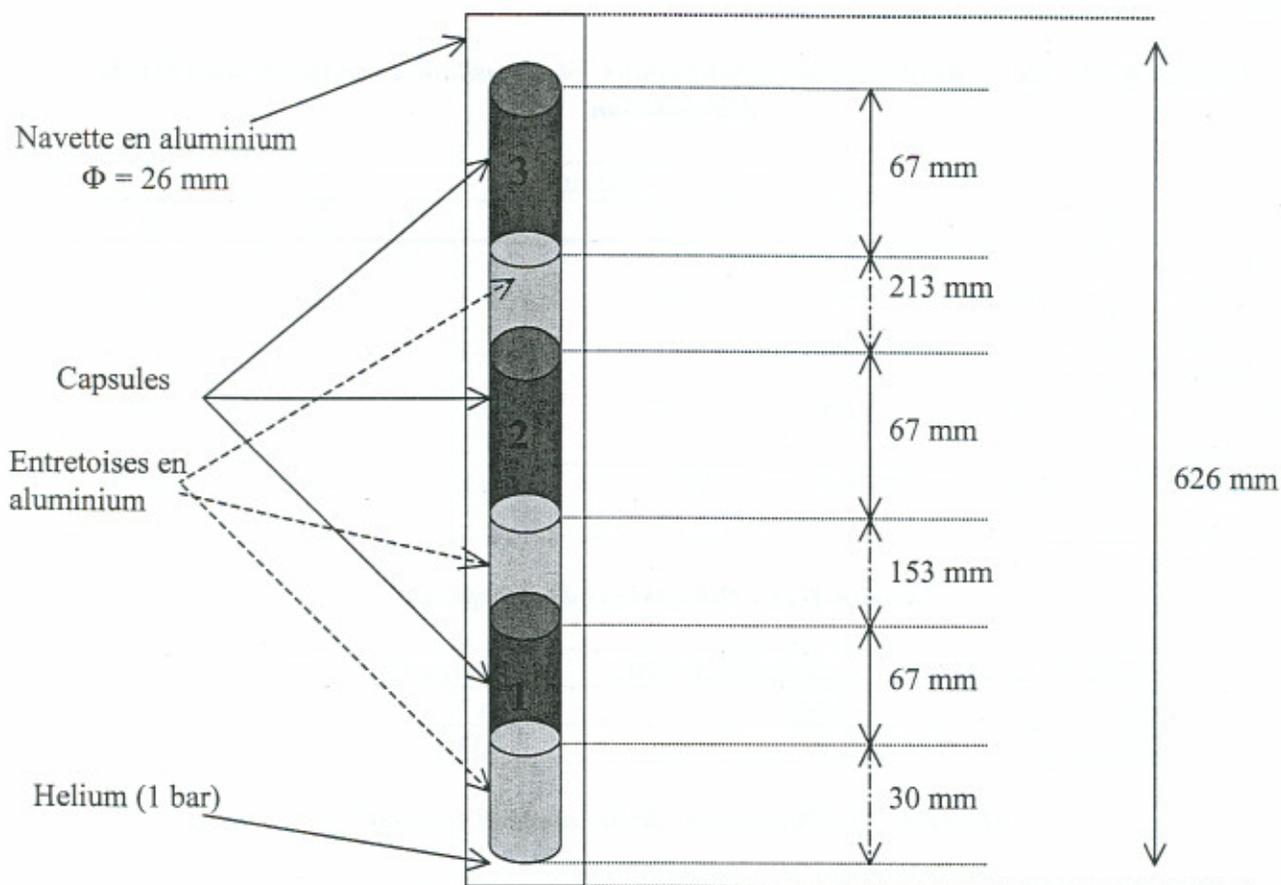


Figure 8.23 : Positions des capsules dans la navette d'irradiation

### 8.2.3. Irradiations dans le canal V4 et mise des échantillons dans la chambre Mini-Inca

Les navettes ont été irradiées dans le canal V4 durant 5 heures. La navette n° 1, comportant les capsules 1 à 3, a été irradiée le 07 novembre 2001, soit 21 jours après le début du cycle (démarrage du réacteur le 16 octobre 2001). La navette n° 2, comportant les capsules 4 à 6, a été irradiée le 14 novembre 2001.

Les capsules sont restées refroidir durant environ trois mois. Elles étaient ensuite ouvertes dans une boîte à gant dans un laboratoire « chaud » de l'ILL. Les moniteurs sont alors placés sur un porte-échantillon en titane tel qu'il est présenté dans la figure 8.24. On peut y remarquer le système de pattes pour tenir les moniteurs de flux.

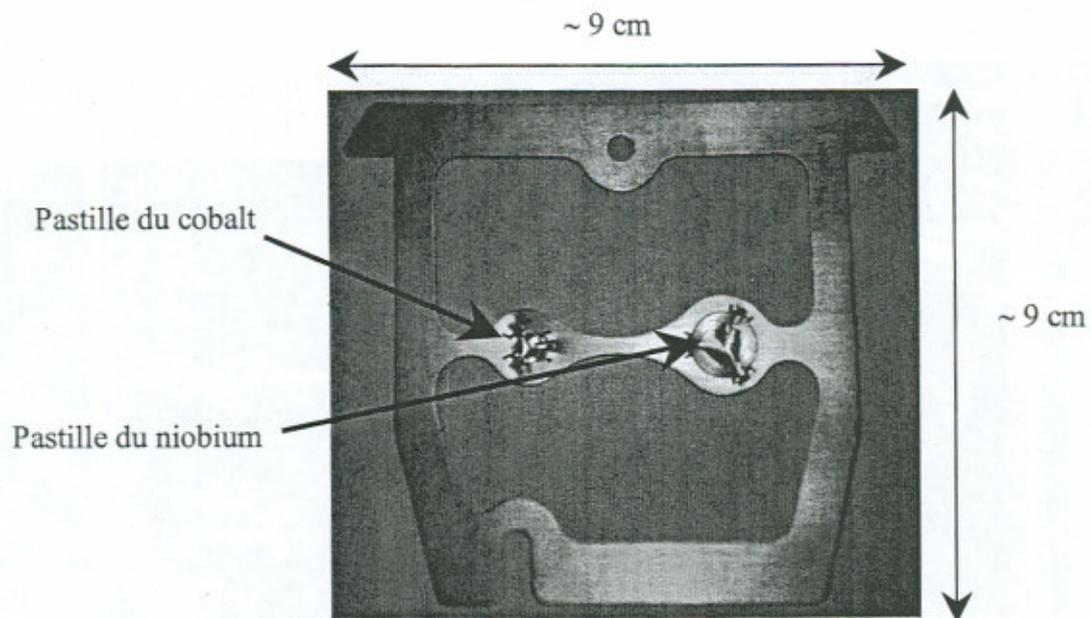


Figure 8.24 : Porte-échantillon

Le porte-échantillon est ensuite placé dans la chambre Mini-Inca. La figure 8.25 montre une photo réelle de la chambre.

La chambre est constituée de deux détecteurs, germanium (spectroscopie  $\gamma$ ) et PIPS (spectroscopie  $\alpha$ ). Nous n'avons utilisé dans le cadre de cette thèse que le premier détecteur.

Les détecteurs sont fixés sur des chariots mobiles et les distances échantillon-détecteurs peuvent varier entre 40 cm et 80 cm pour le germanium et 1 cm à 30 cm pour le PIPS [44].

La chambre utilise un système de vide constitué d'une pompe secondaire fixée sur la chambre et est reliée à une pompe primaire disposée hors du blindage de la chambre. Deux sondes mesurant la pression qui est de l'ordre de  $10^{-2}$  Pa avec la pompe primaire et de  $10^{-5}$  Pa avec la pompe secondaire. La création du vide dans la chambre a comme objectif d'éviter que les particules alpha ne perdent une partie de leur énergie cinétique avant d'atteindre le PIPS. Il permet aussi de s'assurer du cloisonnement de l'enceinte et donc du confinement des radionucléides présents sur la cible.

Le blindage a comme objectif de garantir l'étanchéité de la chambre contre le bruit ambiant (notamment les neutrons et les gamma).

L'ensemble marqué sur la figure 8.25 comme « le système positionnant le porte-échantillon » a pour objectif de prendre le porte-échantillon de l'échangeur de source de H9 et de le disposer devant les détecteurs. Pour cet objectif il est ainsi mobile et commandé par une chaîne électromécanique. Il permet ainsi de positionner la cible dans deux emplacements (cobalt ou niobium) pour faire des spectroscopies.

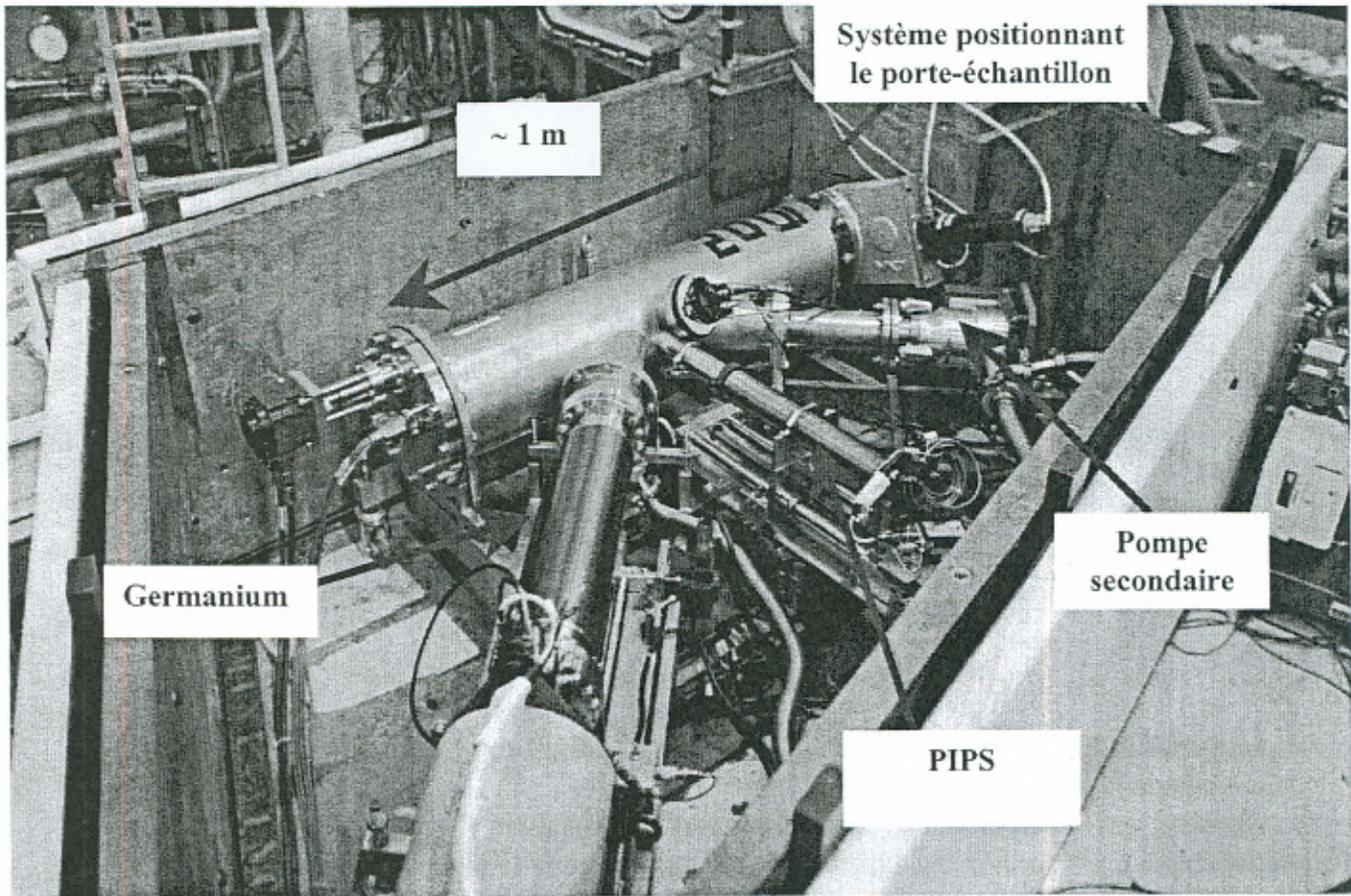


Figure 8.25 : Photographie de la chambre, détecteurs et pompe à vide montés

#### 8.2.4. Méthode de mesure

Le principe de la méthode de la mesure est basé sur l'analyse par activation neutronique, c'est à dire mesurer l'activation des moniteurs irradiés, en l'occurrence les activités dues au  $^{94}\text{Nb}$  et  $^{60}\text{Co}$  formés après irradiation des échantillons grâce à la détermination des taux des raies gamma présents dans le tableau 8.19.

L'incertitude sur l'efficacité peut être considérée à 2 %. Les intensités étant elles connues à mieux que 1 % [45].

A partir des taux de comptage  $A$ , mesurés après un temps de refroidissement «  $t_{\text{ref}}$  », on en déduit les nombres d'atomes formés juste après irradiation :

$$N = \frac{A}{\tau I \varepsilon} \exp\left(\frac{t_{\text{ref}}}{\tau}\right)$$

où  $\tau = T_{1/2}/\ln(2)$ ,  $\varepsilon$  est l'efficacité du détecteur et  $I$  l'intensité d'émission de la raie. Une fois les nombres d'atomes formés déterminés pour chaque position du détecteur « Germanium », un ajustement (cf. figure 8.29) est réalisé par la fonction d'angle solide  $\Omega(d)$  :

$$\Omega(d) = \frac{\langle N \rangle}{2} \left( 1 - \frac{1}{\sqrt{\frac{\Phi^2}{4d^2} + 1}} \right)$$

où  $\Phi = 5,15$  cm est le diamètre du Germanium et  $\langle N \rangle$  le nombre d'atomes formés, déterminé par l'ajustement de la figure 8.29.

Dans le tableau 8.23 sont présentées les valeurs obtenues pour chaque échantillon.

Dans le cas des mesures « niobium » et compte tenu de la masse importante des échantillons, les valeurs ci-dessus doivent être augmentées de 3,5 % pour tenir compte de l'auto-absorption des raies gamma (702 keV et 871 keV). Cette auto-absorption a été déterminée par un calcul Monte-Carlo (GEANT) avec une précision meilleure que 1 %.

Tableau 8-23: Nombre d'atomes formés. Entre [] sont indiqués les temps morts. Seuls les acquisitions avec des temps morts inférieurs à 20 %, ont été analysés (les autres étant inexploitable car inconsistants).

Capsule	Co ( $10^{13}$ )	Nb ( $10^{17}$ )	
		702 keV	871 keV
1	- [56 % - 31 %]	- [75 %]	
2	- [32 %]	- [73 %]	
3	$3,05 \pm 0,09$ [2 % - 1 %]	$0,733 \pm 0,0096$ [12 % - 1 %]	$0,699 \pm 0,0093$ [12 % - 1 %]
4	$6,16 \pm 0,09$ [6 % - 4 %]	$1,49 \pm 0,02$ [20 %]	$1,44 \pm 0,02$ [20 %]
5	$5,56 \pm 0,08$ [3 % - 1 %]	$1,286 \pm 0,04$ [14 % - 5 %]	$1,241 \pm 0,045$ [14 % - 5 %]
6	$2,93 \pm 0,07$ [2 % - 1 %]	$0,693 \pm 0,01$ [12 % - 5 %]	$0,680 \pm 0,008$ [12 % - 5 %]

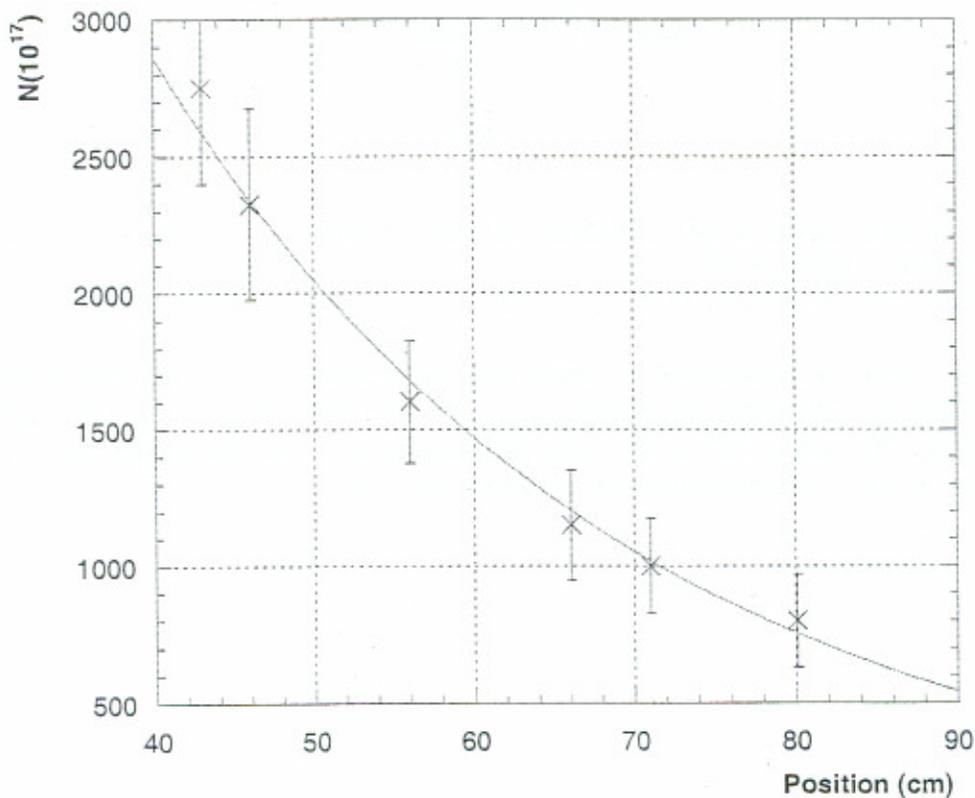


Figure 8.26 : Ajustement du nombre d'atomes formés, par une fonction d'angle solide  $\Omega$

## 8.2.5. Mesure de flux

### 8.2.5.1. Hypothèse de mesure

En négligeant la combustion (burn-up) du noyau initial ainsi que la disparition du noyau « fils » pendant l'irradiation (ce qui est vérifié dans le cas d'une irradiation de 5 heures), l'intégrale du flux total  $\Phi$  est donnée par :

$$\Phi \cong \frac{\langle N \rangle A}{N_{av} m \langle \sigma_c \rangle t_{irr}}$$

où  $m$  est la masse du noyau « père » de nombre de masse  $A$ ,  $N_{av}$  le nombre d'Avogadro,  $t_{irr}$  le temps d'irradiation et  $\langle \sigma_c \rangle$  la section efficace de capture moyennée sur le spectre neutronique.

### 8.2.5.2. Détermination des sections efficaces moyennes

Les sections efficaces moyennes  $\langle \sigma \rangle^{50}$  à 50 °C (correspondant à la température du gaz de neutrons au niveau de V4) ont été calculées par le logiciel MCNP à partir des sections efficaces moyennes à 20 °C, (cf. tableau 8.24). Les facteurs correctifs ont été calculés par interpolation des résultats obtenus pour des flux représentatifs des canaux H9 et V4, à 20 °C et à 120 °C.

Tableau 8-24 : Section efficace de capture du  $^{59}\text{Co}$  et  $^{94}\text{Nb}$

Position (cm)	$\langle \sigma \rangle^{20}$ (barns)	$\langle \sigma \rangle^{50}$ (barns)	Correction (%)
Cobalt			
0	26,8	26	- 2,8
25	28,8	28	- 2,9
50	31,5	30,5	- 3,2
Niobium			
0	0,91	0,893	- 1,9
25	0,939	0,915	- 2,6
50	0,98	0,949	- 3,2

### 8.2.5.3. Résultats et discussion

Les résultats des mesures de flux sont présentés dans le tableau ci-dessous :

*Tableau 8-25: Flux mesurés par spectroscopie gamma. Les valeurs correspondant aux deux raies  $\gamma$  du Nb ont été moyennées. Les valeurs entre () correspondent à la précision statistique et celles entre [], à l'écart relatif par rapport au flux mesuré par les chambres à fission*

Capsule	Position (cm)	$\Phi$ mesuré par les moniteurs (n.cm <sup>-2</sup> .s <sup>-1</sup> )		$\Phi$ mesuré à l'aide de chambres à fission (n.cm <sup>-2</sup> .s <sup>-1</sup> )
		Co	Nb	
4	0	1,67 10 <sup>15</sup> ( $\pm 3,2$ %) [+3 %]	1,47 10 <sup>15</sup> ( $\pm 0,8$ %) [-10 %]	(1,60 $\pm$ 0,07) 10 <sup>15</sup>
5	25	1,37 10 <sup>15</sup> ( $\pm 1,4$ %) [+8 %]	1,27 10 <sup>15</sup> ( $\pm 2,5$ %) [+0,8 %]	(1,27 $\pm$ 0,09) 10 <sup>15</sup>
6	50	6,99 10 <sup>14</sup> ( $\pm 2,4$ %)	6,59 10 <sup>14</sup> ( $\pm 0,9$ %)	(6,87 $\pm$ 0,48) 10 <sup>14</sup>
3	50	7,08 10 <sup>14</sup> ( $\pm 3$ %) [ $\pm 0,28$ %]	6,68 10 <sup>14</sup> ( $\pm 1$ %) [-5 % , -4 %]	

Aux valeurs mesurées dans le tableau 8.25 ci-dessus s'ajoute une incertitude systématique de 5 % qui tient compte des effets suivants :

- Efficacité du détecteur [2 %],
- Masse des échantillons [2 %],
- Modélisation du flux épithermique (niobium) [3 %],
- Intensité des raies gamma [1 %],
- Sections efficaces de capture [1 %].

On constate que, hormis pour le cas du niobium en position basse, les mesures sont compatibles avec les valeurs théoriques à mieux que 10 %. Un bon accord existe aussi entre la valeur de flux mesurée dans la position basse du canal V4 avec les micro-chambres à fission (1,62 10<sup>15</sup> n.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>) et celle mesurée par le cobalt.

### 8.2.6. Conclusion

En conclusion, les mesures de flux par les moniteurs sont en accord, dans les barres d'erreur (<10 %), avec les valeurs théoriques ainsi que les valeurs expérimentales mesurées par les chambres à fission. Cela constitue une validation des mesures de flux obtenues par les chambres à fission par une méthode indépendante.

D'autre part, le fait que les mesures obtenues par le  $^{59}\text{Co}$  et le  $^{93}\text{Nb}$ , qui présentent des sensibilités différentes à la partie épithermique du spectre neutronique (cf. tableau 8.18), soient compatibles, confirme notre modélisation du spectre neutronique du réacteur à haut flux.



## Chapitre 9 : Discussion sur le fonctionnement des chambres à fission à double corps

### 9.1. Potentiel d'incinération observable

Comme cela a été montré dans des chapitres précédents, les CFDC ont comme objectif de mesurer le taux de fission d'un actinide par rapport à un élément de référence dont les données nucléaires sont bien connues avec une bonne précision. Cela permettrait notamment de remonter au potentiel d'incinération de l'actinide. Nous définissons le potentiel d'incinération, comme quantité mesurable, comme étant le nombre de noyaux fissionnés par rapport au nombre initial de noyaux présents dans l'échantillon.

Mathématiquement on peut écrire ainsi le potentiel d'incinération « mesurable » :

$$Pi(\theta_{irr}) = \frac{\int_0^{\theta_{irr}} R_f(t) dt}{N_0}$$

où :

- $\theta_{irr}$  : la durée d'irradiation,
- $R_f$  : taux de fission de l'actinide déterminé à partir des mesures des chambres à double corps (CFDC) (cf. chapitre 6),
- $N_0$  : le nombre initial de noyaux d'actinide présents dans le dépôt de la chambre.

Ainsi, le potentiel d'incinération dépend de la durée d'irradiation, de l'intensité de flux de neutrons et du spectre neutronique. D'autre part, nous pouvons supposer que cette quantité est indépendante du nombre  $N_0$  puisqu'il est utilisé pour la normalisation. Cela n'est correct que si l'échantillon présente une masse très faible pour ne pas perturber le flux de neutrons et pour qu'il n'y ait pas d'autres phénomènes d'auto-absorption.

### 9.2. Fonctionnement de chambres à fission à double corps

Le principe d'une chambre CFDC se base sur l'indépendance électrique entre les deux parties constituantes de la chambre pour pouvoir appliquer la relation de proportionnalité entre le taux de fission et le courant de saturation :  $R_{fact} = R_{ref} I_{act}/I_{ref}$ . Néanmoins, les chambres CFDC développées et irradiées dans le cadre de cette thèse dans le réacteur à haut flux de l'ILL ont montré que les deux parties de la chambre n'étaient pas électriquement indépendantes l'une de l'autre.

