

INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE GRENOBLE

N° attribué par la bibliothèque

|_|_|_|_|_|_|_|_|_|_|_|_|_|_|_|

THESE

pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'INP Grenoble

Spécialité : « Energétique Physique »

préparée au Service de Physique Nucléaire du Commissariat à l'Energie Atomique

dans le cadre de **l'Ecole Doctorale** « Mécanique et Energétique »

présentée et soutenue publiquement

par

OLIVIER BRINGER

le 8 octobre 2007

Mesures des sections efficaces de capture et potentiels d'incinération des actinides mineurs dans les hauts flux de neutrons : Impact sur la transmutation des déchets

Directeur de Thèse : Roger Brissot

JURY

M. Marc DELPECH,	Président
M. Bernard HAAS,	Rapporteur
M. Bernard BONIN,	Rapporteur
M. Roger BRISSOT,	Directeur de Thèse
M. Alain LETOURNEAU,	Co-encadrant
M. Jacques MARTINO,	Examineur

Remerciements

Je souhaite remercier infiniment tous ceux et toutes celles qui m'ont accompagné durant ces trois années de thèse. Sans eux le succès de celle-ci n'aurait pu être concrétisé.

En premier lieu, je tiens à remercier Nicolas Alamanos, Michel Garçon et Françoise Auger pour leur accueil chaleureux au service de physique nucléaire du CEA/DAPNIA, ainsi que leur confiance et leur solide soutien durant cette période.

Ensuite, je désire remercier les membres du Jury pour avoir accepté de juger mon travail. En particulier un grand merci à Bernard Bonin et Bernard Haas pour avoir gentiment bien voulu endosser le rôle ingrat de rapporteur, Marc Delpéch et Jacques Martino pour avoir accepté de participer au jury et enfin, Christian Le Brun puis Roger Brissot pour avoir dirigé cette thèse et Alain Letourneau pour l'avoir encadré. Vos apports ont permis d'enrichir le présent document, tant sur la forme que sur le fond.

Je remercie une nouvelle fois Alain Letourneau dont je ne serais jamais capable de lister l'ensemble des qualités humaines qui en ont fait (et en font toujours) un encadrant inestimable durant toutes ces années, de même que pour Stéfano Panebianco, Emmeric Dupont et Danas Rıdıkas, précieux compagnons de travail qui m'ont assisté sur l'ensemble des projets de recherche sur lesquels j'ai eût la chance de participer. Votre esprit de générosité, ouverture et vos inestimables conseils ont été les fondations mêmes de cette thèse.

De plus, je voudrais grandement remercier les équipes du CEA/DSM/DAPNIA/SPhN (Eric Berthoumieux, Danielle Coret, Diane Dore, Walid Dridi, Emmeric Dupont, Michel Garçon, Franck Gunsing, Sylvie Leray, Eric Le Gentil, François-Xavier Girod, Alain Letourneau, David Lhuillier, Vera Macary, Frédéric Marie, Stéfano Panebianco, Sébastien Procureur, Isabelle Richard, Danas Rıdıkas, Florent Robinet, Catherine Silvestre, Gilles Tricoche), l'ILL (Paolo Mutti, Elvio Mannino, Cedric Laurent), du CEA/DEN/SPEX (Christophe Blandin, Ludovic Oriol, Stéphane Breaud), du CEA/DSM/DAPNIA/SIS (Christian Veyssière, Paul Lotrus), du CEA/DEN/DPC/SECR/LANIE (Frédéric Chartier, Hélène Isnard) du CNRS/Subatech (Muriel Fallot, Yann Foucher), de la société Photonis (Bernard Cantonnet, Jérôme Kiennemann) et de l'INPG (Isabelle Raffin).

Pareillement, je fournis un grand merci à : Sébastien Chabod, Sébastien Boyer, Emmanuel Clément, Walid Dridi, auxquels je souhaite le meilleur avenir possible, autant professionnel que personnel.

Enfin, je remercie ma famille, ma bien-aimée et mes amis qui m'ont soutenu inlassablement le long de cette tâche ardue.

« Offrir de la beauté naturelle, c'est de la générosité », Gao Xingjian, La Montagne de l'Ame.

Tables des matières

Tables des matières	1
Introduction.....	9
1. Les problématiques énergétique et climatique, l'avenir du nucléaire civil et des déchets à vie longue	15
1.1 Les grands défis de demain de l'humanité	15
1.2 Dépendance énergétique des sociétés aux combustibles fossiles	15
1.3 Le réchauffement climatique et ses conséquences	18
1.4 La solution apportée par le nucléaire à travers le vecteur hydrogène.....	19
1.5 La filière électronucléaire dans le monde	20
1.5.1 Situation actuelle du nucléaire civil.....	20
1.5.2 Les principales problématiques de la filière nucléaire	21
1.6 Les stratégies de gestion des déchets HAVL en France.....	23
1.6.1 Le cycle fermé du combustible nucléaire	23
1.6.2 Les déchets de catégorie C.....	24
1.7 La transmutation des déchets nucléaires	28
1.7.1 Les bénéfiques sur le stockage permanent	28
1.7.2 Principe	28
1.7.3 Etat de la recherche.....	28
1.8 Conclusions	30
2. Cadre général de l'étude.....	31
2.1 La problématique des données nucléaires	31
2.1.1 Les codes de calculs et les bases de données nucléaires.....	31
2.1.2 La disponibilité et la précision des données nucléaires.....	31
2.1.3 La problématique des actinides mineurs pour les systèmes du futur.....	32
2.1.4 Les données nucléaires et la transmutation des actinides mineurs.....	33
2.2 Choix des cibles et réacteurs étudiés	33
2.2.1 L'américium-241 et le neptunium-237	33
2.2.2 Les réacteurs étudiés : EFR, GT-MHR et HI-HWR	34
2.3 Les outils théoriques et numériques	36
2.3.1 Matrices de sensibilité et de covariances	36
2.3.2 Les incertitudes des données nucléaires	37
2.3.3 Code d'évolution MERCS	37
2.4 Stratégie de simulation et choix des observables.....	38
2.4.1 Stratégie de simulation et d'analyse.....	38
2.4.2 Les variables étudiées	39
2.5 Transmutation du neptunium-237.....	41
2.5.1 Evolution du flot de matière	41
2.5.2 Potentiels radiotoxiques.....	44
2.5.3 Activité α	45
2.5.4 Activité fission spontanée (FS)	47
2.6 Transmutation de l'américium-241	49
2.6.1 Etude du flot de matière.....	49
2.6.2 Potentiel radiotoxique	53
2.6.3 Activité α	55
2.6.4 Activité fission spontanée	56

2.7	Variables choisies pour l'étude sur l'impact des données nucléaires.....	57
3.	Résultats et analyse de l'étude	59
3.1	Variables étudiées	59
3.2	Impact des incertitudes sur la transmutation du ²³⁷ Np	59
3.2.1	Taux de transmutation	59
3.2.2	Taux d'incinération.....	60
3.2.3	Evolution du ²³⁸ Pu.....	61
3.2.4	Evolution du ²⁴² Cm.....	64
3.2.5	Evolution du ²⁴⁴ Cm.....	65
3.2.6	Evolution du ²⁵² Cf (GT-MHR uniquement).....	66
3.3	Impact des incertitudes sur la transmutation de l' ²⁴¹ Am.....	67
3.3.1	Taux de transmutation	67
3.3.2	Taux d'incinération.....	68
3.3.3	Evolution du ²³⁸ Pu.....	69
3.3.4	Evolution du ²⁴² Cm.....	70
3.3.5	Evolution du ²⁴⁴ Cm.....	72
3.3.6	Evolution du ²⁴⁶ Cm dans un réacteur EFR.....	74
3.3.7	Evolution du ²⁵² Cf dans les réacteurs GT-MHR et HI-HWR.....	75
4.	Bilans de l'étude et discussion	77
4.1	Répartition en énergie des erreurs	77
4.1.1	Spectre EFR	78
4.1.2	Spectre GT-MHR	78
4.1.3	Spectre HI-HWR	80
4.2	Discussion et Conclusions	80
5.	Présentation du dispositif expérimental	85
5.1	Les mesures de sections efficaces	85
5.1.1	Les mesures différentielles	85
5.1.2	Les mesures intégrales.....	86
5.1.3	Présentation du projet mini-INCA	87
5.2	Réacteur à haut flux de neutrons de l'institut Laue-Langevin	87
5.3	Les canaux d'irradiation T4, V4 et H9.....	88
5.4	Les techniques de mesure	89
5.4.1	Analyses par spectrométrie de masse.....	90
5.4.2	Chambres à fissions miniatures dans le canal V4.....	90
5.4.3	Banc de mesure de spectroscopie α/γ	96
5.5	Conclusions	97
6.	Méthodologie d'analyse : application au thorium-232	98
6.1	Intérêts et problématiques de la filière thorium à sel fondu	98
6.2	Analyse de la transmutation d'un échantillon de thorium-232	100
6.2.1	Présentation de l'irradiation	100
6.2.2	Mesure de la fluence	100
6.2.3	Analyse de l'échantillon par spectrométrie de masse	101
6.2.4	Simulation comparative avec les bases de données.....	102
6.2.5	Bilans de sensibilité	102
6.2.6	Procédure d'ajustement.....	103
6.2.7	Extrapolation au point d'énergie thermique.....	105
6.2.8	Discussion sur les résultats	107
6.3	Conclusions	107
7.	Etude de la chaîne de transmutation de l'américium-241.....	109

7.1	Irradiation d'échantillons d'²⁴¹Am dans les canaux T4 et H9	110
7.1.1	Présentation des irradiations	110
7.1.2	Détermination du flux de neutrons	111
7.1.3	Spectrométrie de masse	112
7.1.4	Simulation comparative avec la base de données ENDF/B-VII.0	112
7.1.5	Bilans de sensibilités	113
7.1.6	Ajustement des données expérimentales	114
7.1.8	Discussion sur les résultats	117
7.2	Chambres à fissions dédiées à l'étude de l'incinération de l'²⁴¹Am	117
7.2.1	Présentation de l'expérience	117
7.2.2	Coefficient de calibration et calcul de l'évolution du flux de neutrons	118
7.2.3	Bilans de sensibilités	121
7.2.4	Ajustement des données expérimentales	122
7.2.5	Extrapolation au point d'énergie thermique	123
7.2.6	Discussions sur les résultats	123
7.3	Transmutation d'un échantillon de ²⁴¹Am au fond du canal V4	124
7.3.1	Présentation de l'expérience	124
7.3.2	Evolution massique de l'échantillon	124
7.3.3	Bilans de sensibilités	125
7.4	Conclusions	126
8.	Etude de la transmutation et de l'incinération du curium-244	127
8.1	Présentation de l'expérience	127
8.2	Coefficient de calibration et flux de neutrons utilisés dans l'analyse	129
8.3	Bilan de sensibilité	130
8.4	Mesure de la section efficace de fission du ²⁴⁵ Cm lors du démarrage du réacteur	130
8.5	Ajustement des données expérimentales	131
8.6	Normalisation au point d'énergie thermique	132
8.7	Discussions sur les résultats	133
8.8	Conclusions	134
9.	Etude de la transmutation du californium-249	135
9.1	Présentation de l'expérience	135
9.1.1	Méthodologie	135
9.1.2	Etalonnage en énergie des détecteurs	136
9.1.3	Caractérisation isotopique de la cible avant irradiation	137
9.1.4	Irradiation courte de 2 heures	138
9.1.5	Seconde irradiation de 18 heures suivie par le spectromètre de Lohengrin	139
9.2	Analyse des résultats obtenus suite à la première irradiation	140
9.2.1	Mesure du flux de neutrons	140
9.2.2	Ajustement des spectres α mesurés sur l'échantillon de ²⁴⁹ Cf	141
9.2.3	Détermination de la section efficace de capture du ²⁴⁹ Cf	142
9.2.4	Normalisation au point d'énergie thermique	142
9.2.5	Discussions sur les résultats	143
9.3	Conclusions	143
Conclusions		146
Références		149
Annexe : Les incertitudes des données nucléaires		155

Introduction

La prise de conscience face aux problèmes liés à la pénurie à venir des combustibles fossiles et le changement climatique impose une nouvelle réflexion quant à la consommation énergétique mondiale. Face aux constats exprimés par l'ensemble des groupes de recherche et d'experts, le nucléaire se révèle aujourd'hui comme une source potentiellement abondante, sûre et non-émettrice de gaz à effet de serre qui puisse offrir une solution pérenne au développement des sociétés humaines.

C'est la raison pour laquelle le nucléaire civil recommence à prendre une part croissante dans la consommation énergétique mondiale. Ainsi, la part du nucléaire croît en Asie, dans l'ancienne Union soviétique, dans les pays émergents et aux Etats-Unis. De même, en Europe, de nombreux signes de reprise sont visibles. Ainsi, en Finlande, les députés ont voté en 2002 en faveur d'un redémarrage du programme nucléaire, gelé en 1986, après la catastrophe de Tchernobyl. Quatre nouveaux réacteurs vont être mis en place en république Tchèque, en Roumanie et en Bulgarie. Même en Italie, aujourd'hui seul pays au monde à avoir eu un programme nucléaire et à l'avoir arrêté, il est à nouveau permis d'aborder la question du nucléaire depuis le black-out que le pays a connu le 28 septembre 2003, suite à un problème d'interconnexion entre les réseaux italien et français. En France, l'autorisation donnée le 10 avril 2007 pour la création d'un réacteur de troisième génération EPR sur le site de Flamanville symbolise un nouveau changement de direction favorable dans la politique énergétique nucléaire.

Cependant, cette renaissance est freinée par la mauvaise image véhiculée par le nucléaire dans l'opinion publique. Les déchets radioactifs sont actuellement le point le plus sensible. En effet, une étude sociologique menée en 2005 par le ministère de l'industrie [1] a notamment démontrée que la filière nucléaire civile ne serait réellement acceptée par la population qu'avec la mise en place d'une gestion viable des déchets ne menaçant pas les générations futures. En fait, il semblerait qu'en dépit de la quantité et de la qualité des études menées sur le stockage permanent en couche géologique profonde, un tel site soit profondément rejeté par la population. En fait, sans solution permettant de réduire notablement la durée de vie des colis, le nucléaire reste considéré comme une solution temporaire pour répondre aux besoins d'énergie et devant être impérativement remplacé par d'autres moyens.

C'est en ce sens que des efforts de recherches ont été menés pendant quinze ans, suite à la promulgation de la loi Bataille de 1991, sur les possibilités de la transmutation nucléaire des déchets de hautes et moyennes activités à vie longue. Ces derniers sont essentiellement les produits de fissions et les actinides à vie longue présents dans les combustibles usés. Ils représentent à eux seuls plus de 90 % de l'activité résiduelle présente dans l'inventaire français. Les conclusions apportées par ces travaux ont été synthétisées dans la loi du 28 juin 2006. Ainsi, bien que l'établissement d'un site de stockage permanent semble inévitable, la transmutation nucléaire reste envisagée comme un excellent moyen de réduire les potentiels radiotoxiques et thermiques des flux de déchets.

En effet, la transmutation est un processus particulièrement attrayant puisqu'il permet en théorie de réduire au maximum la durée de vie et la toxicité à long terme des éléments les plus néfastes. Cependant, avant que la transmutation des déchets ne puisse être implémentée dans une future politique nucléaire, de nombreux verrous tant technologiques que fondamentaux doivent être levés. La réduction des erreurs associées aux données nucléaires et plus

particulièrement à celles des actinides mineurs en est un. Les scénarios de transmutation dépendent effectivement du dimensionnement des installations et de la faisabilité économique d'un tel processus. Or, ces quantités sont en partie reliées à une connaissance précise des chaînes d'évolution des actinides.

Les travaux présentés dans ce rapport s'inscrivent dans cette problématique en tentant de répondre à deux objectifs :

- mettre en lumière les paramètres nucléaires contribuant le plus aux incertitudes associées aux grandeurs d'intérêt pour la transmutation et l'incinération de l'américium-241 et du neptunium-237.
- réduire les incertitudes de certains de ces paramètres dans le domaine thermique.

Pour atteindre le premier objectif, nous avons réalisé une étude sur l'impact des incertitudes des données nucléaires sur plusieurs grandeurs d'intérêt pour la transmutation : les taux de transmutation et d'incinération, le potentiel radiotoxique et les activités alpha et fission spontanée. Cette étude a été menée dans trois spectres neutroniques différents : rapide (réacteur EFR), épithermique (réacteur GT-MHR) et thermique (réacteur HI-HWR). Chacun de ces réacteurs, à l'exception du dernier, font partie des concepts de réacteurs à étudier dans le cadre du forum Génération IV.

Pour mener à bien cette étude, nous avons développé un code d'évolution, appelé MERCUS, capable de calculer des coefficients de sensibilité et de propager les erreurs des données nucléaires sur les taux de réaction. Ce code a été initialement développé comme outil d'analyse des campagnes de mesure réalisées afin de répondre au deuxième objectif.

La première de ces campagnes a porté sur l'étude de la chaîne de transmutation et d'incinération de l'américium-241. Pour ce faire nous avons utilisé les canaux d'irradiation T4, H9 et V4 du réacteur à haut flux de l'Institut Laue-Langevin (ILL). Des données provenant d'irradiations antérieures ont été analysées de nouveau et complétées par l'irradiation de chambres à fission simple corps CFUT/C3 dans le canal V4.

La seconde campagne s'est focalisée sur la transmutation et l'incinération du curium-244 qui est un noyau particulièrement néfaste. Une mesure a été réalisée avec l'irradiation d'un nouveau type de chambres à fissions dénommé « triple corps gap réduit CFUT/C7 ».

Enfin, la dernière campagne a été effectuée sur la transmutation et l'incinération du californium-249 qui marque la transition entre la chaîne des isotopes du curium et celle des isotopes du californium. Cette mesure a été réalisée grâce à l'utilisation couplée du banc de mesure spectroscopique mini-Inca et du spectromètre de masse Lohengrin.

Au final, grâce à ces trois campagnes, les valeurs au point thermique de neuf paramètres nucléaires ont pu être obtenus, dont certains pour la première fois.

La méthodologie d'analyse a, par ailleurs été mise au point sur l'irradiation d'un échantillon de thorium-232 dans le canal V4, dans le cadre de l'étude de la transmutation de ce noyau. Quatre sections efficaces de capture ont pu ainsi être mesurées : ^{232}Th , ^{233}Pa , ^{234}U et ^{235}U .

De fait, le manuscrit est subdivisé en deux parties, pour un total de neuf chapitres. La

première partie traite de l'étude d'impact des incertitudes associées aux données nucléaires sur l'incinération de cibles de ^{237}Np et de ^{241}Am dans trois scénarios spécifiques. La seconde partie expose les différentes expériences menées durant cette thèse auprès du réacteur à haut flux de l'ILL et détaille chaque analyse effectuée.

La première partie commence par une introduction générale sur la problématique actuelle de l'énergie et de l'intérêt de la transmutation nucléaire comme plateforme d'un développement pérenne du nucléaire civil (chapitre 1). Le problème des données nucléaires et de leurs incertitudes pour la transmutation est abordé dans le chapitre 2. Dans ce même chapitre, nous présentons également le cadre de l'étude d'impact des incertitudes et les principes concernant l'évolution des cibles sous irradiation. Les résultats de l'étude seront présentés dans le chapitre 3 et un bilan sera réalisé dans le chapitre 4. La seconde partie commence avec le chapitre 5 qui introduit le dispositif expérimental à l'institut Laue Langevin. Puis dans les chapitres 6, 7, 8 et 9 nous détaillons les analyses réalisées sur les différentes chaînes de transmutation. Enfin, nous concluons sur l'ensemble des travaux menés et présentés dans ce rapport. Les expériences futures qui seront réalisées dans le cadre de la suite du projet mini-INCA seront aussi explicitées et des recommandations générales quant aux besoins encore présents sur les données nucléaires seront données.

**Première partie : Etude de l'impact des incertitudes
des données nucléaires sur la transmutation de
l'américium-241 et du neptunium-237.**

Chapitre 1

Les problématiques énergétique et climatique, l'avenir du nucléaire civil et des déchets à vie longue

Le 2 décembre 1942 marqua le début de la maîtrise de l'énergie nucléaire par l'Homme à des fins pacifiques à travers la divergence et le contrôle de la première pile atomique mise au point par Enrico Fermi à Chicago. Douze ans plus tard, le 27 juin 1954, la première centrale électrique est ouverte à Obninsk en URSS.

La filière électronucléaire civile connût ensuite un essor considérable de par le monde, avec près de 600 réacteurs construits jusqu'à aujourd'hui. Celle-ci est considérée actuellement, avec les énergies renouvelables, comme une des meilleures solutions aux problèmes environnementaux et énergétiques posés par les combustibles fossiles et leur inexorable épuisement. Cependant, afin de permettre un développement durable qui ne menace pas le cadre de vie des populations actuelles et futures, de nombreux points restent à traiter, et plus spécifiquement celui de la gestion des déchets nucléaires de Haute Activité à Vie Longue (i.e. HAVL).

Ainsi, dans l'intention de répondre de manière optimale à ce dernier point, trois grands axes de recherche et développement furent définis par le gouvernement français à travers la loi Bataille de 1991 et celle du 28 juin 2006. Parmi ces trois axes se trouve la transmutation nucléaire qui offre la possibilité d'une réduction significative de la dangerosité et des flux de déchets de catégorie HAVL. L'étude de la transmutation constitue le fondement des travaux menés durant cette thèse.