Pour vérifier cet effet, nous avons fixé la tension de polarisation dans la partie « actinide » à une tension fixe (140 V). Nous avons ensuite fait varier la tension appliquée sur la partie « référence ». Comme le montre la figure 9.1, le courant délivré par la chambre d'actinide dépend de la tension appliquée sur la chambre voisine. L'effet est observé dans les mesures effectuées dans des différentes positions dans le canal V4 (cf. figure 9.1). Il est aussi observé pour différentes durées d'irradiation (cf. figure 9.2).

Ce phénomène est également réversible entre les deux chambres. En effet, nous avons fixé la tension de polarisation de la partie « référence » de la chambre à une tension constante puis on a fait varier celle appliquée sur la chambre « actinide ». L'effet de la dépendance électrique est observé sur les valeurs du courant de cette dernière (cf. figures 9.3). Cet effet a été observé sur toutes les chambres CFDC.

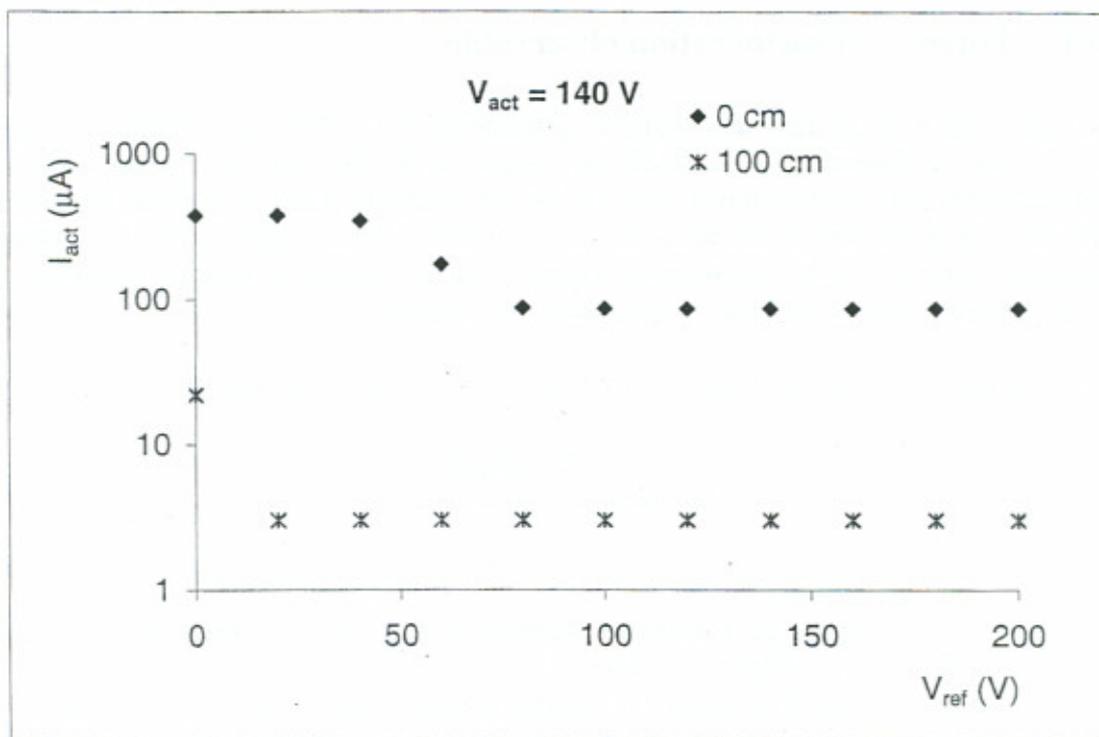


Figure 9.1 : Courant délivré par la partie « actinide » de la CFDC3 en fonction de la tension de polarisation de la partie « référence ». Les mesures montrées ont été effectuées dans les positions 0 et 100 cm du canal V4.

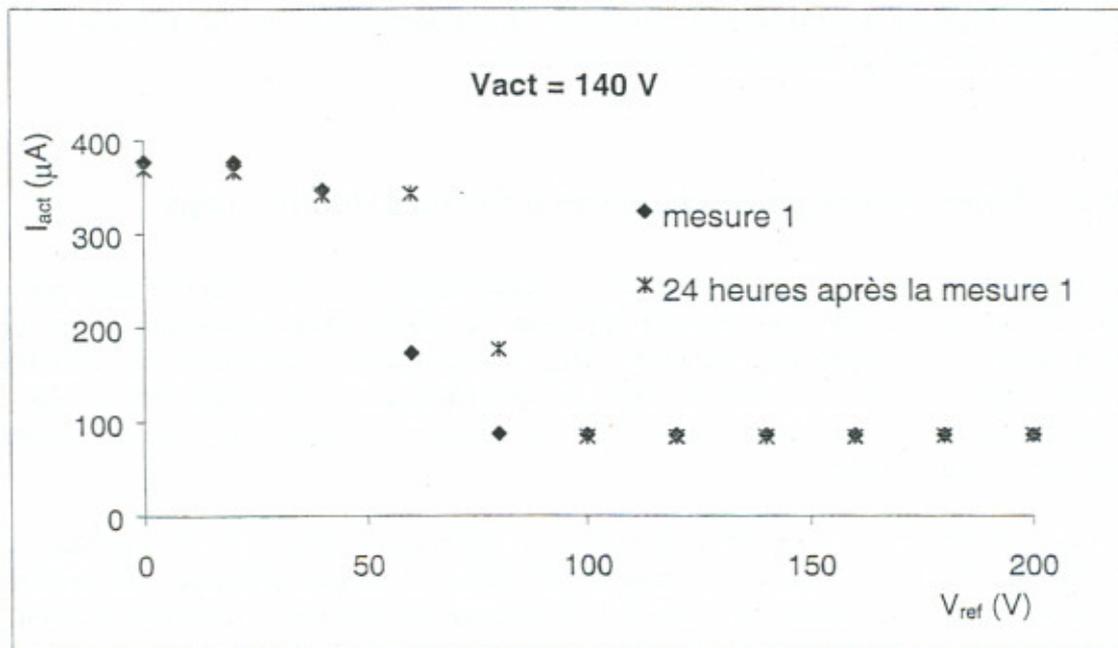


Figure 9.2 : Courant délivré par la partie « actinide » de la CFDC3 en fonction de la tension de polarisation de la partie « référence ». Les mesures montrées ont été effectuées à un intervalle de 24 heures dans la position 0 du canal V4.

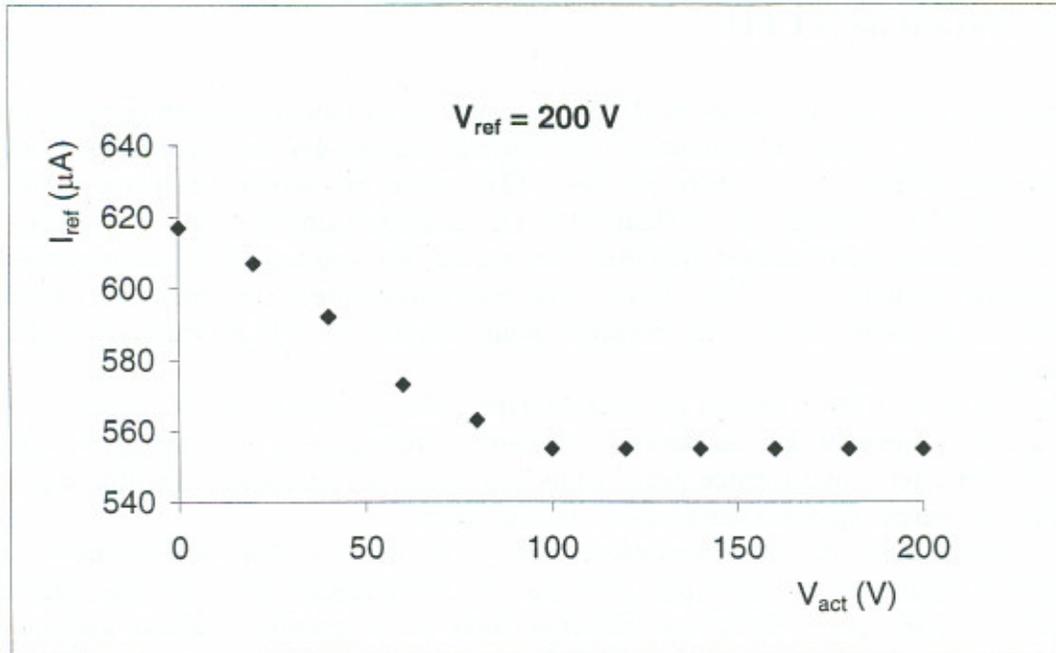


Figure 9.3 : Courant délivré par la partie « référence » de la CFDC2 en fonction de la tension de polarisation de la partie « actinide ». Les mesures montrées ont été effectuées dans la position 0 cm du canal V4

### 9.3. Commentaires sur la dépendance électriques des CFDC

Nous observons à partir de toutes les mesures effectuées, et on le constate clairement sur les figures ci-dessus, que lorsqu'on fixe la tension d'une partie de la chambre et qu'on fait varier la tension de polarisation de l'autre partie, que le courant de la première diminue lorsque la tension de la partie « 2 » augmente jusqu'à une valeur, qui est généralement autour, de 100 V puis le courant se stabilise et devient indépendant de la tension de la chambre voisine. Il y a deux conclusions importantes qu'on peut tirer de ces constatations :

- 1) Il y a effectivement des fuites des lignes de champs électriques entre les deux chambres.
- 2) Le champ de fuite entre les deux chambres devient de plus en plus faible lorsque la tension de polarisation dans la partie « 2 » augmente. On peut interpréter cela du fait que les champs électriques externes appliqués sur les deux chambres deviennent d'intensité suffisamment comparable pour que les champs de fuite s'annulent. Cependant cela ne peut pas nous renseigner complètement sur la disparition de la dépendance électrique entre les deux chambres.

#### 9.4. Effets de la dépendance électrique sur le comportement général du courant de la CFDC

Les chambres à fission à simple corps (CFSC) ont montré un fonctionnement cohérent durant l'irradiation de  $^{235}\text{U}$  qui s'est traduit par des courants suivant une loi exponentielle ou sous forme d'exponentielles (cf. chapitre 8). Les CFDC n'ont pas montré la même cohérence comme on le peut constater sur la figure 9.4. Les courants subissent des fluctuations très fortes qui ne sont apparemment traduites par aucune loi exponentielle contrairement au comportement normal de  $^{235}\text{U}$ . Cela rend malheureusement les mesures effectuées inexploitable du point de vue des objectifs pour lesquels les CFDC étaient initialement développées.

Etant donné que la CFDC n'étaient pas indépendante électriquement, on peut conclure que le courant que l'on mesurait dans la partie « uranium » (« référence ») n'est pas exclusivement dû à  $^{235}\text{U}$ . En effet, l'interférence des champs électriques a certainement facilité le passage de porteurs de charges entre les deux parties de la chambre.

On peut déduire aussi de ces observations que le fait que les champs électriques soient d'intensités comparables ne suffit pas pour que les interférences entre les deux chambres s'annulent. En effet, pour relever ces mesures, nous avons presque toujours appliqué les mêmes tensions sur les deux parties de la CFDC.

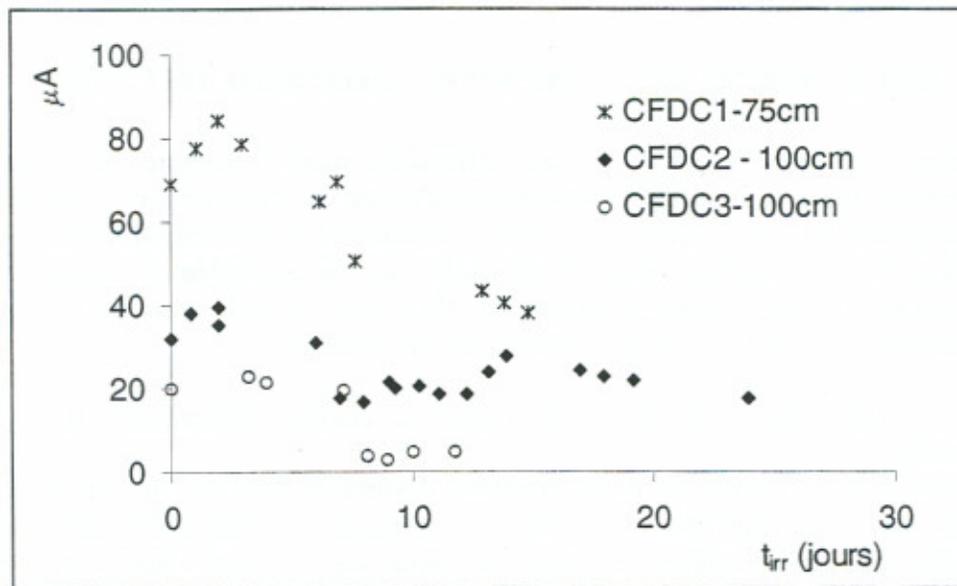


Figure 9.4 : Courant de la partie d' $^{235}\text{U}$  dans les CFDC mesuré dans la position 100 cm pour les CFDC2 et CFDC3 et dans 75 cm pour la CFDC1

## 9.5 Corrélation entre les courants $I_{ref}$ et $I_{act}$

La constatation du comportement de la CFDC tel qu'il a été décrit plus haut laisse déduire qu'une corrélation pourrait exister entre les signaux délivrés par les deux parties de la chambre. La première idée qui pourrait être envisageable est le fait d'étudier la somme des deux signaux en fonction de la haute tension appliquée pour vérifier si elle est constante. Néanmoins, comme le montre la figure 9.5, cette somme ne semble pas invariable lorsque la tension évolue (variation de plus d'environ 300  $\mu A$  entre 0 et 200 V). La loi qui gère la corrélation des deux signaux serait beaucoup plus complexe faisant probablement intervenir les intensités des champs régnant dans chaque partie de la chambre. Cette corrélation pourra faire l'objet d'une étude approfondie dans le cadre des perspectives qu'ouvrent des travaux.

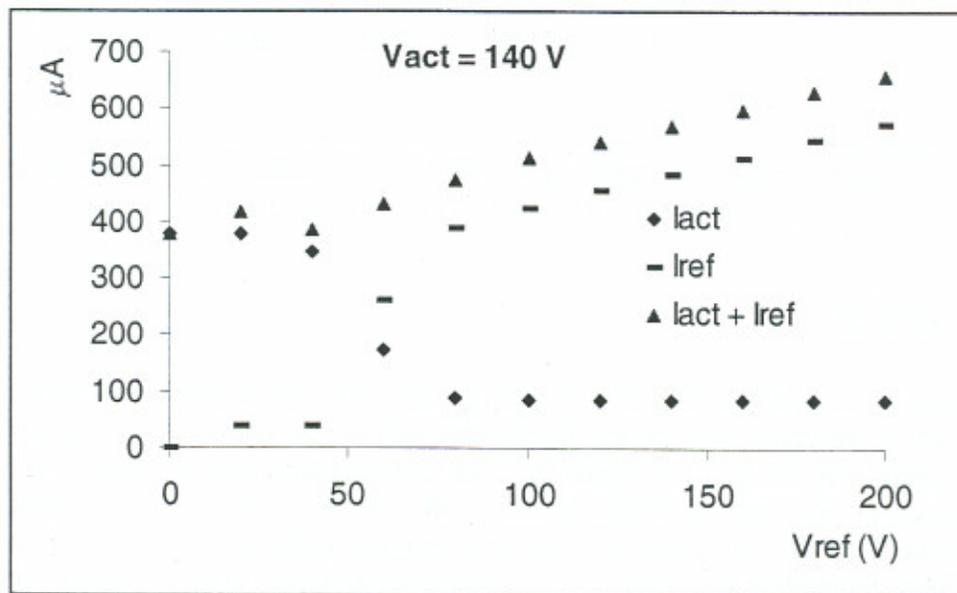


Figure 9.5 : Courant délivré par la partie « actinide » de la CFDC3 en fonction de la tension de polarisation de la partie « référence ».

## 9.6 Résultats obtenus avec la CFDC1 (Chambre à $^{237}\text{Np}$ )

### 9.6.1 Saturation en bas du tube V4

La chambre de l' $^{235}\text{U}$  de la CFDC1, avec sa masse fissile de 14,27  $\mu g$ , a montré un plateau de saturation au début des irradiations. Cela prouve encore une fois la théorie sur laquelle nous avons basé notre modèle prédéterminant l'état de fonctionnement d'une chambre à fission dans des conditions neutroniques données. Plus la masse fissile déposée dans la chambre est élevée moins le plateau de saturation est prononcé. La figure 9.6 montre une comparaison des caractéristiques (courant, tension) entre la CFSC1 et la CFDC1. La CFSC1 a une masse de dépôt de 22,66  $\mu g$ .

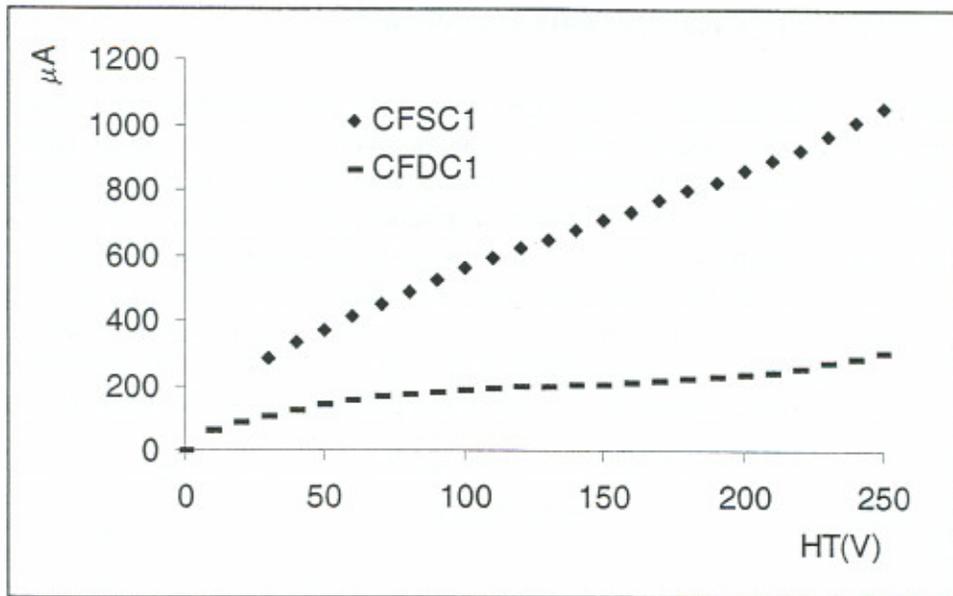


Figure 9.6 : Caractéristiques (courant, tension) de  $^{235}\text{U}$  au début d'irradiation de chacune des chambres, CFSC1 et CFDC1, en bas du V4

### 9.6.2 Usure de $^{235}\text{U}$

Si l'on élimine les trois premiers points de mesure de  $^{235}\text{U}$  de la CFDC1, nous constatons que le courant de saturation délivré par la chambre suit « quasiment » une exponentielle en fonction de temps d'irradiation (cf. figure 9.7). La comparaison avec le comportement de la CFSC1 (en excluant les premiers points de mesure de cette dernière où il y a l'interférence de l'effet sputtering) montre qu'il peut y avoir une « compatibilité » entre les deux chambres. Néanmoins cela demandera une analyse beaucoup plus profonde pour montrer à quel point cette « compatibilité » peut être en accord avec les résultats obtenus avec les chambres à simple corps.

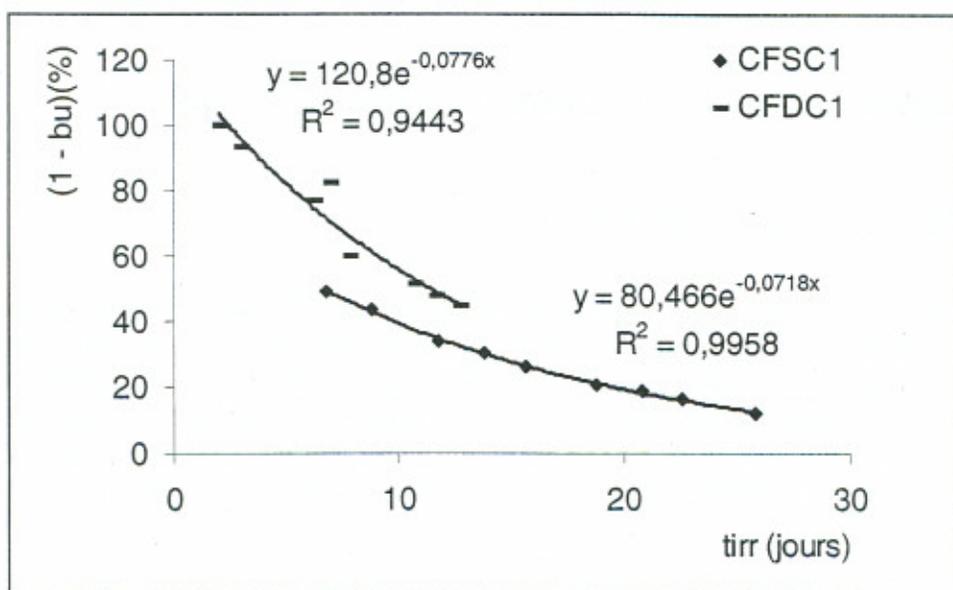


Figure 9.7 : Usure de  $^{235}\text{U}$  des CFSC1 et CFDC1 durant leur irradiation dans V4

### 9.6.3 Evolution du courant de saturation

Les figure 9.8 et 9.9 présentent l'évolution du plateau de saturation de l' $^{235}\text{U}$  et du  $^{237}\text{Np}$  en fonction du temps d'irradiation dans la position 75 cm du V4. La figure 9.10 présente l'évolution de courant de saturation.