1.1 Les grands défis de demain de l'humanité

« Une civilisation qui s'avère incapable de résoudre les problèmes que suscite son fonctionnement est une civilisation décadente », Aimé Césaire, Discours sur le colonialisme.

Cette assertion illumine la prise de conscience actuelle quant aux conséquences des actes passés qui ont donné naissance au monde contemporain, ainsi que les futurs défis qui attendent l'humanité durant ce nouveau siècle. Ces derniers sont particulièrement nombreux : la répartition des ressources alimentaires (800 millions de personnes souffrent de sous-nutrition dont 200 millions d'enfants [2]), l'accès à l'eau potable (entre 1.1 et 1.5 milliards de personnes n'ont pas accès à l'eau potable et 2.6 milliards ne disposent pas de réseau d'assainissement [3]), la pollution (8 millions de morts sont imputables chaque année à la pollution de l'eau et 2 millions à la pollution de l'air [4]) et l'énergie (1.6 milliards de personnes n'ont pas accès à l'électricité [5]) en sont les plus importants.

1.2 Dépendance énergétique des sociétés aux combustibles fossiles

Par ailleurs, même si ils sont mieux protégés, les pays dits « développés » ou en cours de développement doivent également faire face à ces problèmes, et plus spécifiquement en ce qui concerne la dégradation de l'environnement [6] et la dépendance énergétique vis-à-vis des combustibles fossiles [7] (i.e. pétrole, gaz naturel et charbon). En effet, ces derniers sont la

source du développement économique des sociétés modernes, notamment grâce aux nombreux avantages qu'ils offrent, à savoir une extraction économiquement réalisable, un transport aisé sur de longues distances, ainsi qu'un potentiel énergétique élevé (cf. tableau 1).

Tableau 1 : Potentiels énergétiques et quantités de CO₂ relâchées lors de la combustion des trois principaux combustibles fossiles (pétrole, charbon et gaz naturel), ainsi que de l'éthanol (biocarburant). Le potentiel de la réaction d'oxydation du dihydrogène ($2 \text{ H}_2 + \text{ O}_2 \rightarrow 2 \text{ H}_2\text{O}$) utilisée dans les piles à combustible est aussi donné à titre de comparaison.

	contenu énergétique (kJ/kg)	quantité de CO ₂ relâchée (mol/10 ³ kJ)
dihydrogène	120	0.
gaz naturel	51.6	1.2
pétrole	43.6	1.6
charbon	39.3	2.0
éthanol	27.3	1.6

De ce fait, sur les 11 Gtep (tonne équivalent pétrole : 1 tep $\delta\delta\delta 41.868 \cdot 10^9$ Joules) qui ont été consommés en 2004, 80 % proviennent des énergies fossiles, dont 3.9 Gtep uniquement du pétrole (cf. figure 1). Les autres sources d'énergies dites « non-fossiles » restent très minoritaires. La « biomasse traditionnelle » (essentiellement le bois de chauffage), représente encore la principale source d'énergie d'une bonne partie de l'humanité, avec environ 1 Gtep consommé en 2004. Enfin, les autres sources plus « modernes » telles que le nucléaire, l'hydraulique et toutes les autres sources renouvelables (solaire, éolien, géothermie, etc.) fournissent le complément, à hauteur de 9 %.

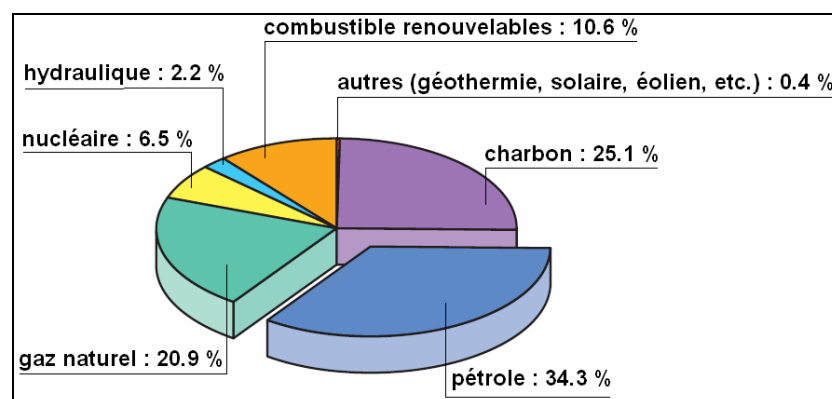


Figure 1 : Répartition entre les différentes sources d'énergies de la consommation énergétique mondiale (2004) [5].

De plus, les projections sur les décennies à venir quant à l'évolution de cette consommation montrent très clairement la continuité de la progression constatée durant les années précédentes (cf. figure 2). Cette évolution est la conséquence de l'augmentation de la population mondiale ainsi que de la modernisation et de l'urbanisation globale des pays. Ainsi, les simulations tendent à prévoir une croissance de la dépense énergétique de l'ordre de plus de 50 % d'ici 2030. La plus grande partie de celle-ci proviendra des pays émergents de l'Asie, tels que l'Inde et la Chine [8] avec un doublement escompté de leur consommation actuelle durant cette période. Pour illustration, la Chine représente actuellement le deuxième consommateur de pétrole derrière les Etats-Unis. Cet exemple souligne clairement que la principale problématique de cette évolution est qu'elle repose presque exclusivement sur les combustibles fossiles, malgré l'épuisement prévisible des ressources. En effet, l'exemple le

plus représentatif de ce paradoxe se retrouve être le pétrole. Ce dernier continue de prendre une part de plus en plus importante dans la consommation énergétique mondiale, alors que ses réserves maximales ont été estimées aux alentours de 2000 milliards de barils.

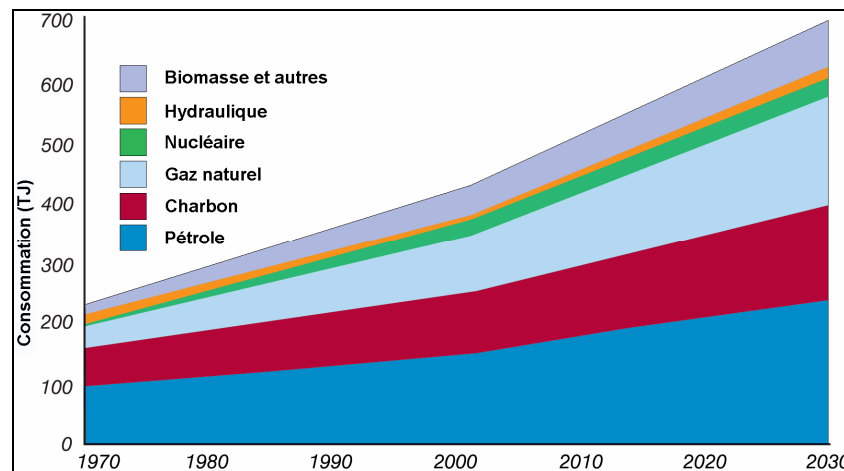


Figure 2 : Evolution et prévision de la demande énergétique des différentes ressources de 1970 jusqu'à 2030 [9].

Sachant que la moitié a déjà été consommée depuis le début de son utilisation massive, et que la demande est croissante (actuellement : 7.8 millions de barils par jour), un pic de production est possible dans un avenir proche, probablement vers 2010 [10] (cf. figure 3). Les conséquences d'un tel événement seraient sans doute une flambée des prix, ainsi que l'aggravation des tensions et conflits géopolitiques.

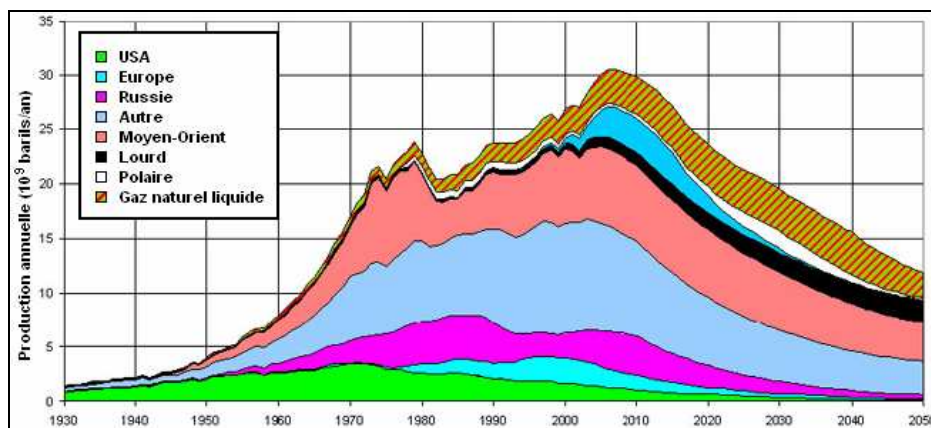


Figure 3 : Evolution et prédiction de la production pétrolière mondiale jusqu'en 2050. On note le pic de production (pic de Hubbert) aux alentours de 2010 [10].

Le gaz naturel, qui pourrait prendre le relai du pétrole, en tant que vecteur de transport, devrait suivre une tendance similaire peu de temps après, avec un maximum d'extraction entre 2025 et 2030.

Enfin, bien que le charbon soit disponible en plus grande quantité, le nombre de mines qu'il faudrait ouvrir par jour pour compenser la chute des deux autres combustibles (i.e. gaz et pétrole) serait irréaliste [11]. Afin d'appuyer ce constat, le tableau 2 quantifie les ressources estimées disponibles pour les trois principaux combustibles fossiles ainsi que leurs durées respectives en supposant une consommation stable identique à celle de 2002.

Tableau 2 : Réserves et durées estimées des différentes ressources conventionnelles de combustibles fossiles en 2002 [12].

	réserves estimées en 2002	durées des réserves
pétrole	1050.3 10 ⁹ barils	40.6 ans
gaz naturel	5501.5 10 ¹² m ³	60.7 ans
charbon	984.5 10 ⁹ tonnes	204 ans

Un tel constat montre à quel point il devient nécessaire de trouver rapidement des solutions permettant une transition économique sans heurt vers d'autres sources d'énergies avant la fin des combustibles fossiles, et plus spécifiquement avant celle du gaz et du pétrole. Cette remarque est particulièrement valable pour le secteur des transports qui mobilise près de 60 % de la consommation totale de pétrole (cf. figure 4).

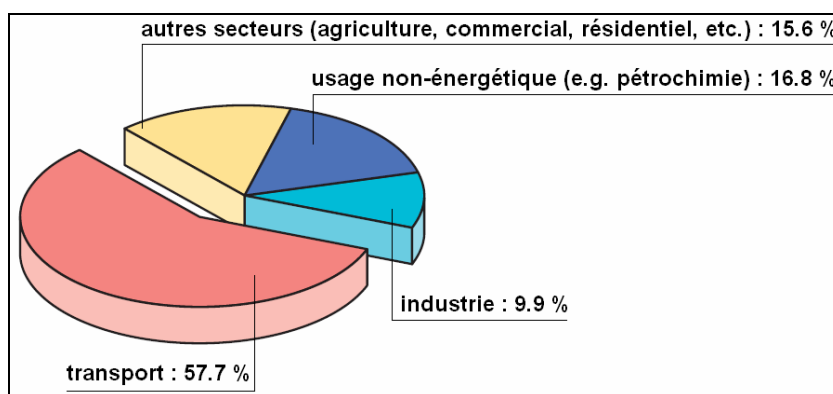


Figure 4: Répartition par secteur de la consommation mondiale de pétrole (2004) [5]

1.3 Le réchauffement climatique et ses conséquences

Par ailleurs, de par leur caractère organique, les combustibles fossiles et leur utilisation dans des cycles de combustion (e.g. moteurs, centrale thermique, etc.) entraînent une pollution atmosphérique à travers les résidus de réaction qu'ils génèrent : CO₂, CO, NO_x, O₃, etc. Le plus connu d'entre eux est bien entendu le dioxyde de carbone (i.e. CO₂) qui participe majoritairement au réchauffement global constaté depuis plusieurs années par les experts climatologues (cf. tableau 1) [13].

La concentration atmosphérique en CO₂ a effectivement connu une augmentation non-naturelle depuis le début de l'ère industrielle (cf. figure 5), ce qui a entraîné une augmentation de l'effet de serre planétaire. Ce réchauffement est estimé aujourd'hui à environ 0.6 °C au-dessus de la normale, et les calculs prévisionnels évaluent une augmentation supplémentaire comprise entre 1.8 et 3.4 °C dans les cinquante prochaines années.

Les conséquences de cette montée des températures pourraient se révéler désastreuses pour l'écosystème ainsi que pour les sociétés humaines. La montée du niveau des mers provoquée par la dilatation de l'eau des océans et la fonte des glaces des calottes glaciaires continentales, pourrait causer des exodes massifs de populations vivant sur les bords de mers ou dans les îles. La seule fonte des glaces pourrait entraîner une montée de plusieurs dizaines de centimètres de hauteur (entre 20 et 60 cm) [15].

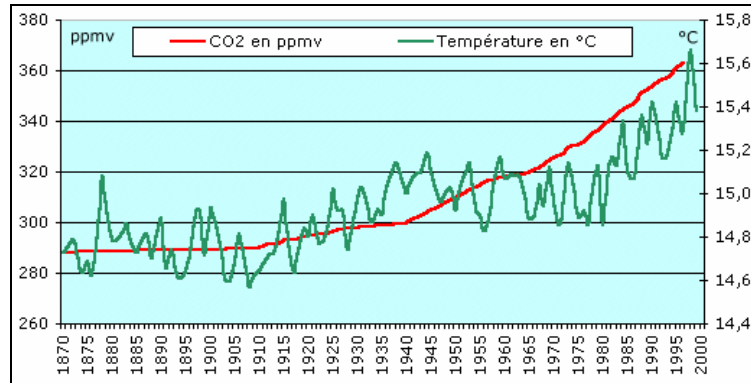


Figure 5 : Evolution de la concentration atmosphérique en CO₂ ainsi que de la température moyenne globales entre 1870 et 2000 [14].

Une autre conséquence de ce réchauffement serait un possible dérèglement climatique majeur, avec une hausse de l'humidité absolue de l'atmosphère, des pluies de plus en plus fortes et également une multiplication des phénomènes extrêmes, tels que : ouragans, tornades, crues et inondations.

Au final, le bilan économique des dégâts que pourraient provoquer ces changements dans l'avenir a été estimé à plus de 5500 milliards d'euros [17].

1.4 La solution apportée par le nucléaire à travers le vecteur hydrogène

Face à ce constat, la filière électronucléaire semble être aujourd'hui une solution potentiellement intéressante pour répondre à la double problématique de l'énergie et du climat. En effet, elle ne dégage que très peu de CO₂ durant son cycle de fonctionnement et peut permettre d'apporter l'énergie nécessaire à une transition vers une société de transport basée sur le vecteur hydrogène [19]. Le dihydrogène (gaz ou liquide), qu'il soit utilisé à travers les piles à combustible ou dans les moteurs à combustion, est pour le moment la seule solution envisagée pour faire face à la pénurie future des combustibles fossiles [20] dans les moyens de transports.

Bien entendu, avant que cela soit possible de nombreuses avancées sont encore à réaliser, notamment d'un point de vue technique : mise en place de cycles de production massive de dihydrogène sans émission de gaz à effet de serre, conteneur de stockage de grande capacité, baisse des coûts de fabrication des piles à combustible à membrane d'échange de protons (i.e. PEMFC - *Proton Exchange Membrane fuel Cell* [21]) ou encore augmentation de l'efficacité des moteurs à combustion interne (ICE – *Internal Combustion Engine* : ~ 20 - 38 %, PEMFC : 60 %), etc., mais aussi politique (e.g. sensibilisation du public, transition de tous les pays vers le cycle hydrogène) et économique (e.g. participation des « lobbys » pétroliers dans ce mouvement).

Or, la production actuelle de dihydrogène, est effectuée essentiellement à travers des cycles de craquage de combustible fossile [22], ce qui est particulièrement néfaste pour l'environnement du fait de l'importante quantité de CO₂ dégagée durant ces processus. En conséquence, outre un système de séquestration du CO₂ pour ces filières [23], il sera nécessaire de mettre en place d'autres formes de production basées, par exemple, sur des systèmes électrolytiques (efficacité actuelle : 40 – 50 % [24]) ou sur des cycles thermochimiques à haute température

comme par exemple celui du Soufre-Iode [25].

Quelles que soient la ou les options choisies, une grande quantité d'énergie (électrique et calorifère) sera nécessaire pour effectuer une substitution totale des énergies fossiles, aussi bien dans le milieu des transports (véhicule hybride, électrique ou à hydrogène) que dans celui de la production électrique de base, et ce dans une optique de minimisation de l'émission de gaz à effet de serre. C'est pourquoi, au vue de ces considérations, le nucléaire se révèle effectivement comme étant un système de production énergétique de masse particulièrement appréciable pour l'avenir [26].

1.5 La filière électronucléaire dans le monde

1.5.1 Situation actuelle du nucléaire civil

Depuis la mise en marche des premières piles atomiques (i.e. Fermi en 1942, EBR1 en 1951), la filière nucléaire s'est fortement développée en quelques dizaines d'années, essentiellement entre 1970 et 2000 (cf. figure 6), suite aux deux chocs pétroliers (en 1973 et 1979).

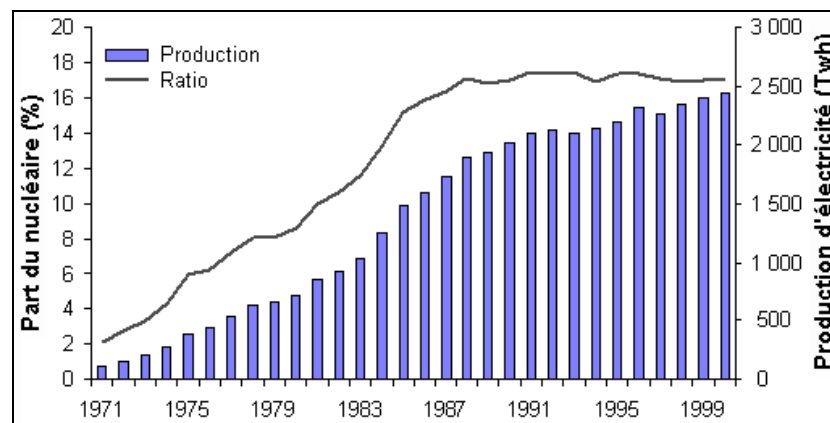


Figure 6 : Evolution de la production électrique et de la participation à la consommation mondiale de la filière nucléaire entre 1970 et 2000 [27].

Aujourd'hui, il existe 441 réacteurs commerciaux, 284 réacteurs expérimentaux et 220 navires à propulsion nucléaire en fonctionnement à travers le monde. Alors que seulement 8 pays (Russie, Etats-Unis, Chine, France, Royaume-Uni, Inde, Pakistan et Israël) disposent d'un arsenal nucléaire, 31 états utilisent activement le nucléaire à des fins civiles, produisant au total près de 370 GWe. De plus, 27 réacteurs supplémentaires sont actuellement en cours de construction et permettront une augmentation de 6 % de la puissance actuelle [28].

Au total, 20 pays dépendent de l'énergie nucléaire pour au moins un quart de leur consommation électrique. La France et la Lituanie sont les seuls à avoir une participation du nucléaire de plus de 70 %, tandis que l'Arménie, la Belgique, la Bulgarie, la Corée du Sud, la Finlande, la Hongrie, l'Inde, le Royaume-Uni, la Slovaquie, la Slovénie, la Suède et la Suisse ont au moins un tiers. Enfin, le Japon, l'Allemagne et la République Tchèque possèdent près du quart de leur production dans le nucléaire, et les Etats-Unis, l'Espagne et l'Ukraine un cinquième.

De plus, en 2005, la filière nucléaire a produit 2626 TWh sur l'ensemble du réseau mondial, ce qui a représenté aux alentours de 20 % de la production électrique globale. Cet apport énergétique devrait probablement s'accroître dans les décennies à venir, au fur et à mesure de

l'augmentation des prix des combustibles fossiles et de la prise de conscience des problèmes causés par le réchauffement climatique [29].

1.5.2 Les principales problématiques de la filière nucléaire

Néanmoins, pour que cette hypothèse de développement soit pleinement réalisable, de nombreux points bloquants doivent être résolus, notamment en ce qui concerne les quatre sujets suivants : la sûreté en fonctionnement, la protection des sites face aux sabotages et attaques extérieures, la résistance à la prolifération des armes nucléaires et, en dernier lieu, la gestion pérenne des déchets nucléaires produits.

1.5.2.1 La sûreté des centrales en fonctionnement

Ce point est devenu la première source de méfiance du public vis-à-vis du nucléaire suite au traumatisme provoqué par l'accident de la centrale de Tchernobyl (26 avril 1986, 9000 morts [30]), ou encore de celui de Three Miles Island (28 Mars 1979, aucune victime recensée). Néanmoins, bien qu'il soit toujours présent, le risque évalué d'accident majeur (fusion du coeur) sur les filières de réacteurs actuels reste très faible : respectivement de l'ordre de 10^{-5} et de 4.10^{-6} par an pour des réacteurs de type REP (Réacteur à Eau Pressurisé) et REB (Réacteur à Eau Bouillante). De plus, de nombreux programmes efficaces ont été mis en place afin de continuer à améliorer le degré de sûreté des centrales existantes [32]. Enfin, les règles de sûreté imposent que les conséquences d'un éventuel accident soient envisagées et limitées.