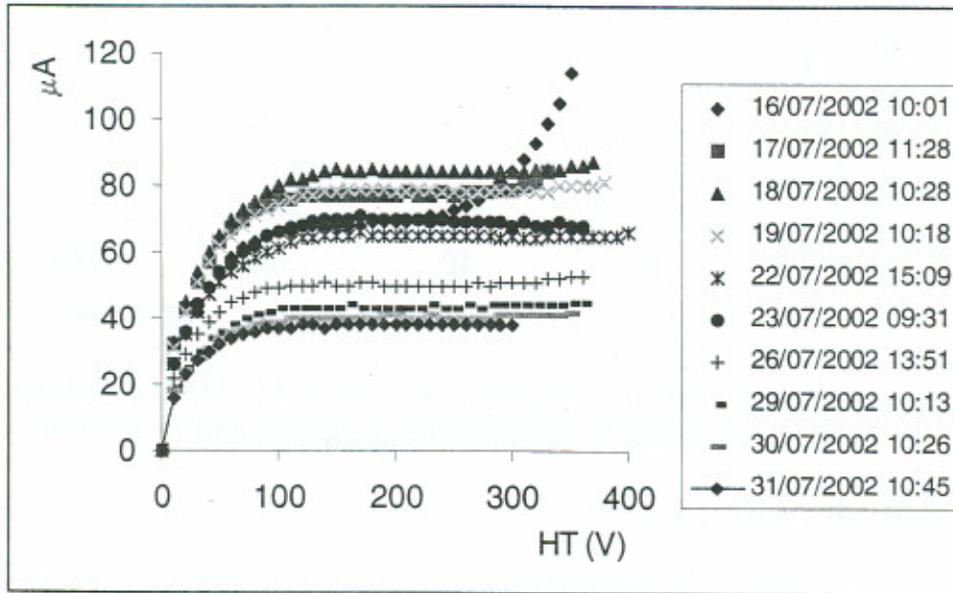


Figure 9.8 : Caractéristiques (courant, tension) de l' $^{235}\text{U}$  de la CFDC1 dans la position 75 cm du V4

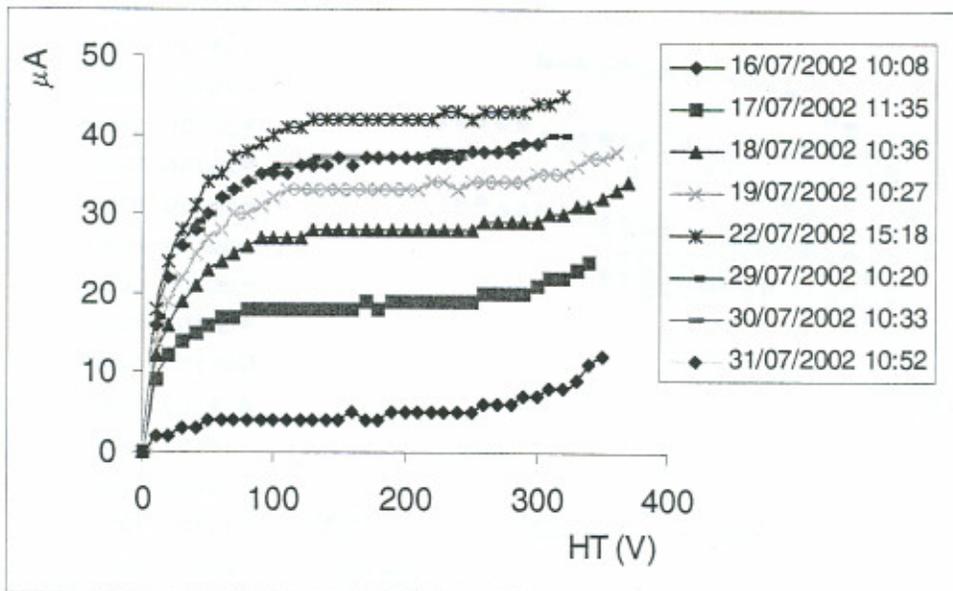


Figure 9.9 : Caractéristiques (courant, tension) du  $^{237}\text{Np}$  de la CFDC1 dans la position 75 cm du V4

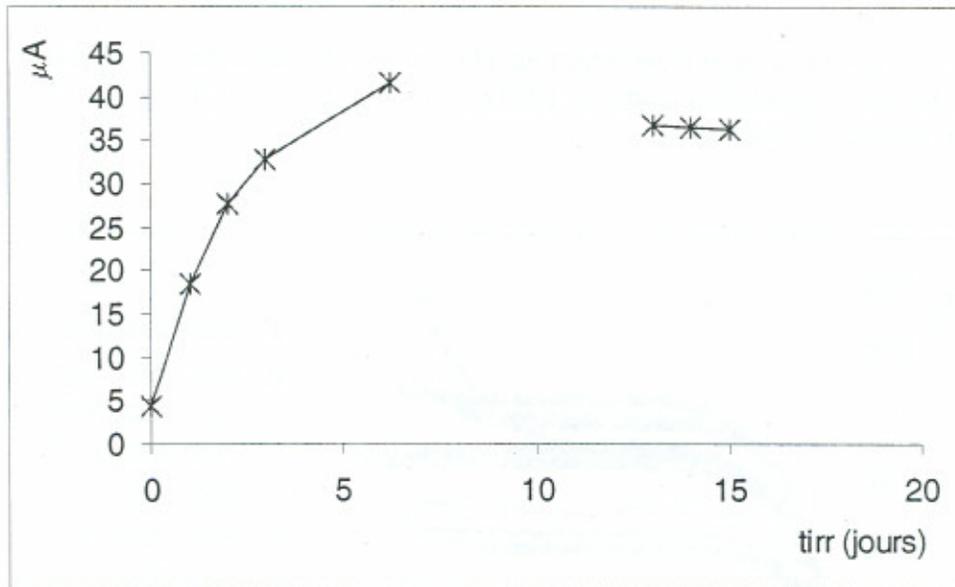


Figure 9.10 : Evolution du courant de saturation du  $^{237}\text{Np}$  de la CFDC1 dans la position 75 cm du V4. La discontinuité dans la courbe marque un arrêt du réacteur

### 9.7 Résultats des autres CFDC

Dans ce paragraphe on présente les résultats bruts des autres CFDC dans la position haute du V4 (100 cm). L'annexe 4 présente des tableaux montrant les courants de saturation de ces chambres. Les courbes d'évolution de l' $^{235}\text{U}$  sont présentées dans la figure 9.4.

#### CFDC2 ( $^{235}\text{U}$ , $^{241}\text{Am}$ )

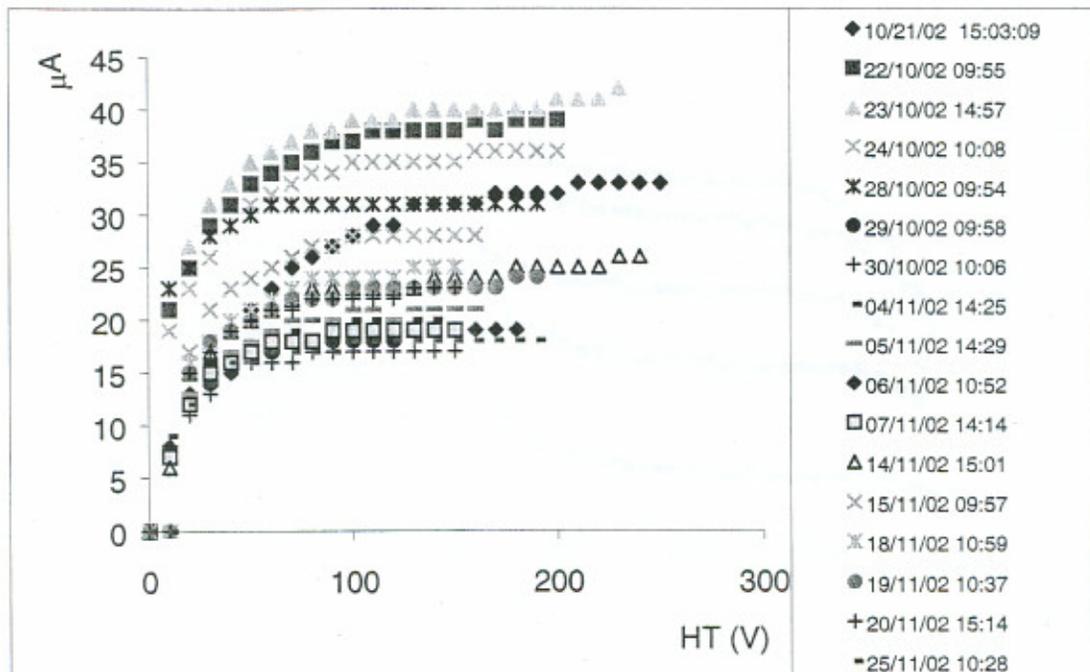


Figure 9.11 : Caractéristiques (courant, tension) de l' $^{235}\text{U}$  de la CFDC2 dans la position 100 cm du V4

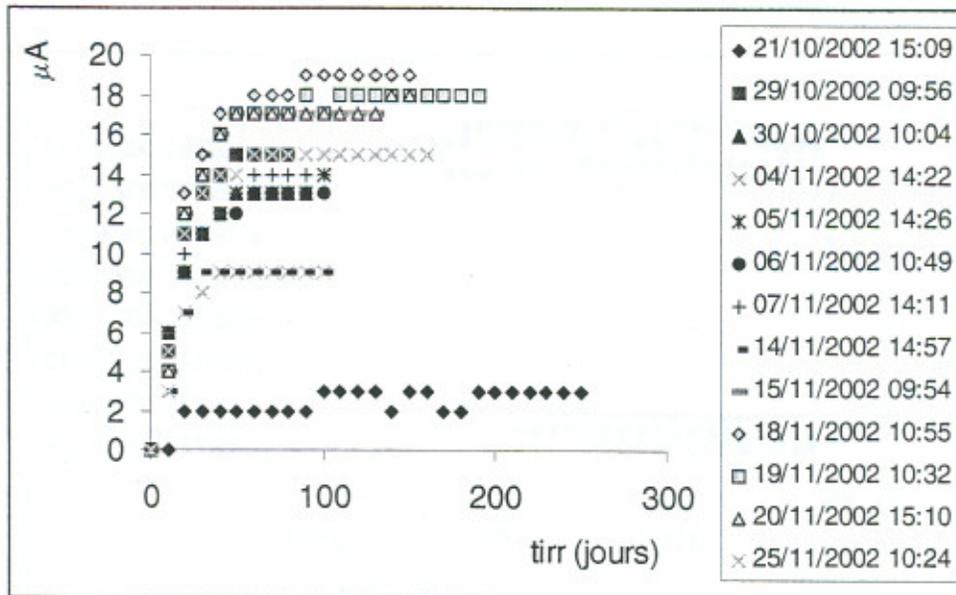


Figure 9.12 : Caractéristiques (courant, tension) de l' $^{241}\text{Am}$  de la CFDC2 dans la position 100 cm du V4

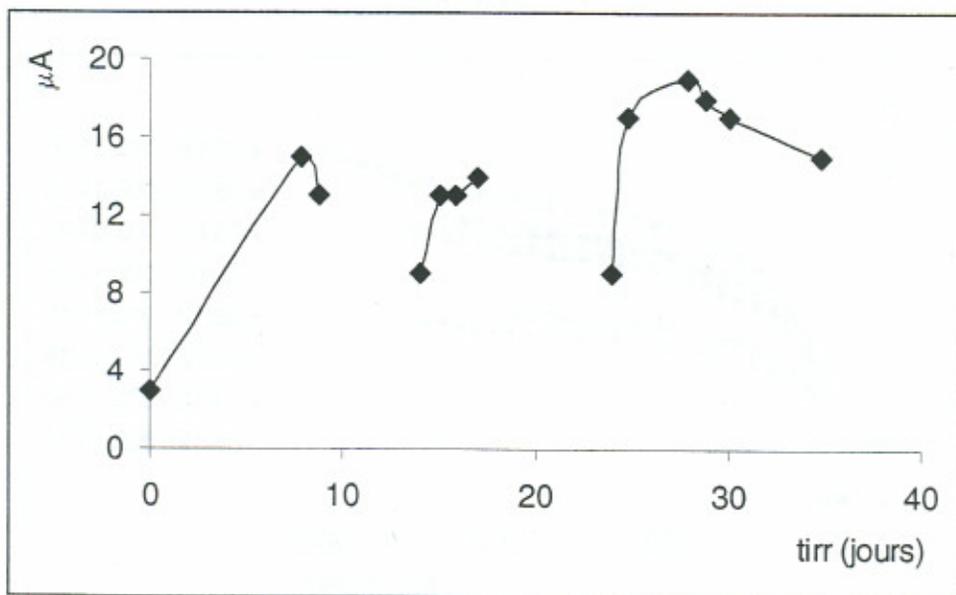


Figure 9.13 : Evolution du courant de saturation de l' $^{241}\text{Am}$  de la CFDC2 dans la position 100 cm du V4. La discontinuité dans la courbe marque des arrêts du réacteur

CFDC3 ( $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ )

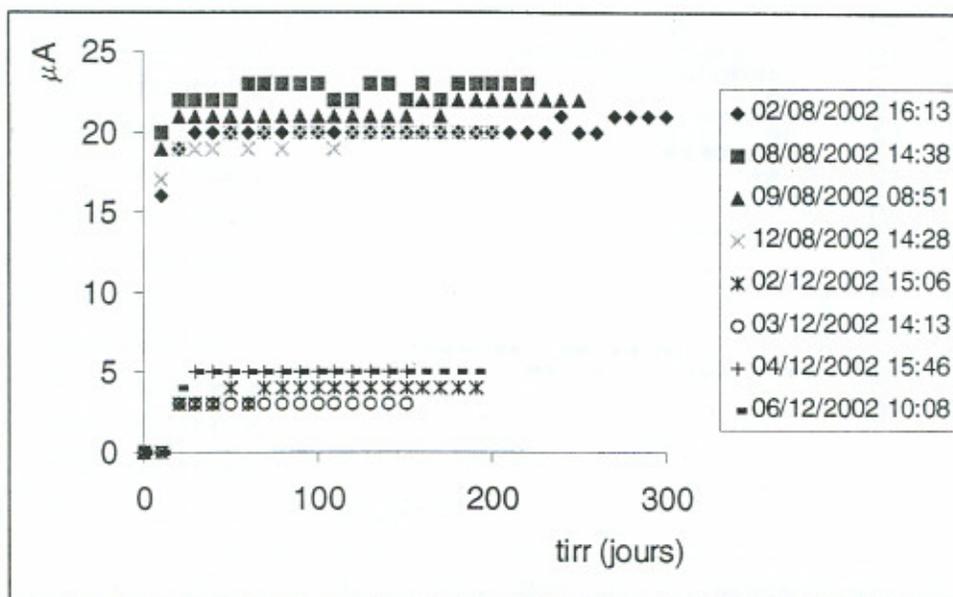


Figure 9.14 : Caractéristiques (courant, tension) de l' $^{235}\text{U}$  de la CFDC3 dans la position 100 cm du V4

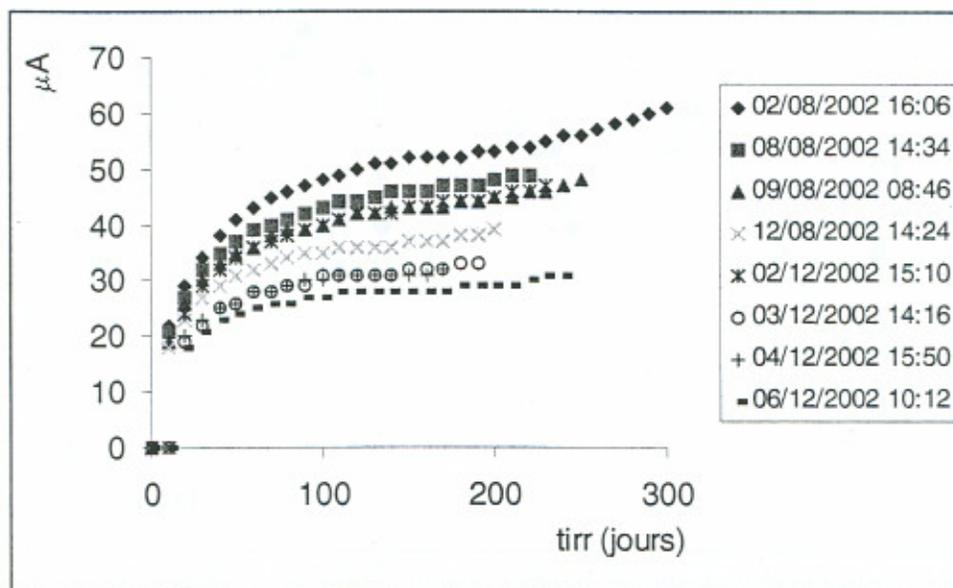


Figure 9.15 : Caractéristiques (courant, tension) du  $^{239}\text{Pu}$  de la CFDC3 dans la position 100 cm du V4

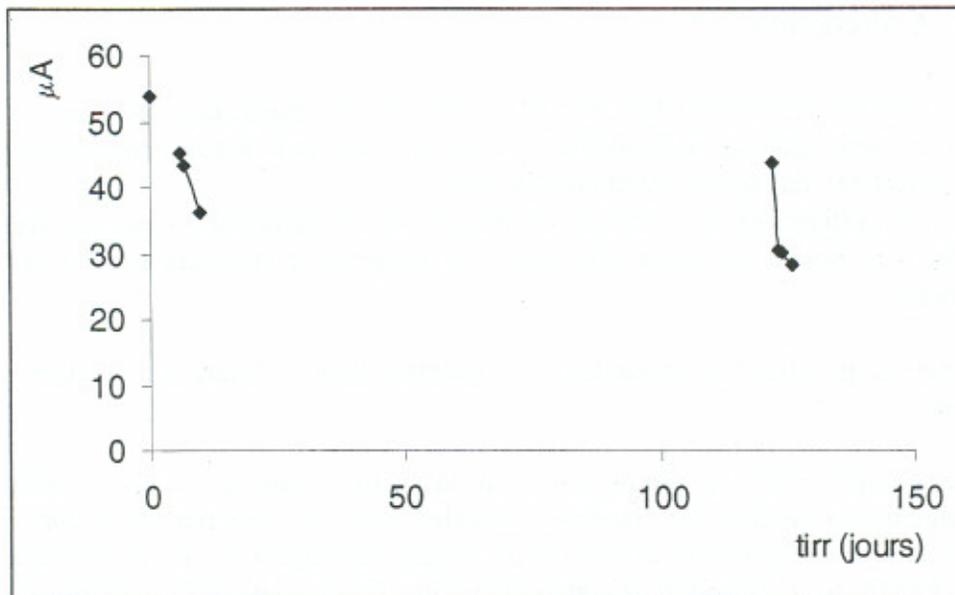


Figure 9.16 : Evolution du courant de saturation du  $^{239}\text{Pu}$  de la CFDC3 dans la position 100 cm du V4. La première discontinuité dans la courbe marque un arrêt d'urgence du réacteur. La grande seconde discontinuité marque une période que la CFDC a passé hors flux entre deux cycles du réacteur.

### CFDC4 ( $^{235}\text{U}$ , sans dépôt)

La chambre sans dépôt montre un courant de 10 µA dans la position 100 cm du V4 (cf. figure 9.17). La chambre à  $^{235}\text{U}$  ne montre pas un plateau de saturation bien prononcé. Ce fonctionnement de la chambre à dépôt et ces valeurs inattendues du courant de la chambre sans dépôt peuvent faire l'objet d'une analyse beaucoup plus profonde liée notamment au problème de dépendance électrique des CFDC dans l'avenir.

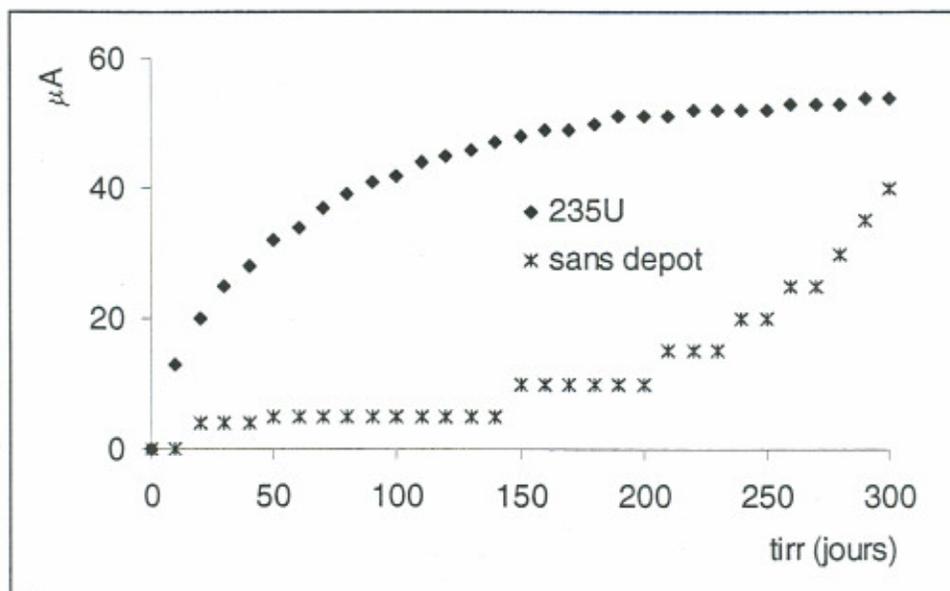


Figure 9.17 : Caractéristiques (courant, tension) des deux parties de CFDC4 dans la position 100 cm du V4

## 9.8. Conclusion

Même si les mesures effectuées avec les CFDC sont apparemment inexploitablees comme des expériences de transmutation, elles nous ont permis d'observer le fonctionnement singulier de ce genre de détecteurs tels qu'ils ont été développés.

Le problème d'interférences des champs électriques (ou de diaphonie) entre les deux parties de la chambre s'est révélé beaucoup plus important que prévu et handicapant de l'exploitation des expériences.

Pour remédier au problème d'interférence de champs dans le futur, il y a deux solutions envisageables :

1. Isoler complètement les deux parties de la CFDC l'une de l'autre en éliminant le passage qui existe dans les chambres actuelles, entre les deux parties, et dont l'objectif est d'assurer une pression et une nature de gaz identiques en regard des deux dépôts (cf. chapitre 6). Cela induirait certainement une erreur dans la formule des CFDC qui postule que les constantes caractéristiques des deux chambres sont identiques. Néanmoins nous pensons que cette erreur resterait faible car il a été observé que la pression du gaz peut être mesurée de façon très précise et que dans nos conditions expérimentales, la nature du gaz ne changerait pas ou peu tout au long de l'irradiation.
2. La seconde solution consiste à utiliser une grille dans le passage gazeux entre les deux parties de la CFDC du genre « grille de Frisch » liée comme la cathode à la masse. Pour la géométrie cylindrique de nos chambres, l'utilisation de cette grille créera une barrière « opaque » contre pas seulement les ions positifs mais aussi les électrons.

## Conclusions et perspectives

L'une des premières tâches de la thèse a consisté à développer une méthode originale pour une évaluation expérimentale du potentiel d'incinération d'actinides mineurs. Cette évaluation se déduit de la mesure en ligne de taux de fission en utilisant pour la première fois une chambre à fission à double corps.

L'utilisation de chambre à fission sous haut flux de neutrons a nécessité une conception, un développement puis une réalisation de chambres à fission à simple corps pouvant fonctionner en régime de saturation sous un flux de neutrons très intense ( $\sim 1,6 \cdot 10^{15} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ). Nous avons constaté que la masse du dépôt fissile, en plus d'autres facteurs liés à la géométrie de la chambre et à la nature et la pression du gaz de remplissage, est déterminante pour que la chambre à fission puisse opérer dans un tel régime où le courant de saturation mesuré est directement proportionnel au taux de fission de ce dépôt. Les études de conception et de modélisation que nous avons faites, dans le cadre de cette thèse, ont pu mettre en évidence ces facteurs influant sur le fonctionnement de la chambre. C'était grâce à ces modélisations et à ces calculs que nous avons développé les chambres à fissions qui étaient le sujet de nos travaux.

Les effets de perturbation de la mesure dans le réacteur à haut flux avec une chambre à fission sont essentiellement la photo-ionisation du gaz de remplissage et l'effet de radiation sur le câble coaxial lié au détecteur. Le courant mesuré par les chambres sans dépôt est de l'ordre de 25  $\mu\text{A}$  dans la position basse du canal V4 (dans le plan médian du cœur). Par rapport à un courant d'origine fissile supérieur à 600  $\mu\text{A}$ , le courant de perturbation reste relativement négligeable. L'effet de rayonnement gamma dans la position haute du V4 (à 100 cm du plan médian) est inférieur à 1  $\mu\text{A}$ .

La chambre à fission a pu donner un courant mesurable ( $> 5 \mu\text{A}$ ) jusqu'à environ 26 jours d'irradiation. L'usure de dépôt fissile correspondant a été de l'ordre de 85 %. Le courant dans la position haute a diminué de 40  $\mu\text{A}$  à 5  $\mu\text{A}$  en fin de cette période d'irradiation pour une masse de 22  $\mu\text{g}$  d' $^{235}\text{U}$ .

L'évaluation expérimentale de l'usure de l' $^{235}\text{U}$  sous haut flux par la mesure de l'évolution du courant de saturation en fonction de la durée d'irradiation, a permis de déterminer la valeur de flux de neutrons dans la position basse du tube expérimental V4 (où la mesure a donné un flux total de  $1,60 \cdot 10^{15} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ). La détermination de flux a été effectuée avec une incertitude relative de l'ordre de 4 %. C'est la première fois qu'une mesure absolue d'un flux de neutrons très élevé a été effectuée avec une chambre à fission.

Un phénomène « important » a été constaté lors des analyses des résultats expérimentaux des chambres à fission : « la perte de la matière » (ou « sputtering »). Cet effet a causé, selon l'hypothèse que nous avons émise, une décroissance rapide de l'usure de l' $^{235}\text{U}$ , notamment au début d'irradiation. Les analyses que nous avons faites par la suite étaient corrigées en prenant en compte le phénomène observé.

Les sections efficaces de l' $^{235}\text{U}$ , qui ont servi pour l'analyse et l'évaluation de l'usure du dépôt fissile, ont été moyennées sur le spectre de neutrons déterminé par simulation en utilisant un code probabiliste (MCNP) et un autre déterministe (APOLLO2). Les deux méthodes de calcul ont montré une excellente convergence.

Pour valider les valeurs de flux mesurées avec les chambres à fission, une technique expérimentale différente a été utilisée : la dosimétrie par activation neutronique. Deux moniteurs ont été ainsi irradiés dans trois altitudes dans le canal V4 : 0, 25 et 50 cm, la position « 0 cm » correspondant au plan médian du cœur et au fond du canal expérimental. Les moniteurs utilisés étaient le  $^{59}\text{Co}$  et le  $^{93}\text{Nb}$ .

Les résultats donnés par dosimétrie sont en accord avec les mesures de chambres à fission dans une marge d'incertitude inférieure à 8 %. Cela ne confirme et ne valide pas seulement la mesure absolue du flux effectuée avec les chambres à fission, mais également le spectre neutronique tel qu'il a été déterminé par simulations dans le réacteur à haut flux.

Pour déterminer expérimentalement le taux de fission de certains actinides mineurs, nous avons développé une chambre à fission à double corps (CFDC). Trois chambres étaient réalisées pour trois actinides, l' $^{241}\text{Am}$ , le  $^{237}\text{Np}$  et le  $^{239}\text{Pu}$ . Une quatrième chambre sans dépôt a été également réalisée. Cependant, lors de leurs irradiations dans le réacteur à haut flux, ces chambres ont montré que les deux parties constituant la CFDC sont électriquement dépendantes l'une de l'autre. Cela a rendu, dans l'état actuel des analyses faites sur cette partie de la thèse et qui restent préliminaires, les mesures réalisées avec les CFDC inexploitable pour pouvoir en tirer le taux de fission des actinides irradiés. Le courant de saturation de la partie «  $^{235}\text{U}$  » des CFDC n'a pas montré de cohérence au cours de son évolution en fonction de la durée d'irradiation comme cela fut le cas pour les chambres à fission à simple corps.