1.5.2.2 La vulnérabilité des sites face aux attaques et aux sabotages

Suite aux attentats du 11 septembre 2001 sur les tours jumelles à New York, la question majeure quant à la sûreté des centrales nucléaires vis-à-vis de potentielles attaques terroristes [33] a été posée. En effet, sachant qu'une centrale nucléaire contient en moyenne environ mille fois plus de radioactivité à long-terme que celle dégagée par la bombe d'Hiroshima [34], une attaque de grande envergure pourrait provoquer de très nombreuses victimes et dégâts dans les régions et états environnants. C'est pourquoi, au vue de ces constatations, des plans de protection contre ce genre de menace ont été mis en place autant aux Etats-Unis [35] que dans les pays européens [36].

1.5.2.3 La prolifération des armes nucléaires

Une autre problématique importante concernant l'utilisation des centrales nucléaires, est celle de leur emploi à des fins militaires via la production de plutonium (la capture d'un neutron par l'uranium-238 conduit au plutonium-239 fissile) ou encore l'utilisation des déchets à très forte radioactivité, afin de réaliser des armes de destruction massives [37]. En effet, bien que 189 états aient ratifié le traité international de non-prolifération [39], des risques existent toujours, comme l'ont montré récemment les essais de la Corée du Nord, le 9 octobre 2006 [39]. Pour faire face à ce genre de menace potentielle, l'AIEA essaie de se doter de nouveaux outils de contrôle, comme par exemple l'utilisation des antineutrinos pour sonder, à distance, le contenu en ^{239}Pu des coeurs de réacteurs [40].

1.5.2.4 La gestion des déchets nucléaires produits par la filière électronucléaire

D'après la définition de l'AIEA, toute matière est considérée comme un déchet nucléaire lorsque celle-ci contient des radionucléides en concentrations supérieures aux valeurs

admissibles dans des matériaux dont l'utilisation est sans contrôle et pour laquelle aucun usage n'est prévu.

Aujourd'hui, les déchets radioactifs et leur gestion représentent le principal obstacle à une politique de développement massif du nucléaire. D'un point de vue mondial et d'après l'AIEA, sur les quatre décennies précédentes, la quantité cumulée de combustible déchargé représente 220 000 tonnes, dont 145 000 ont été placées dans des centres de stockage, en grande partie provisoire, et 45 000 ont été retraitées (e.g. combustible MOX). Les prévisions donnent pour la fin de l'année 2015, une quantité dépassant les 340 000 tonnes [41]. Cette croissance projetée pose problème, du fait que certains pays atteignent déjà le maximum de leur capacité de stockage, bien que d'un point de vue mondial, les capacités actuelles soient suffisantes pour encore de nombreuses années.

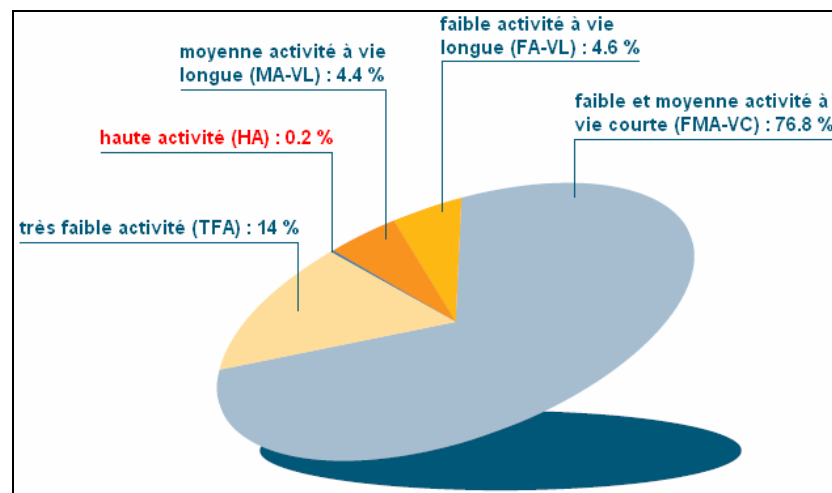


Figure 7 : Répartition des différents types de déchets en termes de volume dans l'inventaire français en 2004 [42].

En termes de volume, la grande majorité des déchets produits par l'ensemble des applications nucléaires sont de faibles et très faibles activités (cf. figure 7). Il s'agit généralement de matériaux (hors-combustible) ayant subi une contamination suite à un contact avec un matériau radioactif ou ayant été activés sous l'effet de rayonnement (e.g. vêtements de protection, gants, bétons, assemblages de combustible, etc.). Usuellement, ceux-ci sont conditionnés dans des centres de stockage en sous-surface, à quelques mètres au-dessous du sol (e.g. en France, centres de Morvilliers et de l'Aube). Dans le monde, il existe plus d'une centaine de centres de stockage de ce type et plus d'une trentaine sont en cours de construction, ce qui représente au final une capacité adaptée au flux de matière de ce type de déchets.

La situation est différente pour les déchets de haute activité et de moyenne activité à vie longue (i.e. déchets HAVL ou encore de catégorie C), qui proviennent des combustibles usés et des déchets résultant de leur filière de retraitement. Ils représentent plus de 99 % de l'activité et du potentiel radiotoxique final (cf. figure 8). En fait, en ce qui concerne cette dernière catégorie, qui est caractérisée par des émissions nocives de très longues durées (i.e. plusieurs milliers, voir plusieurs millions d'années), aucune solution définitive n'est encore fixée dans la plupart des pays.

C'est pourquoi, la gestion des déchets de haute activité constitue aujourd'hui un des plus

grands défis du nucléaire et notamment dans la perspective de son futur déploiement comme moyen de production d'énergie de masse à émission de CO₂ réduite.

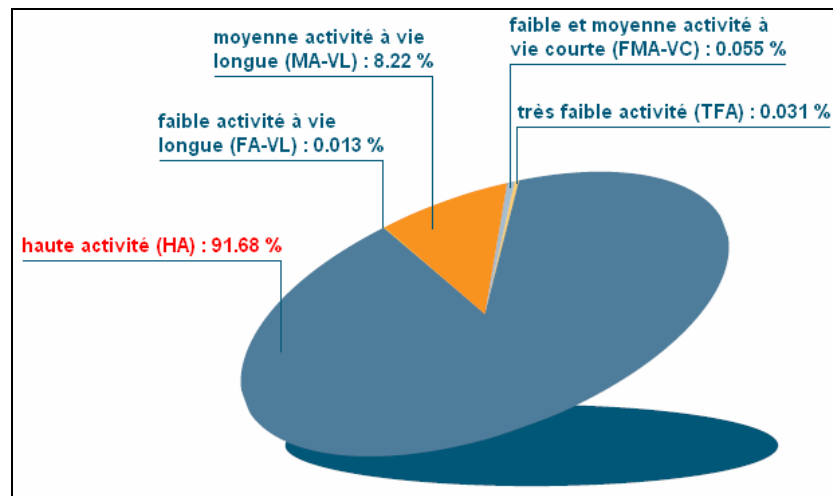


Figure 8 : Répartition des différents types de déchets en termes de radioactivité dans l'inventaire français en 2004 [42].

1.6 Les stratégies de gestion des déchets HAVL en France

1.6.1 Le cycle fermé du combustible nucléaire

Le parc nucléaire français est constitué actuellement de 58 réacteurs de puissance électrique comprise entre 900 MWe et 1450 MWe. Chaque année environ 1100 tonnes de combustibles UOX (Uranium Oxyde : oxyde d'uranium) usés sont produits, dont 850 tonnes sont retraitées pour produire du combustible MOX (Mixed Oxyde : mélange d'oxyde de plutonium et d'uranium appauvri). Les 250 tonnes non retraitées sont entreposées.

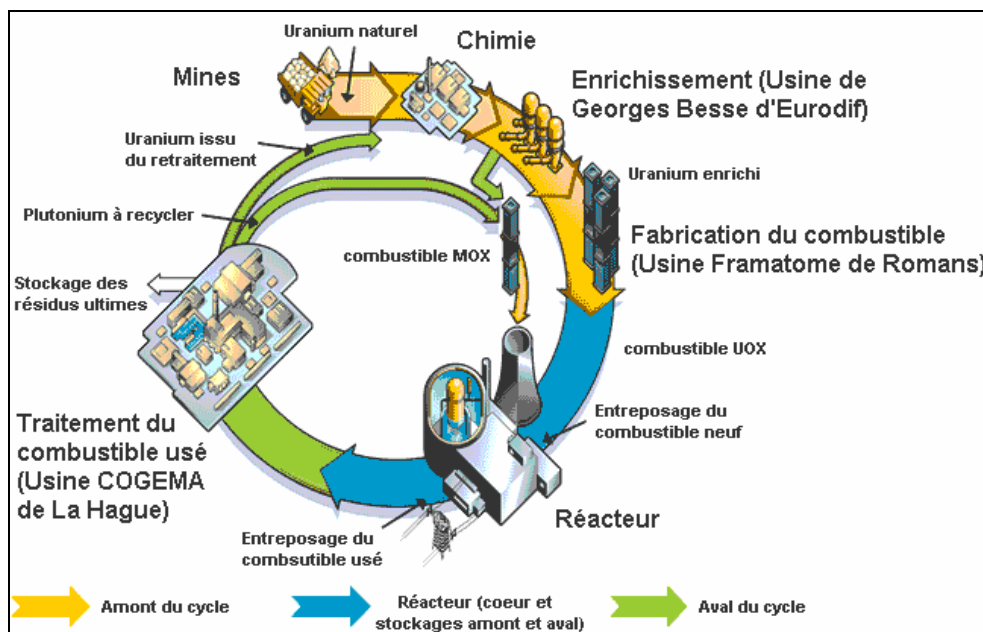


Figure 9 : Représentation schématique du cycle fermé du combustible en France.

Les combustibles MOX usés sont quant à eux également stockés, dans l'attente de savoir si

les quantités de plutonium qu'ils renferment seront considérées comme valorisables pour lancer de futurs réacteurs surgénérateurs ou comme déchets ultimes. En outre, quel que soit le choix réalisé, de nouvelles filières de traitement devront être mises en place.

1.6.2 Les déchets de catégorie C

1.6.2.1 Nature des déchets

Les déchets de haute et moyenne activité à vie longue, ou encore déchets de catégorie C, sont constitués d'une part, des actinides mineurs, à savoir majoritairement : des isotopes de neptunium, d'américium et de curium, et d'autre part des produits de fission à vie longue tels que le technétium-99 ou l'iode-129.

Tableau 3 : Principaux éléments à vie longue présents dans un combustible UOX déchargé après avoir subi une incinération de 3 ans (33 GWj/t) [44]. Pour chaque isotope, les périodes de demi-vie et les quantités mesurées au déchargement sont indiquées.

nature	élément	isotope	période (ans)	masse (g/t)
actinides mineurs	neptunium	Np-237	2 140 000	430
	américium	Am-241	432	220
		Am-243	7 380	100
	curium	Cm-243	28.5	0.3
		Cm-244	18.1	24
		Cm-245	8 530	1
produits de fission	sélénium	Se-79	65 000	4.7
	zirconium	Zr-93	1 500 000	710
	technétium	Tc-99	210 000	810
	palladium	Pd-107	6 500 000	200
	étain	Sn-126	100 000	20
	iode	I-129	15 700 000	170
	césium	Cs-135	2 300 000	360

Le tableau 3 donne à titre illustratif la liste des principaux radionucléides à vies longues présents dans un combustible UOX à la fin de trois années d'irradiation consécutives dans un réacteur REP [43]. Les masses des différents noyaux sont indiquées en grammes par tonne de combustible.

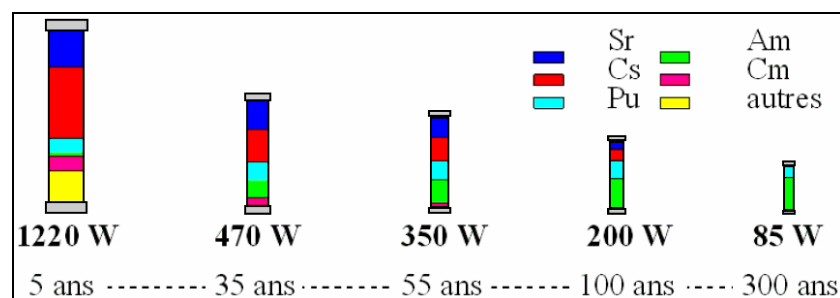


Figure 10 : Evolution en fonction du temps du dégageant thermique d'un combustible UOX utilisé [49].

En comparaison avec les autres types de déchets nucléaires (i.e. B – moyenne et faible activité à vie longue, A – faible activité à vie courte et TFA – très faible activité), les déchets de catégorie C sont à la fois caractérisés par des émissions intenses de rayonnements nocifs qui peuvent parfois durer pendant des milliers, voir des millions d'années (cf. figure 11), mais

aussi par une puissance thermique résiduelle importante (de part les rayonnements qu'ils émettent, cf. figure 10). Pour ces différentes raisons, la gestion finale de ces déchets est particulièrement délicate, à la fois du fait de leur extrême dangerosité, mais aussi de part les autres contraintes qu'ils imposent.

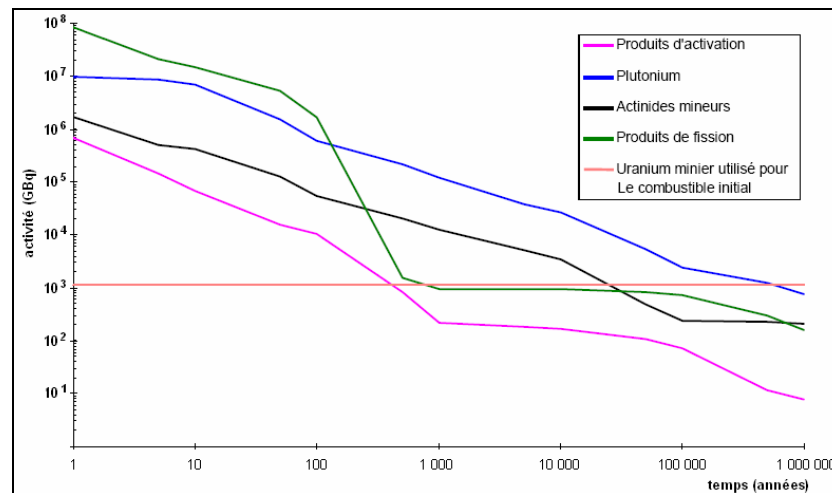


Figure 11 : Activité, en GBq par tonne de métal lourd, des radionucléides formés en réacteur, et de leurs descendants, dans un parc REP (80% UOX, 11% MOX, 9 % URE irradiés à 45 GWj/t) [45].

En 2004, la quantité cumulée de déchets de haute activité estimée par l'ANDRA (Agence National de gestion des Déchets Radioactifs) atteignait 1851 m³ [46], sachant que la France en produit actuellement près de 200 m³ par an (soit un cube de 6 mètres de côté). Ce chiffre ne prend en compte que la partie des actinides et produits de fission non-volatils (produits de fission hors gaz rares, iode et tritium) qui a été déjà extraite des combustibles UOX utilisés. Une grande quantité de ces déchets est encore présente dans les combustibles MOX stockés. Ainsi, respectivement 9 % et 65 % de l'ensemble des produits de fissions et des actinides mineurs se trouvent encore dans ces combustibles [47]. Or, ces derniers ne seront probablement pas traités avant 2020, en attente de la décision concernant le futur du nucléaire civil.

1.6.2.2 Le procédé PUREX et la vitrification

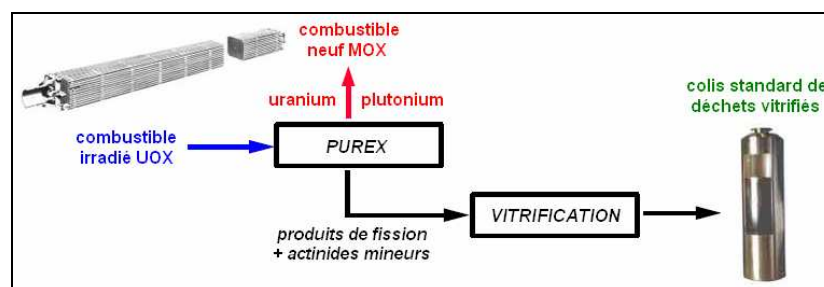


Figure 12 : Procédé de retraitement des combustibles irradiés UOX : séparation de l'uranium et du plutonium par le procédé PUREX en vue de leur intégration dans un nouveau combustible MOX, et vitrification des produits de fission et des actinides mineurs restants dans un colis standard de déchets vitrifiés (CSD-V).

Le procédé PUREX (Plutonium and Uranium Recovery by Extraction [48], cf. tableau 12) permet d'extraire, avec une efficacité de 99.8 %, le plutonium et l'uranium des combustibles UOX utilisés. Les actinides et les produits de fission restant sont conditionnés dans des matrices de verres, elles-mêmes coulées à l'intérieur d'un conteneur inoxydable.

Les oxydes de produits de fissions et d'actinides sont mélangés dans la structure même du verre. Ils deviennent des constituants du réseau vitreux, ce qui limite fortement leur migration dans le matériau et donc maximise leur rétention. De plus, les examens de verres similaires, d'origines naturels, ont montré leur grande stabilité durant des périodes de dizaines de millions d'années ou plus, ce qui en fait bien évidemment des matrices de confinement adéquates pour des déchets ayant des durées de décroissance similaires.

Au final, chaque conteneur CSD-V contient environ 150 litres de verre, avec en moyenne 50 kg de produits de fission et d'actinides, ce qui représente le retraitement de 1.3 à 1.5 tonnes de combustible usé. Le procédé de vitrification permet ainsi une réduction conséquente du volume des déchets HAVL. Mais, du fait de la quantité importante de déchets HAVL qu'ils renferment, ces colis sont caractérisés par une puissance thermique d'environ un à deux kilowatts par colis au moment où ils sont produits. Elle diminue avec le temps et n'est plus que de 100 à 200 watts au bout d'un siècle (cf. figure 13).

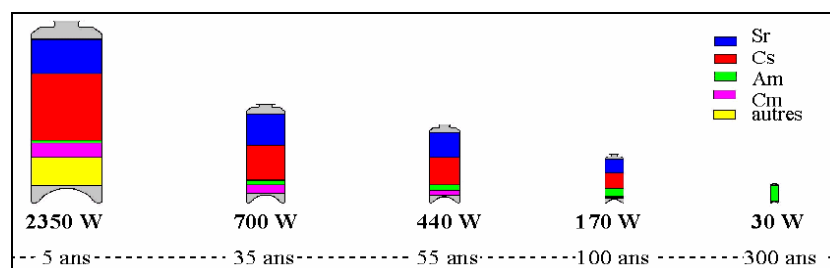


Figure 13 : Evolution en fonction du temps du dégagement thermique d'un colis standard de déchets vitrifiés (CSD-V) [49].

En attendant leur refroidissement, les colis déjà produits sont pour le moment stockés temporairement sur leur lieu de fabrication au centre de retraitement de la Hague.

1.6.2.3 Gestion pérenne des déchets HAVL : loi Bataille de 1991 et loi du 28 juin 2006

Bien que les capacités des centres de stockage de surface actuels (La Hague, Marcoule et Cadarache) soient importantes, ceux-ci n'ont pas été conçus initialement pour stocker définitivement ces déchets.

Aussi, afin de définir des solutions de gestion à long terme, le gouvernement français s'est engagé dans un programme d'étude ambitieux, à l'instar d'autres pays concernés comme les Etats-Unis, la Finlande, la Suède ou l'Allemagne. Ceci s'est en particulier traduit, dans le cas français, par le vote d'une loi spécifique, le 30 décembre 1991 (article L542 du code de l'environnement), qui a fixé trois axes de recherche [49], qui sont les suivants :

- 1^{er} axe – la séparation et la transmutation : ce premier axe est particulièrement novateur et attractif puisqu'il consiste à rechercher des moyens pour extraire et séparer les éléments radioactifs à vie longue contenus dans les combustibles (i.e. actinides mineurs et produits de fissions), dans l'optique de les transformer (i.e. transmuter) en des éléments de durée de vie plus courte dans des réacteurs nucléaires de nouvelle génération [50].
- 2^e axe - le stockage réversible ou irréversible, en couche géologique profonde : cet axe de recherche concerne l'étude de la faisabilité du stockage des déchets nucléaires (pas uniquement HAVL) dans des formations géologiques profondes sur des durées

millénaires. Les recherches, principalement menées dans le laboratoire souterrain de Bure, ont été focalisées sur les propriétés de confinement géologique propices à de tels sites, ainsi que l'évaluation de l'impact de la réalisation des ouvrages sur celles-ci.

- 3^e axe – les procédés de conditionnement et d'entreposage de longue durée : ce dernier axe vise à développer à la fois des installations de stockage en surface de longue durée (pendant 100 à 300 ans, contre 50 à 100 ans pour les installations actuelles) mais aussi les colis et conteneurs les mieux adaptés pour chaque type de déchets (TFA, A, B, C et radifères) actuellement présents dans l'inventaire global français.