Le dysfonctionnement observé ne met pas en question le principe lui-même des chambres à fission à double corps, à savoir la mesure en ligne de potentiel d'incinération. Les analyses approfondies et les études de simulation de champs électriques qui seront faites par la suite par le groupe Mini-Inca permettront de comprendre l'origine de ce dysfonctionnement. Par conséquent des améliorations seront proposées pour la fabrication de nouveaux prototypes de CFDC. Des mesures de potentiel d'incinération de certains actinides mineurs sont prévues dans l'installation de MégaPie de l'Institut Paul-Scherrer à Zurich.

D'autres expériences utilisant les chambres à fission à simple corps développées dans ce travail sont également programmées par le groupe Mini-Inca. Ainsi une chambre à fission de 5  $\mu\text{g}$  d' $^{235}\text{U}$  sera irradiée en septembre 2003 dans le réacteur à haut flux à l'ILL pour obtenir un plateau de saturation dans la position basse du tube V4.

Dans le cadre du projet MégaPie, des CFSC seront réalisées avec l' $^{235}\text{U}$  comme dépôt fissile, avec et sans filtrage de gadolinium (élément très absorbant de neutrons thermiques). Cela permettra de caractériser le spectre neutronique régnant dans cette installation. D'autres CFSC avec des dépôts d'actinides mineurs ( $^{237}\text{Np}$ ,  $^{241}\text{Am}$  et  $^{242}\text{Pu}$ ) seront également fabriquées et irradiées pour des études de transmutation. L'intérêt de l'installation de MégaPie réside dans le fait qu'elle présente, en plus d'un flux de neutrons relativement élevé ( $>10^{14}$  n.cm $^{-2}$ .s $^{-1}$ ), un spectre neutronique très différent de celui du RHF à l'ILL puisqu'il présente une composante épithermique constituant 40 % du spectre (au lieu de 15 % dans le cas du RHF). Des études théoriques préalables ont montré la faisabilité de telles irradiations dans ces conditions neutroniques.

## Annexe 1 : Calcul de la sensibilité d'une chambre à fission

### Courant de saturation

Considérons  $N_0$  le nombre de paires ions créés par unité de temps et par unité de volume dans une chambre à fission de rayon cathodique  $r_c$  et rayon anodique  $r_a$  (cf. figure 1). Soient  $n^+$  et  $n^-$  respectivement les densités de porteurs des charges positifs (ions) et négatifs (électrons) et  $w^+$  et  $w^-$  leurs vitesses de transit respectives.

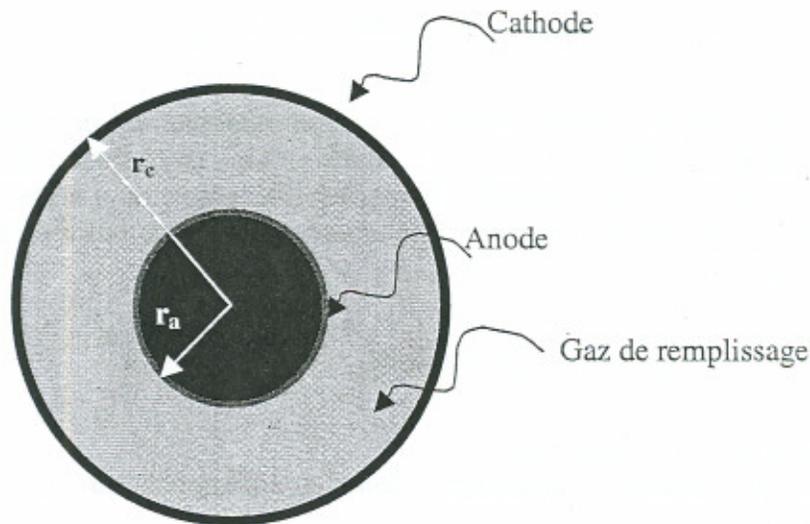


Figure 1 : Coupe transversale schématique d'une chambre à fission

En supposant la diffusion négligeable, les vecteurs courants des porteurs positifs et négatifs s'écrivent :

$$\vec{j}^+ = n^+ \vec{w}^+, \quad \vec{j}^- = n^- \vec{w}^- \quad (1)$$

On suppose également qu'il n'y ait aucune recombinaison en régime de saturation, ce qui permet d'écrire :

$$\text{div} \vec{j}^+ = \text{div} \vec{j}^- = N_0 \quad (2)$$

La densité du courant électrique est donnée par :

$$e \vec{j} = e (\vec{j}^+ - \vec{j}^-) = e (n^+ \vec{w}^+ - n^- \vec{w}^-) \quad (3)$$

Et de l'équation 2 on déduit :

$$\text{div} \vec{j} = 0 \quad (4)$$

La diffusion étant négligée, la densité de courant  $j$  est parallèle aux lignes du champ électrique. Cela permet, à partir de l'équation (4), de déduire que le courant total à travers n'importe quelle surface latérale du volume sensible de la chambre a la même valeur  $I$ . On

s'attend à ce que ce courant, appelé courant d'ionisation ou de saturation, soit le produit de la charge électronique  $e$  et du nombre de paires par seconde formées dans la chambre :

$$I = e \int_V N_0 dV \quad (5)$$

où  $V$  est le volume sensible de la chambre.

L'équation (5) peut également s'écrire en supposant que l'anode collectrice est à un potentiel positif et en tenant compte des équations (1) et (2) :

$$I = e \int_V N_0 dV = e \int_V \text{div} \vec{j}^- dV = \int_V \text{div} \left( n^- \vec{w}^- \right) dV = \int_S n^- w_n^- dS$$

$S$  étant la surface limitant le volume sensible et  $w_n$  la composante normale à cette surface se dirigeant à l'extérieur du volume sensible.  $w_n$  est nulle au long de la surface latérale alors que  $n$  est nul sur la surface de la cathode (liée à la masse par exemple ou à un potentiel négatif). En effet les électrons, dès qu'ils sont créés, sont attirés vers l'anode positive. D'où, si  $S+$  est la surface de l'anode :

$$e \int_V N_0 dV = e \int_{S+} n^- w_n^- dS = e \int_{S+} \vec{j}^- dS \quad (6)$$

L'équation (5) se trouve alors démontrée.

La détermination du courant de saturation, quand la diffusion et la recombinaison sont négligées, est triviale.

### Densité des paires ions-électrons : $N_0$

Le nombre de paires créées par seconde dans le volume  $d\tau = r' d\Psi dr' dz$  (cf. figure 2) autour du point  $P$ , se situant dans l'espace inter-électrodes, par un produit de fission créé dans une surface élémentaire  $dS$  du dépôt, est donné par :

$$dN = dS \cdot \cos(\Psi) \frac{d\Psi}{\pi} P \frac{A}{W} dr' \text{ où :}$$

- $P$  : pression du gaz dans la chambre,
- $A$  : pouvoir d'arrêt du produit de fission dans le gaz de remplissage,
- $W$  : potentiel d'ionisation du gaz.

On en tire la densité locale de paires dans le volume  $d\tau$  qui n'est autre que :

$$dN_\tau = \frac{dN}{d\tau} = \frac{1}{\pi} P \frac{A}{W} \frac{\cos(\Psi)}{r'} d\theta$$

On peut montrer à partir des données géométriques de la figure 8.3 l'égalité suivante :

$$\frac{\cos(\Psi)}{r'} = \frac{r \cos(\theta) - na}{r^2} = \frac{r \cos(\theta) - na}{r^2 + na^2 - 2r \cdot na \cos(\theta)}$$

ce qui permet finalement d'écrire :

$$dN_t = \frac{1}{\pi} \frac{P A}{W} \frac{r_a(r \cos(\theta) - r_a)}{r^2 + r_a^2 - 2r r_a \cos(\theta)} d\theta$$

La densité de paires par unité de temps et par un produit de fission est alors donnée par :

$$N_0 = \int_{-\arccos(r_a/r)}^{\arccos(r_a/r)} dN_t = \frac{2}{\pi} \frac{P A}{W} \int_0^{\arccos(r_a/r)} \frac{r_a(r \cos(\theta) - r_a)}{r^2 + r_a^2 - 2r r_a \cos(\theta)} d\theta$$

On montre que  $\int_0^{\arccos(r_a/r)} \frac{r \cos(\theta) - r_a}{r^2 + r_a^2 - 2r r_a \cos(\theta)} d\theta = \frac{1}{r_a} \left( \frac{\pi}{2} + \arccos\left(\frac{r_a}{r}\right) \right)$

D'où finalement la densité des paires électrons-ions :

$$N_0 = \frac{P A}{W} \left( 1 + \frac{2}{\pi} \arccos\left(\frac{r_a}{r}\right) \right) \quad (7)$$

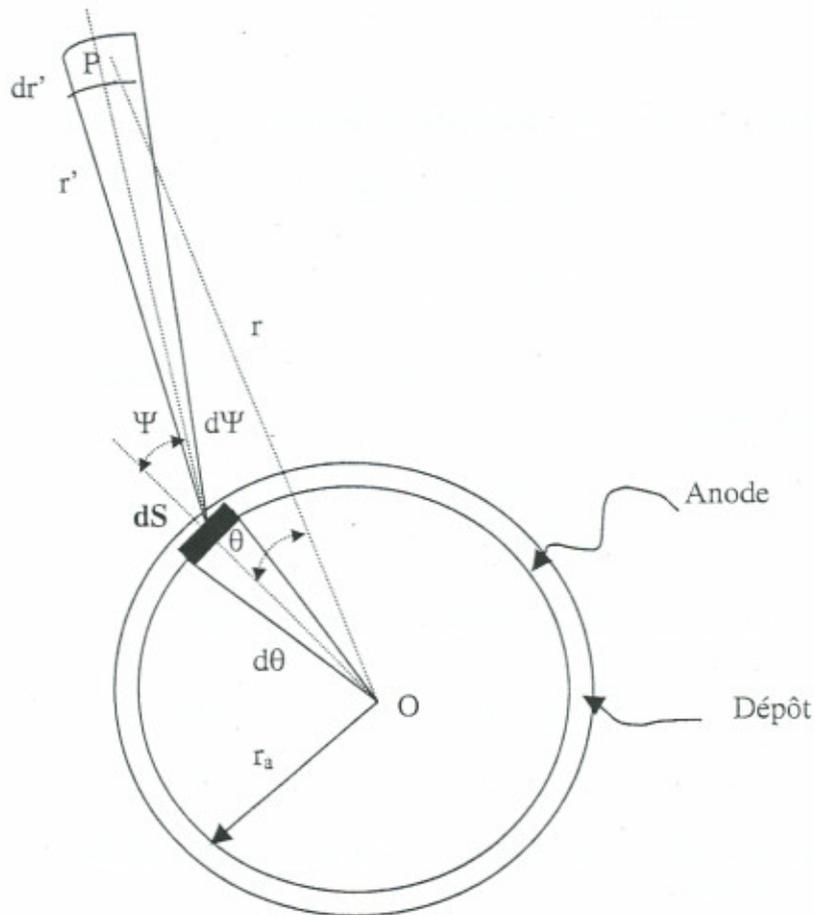


Figure 2 : Illustration de la création de paires ((OZ) étant l'axe de la chambre)

(Origine du graphe : O. Poujade, A. Lebrun : "Modeling of the saturation current of a fission chamber taking into account the distortion of electric field due to space charge effects". Nuclear Instrument and Methods in Physics Research A 433 (1999) 673-682)

La densité de paires est dépendante de la distance radiale, cf. figure 8.4. Par soucis de simplification des calculs d'intégrales, on peut considérer dorénavant la valeur moyenne de la fonction  $\left(1 + \frac{2}{\pi} \arccos\left(\frac{r_a}{r}\right)\right)$ . Numériquement on trouve que cette valeur moyenne est très proche de  $\pi^3/23$ , ce qui permet d'écrire :

$$N_0 = \frac{\pi^3}{23} P \frac{A}{W}$$

Cette quantité présente la densité de paires pour un produit de fission créé dans le dépôt fissile de la chambre. Pour obtenir le nombre total des paires par unité de temps il faut multiplier  $N_0$  (et on va garder volontairement la même notation pour la densité totale) par le taux de fission surfacique de dépôt actif :

$$N_0 = \frac{\pi^3}{23} P \frac{A}{W} R_{fs} \quad (8)$$

où :  $R_{fs} = \frac{1}{2\pi a l} \int_0^\infty \Sigma_f(E) \Phi(E) dE$

### Champ électrique dans une chambre à fission

La distribution des charges d'espace est définie ainsi :

$$\rho = \frac{e}{\epsilon_0} (n^+ - n^-) \quad (10)$$

Pour déterminer  $\rho$ , il faut considérer un système constitué des équations (1), (2), (10), des deux équations suivantes ((11) et (12)) :

$$\text{div} \vec{E} = 4\pi\rho \quad (11)$$

$$\text{cur} \vec{E} = 0 \quad (12)$$

et des équations liant les densités du courant au champ électrique :

$$\vec{j}^+ = \mu^+ n^+ \vec{E} \quad (13)$$

$$\vec{j}^- = \mu^- n^- \vec{E} \quad (14)$$

Comme on a fait pour démontrer l'équation (7) on peut montrer également que la densité du courant d'ions varie ainsi :

$$j^+(r) = \frac{N_0}{2} \left( r - \frac{r_a^2}{r} \right) \quad (15)$$

De (7), (13), (14) et (15) on déduit :

$$n^- = \frac{I N_0}{2 \mu^- E} \left( r - \frac{r_c^2}{r} \right) \quad \text{et} \quad n^+ = \frac{I N_0}{2 \mu^+ E} \left( r - \frac{r_a^2}{r} \right)$$

Cela permet de déduire, d'après l'équation (10), la densité des charges d'espace  $\rho$  en fonction de l'intensité  $E$  du champ électrique :

$$\rho = \frac{I e N_0}{2 \varepsilon_0 E} \left[ \left( \frac{I}{\mu^-} + \frac{I}{\mu^+} \right) r - \left( \frac{r_c^2}{\mu^-} + \frac{r_a^2}{\mu^+} \right) \frac{I}{r} \right] \quad (16)$$

$$\frac{1}{r} \text{div}(rE) = 4\pi\rho$$

Et tenant compte de (16) et en posant :  $a = \frac{I}{\mu^-} + \frac{I}{\mu^+}$  et  $\beta = 2 \left( \frac{r_c^2}{\mu^-} + \frac{r_a^2}{\mu^+} \right)$  on trouve pour le champ électrique :

$$E(r) = \sqrt{\pi \frac{e}{\varepsilon_0} N_0 (a r^2 - \beta) + \frac{C}{r^2}}$$

### Sensibilité d'une chambre à fission

De tout ce qui a précédé nous pouvons déterminer l'expression du courant de saturation de la chambre à fission :

$$I = \pi e l P \frac{A}{W} R_{fs} \left( r_c^2 - r_a^2 + \frac{2r_c}{\pi} \left( r_c \arccos \frac{r_a}{r_c} - r_a \sqrt{1 - \frac{r_a^2}{r_c^2}} \right) \right)$$

La sensibilité de la chambre est définie comme étant le rapport du courant de saturation et du flux de neutrons. Elle est donnée par :

$$S = \frac{I}{\Phi} = \frac{N_{av} m e}{M} P \frac{A}{W} \sigma_f \left( n^2 - n_a^2 + \frac{2r_c}{\pi} \left( r_c \arccos \frac{r_a}{r_c} - r_a \sqrt{1 - \frac{r_a^2}{r_c^2}} \right) \right)$$

où :

$m$  : masse du dépôt « mono-isotopique »,

$\sigma_f$  : section efficace de fission de l'isotope fissile constituant le dépôt actif,

$M$  : masse molaire de l'isotope en question.

## Annexe 2 : Exemple de dossier d'irradiations (dossier de la chambre à fission CFDC1, à base du neptunium comme dépôt d'actinide)

### Note de radioprotection de dispositif de la chambres à fission

#### Objectif

Ce document consiste à présenter les calculs d'activité et de débit de dose prévue pour la chambre à fission à irradier dans le canal V4.

#### Dispositif irradié et chambre à fission :

##### *Chambre à fission :*

L'ensemble est constitué d'une chambre à fission introduite dans un porte-échantillons cylindrique qui sera introduit dans le canal V4.

La chambre est constituée de micro\_chambres adjacentes et identiques ayant chacune les données géométriques suivantes :

Diamètre externe : 4,7 mm

Longueur de la partie sensible : 10 mm

Longueur de la chambre : 23,2 mm

Longueur de la chambre y compris le raccordement : 68,3 mm

La chambre est liée à un câble coaxial de longueur 5275 mm.

La chambre à fission portent deux dépôts actifs : l'uranium et le neptunium avec les compositions isotopiques suivantes :

Uranium	234U	235U	236U	238U
%	0,0596	97,49	0,0362	2,41
Masse totale d'uranium (µg)	14,27			
Neptunium	237Np			
%	100			
Masse totale de neptunium (µg)	103,9			

La chambre est remplie d'argon à 1 bar.

### *Dispositif associé :*

Tube d'irradiation						
D externe	D interne	Longueur	Epaisseur	Volume	Masse volumique	Masse tube
m	m	m	m	m <sup>3</sup>	kg/m <sup>3</sup>	kg
0,026	0,023	0,626	0,0015	0,0000763	2650	0,225

Tige centrale			
Diamètre	Longueur	Masse volumique	Masse tube
m	m	kg/m <sup>3</sup>	kg
0,003	5,033	2700	0,096

Câbles coaxiaux				
Nombre	Diamètre ext	longueur	Masse volumique	Masse
	m	m	kg/m <sup>3</sup>	kg
4	0,001	5,275	3900	0,062

### *Bilan massique*

Solides	Masse (kg)
Canne	0,817
Boîtier des connecteurs	0,409
Tige centrale	0,096
Chambres à fission	0,0045
Câbles et guides de câbles	0,081
Protection biologique	1,004
<b>Masse totale des solides (kg)</b>	<b>2,4</b>

Le calcul d'évolution des chambres a été fait par le code CINDER, un code multigroupe d'évolution, développé par les laboratoire de Los Alamos.

### *Flux neutronique*

Le flux dans lequel sont calculés l'activité et le débit de dose est calculé par le code de transport MCNP, le même calcul a été fait avec le code déterministe APOLLO2 au Service d'Etudes des Réacteurs et des Mathématiques Appliquées, en simulant le réacteur à haut flux. La figure 2 présente le spectre de flux calculé.

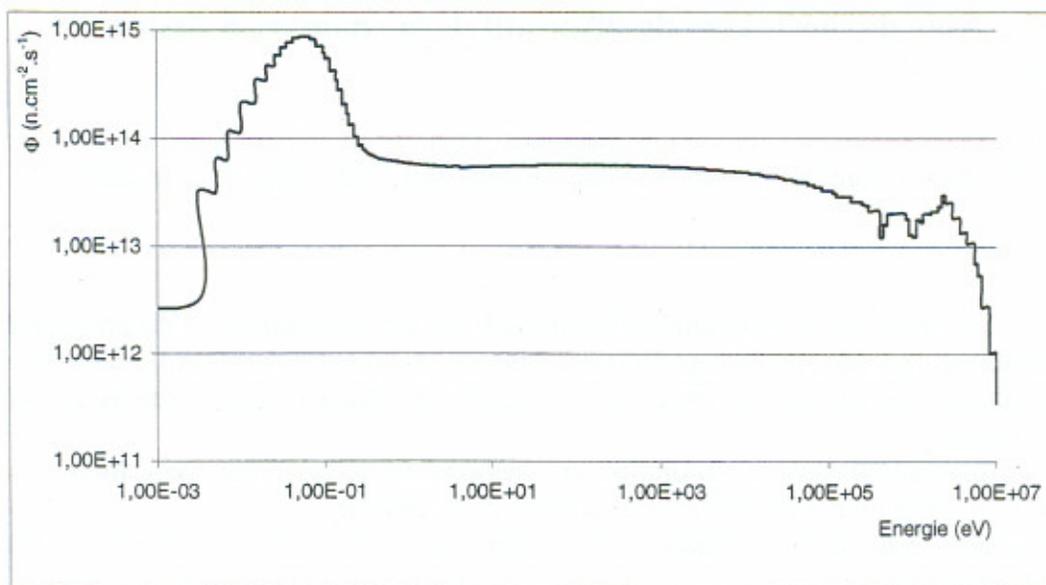


Figure 1 : Spectre neutronique en bas du canal V4 calculé par APOLLO2

#### *Activité de la chambre à fission :*

La chambre à fission, après une irradiation de 17 jours dans le canal V4 et 48 heures de refroidissement, présentent **une activité totale de  $1,33 \cdot 10^{10}$  Bq** ce qui est conforme à la limite fixée de  $2.0 \cdot 10^{10}$  dans la note Dre EB/RV 2000-742.

Le tableau suivant présente les activités des principaux actinides présents dans la chambre :

actinide	masse ( $\mu\text{g}$ )	Act_immediate(Bq)	Act après 48h refroidissement (Bq)
U235	3,48E+00	2,78E+07	2,78E+07
U236	1,24E+00	2,97E+00	2,97E+00
U237	7,80E-03	2,36E+07	1,92E+07
U238	1,81E-01	2,26E-03	2,26E-03
Np237	5,95E+01	1,55E+03	1,55E+03
Np238	2,56E+00	2,45E+10	1,27E+10
Np239	1,12E-01	9,63E+08	5,34E+08
Pu238	8,95E+00	5,67E+06	5,67E+06
Pu239	2,88E+00	6,62E+03	6,62E+03
Pu240	6,65E-01	5,59E+03	5,59E+03
Pu241	1,07E-01	4,08E+05	4,08E+05
Pu242	1,88E-02	2,75E+00	2,75E+00
Am243	4,13E-04	3,05E+00	3,05E+00
Am241	4,26E-05	5,41E+00	5,41E+00
Cm242	8,06E-06	9,88E+02	9,80E+02
Cm243	3,97E-08	7,43E-02	7,43E-02
Cm244	1,40E-05	4,20E+01	4,20E+01
Cm245	4,89E-08	3,11E-04	3,11E-04

## Note de thermique du dispositif de la chambre à fission

### Objectifs

Ce document présente les calculs thermiques faits pour déterminer les températures d'équilibre dans les chambres à fission et dans le dispositif à introduire dans le canal V4.

### Outil de calcul

Notre outil de calculs est le programme CHARADE qui est une adaptation du programme de B. Richard développé dans les années 70 et exploité sur MITRA 125 au CEA/Cadarache.

Le code prend en compte tous les processus de transfert de chaleur dans la matière et entre les différents milieux.

Il prend en compte également l'évolution en température de la conductivité thermique, de l'émissivité et de la dilatation du diamètre à cause de la chaleur.

Notre référence de données thermiques concernant l'eau légère est le calcul fait par DEMA pour l'ILL.

### Modèle physique

#### Transferts thermiques

Le modèle Charade résout l'équation suivante :

$$Q_c + Q_h + Q_r + Q_s = 0$$

Où :

$Q_c$  présente la température transférée par conduction :

$$Q_c = \text{div}(k(T).grad(T)) = k(T).div(grad(T) + grad(k(T)).grad(T))$$

$k(T)$  est la conductibilité thermique.

L'hypothèse est faite que la température se diffuse isotropiquement,

d'où  $grad(k(T)) = 0$

Cela donne :

$$Q_c = k(T).div(grad(T)) = k(T).\Delta(T), \Delta \text{ étant le Laplacien.}$$

Charade ne traite que le cas géométrie cylindrique, ce qui donne en considérant le cas d'un cylindre infini :

$$Q_c = k(T) \frac{1}{r} \frac{d}{dr} \left( r \frac{dT}{dr} \right)$$

$Q_h$  présente la chaleur transférée par convection :

$$Q_h = h.S.(T-T_s)$$

Où  $h$  est le coefficient de convection,  $S$  la surface d'échange thermique,  $T$  la température du milieu et  $T_s$  la température de surface.

$Q_r$  présente la chaleur transférée par rayonnement :

$$Q_r = \frac{\sigma S (T^4 - T_a^4)}{\epsilon^{-1} + \frac{S}{S_a} (\epsilon_a^{-1} - 1)}$$

Où  $\sigma$  est la constante universelle de Stefan,  $T$  la température du milieu,  $T_a$  la température de la surface adjacente,  $S$  la surface du milieu concerné,  $\epsilon$  son émissivité,  $S_a$  la surface adjacente et  $\epsilon_a$  l'émissivité du milieu adjacent.