Ces trois axes sont complémentaires (cf. figure 14) et ont pour objectif l'optimisation des flux de déchets radioactifs, dans une optique de minimisation des contraintes et menaces que vont imposer ces derniers sur les générations futures.

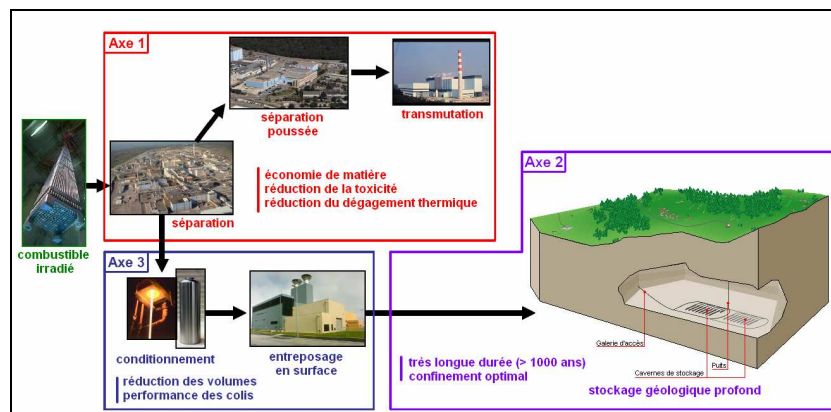


Figure 14 : Cycle de gestion des déchets radioactifs issu du retraitement du combustible tel qu'envisagé dans la loi de 1991.

Les résultats de ces recherches menées pendant 15 ans en collaboration étroite entre de nombreux organismes (CEA, CNRS, Andra, COGEMA, EDF, Framatome, Universités, etc.), ont permis l'élaboration de la loi du 28 juin 2006 sur la politique nationale de gestion durable des matières et des déchets radioactifs [51]. Cette nouvelle loi a notamment affirmé la mise en œuvre d'une politique nationale de gestion basée sur le développement des trois axes de recherches introduits précédemment.

En ce qui concerne la séparation et la transmutation, les recherches continuent jusqu'en 2012, date à laquelle un nouveau bilan sera établi afin de choisir entre les différentes filières de réacteur possibles pour la transmutation. Un premier prototype pourrait être mis en place d'ici 2020 et une mise en service industrielle envisagée à l'horizon 2040. De même, la demande d'autorisation de construction d'un centre de stockage en couche géologique profonde aura lieu en 2015, ce qui porterait sa mise en exploitation en 2025. Enfin, la même année, de nouvelles installations d'entreposage en surface devraient voir le jour, afin de pouvoir faire face aux nouveaux flux de matières nucléaires.

Par ailleurs, cette loi du 28 juin 2006 promulgue une transparence accrue et un meilleur contrôle démocratique dans cette nouvelle forme de gestion des déchets nucléaires, avec notamment la mise en œuvre de modalités spécifiques envers son organisation et son financement.

1.7 La transmutation des déchets nucléaires

1.7.1 Les bénéfices sur le stockage permanent

Dans l'optique d'un développement durable du nucléaire civil en tant que source d'énergie de masse, il est clair vis-à-vis des modalités imposées par cette nouvelle loi, que la transmutation nucléaire va constituer un important moteur de maîtrise sur les flux de déchets qui vont être introduit dans le ou les futurs sites de stockage souterrain.

En effet, la transmutation pourrait permettre des réductions significatives du potentiel radiotoxique et de la charge thermique apportés par une partie des radionucléides à vie longue, ce qui offrirait par conséquent une capacité de chargement des sites plus grande, un impact environnemental à long terme de ces derniers beaucoup plus faible [52], ainsi qu'une acceptation de la population locale plus aisée.

1.7.2 Principe

Comme introduit précédemment le processus de transmutation a pour finalité de transformer (i.e. transmuter) les actinides mineurs (e.g. neptunium, plutonium, américium, curium, etc.) et les produits de fission (e.g. technétium-99, césium-135, iode-129, etc.) à durée de vie longue en des éléments de plus courtes périodes ou stables. Il est bien évident qu'une telle réduction du temps de vie génère, à quantité égale, une augmentation des émissions radioactives, mais en contrepartie permet une transition plus rapide vers des éléments moins nocifs, voir stables (cf. figure 15).

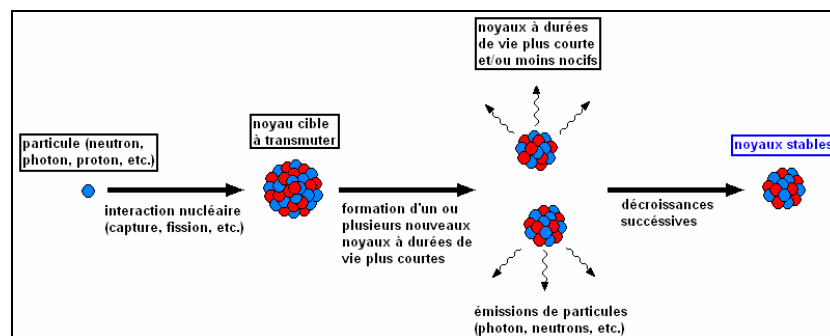


Figure 15 : Représentation schématique du processus de transmutation nucléaire.

En outre, parmi toutes les particules potentiellement utilisables (i.e. neutrons, protons et photons γ), les neutrons semblent actuellement la meilleure option du fait des grandes valeurs de flux et de taux de réaction qui peuvent être atteintes dans les installations nucléaires (existantes ou en cours de développement). Par ailleurs, à la différence des produits de fissions, la transmutation des actinides mineurs est principalement dirigée vers les réactions de fission, directes ou indirectes, ce qui peut présenter un avantage certain du fait de l'énergie dégagée qui peut potentiellement être exploitée (comme celle de la fission de l'uranium dans les réacteurs actuels).

1.7.3 Etat de la recherche

A travers le cadre des recherches menées durant les 15 ans prévus par la loi Bataille, l'exploration de la faisabilité de la transmutation a été réalisée par le biais de nombreuses collaborations internationales (e.g. EUROTRANS, EFFTRA, réseau ADOPT, etc.). Celles-ci

ont notamment porté leurs efforts sur deux voies, soit la transmutation réalisée dans des réacteurs critiques de quatrième génération, soit dans des réacteurs sous-critiques pilotés par accélérateurs (« Accelerator Driven System », ou encore ADS) fortement chargés en actinides mineurs (cf. figure 16).

En effet, les réacteurs de futures générations tels qu'étudiés dans le cadre du forum international génération IV (« Generation IV International Forum » ou encore « GIF » [53]) sont développés selon des objectifs stricts de non-prolifération, de sûreté, de compétitivité économique et aussi de réduction des déchets. Cette collaboration regroupe désormais 12 pays (Afrique du Sud, Argentine, Brésil, Canada, Chine, Corée du Sud, Etats-Unis, France, Japon, Royaume-Uni, Russie et Suisse), ainsi que la communauté européenne de l'énergie atomique (CEEA, ou encore Euratom). Six concepts de réacteurs innovants sont à l'étude : trois sont des réacteurs rapides, respectivement refroidis au sodium (Sodium-cooled Fast Reactor), au plomb (Lead-cooled Fast Reactor) et au gaz (Gas-cooled Fast Reactor), un réacteur thermique refroidi au gaz mais fonctionnant à très haute température (Very-High-Temperature Reactor), un réacteur à eau supercritique (Supercritical-Water-Cooled Reactor) et enfin un réacteur à sel fondu (Molten Salt Reactor). Chacun de ces systèmes futuristes offre des possibilités plus ou moins grandes pour l'incinération et la transmutation [54]. Les réacteurs à spectres thermiques semblent actuellement plus propices à la transmutation des produits de fission, tandis que les réacteurs rapides offrent de meilleurs potentiels d'incinération pour les actinides mineurs du fait de l'importance plus grande des phénomènes de fission dans ces domaines énergétiques élevés.

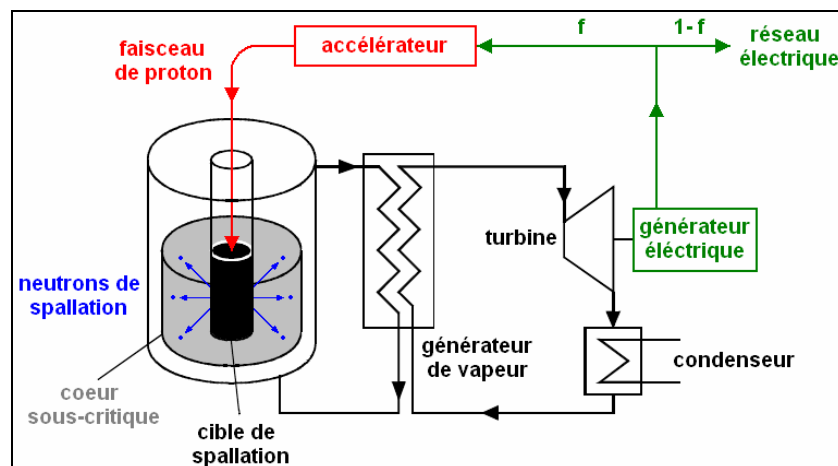


Figure 16 : Schéma de principe d'un réacteur piloté par accélérateur : la sous-criticité du cœur est compensée par les neutrons formés lors des réactions de spallation générées par les protons délivrés par l'accélérateur dans la cible. Une partie de l'énergie récupérée dans le massif sous critique est ensuite utilisée pour alimenter l'accélérateur.

Par ailleurs, en ce qui concerne les réacteurs sous-critiques pilotés par accélérateurs, ces systèmes présentent des avantages théoriques indéniables sur les réacteurs critiques, notamment du fait de leur contrôle beaucoup plus souple (impossibilité de divergence prompt), même en présence d'un cœur entièrement chargé en actinides mineurs. Néanmoins, étant donné leur plus grande complexité (i.e. couplage accélérateur, source de spallation et massif sous-critique), de nombreux obstacles devront être franchis avant une application industrielle de traitement des déchets. C'est pourquoi, le programme de recherche européen EUROTRANS (inclus dans les 6^e et 7^e Programme-Cadre de Recherche et de Développement de la communauté européenne [55]) focalise actuellement les efforts de recherche sur la résolution des problèmes technologiques des différentes parties :

- la fiabilité de l'accélérateur linéaires de protons (programme IPHI [56]), dont le courant recherché pour une installation de taille industrielle doit atteindre 20 mA avec une énergie de 1GeV, avec moins de 5 coupures en temps inférieures à une seconde par an [57].
- le comportement de la cible de spallation sous faisceau et particulièrement la fenêtre de séparation entre l'accélérateur et la cible (expérience MEGAPIE [58]).
- Le couplage neutronique d'un cœur sous-critique et d'un accélérateur (programmes MUSE [59] et GUINEVERE [60]).