$Q_s$  présente les puits et les sources de chaleur, dans notre cas :

$$Q_s = Q_\gamma + \epsilon \cdot Q_f$$

Où :  $Q_\gamma$  est l'échauffement dû aux rayonnements  $\gamma$ ,  $Q_f$  la puissance dégagée par la fission et  $\epsilon$  un coefficient qui vaut 1 dans le cas où le corps est fissile et 0 dans le cas contraire.

### *Dilatation thermique*

Le code prend en compte la dilatation diamétrale due à la température. Il assimile asymptotiquement la dilatation selon la loi suivante :

$$\frac{DL}{L} = aT^2 + bT, \text{ a et b sont des coefficients dépendant du matériau du milieu.}$$

### *Coefficients thermiques*

La conductivité varie selon la loi suivante :

Pour le gaz :  $k(T) = bT^a$ , pour le solide ou le liquide :  $k(T) = aT + b$

L'émissivité varie ainsi :  $\epsilon(T) = aT + b$ .

Les coefficients  $a$  et  $b$  dépendent du matériau du milieu et de la grandeur calculée.

## Calcul thermique

Dans ce calcul on prend en compte les quatre chambres à fission introduites dans la navette remplie d'hélium. Le calcul est fait pour trois valeurs de puissance gamma.

### Hypothèses de calculs

Ces calculs sont considérés dans les cas les plus pénalisants (Puissance majorée, Pertes de charges maximalisées pour le calcul du débit et pas de contact thermique entre les matériaux solides.)

### Données de calcul

	Dilatation		Conductivité		Emissivité	
	a	b	a	b	a	b
Titane	0,00	2,57e-5	0,00	1,38	0,00	1,00e-1
Argon	0,00	0,00	7,90e-1	2,98e-6	0,00	0,00
Aluminium	0,00	2,34e-5	0,00	1,17	0,00	1,00e-1
Eau	0,00	0,00	0,00	1,00	0,00	0,00

L'eau légère présente un coefficient de convection de  $0,12 \text{ W.cm}^{-2}.\text{K}^{-1}$  à la température de calcul, soit  $80^\circ\text{C}$ . Le débit de l'eau est de  $0,091 \text{ l/s}$ .

**Référence de données :** Pour ces données, on s'est référencé au « Handbook of Physics » de Condon & Odishaw, seconde édition, édité par McGraw\_Hill Book Company.

### Dimensions et schéma de calcul

L'ensemble est constitué de quatre chambres à fissions introduits dans un porte-échantillons cylindrique qui sera introduit dans le canal V4.

Les chambres présentent les données géométriques suivantes :

### Eléments de calculs :

Diamètre externe : 17 mm

Longueur de la partie sensible : 10 mm

Longueur de la chambre : 59 mm

Longueur du câble coaxial : 5275 mm

La navette présente un diamètre externe de 26 mm et interne de 23 mm.

Le dépôt dans la partie de référence de la CFDC est toujours de l'uranium 235 d'une masse de  $14,27 \mu\text{g}$ .

Chambre fission	à	Nature du double dépôt	Masse totale du dépôt ( $\mu\text{g}$ )	Gaz de remplissage	de	Pression du gaz de remplissage
CFDC1		$^{237}\text{Np}$	103,9	argon		1 bar

### Dimensions :

Tube d'irradiation						
D externe	D interne	Longueur	Epaisseur	Volume	Masse volumique	Masse tube
m	m	m	m	m <sup>3</sup>	kg/m <sup>3</sup>	kg
0,026	0,023	0,626	0,0015	0,0000763	2650	0,225

Tige centrale			
Diamètre	Longueur	Masse volumique	Masse tube
m	m	kg/m <sup>3</sup>	kg
0,003	5,033	2700	0,096

Chambres à fission				
Nombre	Diamètre ext	longueur	Titane	Masse
	m	m	kg/m <sup>3</sup>	kg
1	0,017	0,06	2250	0,0060

Câbles coaxiaux				
Nombre	Diamètre ext	longueur	Masse volumique	Masse
	m	m	kg/m <sup>3</sup>	kg
2	0,001	5,275	3900	0,031

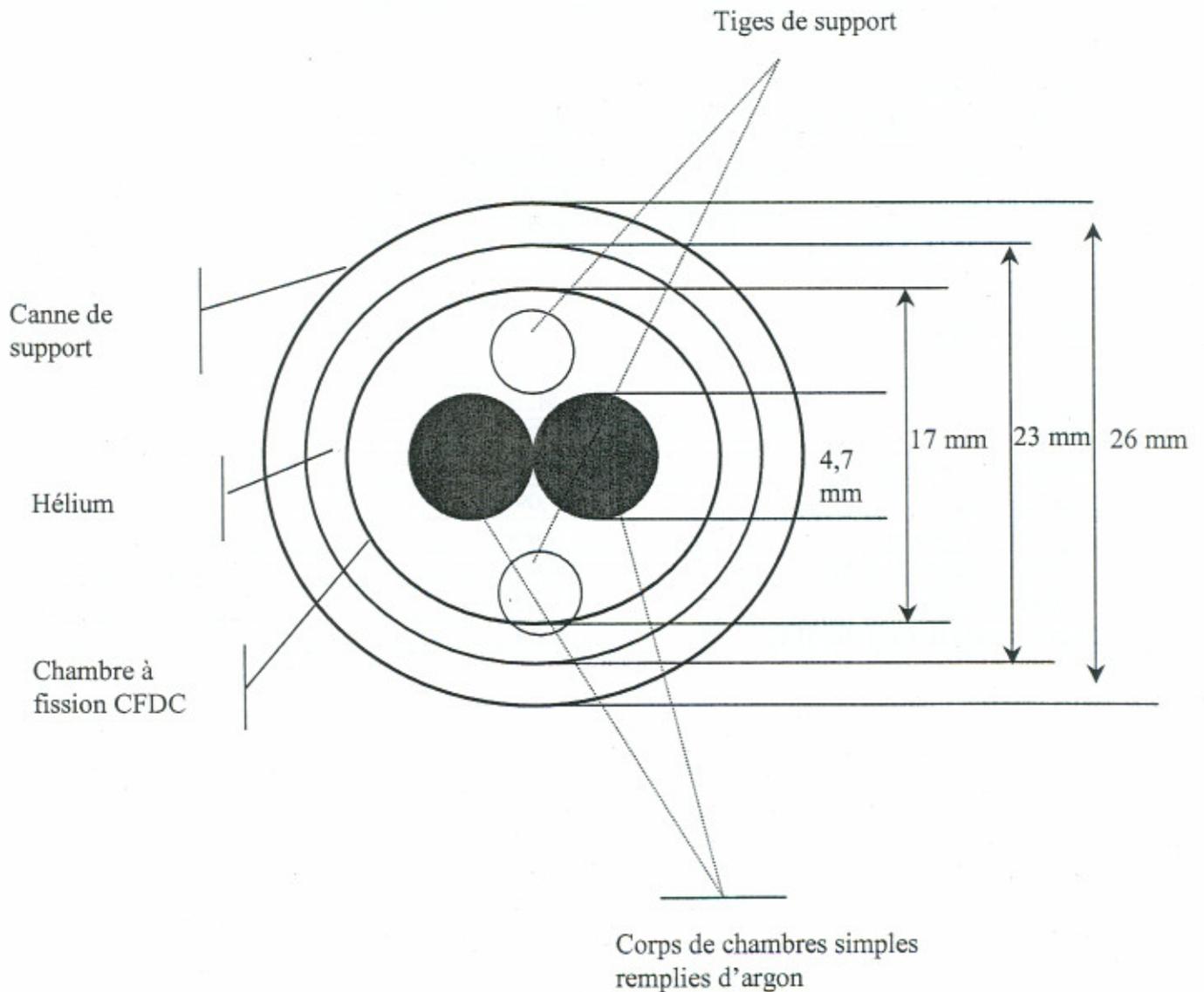
### Bilan massique

Solides	Masse (kg)
Canne	0,817
Boîtier des connecteurs	0,409
Tige centrale	0,096
Chambres à fission	0,006
Câbles et guides de câbles	0,05
Protection biologique	1,004
<b>Masse totale des solides (kg)</b>	<b>2,38</b>

## Températures à l'équilibre

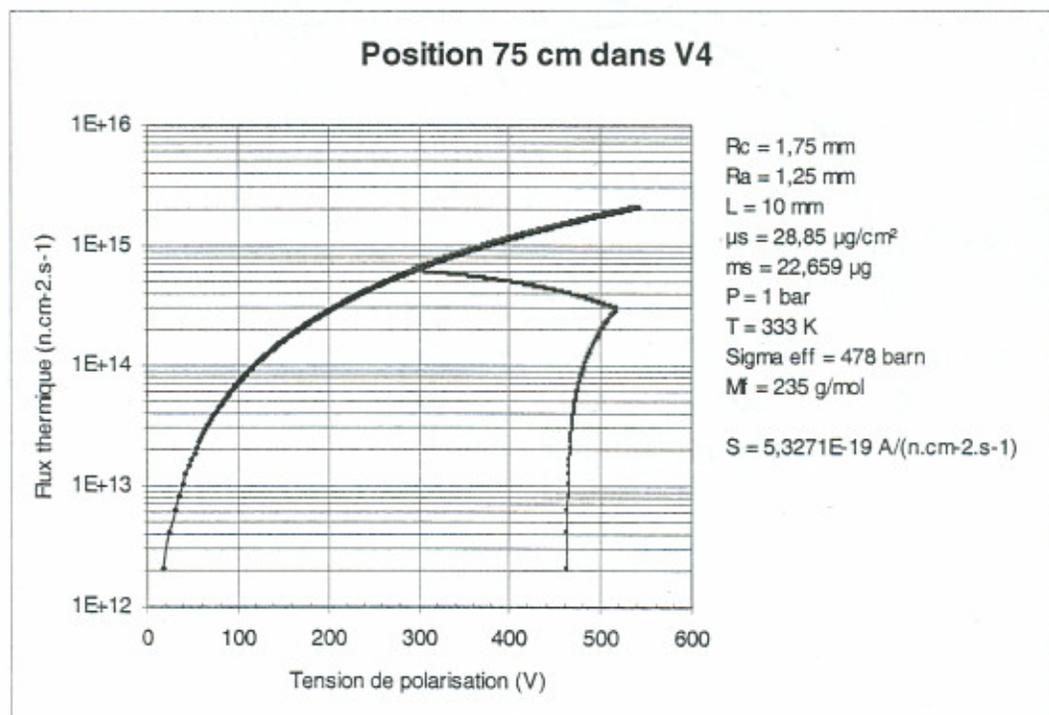
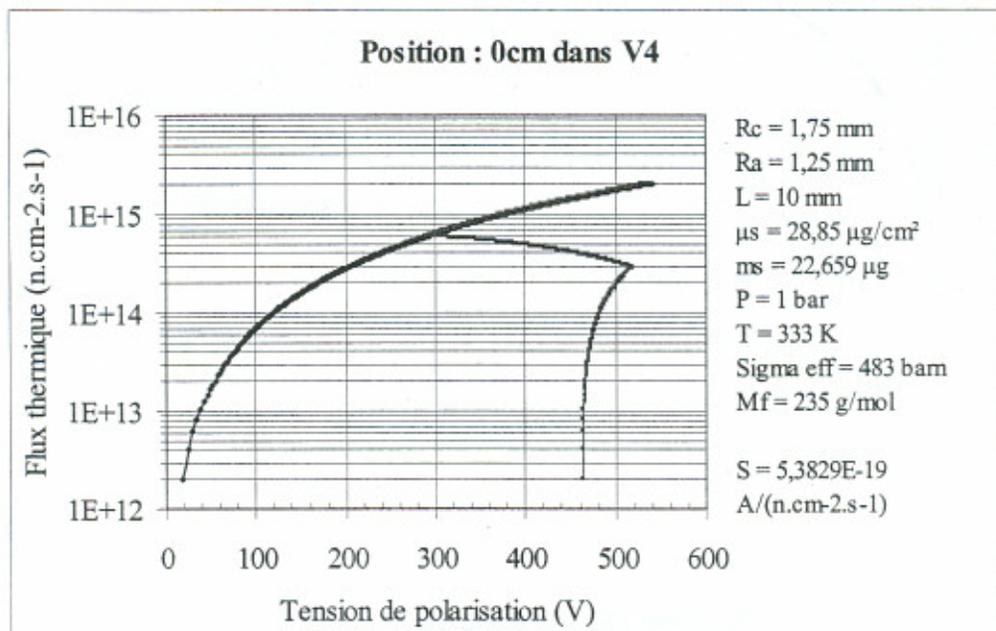
Température (°C)	Puissance (W/g)	$\gamma$	2	3,2	3,6	Température de fusion (°C)
		Tige centrale (Aluminium)		154	231	256
	gaz à l'intérieur des chambres		162	243	270	-
	Corps de la chambre (Titane)		154	231	256	1668
	Navette (Aluminium)		84	87	88	660

Figure 2 : Schéma de calcul thermique

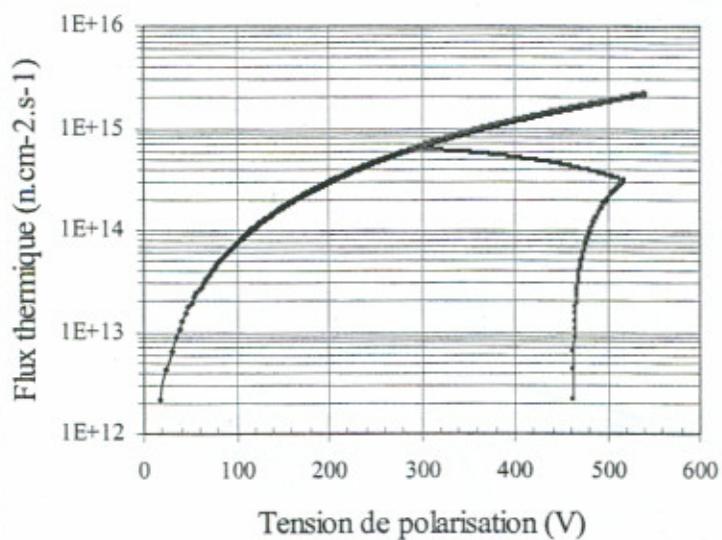


## Annexe 3 : Calculs FCD

CFSC1 :

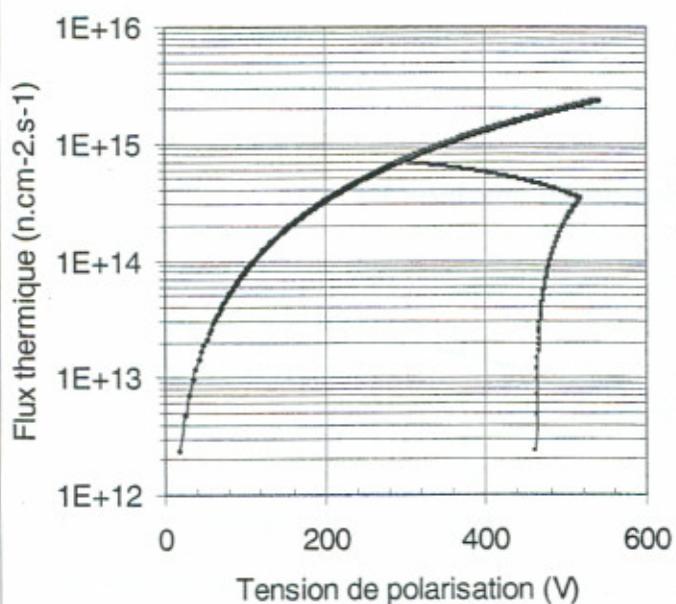


Position : 50 cm dans V4



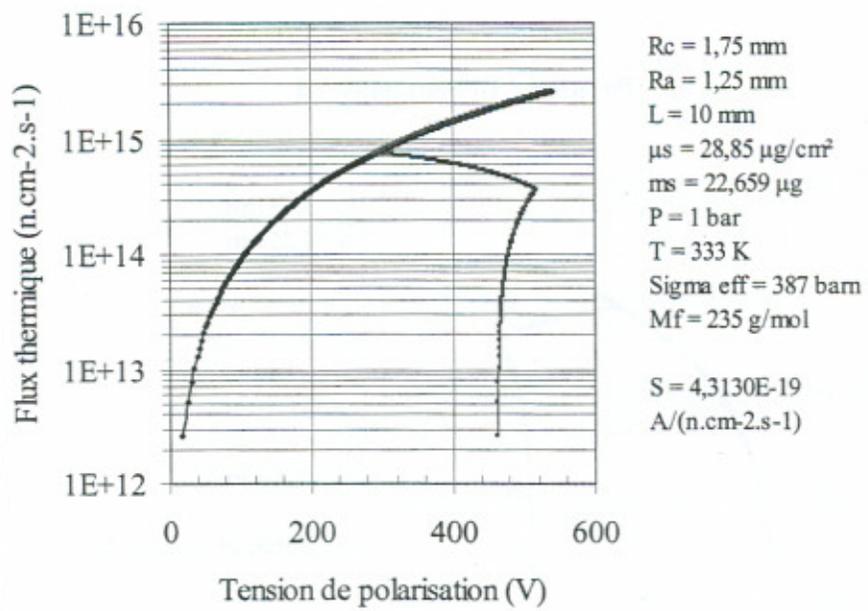
$R_c = 1,75 \text{ mm}$   
 $R_a = 1,25 \text{ mm}$   
 $L = 10 \text{ mm}$   
 $\mu_s = 28,85 \text{ } \mu\text{g}/\text{cm}^2$   
 $m_s = 22,659 \text{ } \mu\text{g}$   
 $P = 1 \text{ bar}$   
 $T = 333 \text{ K}$   
 $\text{Sigma eff} = 458 \text{ barn}$   
 $M_f = 235 \text{ g/mol}$   
 $S = 5,1042\text{E}-19 \text{ A}/(\text{n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1})$

Position : 25 cm dans V4

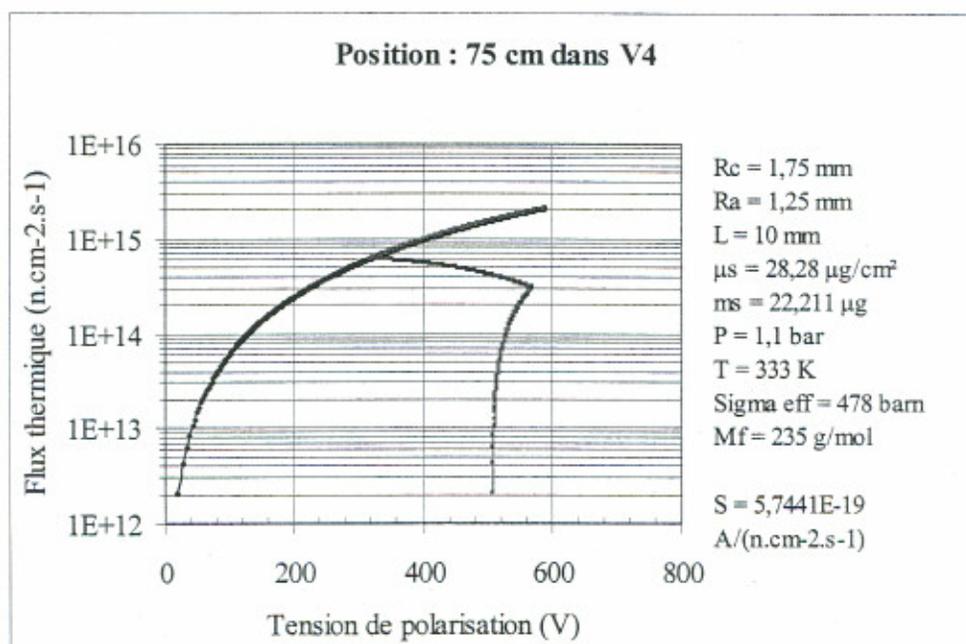
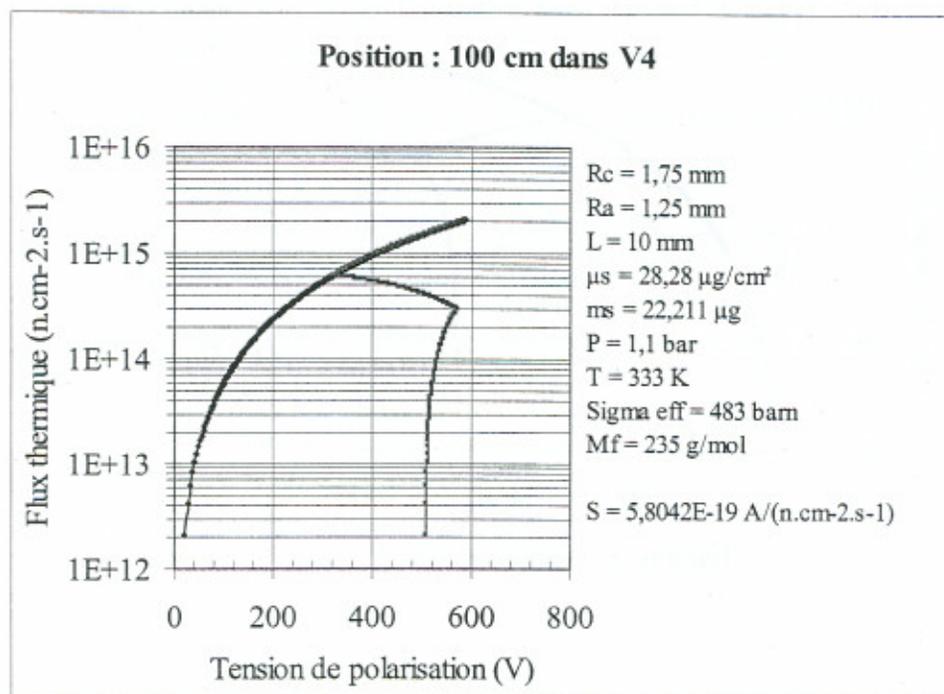


$R_c = 1,75 \text{ mm}$   
 $R_a = 1,25 \text{ mm}$   
 $L = 10 \text{ mm}$   
 $\mu_s = 28,85 \text{ } \mu\text{g}/\text{cm}^2$   
 $m_s = 22,659 \text{ } \mu\text{g}$   
 $P = 1 \text{ bar}$   
 $T = 333 \text{ K}$   
 $\text{Sigma eff} = 419 \text{ barn}$   
 $M_f = 235 \text{ g/mol}$   
 $S = 4,6696\text{E}-19 \text{ A}/(\text{n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1})$

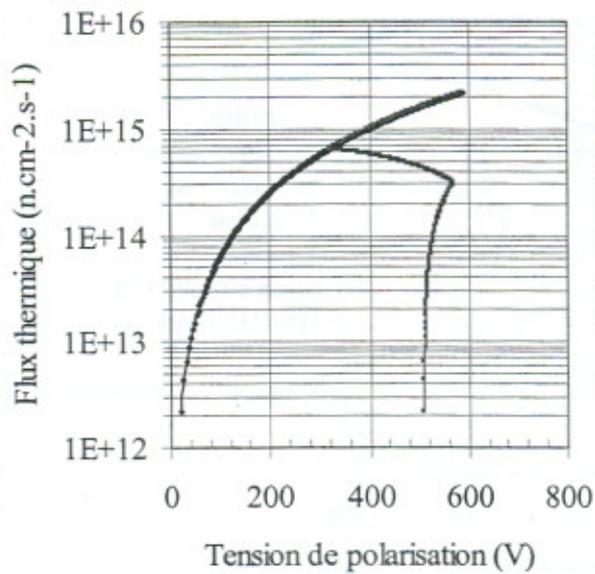
Position : 0 cm dans V4



CFSC2 :

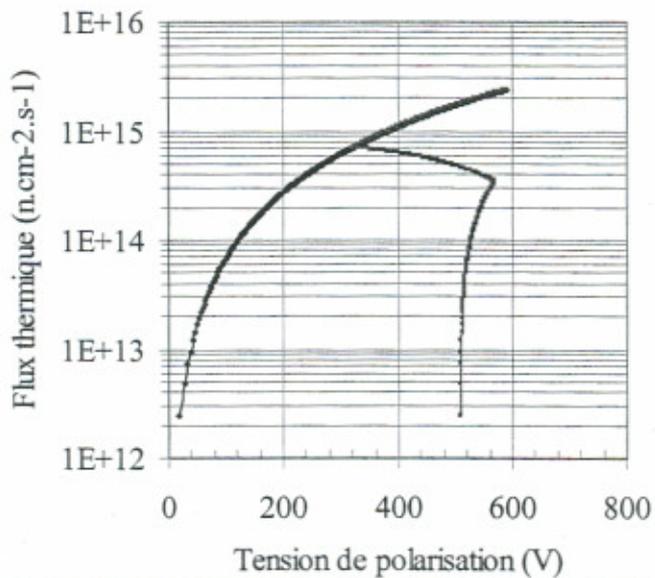


Position : 50 cm dans V4



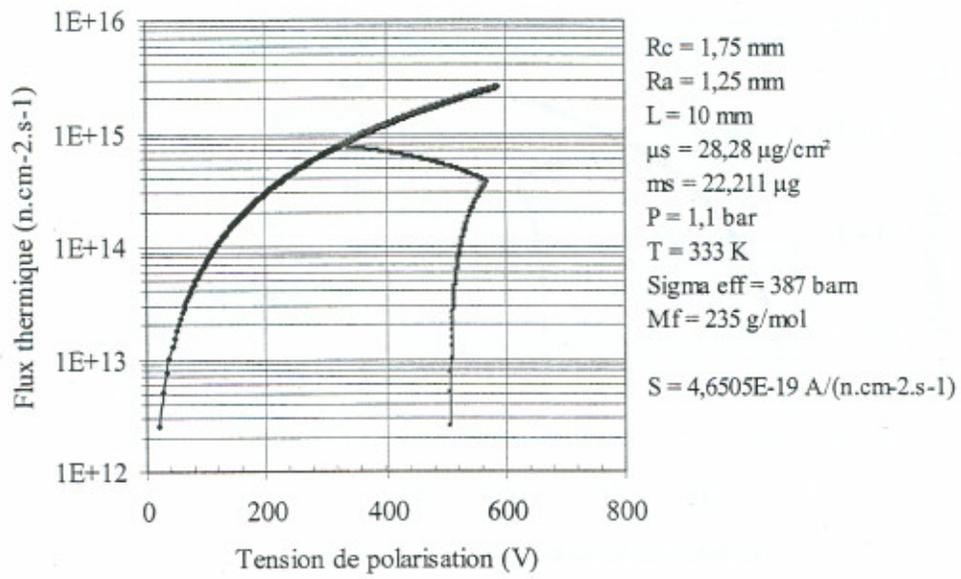
Rc = 1,75 mm  
Ra = 1,25 mm  
L = 10 mm  
 $\mu_s = 28,28 \mu\text{g}/\text{cm}^2$   
 $m_s = 22,211 \mu\text{g}$   
P = 1,1 bar  
T = 333 K  
Sigma eff = 458 barn  
Mf = 235 g/mol  
S = 5,5037E-19 A/(n.cm-2.s-1)

Position : 25 cm



Rc = 1,75 mm  
Ra = 1,25 mm  
L = 10 mm  
 $\mu_s = 28,28 \mu\text{g}/\text{cm}^2$   
 $m_s = 22,211 \mu\text{g}$   
P = 1,1 bar  
T = 333 K  
Sigma eff = 419 barn  
Mf = 235 g/mol  
S = 5,0351E-19  
A/(n.cm-2.s-1)

Position : 0 cm



## Annexe 4 : Récapitulatif des résultats des chambres à fission double corps

Les résultats des mesures avec les CFDC sont présentés, dans cet annexe, sous forme de caractéristiques (courant, tension). Dans des tableaux seront présentés les valeurs des courants de saturation lorsque le plateau de saturation est bien prononcé (on le note dans ce cas PS) ; Dans le cas contraire ce sont les valeurs de courant correspondant au point d'inflexion (PI) qui sont présentés. Les mesures étaient généralement effectuées dans les positions 0 et 100 cm du V4 (à part en ce qui concerne la CFDC1 où les mesures étaient principalement réalisées dans la position 75 cm au lieu de 100 cm). Parfois des mesures étaient réalisées dans d'autres positions du tube d'irradiation. Ces dernières sont également présentées dans l'annexe suivant.

### CFDC1 ( $^{235}\text{U}$ , $^{237}\text{Np}$ )

Nota : Lorsqu'une caractéristique (courant, tension) d'une partie de la chambre est relevée, aucune haute tension n'est appliquée sur l'autre partie adjacente de la CFDC. Cela concerne toutes les mesures effectuées avec la CFDC1.

### Neptunium 237 :

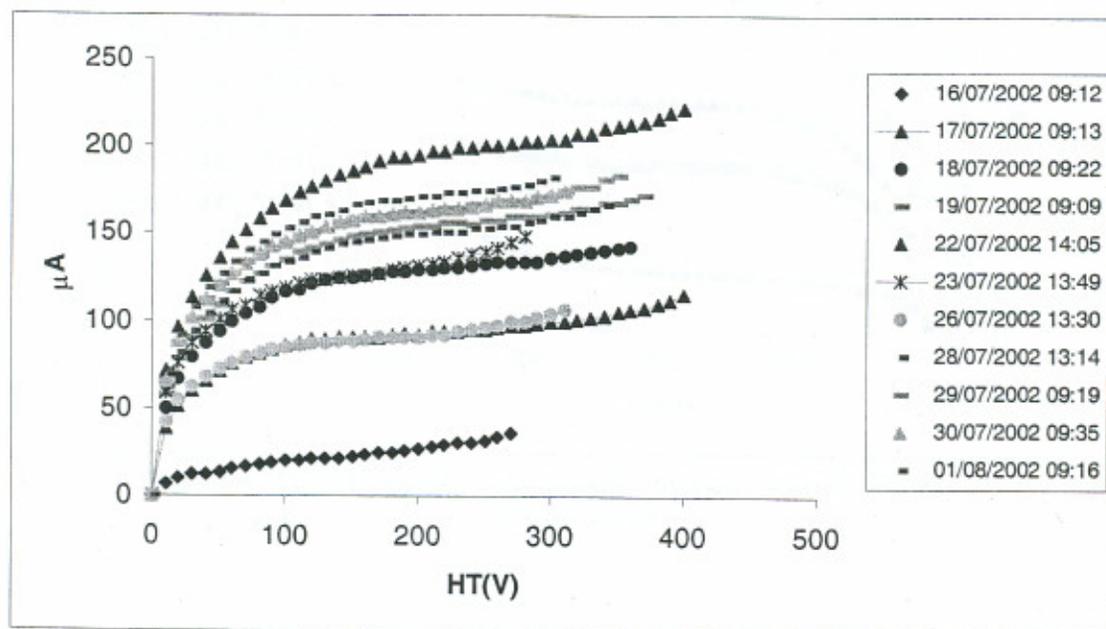


Figure 18 : Caractéristiques (courant, tension) du  $^{237}\text{Np}$  de la CFDC1 dans la position 0 cm du V4

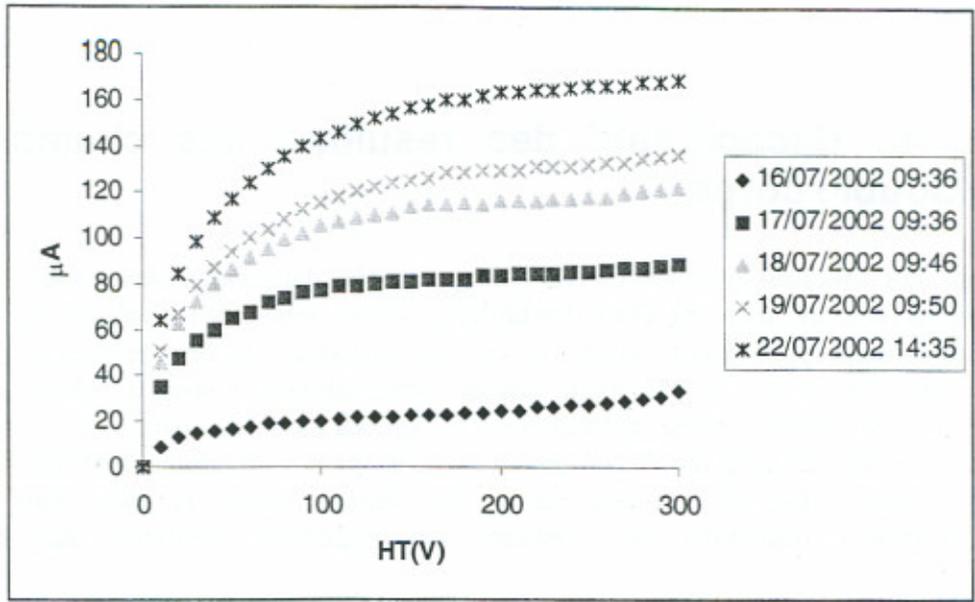


Figure 19 : Caractéristiques (courant, tension) du  $^{237}\text{Np}$  de la CFDC1 dans la position 25 cm du V4

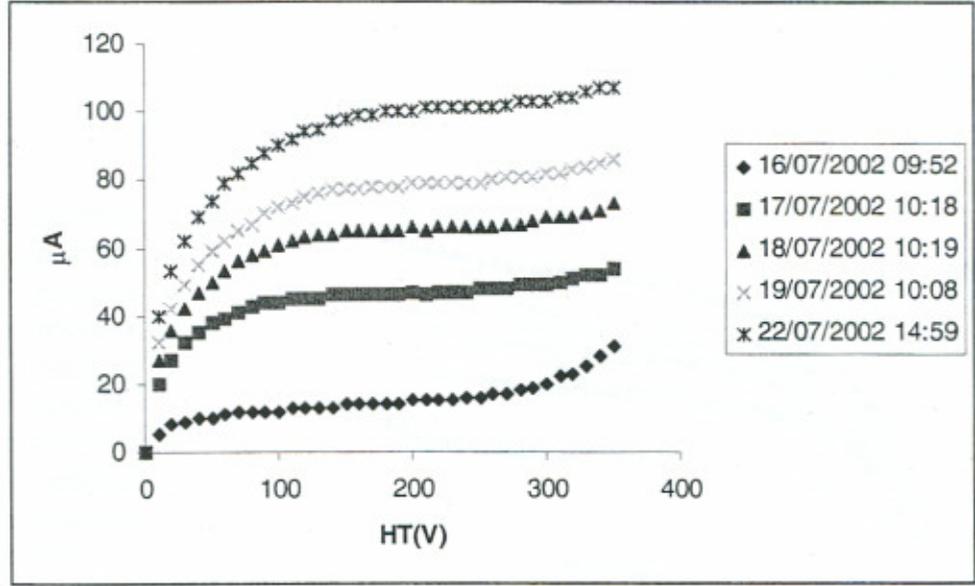


Figure 20 : Caractéristiques (courant, tension) du  $^{237}\text{Np}$  de la CFDC1 dans la position 50 cm du V4

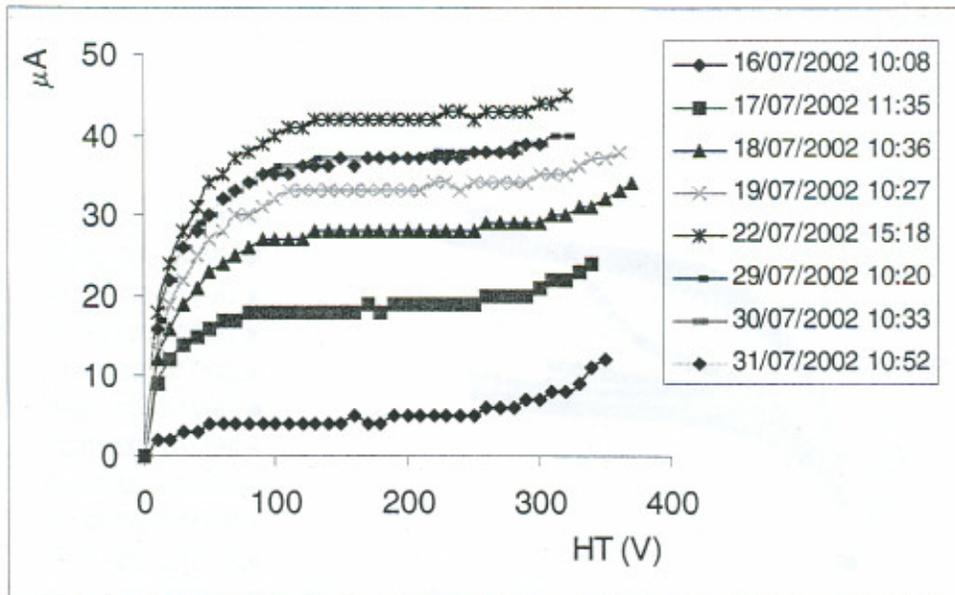


Figure 21 : Caractéristiques (courant, tension) du  $^{237}\text{Np}$  de la CFDC1 dans la position 75 cm du V4

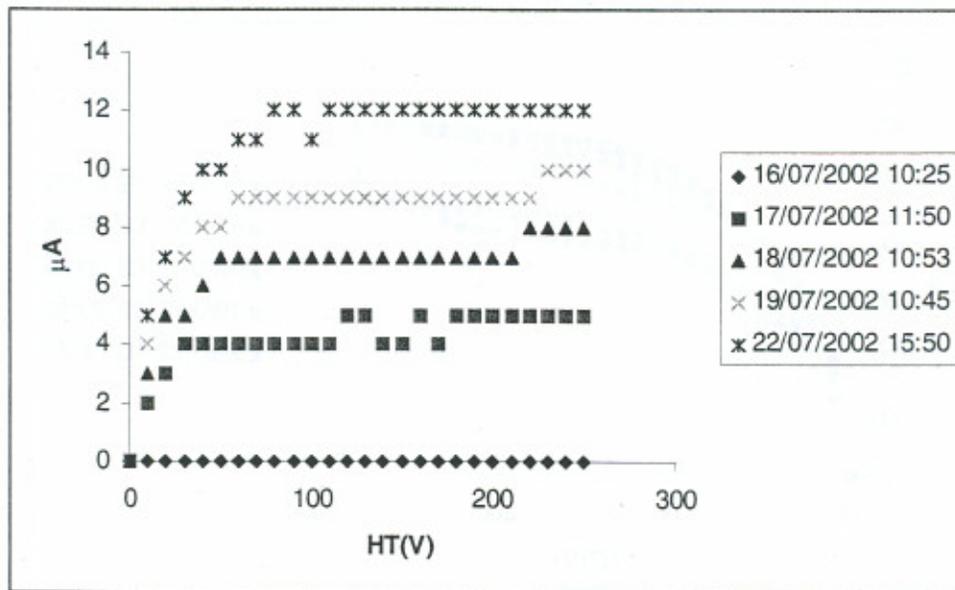


Figure 22 : Caractéristiques (courant, tension) du  $^{237}\text{Np}$  de la CFDC1 dans la position 100 cm du V4

## Uranium 235 :

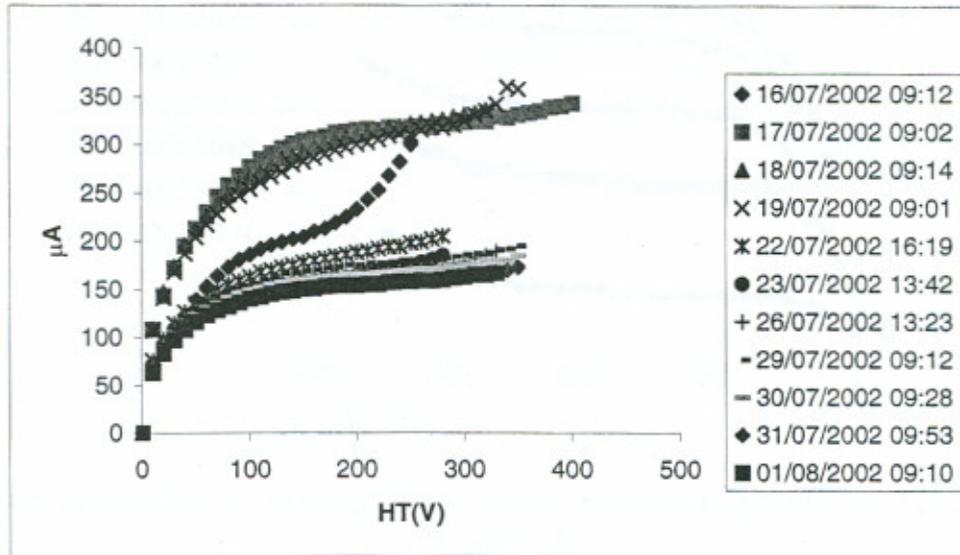


Figure 23 : Caractéristiques (courant, tension) de  $^{235}\text{U}$  de la CFDC1 dans la position 0 cm du V4

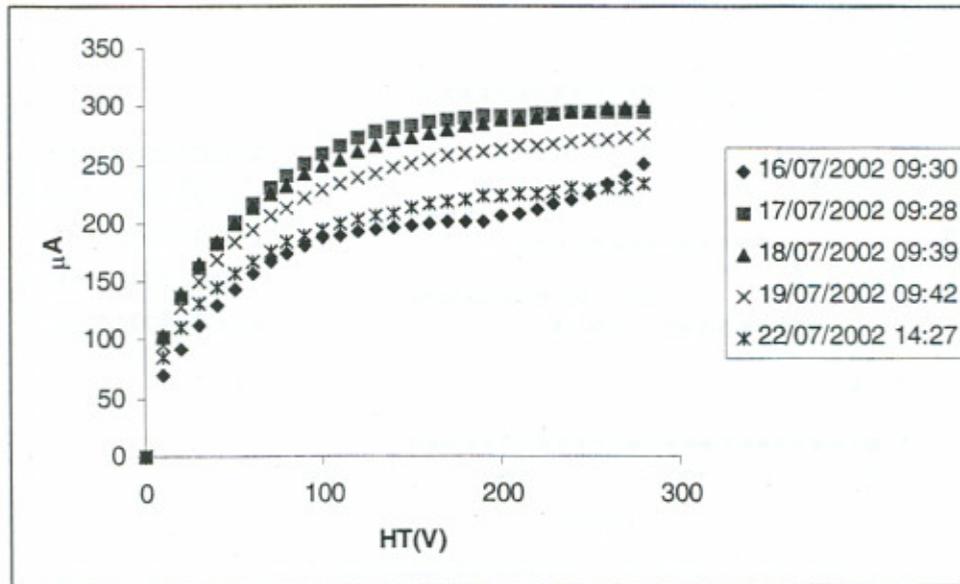


Figure 24 : Caractéristiques (courant, tension) de  $^{235}\text{U}$  de la CFDC1 dans la position 25 cm du V4

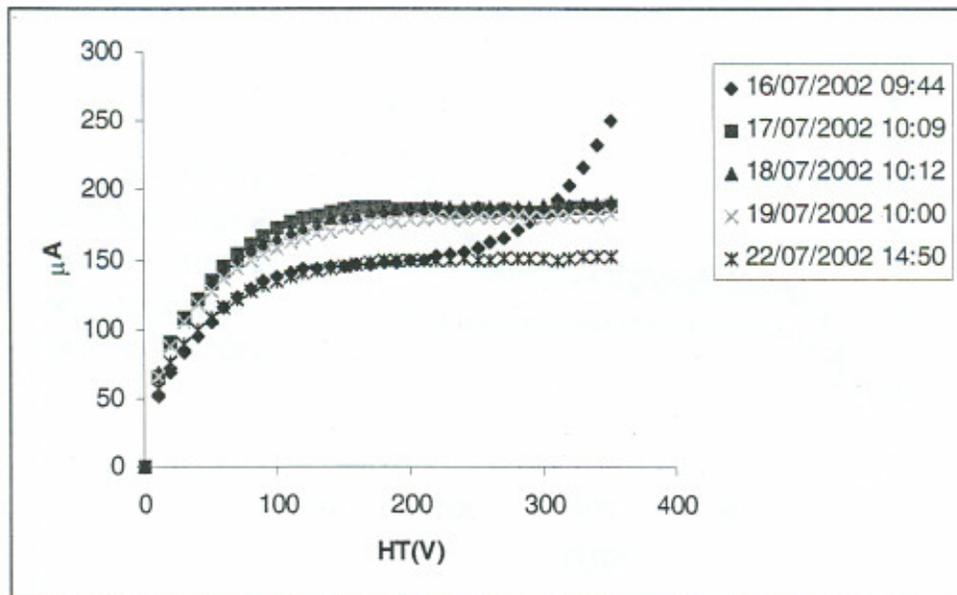


Figure 25 : Caractéristiques (courant, tension) de  $^{235}\text{U}$  de la CFDC1 dans la position 50 cm du V4

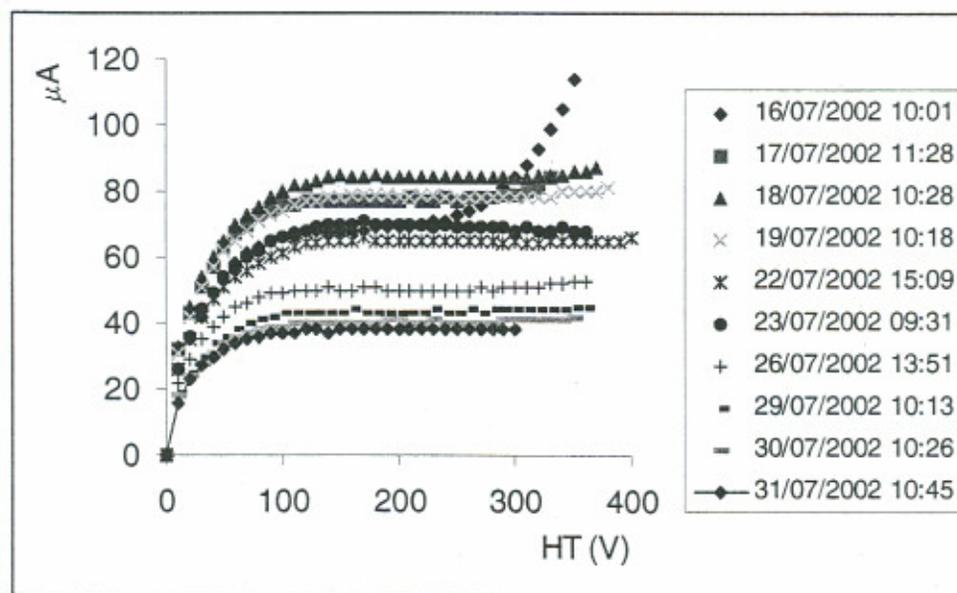


Figure 26 : Caractéristiques (courant, tension) de  $^{235}\text{U}$  de la CFDC1 dans la position 75 cm du V4

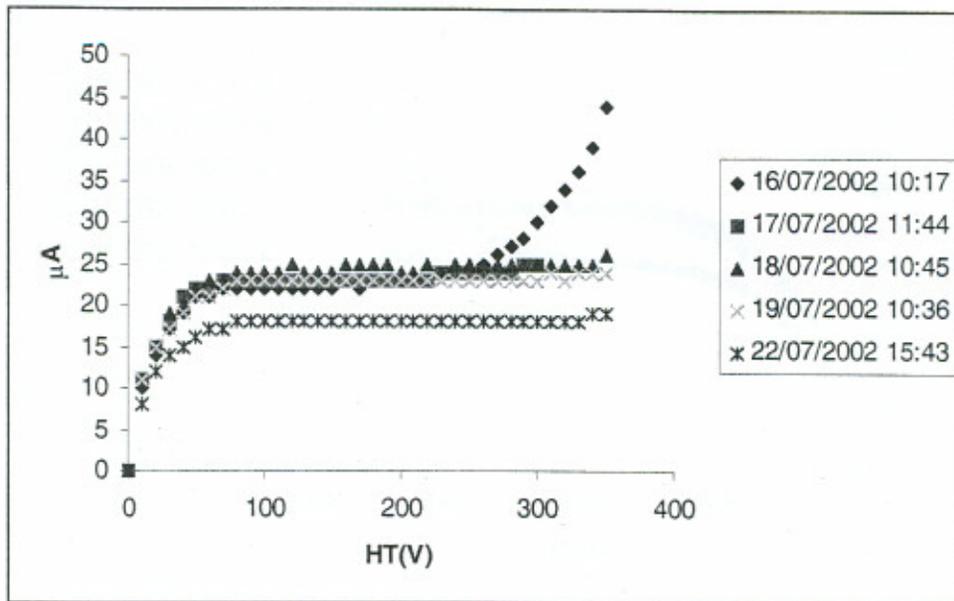


Figure 27 : Caractéristiques (courant, tension) de  $^{235}\text{U}$  de la CFDC1 dans la position 100 cm du V4

Tableau 26 : Courants de saturation ou d'inflexion de la CFDC1

0 cm					
date	<sup>237</sup> Np		date	<sup>235</sup> U	
16/07/2002 09:12	23	PI (V = 150)	16/07/2002 09:12	150	PI (V = 145)
17/07/2002 09:13	94	PI (V = 149)	17/07/2002 09:02	315	PI (V = 160)
18/07/2002 09:22	129	PI (V = 155)	18/07/2002 09:14	313	PI (V = 150)
19/07/2002 09:09	154	PI (V = 145)	19/07/2002 09:01	300	PI (V = 155)
22/07/2002 14:05	199	PI (V = 160)	22/07/2002 16:19	178	PI (V = 155)
23/07/2002 13:49	131	PI (V = 150)	23/07/2002 13:42	154	PI (V = 153)
26/07/2002 13:30	91	PI (V = 155)	26/07/2002 13:23	162	PI (V = 170)
28/07/2002 13:14	150	PI (V = 170)	29/07/2002 09:12	175	PI (V = 155)
29/07/2002 09:19	162	PI (V = 153)	30/07/2002 09:28	166	PI (V = 156)
30/07/2002 09:35	161	PI (V = 148)	31/07/2002 09:53	155	PI (V = 140)
31/07/2002 10:00	160	PI (V = 147)	01/08/2002 09:10	155	PI (V = 155)
01/08/2002 09:16	170	PI (V = 153)			
25 cm					
16/07/2002 09:36	23	PI (V = 160)	16/07/2002 09:30	197	PI (V = 180)
17/07/2002 09:36	82	PI (V = 155)	17/07/2002 09:28	288	PI (V = 175)
18/07/2002 09:46	114	PI (V = 135)	18/07/2002 09:39	274	PI (V = 175)
19/07/2002 09:50	128	PI (V = 170)	19/07/2002 09:42	260	PI (V = 170)
22/07/2002 14:35	160	PI (V = 160)	22/07/2002 14:27	223	PI (V = 180)
50cm					
16/07/2002 09:52	14	PS	16/07/2002 09:44	148	PS
17/07/2002 10:18	46	PS	17/07/2002 10:09	187	PS
18/07/2002 10:19	65	PS	18/07/2002 10:12	187	PS
19/07/2002 10:08	79	PS	19/07/2002 10:00	180	PS
22/07/2002 14:59	101	PS	22/07/2002 14:50	150	PS
75cm					
16/07/2002 10:08	4	PS	16/07/2002 10:01	69	PS
17/07/2002 11:35	18	PS	17/07/2002 11:28	78	PS
18/07/2002 10:36	28	PS	18/07/2002 10:28	84	PS
19/07/2002 10:27	33	PS	19/07/2002 10:18	78	PS
22/07/2002 15:18	42	PS	22/07/2002 15:09	65	PS
29/07/2002 10:20	37	PS	23/07/2002 09:31	70	PS
30/07/2002 10:33	37	PS	26/07/2002 13:51	50	PS
31/07/2002 10:52	36	PS	29/07/2002 10:13	43	PS
			30/07/2002 10:26	40	PS
			31/07/2002 10:45	38	PS
100 cm					
16/07/2002 10:25	0	PS	16/07/2002 10:17	22	PS
17/07/2002 11:50	4	PS	17/07/2002 11:44	23	PS
18/07/2002 10:53	7	PS	18/07/2002 10:45	24	PS
19/07/2002 10:45	9	PS	19/07/2002 10:36	23	PS
22/07/2002 15:50	12	PS	22/07/2002 15:43	18	PS

## CFDC2 ( $^{235}\text{U}$ , $^{241}\text{Am}$ )

Cette chambre a montré un long disfonctionnement dans la position basse du V4. Peu de mesures ont été effectuées dans cette position. Dans les positions hautes où règne des flux de neutrons moins élevés la chambre a normalement fonctionné.

*Il faut noter que lorsqu'on relevait les caractéristiques d'une chambre de la CFDC2, on appliquait sur la chambre adjacente une haute tension constante. La valeur exacte de cette dernière n'a pas été archivée. Néanmoins elle était toujours dans un intervalle de [100 V, 200 V].*

**Nota :** Le sigle API signifie « Absence de point d'inflexion ».

### Américium 241 :

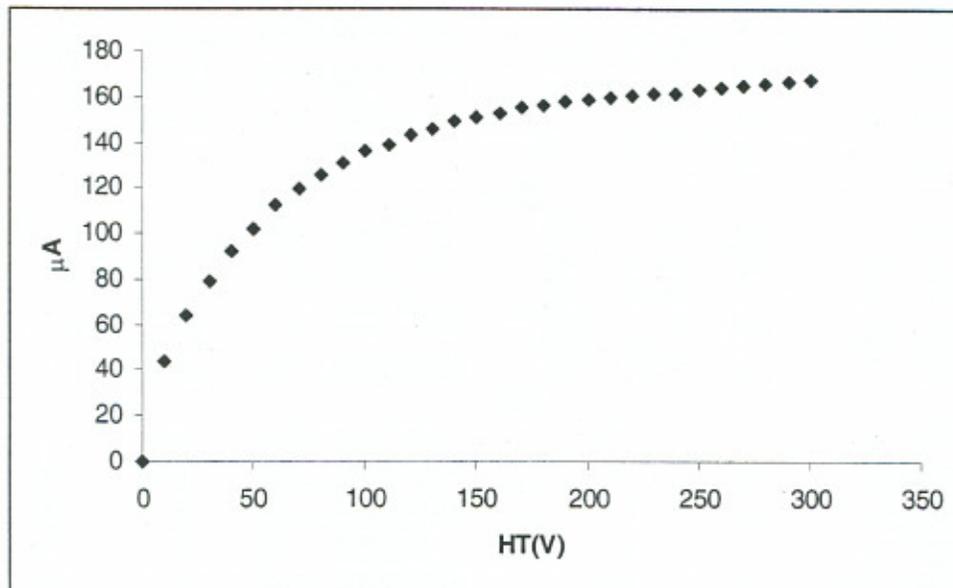


Figure 28 : Caractéristiques (courant, tension) de l' $^{241}\text{Am}$  de la CFDC2 dans la position 0 cm du V4

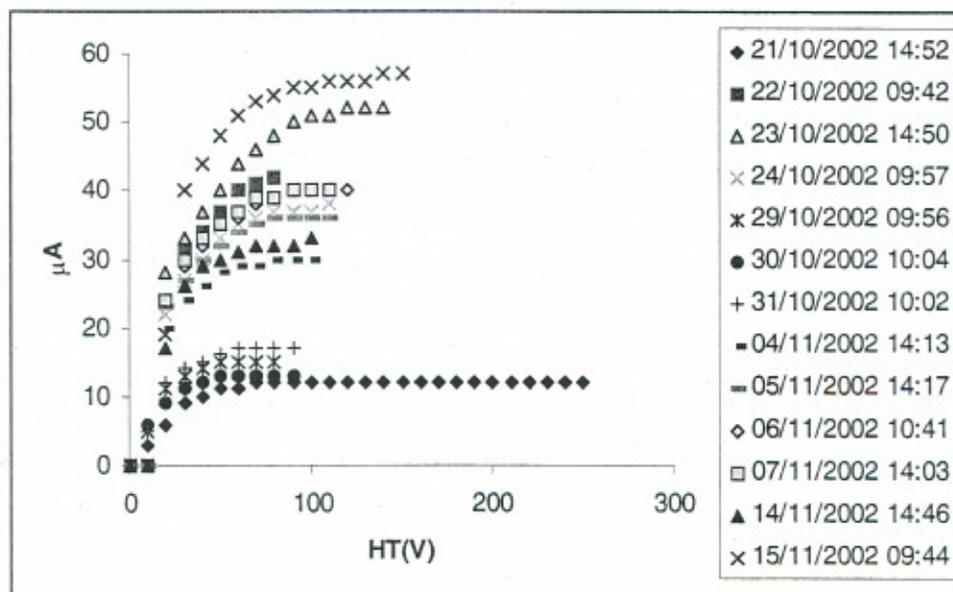


Figure 29 : Caractéristiques (courant, tension) de l' $^{241}\text{Am}$  de la CFDC2 dans la position 75 cm du V4

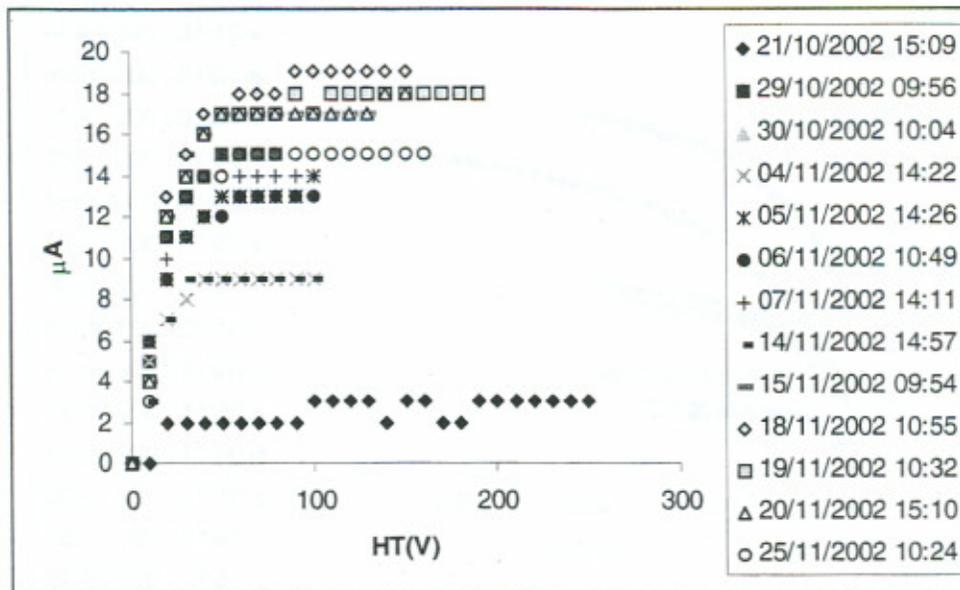


Figure 30 : Caractéristiques (courant, tension) de l' $^{241}\text{Am}$  de la CFDC2 dans la position 100 cm du V4

### Uranium 235 :

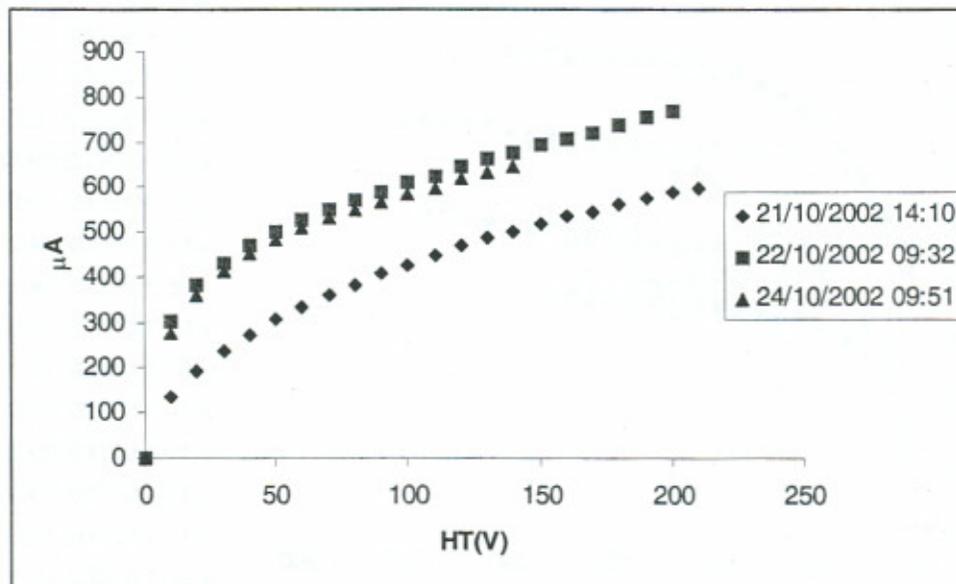


Figure 31 : Caractéristiques (courant, tension) de l' $^{235}\text{U}$  de la CFDC2 dans la position 0 cm du V4

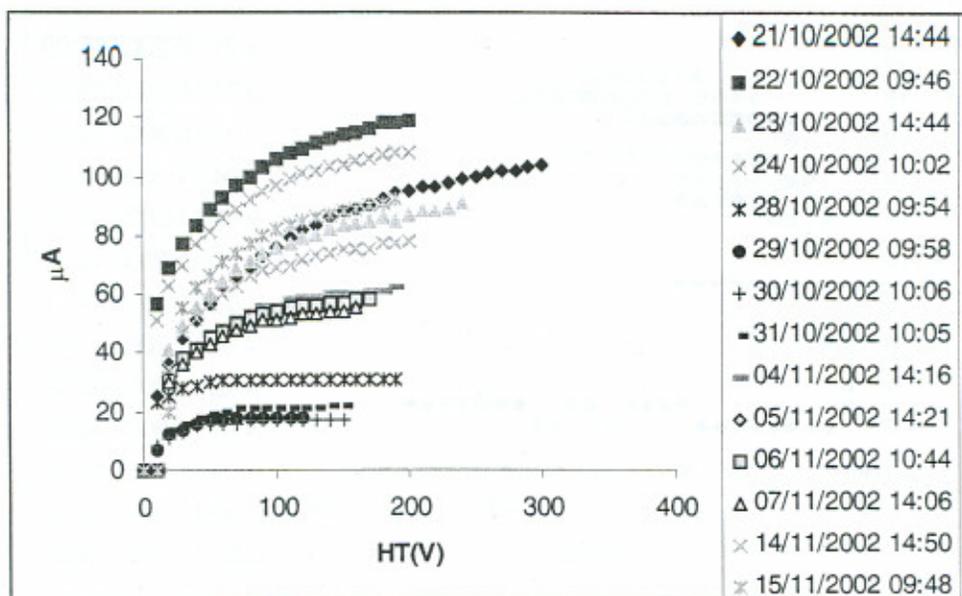


Figure 32 : Caractéristiques (courant, tension) de l' $^{235}\text{U}$  de la CFDC2 dans la position 75 cm du V4

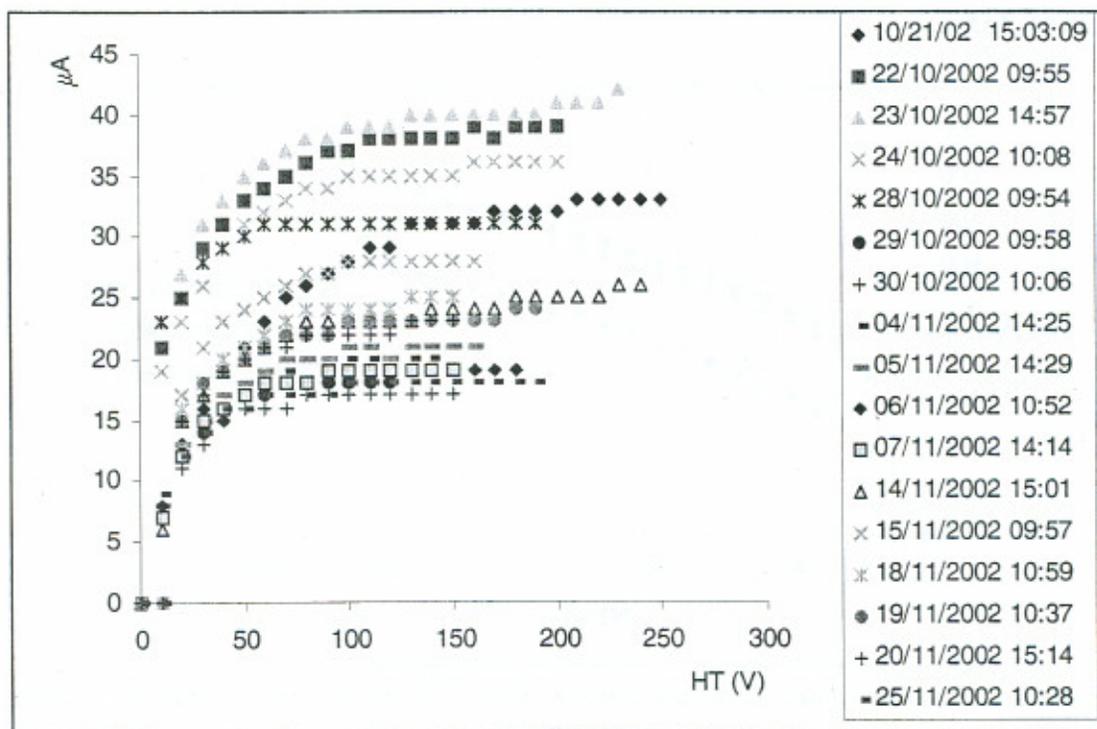


Figure 33 : Caractéristiques (courant, tension) de l' $^{235}\text{U}$  de la CFDC2 dans la position 100 cm du V4

Tableau 27 : Courants de saturation ou d'inflexion de la CFDC2

0 cm					
date	241Am		date	235U	
21/10/2002 14:14	155	PI (V = 200)	21/10/2002 14:10	-	API
			22/10/2002 09:32	-	API
			24/10/2002 09:51	-	API
75 cm					
21/10/2002 14:52	12	PS	21/10/2002 14:44	90	PI (V = 100)
23/10/2002 14:50	52	PS	22/10/2002 09:46	109	PI (V = 110)
24/10/2002 09:57	37	PS	23/10/2002 14:44	77	PI (V = 115)
29/10/2002 09:56	15	PS	24/10/2002 10:02	101	PI (V = 120)
30/10/2002 10:04	13	PS	28/10/2002 09:54	31	PS
31/10/2002 10:02	17	PS	29/10/2002 09:58	18	PS
04/11/2002 14:13	30	PS	30/10/2002 10:06	17	PS
05/11/2002 14:17	36	PS	31/10/2002 10:05	21	PS
06/11/2002 10:41	40	PS	04/11/2002 14:16	60	PS
07/11/2002 14:03	40	PS	05/11/2002 14:21	54	PS
14/11/2002 14:46	32	PS	06/11/2002 10:44	56	PI (V = 120)
15/11/2002 09:44	56	PS	07/11/2002 14:06	53	PI (V = 115)
			14/11/2002 14:50	72	PI (V = 114)
			15/11/2002 09:48	85	PI (V = 115)
100 cm					
21/10/2002 15:09	3	PS	21/10/2002 15:03	32	PS
29/10/2002 09:56	15	PS	22/10/2002 09:55	38	PS
30/10/2002 10:04	13	PS	23/10/2002 14:57	40	PS
04/11/2002 14:22	9	PS	24/10/2002 10:08	35	PS
05/11/2002 14:26	13	PS	28/10/2002 09:54	31	PS
06/11/2002 10:49	13	PS	29/10/2002 09:58	18	PS
07/11/2002 14:11	14	PS	30/10/2002 10:06	17	PS
14/11/2002 14:57	9	PS	04/11/2002 14:25	21	PS
15/11/2002 09:54	17	PS	05/11/2002 14:29	20	PS
18/11/2002 10:55	19	PS	06/11/2002 10:52	21	PS
19/11/2002 10:32	18	PS	07/11/2002 14:14	19	PS
20/11/2002 15:10	17	PS	14/11/2002 15:01	19	PS
25/11/2002 10:24	15	PS	15/11/2002 09:57	24	PS
			18/11/2002 10:59	28	PS
			19/11/2002 10:37	24	PS
			20/11/2002 15:14	23	PS
			25/11/2002 10:28	22	PS

## CFDC2 ( $^{235}\text{U}$ , $^{239}\text{Pu}$ )

Comme pour la CFDC2, lorsqu'on relevait les caractéristiques d'une chambre de la CFDC, on appliquait sur la chambre adjacente une haute tension constante. La valeur exacte de cette dernière n'a pas été archivée. Néanmoins elle était toujours dans un intervalle de [100 V, 200 V].

### Plutonium 239 :

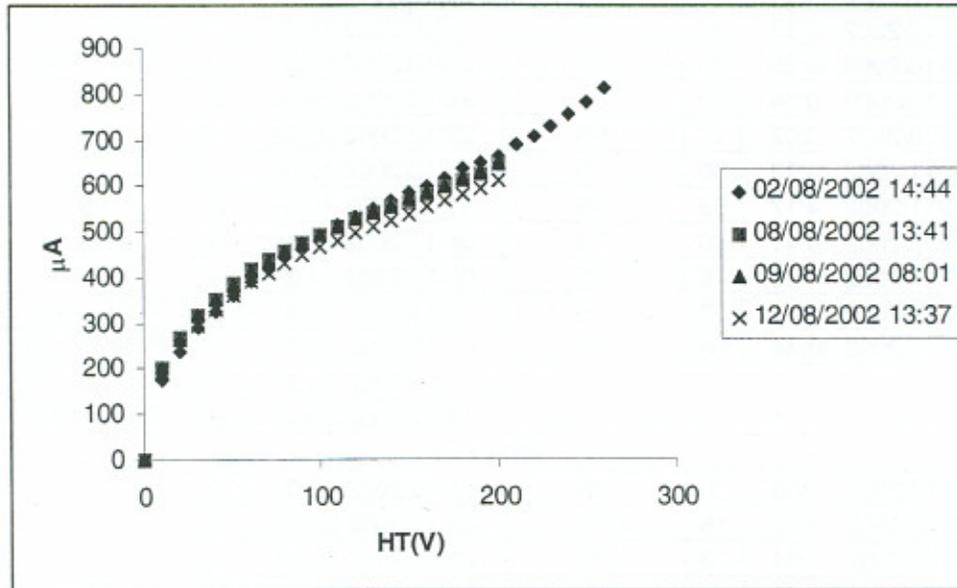


Figure 34 : Caractéristiques (courant, tension) du  $^{239}\text{Pu}$  de la CFDC3 dans la position 0 cm du V4

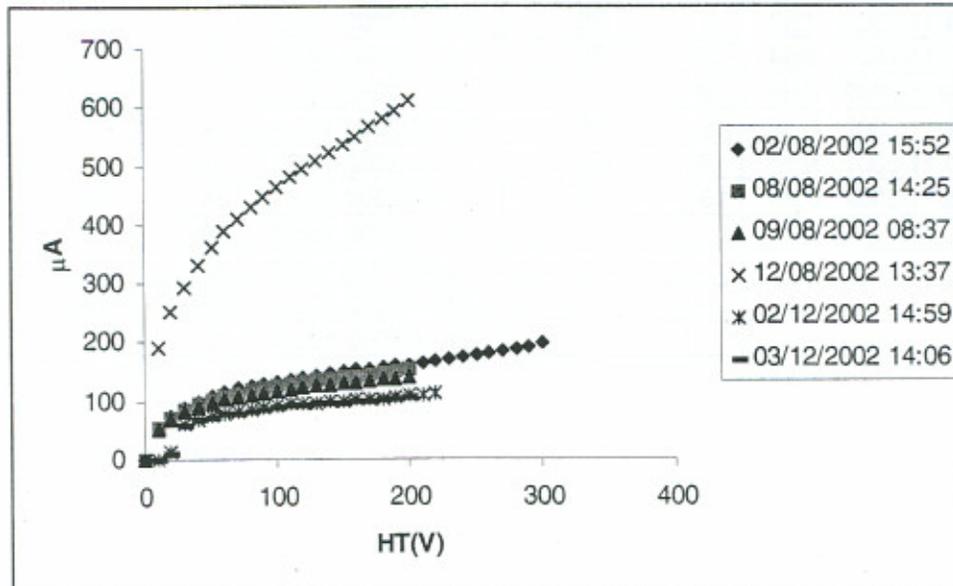


Figure 35 : Caractéristiques (courant, tension) du  $^{239}\text{Pu}$  de la CFDC3 dans la position 75 cm du V4

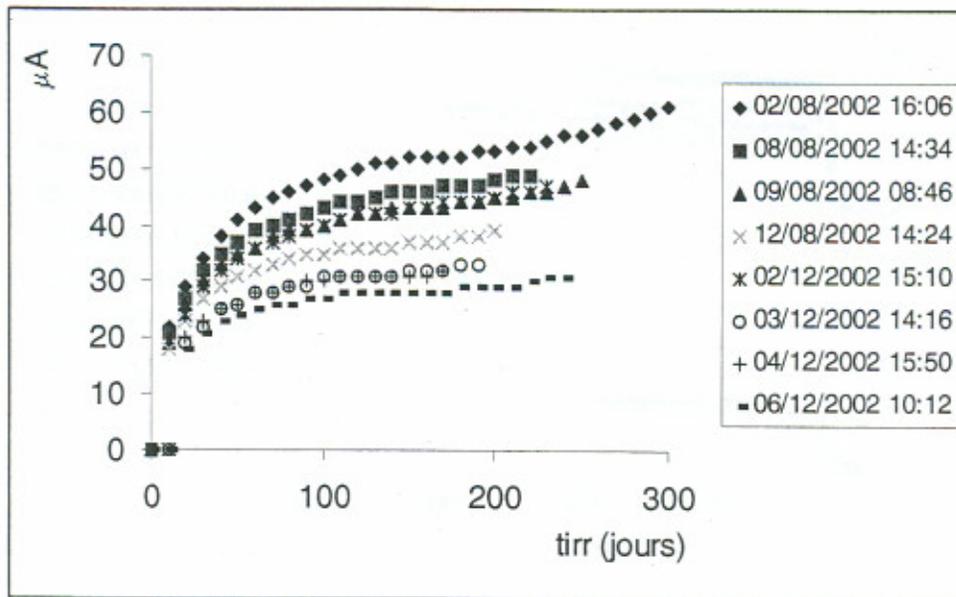


Figure 36 : Caractéristiques (courant, tension) du  $^{239}\text{Pu}$  de la CFDC3 dans la position 100 cm du V4

### Uranium 235 :

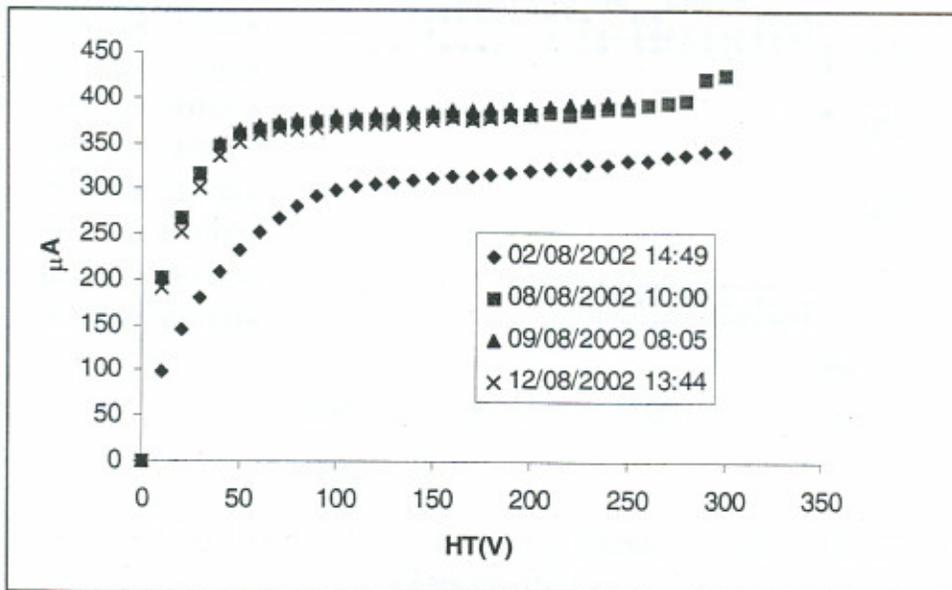


Figure 37 : Caractéristiques (courant, tension) de l' $^{235}\text{U}$  de la CFDC3 dans la position 0 cm du V4

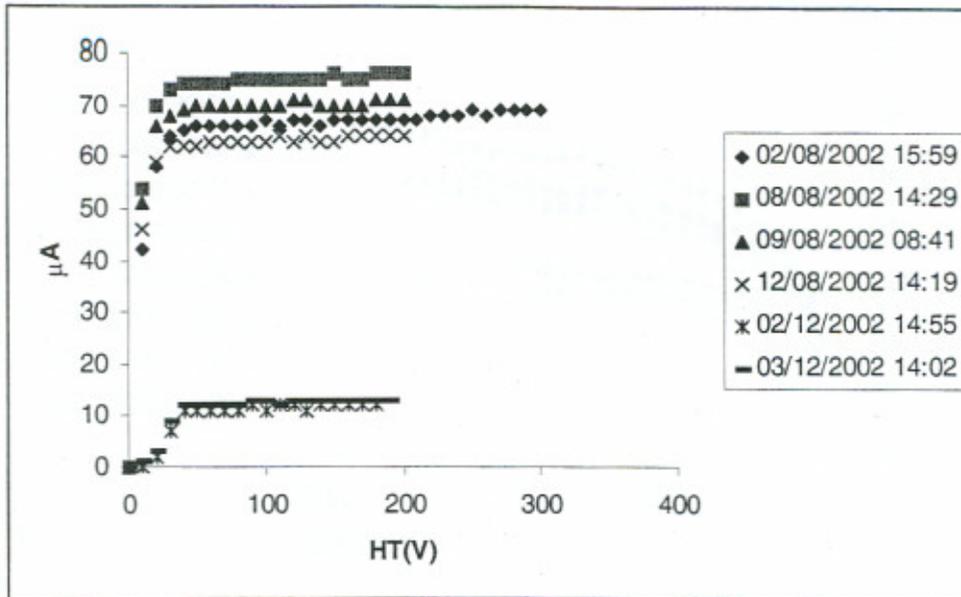


Figure 38 : Caractéristiques (courant, tension) de l' $^{235}\text{U}$  de la CFDC3 dans la position 75 cm du V4

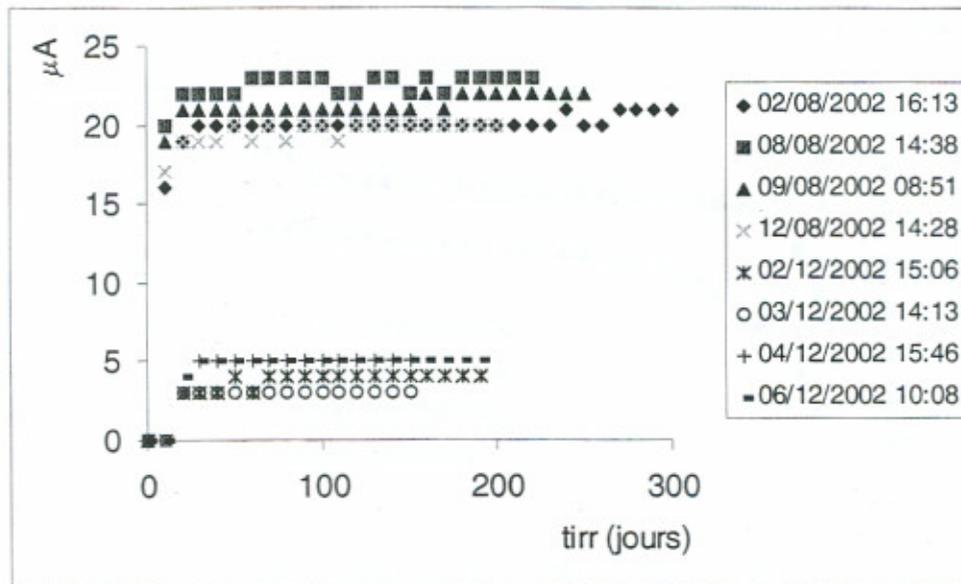


Figure 39 : Caractéristiques (courant, tension) de l' $^{235}\text{U}$  de la CFDC3 dans la position 100 cm du V4

Tableau 28 : Courants de saturation ou d'inflexion de la CFDC3

0 cm					
date		239Pu	date		235U
02/08/2002 14:44	566	PI (V = 200)	02/08/2002 14:49	314	PI (V = 180)
08/08/2002 13:41	555	PI (V = 180)	08/08/2002 10:00	377	PI (V = 180)
09/08/2002 08:01	560	PI (V = 185)	09/08/2002 08:05	377	PI (V = 185)
12/08/2002 13:37	523	PI (V = 190)	12/08/2002 13:44	377	PI (V = 195)
75 cm					
02/08/2002 15:52	150	PI (V = 170)	02/08/2002 15:59	67	PS
08/08/2002 14:25	140	PI (V = 175)	08/08/2002 14:29	75	PS
09/08/2002 08:37	120	PI (V = 165)	09/08/2002 08:41	70	PS
02/12/2002 14:59	94	PI (V = 165)	12/08/2002 14:19	63	PS
03/12/2002 14:06	92	PI (V = 170)	02/12/2002 14:55	12	PS
			03/12/2002 14:02	13	PS
100 cm					
02/08/2002 16:06	54	PI (V = 180)	02/08/2002 16:13	20	PS
08/08/2002 14:34	45	PI (V = 183)	08/08/2002 14:38	23	PS
09/08/2002 08:46	43	PI (V = 175)	09/08/2002 08:51	21	PS
12/08/2002 14:24	36	PI (V = 168)	12/08/2002 14:28	20	PS
02/12/2002 15:10	44	PI (V = 175)	02/12/2002 15:06	4	PS
03/12/2002 14:16	30	PI (V = 170)	03/12/2002 14:13	3	PS
04/12/2002 15:50	30	PI (V = 174)	04/12/2002 15:46	5	PS
06/12/2002 10:12	28	PI (V = 165)	06/12/2002 10:08	5	PS

### CFDC4 ( $^{235}\text{U}$ , sans dépôt) :

Comme pour la CFDC2, lorsqu'on relevait les caractéristiques d'une chambre de la CFDC, on appliquait sur la chambre adjacente une haute tension constante. La valeur exacte de cette dernière n'a pas été archivée. Néanmoins elle était toujours dans un intervalle de [100 V , 200 V].

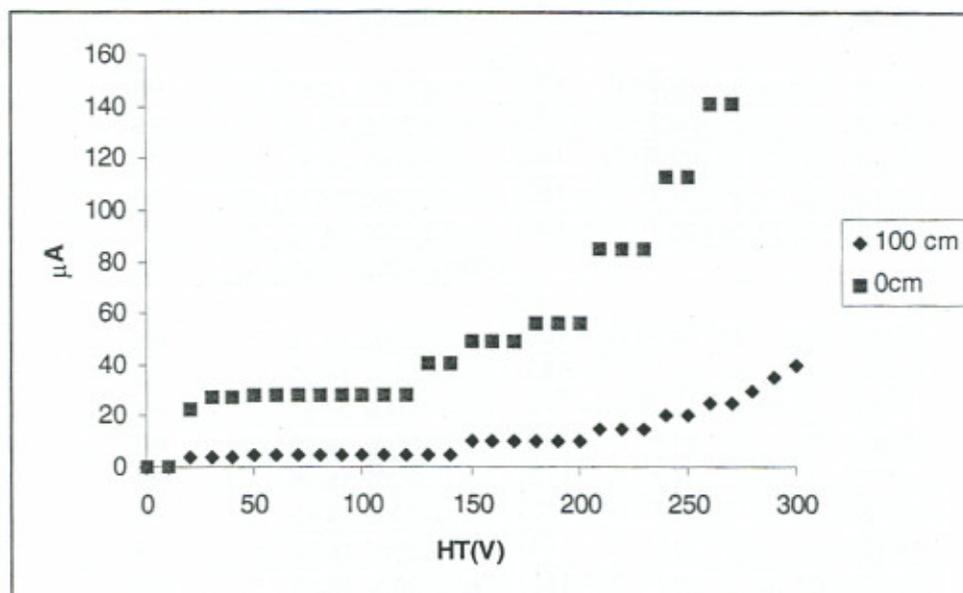


Figure 40 : Caractéristiques (courant, tension) de la chambre sans dépôt de la CFDC4

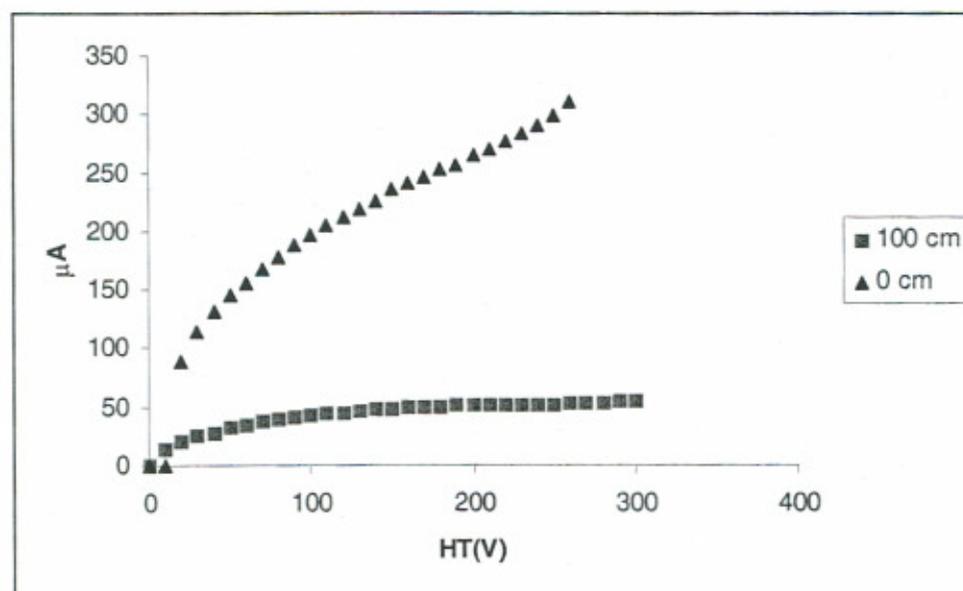


Figure 41 : Caractéristiques (courant, tension) de l' $^{235}\text{U}$  de la CFDC4

Tableau 29 : Courants de saturation ou d'inflexion de la CFDC4

0 cm					
date	sans dépôt		date	235U	
27/11/2002 14:30	49	a 150 V	27/11/2002 14:10	230	PI (V = 190)
100 cm					
27/11/2002 14:50	10	a 150 V	27/11/2002 14:45	51	PI (V = 200)



## Bibliographie

- <sup>1</sup> Ministère de l'Industrie : « énergie, la voie française ». La Documentation française, Paris (1980)
- <sup>2</sup> Commissariat à l'Energie Atomique – Direction de la Stratégie et de l'Evaluation : brochure CEA « Informations utiles ». Imprimerie France Quercy, Cahors (2000)
- <sup>3</sup> J-M. Charpin, B. Dessus et R. Pellat : « Etude économique prospective de la filière électrique nucléaire », Rapport au Premier Ministre. La Documentation française, Paris (2000)
- <sup>4</sup> B. Dessus et M. Colombier : « Energie 2010-2020 - Rapport final de l'Atelier 'Les défis du long terme' ». Commissariat General du Plan (1997)
- <sup>5</sup> J. Lefèvre : « Les déchets nucléaires » - Collection du Commissariat à l'Énergie Atomique. Eyrolles, Paris (1986)
- <sup>6</sup> Société Française de Physique : « Les déchets nucléaires : un dossier scientifique ». Les éditions de physique, Les Ulis (1997)
- <sup>7</sup> C. Bataille : « L'évolution de la recherche sur la gestion des déchets nucléaires à haute activité », Tome I. Automédon (pour l'Assemblée Nationale), Paris (1996)
- <sup>8</sup> G. Chaliand & M. Jan : «Atlas du nucléaire : Civil et militaire». Editions Payot & Rivages, Paris (1993)
- <sup>9</sup> D.C. Hoffman : «The transuranium elements from Neptunium and Plutonium to element 112» Proceedings of the Nato Advanced Study Institute on Actinides and the Environment, Maleme, Crete, Greece July 7-19, 1997. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, Boston, London (1998)
- <sup>10</sup> M. Beauvy : «Solid state chemistry and thermophysical properties of the actinides» Proceedings of the Nato Advanced Study Institute on Actinides and the Environment, Maleme, Crete, Greece July 7-19, 1997. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, Boston, London (1998)
- <sup>11</sup> G. Fioni et al. : « Incineration of  $^{241}\text{Am}$  induced by thermal neutrons ». Nuclear physics A 693 (2001) 546-564
- <sup>12</sup> JEF-2.2 « The evaluated neutron nuclear data library of the NEA Data Bank » IAEA-Vienna, IAEA-NDS-120, Rev. 3 (1996)
- <sup>13</sup> ENDF/B-VI « The US evaluated neutron nuclear data library for neutron reactions » IAEA-Vienna, IAEA-NDS-100, Rev. 6 (1995)
- <sup>14</sup> JENDL-3.2 « The Japanese Evaluated Nuclear Data Library » IAEA-Vienna, IAEA-NDS-110, Rev. 5 (1994)
- <sup>15</sup> General Atomics : «Gas Turbine\_Modular Helium reactor (GT\_MHR) Conceptual Design Description Report». Internal report 910720, GA Project no. 7658, July 1996, San Diego, USA
- <sup>16</sup> Maurice Gauthron : « Introduction au génie nucléaire », Tome 2. Commissariat à l'Energie Atomique, Saclay (1986).
- <sup>17</sup> D. Ridikas et al. : « Comparative Analysis of the ENDF, JEF and JENDL Data Libraries by Modelling High Temperature Reactors (GT-MHR) and Plutonium Based Fuel Cycles », oral presentation, Proc. The Int. Conference on Accelerator Applications/Accelerator Driven Transmutation Technology and Applications (AccApp/ADTTA'01) (ND2001), November 12-15, 2001, Reno, Nevada, USA
- <sup>18</sup> D. Ridikas et al. : « Comparative Analysis of the ENDF, JEF and JENDL Data Libraries by Modelling High Temperature Reactors (GT-MHR) and Plutonium Based Fuel Cycles », oral presentation, Proc. The Int. Conference on Nuclear Data for Science and Technology (ND2001), October 7-12, 2001, Tsukuba, Ibaraki, Japan ; in print by *Nucl. Science and Technology*

- <sup>19</sup> D. Ridikas et al. : « Comparative Analysis of the ENDF, JEF and JENDL Data Libraries by Modelling High Temperature Reactors (GT-MHR) and Plutonium Based Fuel Cycles », oral presentation, Proc. The Int. Conference on Nuclear Data for Science and Technology (ND2001), October 7-12, 2001, Tsukuba, Ibaraki, Japan ; in print by *Nucl. Science and Technology*
- <sup>20</sup> F. DAMIAN : « Analyse des capacités des réacteurs à haute température (HTR) sous l'aspect de l'utilisation des matières fissiles » Thèse Institut National Polytechnique de Grenoble, Février 2001
- <sup>21</sup> J.Briesmeiter for Group X-6 « MCNP-A, A General Monte Carlo N-Particle Transport Code » Version 4A, Los Alamos National Laboratory, preprint LA-12625-M (1993)
- <sup>22</sup> RSIC Computer Code Collection : « ORIGEN 2.1 – Isotope Generation and Depletion Code Matrix Exponential Method » Radiation Shielding Information Center, report CCC-371 (1991)
- <sup>23</sup> H.R. Trellue and D.I. Poston : « User's manual, Version 2.0 for MonteBurns, Version 1.0 » Los Alamos National Laboratory, preprint LA-UR-99-361 (1999)
- <sup>24</sup> 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
- <sup>25</sup> G. F. Knoll : «Radiation Detection and Measurement». John Wiley & Sons, New York (1989)
- <sup>26</sup> 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». Thèse de l'université de Paris XI soutenue le 9 septembre 2002
- <sup>27</sup> M. Guery et al. : «Chambres à fission miniatures pour les mesures des taux de fission dans les réacteurs de recherche». Revue de Physique Appliquée, Tome 6, juin 1971.
- <sup>28</sup> M. Fadil et al. : «Development of Fission Micro-Chambers for Nuclear Waste Incineration Studies», Proc. Of the int. Conf. On Neutron Field Spectrometry in Science, Technology and Radiation Protection, Pisa, June 2000, Nucl. Inst. Meth. A
- <sup>29</sup> J.F. Ziegler & J.P. Beirsak : « SRIM, The Stopping and Range of Ions in Matter ». U.S. Naval Academy (Annapolis) & Hahn-Meitner Institute (Berlin)
- <sup>30</sup> B.B. Rossi & H.H. Staub : «Ionization Chambers and counters», Experimental Techniques. McGraw-Hill Book Company, Inc, New York (1949)
- <sup>31</sup> J.L.MEEM : «Two group reactor theory». Gordon & Breach, Science Publishers, Ltd, London (1964)
- <sup>32</sup> T.R. England, «CINDER – A One-Point Depletion and Fission Product Program». Bettis Atomic Power Laboratory report WAPD-TM-334 (1964)
- <sup>33</sup> J.F. Briesmeister, «MCNP – A General Monte Carlo N-Particle Code», Technical Report LA-12625-M, LANL (1997)
- <sup>34</sup> O. Poujade, A. Lebrun : «Modeling of the saturation current of a fission chamber taking into account the distortion of electric field due to space charge effects». Nuclear Instrument and Methods in Physics Research A 433 (1999) 673-682
- <sup>35</sup> Ch. Blandin & al : «Development of new sub-miniature fission chambers : modelling and experimental tests» SMORN8, Godberg (2002)
- <sup>36</sup> L. Vermeeren & al : «In-pile sub-miniature fission chambers testing in BR2». ISRD11, Brussels (2002)
- <sup>37</sup> Dwight E. Gray, American Institute of Physics Handbook. Second Edition. New York (1963)
- <sup>38</sup> Michel Bayet : « Physique nucléaire ».Edition Masson et Cie, Paris (1960)
- <sup>39</sup> H. Mayer-Leibnitz & B. Jacrot : « But de l'Institut Max von Laue – Paul Langevin. Organisation et structures scientifiques ». Rapport ILL, (Grenoble 1971).
- <sup>40</sup> «Rapport de Sécurité du Réacteur à Haut Flux », Vols. 1 à 4, Institut Max Von Laue – Paul Langevin (Grenoble, 1971).

---

<sup>41</sup> M. Coste et al. : « APOLLO-2. Notice théorique ». Rapport DMT/93-581  
SERMA/LENR/1535. CEA/Saclay (1994)

<sup>42</sup> Stéphane Rauck : « Modélisation des phénomènes physiques dans les réacteurs de recherche à l'aide de développement réalisés dans les méthodes de transport et de qualification », thèse préparée au CEA/Saclay, soutenue en octobre 2000.

<sup>43</sup> J.L.MEEM : "Two group reactor theory". Gordon & Breach, Science Publishers, Ltd,  
London (1964)

<sup>44</sup> 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". Thèse de l'université de Paris XI soutenue le 9 septembre 2002

<sup>45</sup> J.H. Baard : « Nuclear Data Guide for Reactor Neutron Metrology ». Netherlands Energy  
Research Foundation ECN, Petten, The Netherlands (1989).



## **Résumé en français :**

Ce travail s'inscrit dans le cadre de la gestion des déchets nucléaires dans la perspective de transmutation de ces déchets pour réduire leur potentiel radiotoxique.

L'objectif principal de cette thèse était de montrer la faisabilité de mesurer, en ligne, le potentiel d'incinération d'actinides mineurs dans un flux intense de neutrons.

Pour pouvoir réaliser cet objectif, nous avons développé des micro-chambres à fission de telle façon qu'elles puissent fonctionner, pour la première fois, en régime de saturation dans des conditions neutroniques très sévères. Les chambres développées et réalisées avaient comme dépôt actif  $^{235}\text{U}$ . Elles ont été irradiées dans le cœur du réacteur à haut flux de l'Institut Laue-Langevin à Grenoble où il règne un flux de neutrons très élevé. La mesure du courant de saturation délivré par les chambres pendant leurs irradiations (~26 jours d'irradiation) a permis d'évaluer leurs usures. Nous avons ainsi évalué un flux de  $1,6 \cdot 10^{15} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$  au plan médian du cœur avec une incertitude relative inférieure à 4 %. C'est la première fois dans le monde qu'on arrive à mesurer un flux aussi élevé avec une chambre à fission. Cette valeur de flux a été confirmée par des mesures indépendantes que nous avons effectuées avec des moniteurs de flux,  $^{59}\text{Co}$  et  $^{93}\text{Nb}$ , en utilisant la spectroscopie gamma sur ces échantillons irradiés.

Les chambres à fission à simple corps (CFSC) réalisées étaient la référence pour développer une nouvelle génération de détecteurs dits « Chambres à Fission à Double Corps » (CFDC) dédiés aux études d'incinération d'actinides mineurs.

## **Mots clés :**

Déchets nucléaires, actinides mineurs, transmutation, potentiel d'incinération, micro-chambres à fission, chambres à fission à double corps, flux neutronique très élevé, réacteur à haut flux.

**Title:** Set up of an innovative methodology to measure on-line the incineration potential of minor actinides under very high neutron sources in the frame of the future prospects of the nuclear waste transmutation

## **Summary:**

This work deals generally with the problem of nuclear waste management and especially with the transmutation of it to reduce considerably its radiotoxicity potential.

The principal objective of this thesis is to show the feasibility to measure on-line the incineration potential of minor actinides irradiated under very high neutron flux.

To realize this goal, we have developed fission micro-chambers able to operate, for the first time in the world, in saturation regime under a severe neutron flux. These new chambers use  $^{235}\text{U}$  as an active deposit. They were irradiated in the high flux reactor at Laue-Langevin Institute in Grenoble. The measurement of the saturation current delivered by these chambers during their irradiation for 26 days allowed to evaluate the burn-up of  $^{235}\text{U}$ . We have determined the neutron flux intensity of  $1,6 \cdot 10^{15} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$  in the bottom of the irradiation tube called "V4". The relative uncertainty of this value is less than 4 %. This is for the first time that such high neutron flux is measured with a fission chamber. To confirm this result, we have also performed independent measurements using gamma spectroscopy of irradiated Nb and Co samples. Both results are in agreement within error bars.

Simple Deposit Fission Chambers (SDFC) as above were the reference of the new generation of fission chambers that we have developed in the framework of this thesis : Double Deposit Fission Chambers (DDFC). The reference active deposit was  $^{235}\text{U}$ . The other deposit was the actinide that we wanted to study (e.g.  $^{237}\text{Np}$  and  $^{241}\text{Am}$ ).

At the end of the thesis, we present some suggestions to ameliorate the operation of the DDFC to be exploited in other transmutation applications in the future.