L'ensemble de ces travaux a pour but la conception d'un ADS de démonstration européen l'ETD/XT-ADS. Dans la situation actuelle, ce dernier pourrait être le projet belge MYRHHA [61].

1.8 Conclusions

Malgré des accidents aussi marquants que ceux de Three Miles Island (28 mars 1979) et de Tchernobyl (26 avril 1986), la filière électronucléaire représente aujourd'hui une des rares alternatives réalistes pour pallier l'épuisement des ressources en combustibles fossiles, principal moteur de fonctionnement des sociétés modernes. Cette affirmation est appuyée par la prise de conscience croissante quant aux conséquences néfastes de ces filières énergétiques sur l'environnement et le climat mondial.

Néanmoins, dans une optique de développement durable, de nombreux points restent à régler dont la question des déchets radioactifs produits par les centrales, et plus particulièrement ceux de haute activité, et ceux à vie longue. C'est la raison pour laquelle le gouvernement français a mis en place un cadre législatif définissant les axes de recherche, les rôles et les responsabilités des organismes concernés par la gestion de ces déchets.

Dans ce cadre, la transmutation nucléaire représente un enjeu majeur pour le développement du nucléaire, étant donné les nombreux avantages qu'elle pourrait apporter sur le stockage des déchets ultimes, notamment en termes de réduction de flux thermique et radiotoxique. Cependant, celle-ci nécessite encore de nombreuses recherches afin d'apporter des réponses concrètes quant à son éventuelle réalisation à l'échelle industrielle.

Chapitre 2

Cadre général de l'étude

La transmutation nucléaire des actinides mineurs fait intervenir les chaînes d'évolution de ceux-ci. Or, les paramètres qui constituent ces dernières sont caractérisés par des incertitudes parfois importantes qui peuvent nuire à la qualité des simulations. En effet, les valeurs contenues dans les bases de données nucléaires se fondent sur des mesures expérimentales, qui, dans le cas des actinides mineurs, peuvent être peu nombreuses, voir inexistantes.

Aussi, dans l'optique de mettre en lumière les paramètres ayant le plus d'impact sur les incertitudes attachées à la transmutation, des calculs de sensibilité et d'incertitude ont été effectués à l'aide du logiciel MERCUS. Ces simulations se sont portées sur le cas de cibles d' ^{241}Am et de ^{237}Np irradiées dans trois cas de réacteur différents : EFR, GT-MHR et HI-HWR. Chacun correspond à un type de spectre particulier, à savoir, respectivement : rapide, épithermique et thermique, et met donc en place un cheminement de la matière transmutée différent.

Ce second chapitre présente le cadre général de cette étude, et met en place les outils numériques et théoriques utilisés, ainsi que la stratégie menée. Les évolutions des grandeurs d'intérêt pour la transmutation, à savoir les potentiels d'incinération et de transmutation, le potentiel radiotoxique et les activités alpha et fission spontanée, y sont également développées pour chaque cycle. Les bilans de sensibilité et d'incertitude calculés pour ces différentes variables seront abordés dans le troisième chapitre.

2.1 La problématique des données nucléaires

2.1.1 Les codes de calculs et les bases de données nucléaires

Les études de transmutation actuellement menées se basent sur des calculs à l'aide de codes de simulation de neutronique (e.g. DARWIN, MCNP, APPOLO, etc.) qui s'appuient sur des bases de données nucléaires. Celles-ci regroupent une grande quantité de données sur les paramètres d'état et d'évolution de nombreux noyaux : états (i.e. spin, parité, ...), sections efficaces d'interaction avec un flux de particules (e.g. neutrons, protons, photons, ...), propriétés de décroissance (temps de demi-vie, noyaux formés, ...), etc. Elles ont été mises en place et sont actuellement entretenues par des groupes d'évaluation qui réunissent généralement les efforts de un ou plusieurs pays. Aujourd'hui, les plus connues sont les suivantes :

- **ENDF/B** : Evaluated Nuclear Data File, Etats-Unis.
- **JEFF** : Joint Evaluated Fission and Fusion file, Europe de l'Ouest.
- **JENDL** : Japanese Evaluated Nuclear Data Library, Japon.
- **CENDL** : Chinese Evaluated Nuclear Data Library, Chine.
- **BROND** : Biblioteka Rekomendovannykh Otsenjonnykh Nejtronnykh Dannykh, Russie.

2.1.2 La disponibilité et la précision des données nucléaires

Bien évidemment, l'ensemble des données présentées dans ces bibliothèques nucléaires ont

été évaluées à partir de mesures expérimentales. En effet, une fois ces dernières officiellement publiées, elles sont soumises aux groupes d'évaluation qui les condensent et les intègrent dans ces bases de données officielles. Parfois, lorsque la mesure d'un paramètre n'a pas été effectuée, celle-ci est substituée par des prédictions de modèles théoriques éprouvés sur d'autres réactions connues.

Un tel constat établit clairement l'étroite relation, qui existe, entre les bases de données nucléaires utilisées par les codes de calcul et les mesures, notamment quant à leurs disponibilités et leurs précisions. En d'autres termes, une simulation effectuée par un programme se retrouvera indubitablement entachée par une incertitude qui sera corrélée à l'exactitude des données qu'il utilise, et donc à celle en amont des mesures expérimentales.

2.1.3 La problématique des actinides mineurs pour les systèmes du futur

Aujourd'hui, la précision des données nucléaires est jugée suffisante pour l'exploitation des réacteurs de technologie actuelle basée sur le cycle de l'uranium-235, notamment grâce aux nombreuses années de retour d'expériences sur ces systèmes, ainsi que de la grande qualité et quantité des données mesurées concernant les principaux noyaux impliqués dans ce cycle (i.e. ^{235}U , ^{238}U et ^{239}Pu). La figure 17 montre l'exemple de la section efficace de fission de l'uranium-235 (i.e. ^{235}U $\sigma(n,f)$), pour lequel plus de 100 000 points de mesures sont répertoriés dans la plage d'énergie utile aux réacteurs (énergies de neutrons comprises entre quelques meV et quelques MeV).

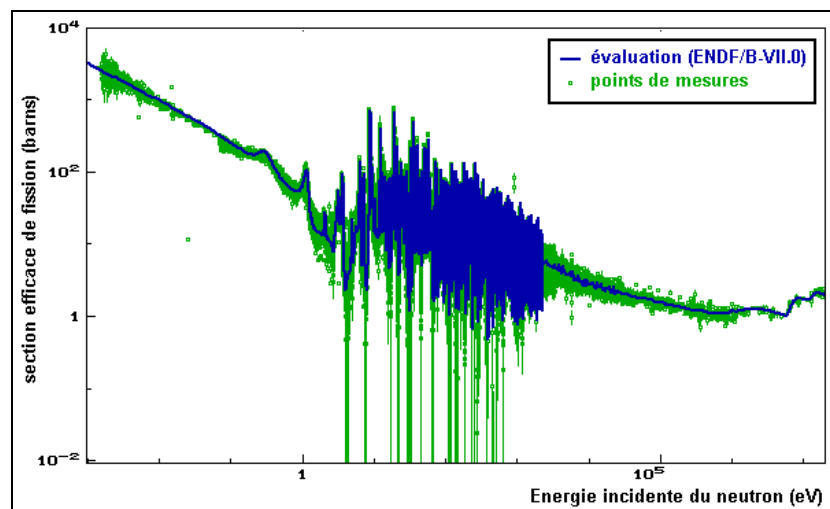


Figure 17 : Tracé de l'évaluation (ENDF/B-VII.0) et des points mesurés (plus de 100 000 points en absolu) de la section efficace de fission de l'uranium-235.

Cependant, cette observation n'est plus valable dans le cadre des études menées sur les systèmes du futur (génération IV et A.D.S.), dont le combustible sera majoritairement basé, non plus sur l'uranium seul, mais sur celui de l'uranium naturel et du plutonium (i.e. ^{239}Pu et ^{241}Pu fissiles). De plus, ces systèmes intègrent dans leurs cahiers des charges une minimisation de la production des actinides mineurs, voir l'incinération de ceux-ci sous forme de cibles.

Or, hormis pour quelques noyaux dont certaines réactions ont déjà un intérêt pour le cycle actuel (e.g. ^{239}Pu $\sigma(n,f)$, ^{241}Pu $\sigma(n,f)$), la plupart des actinides, et plus particulièrement les actinides mineurs (i.e. neptunium, américium, curium, californium), sont définis par une

qualité et quantité faibles, voir médiocres, de données mesurées et évaluées [62]. En conséquence de quoi, les travaux effectués dans le cadre des développements des systèmes du futur sont soumis à des incertitudes plus importantes que pour ceux des réacteurs actuels [63] [64]. Obligatoirement, ceci se traduit par un accroissement des marges et systèmes de sécurité à mettre en place, et donc par la même occasion une augmentation du coût économique (construction, fonctionnement et démantèlement) de ces nouveaux systèmes.

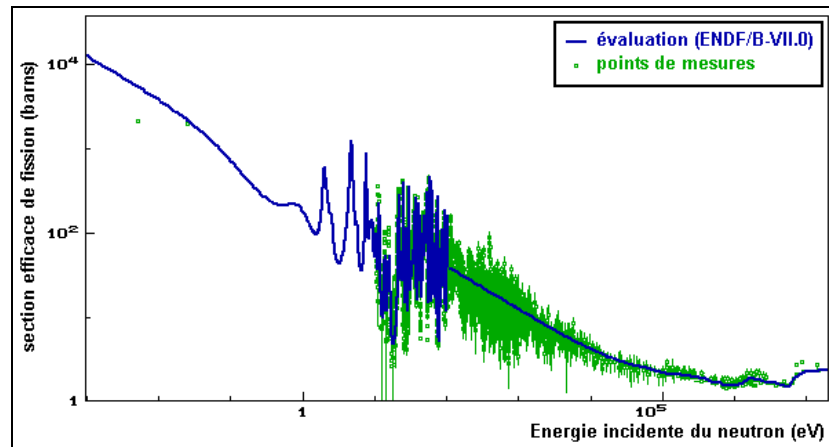


Figure 18 : Tracé de l'évaluation (ENDF/B-VII.0) et des points mesurés (5 210 points en absolu) de la section efficace de fission du curium-245. Aucun point de mesure n'est présent dans la région se situant entre le point thermique ($E_n = 25$ meV) et une dizaine d'électron-volts, malgré la présence supposée par les modèles de résonances dans cette zone.

2.1.4 Les données nucléaires et la transmutation des actinides mineurs

Ce questionnement vis-à-vis de l'impact des incertitudes est encore plus pertinent dans le cadre des études sur l'incinération et la transmutation des actinides mineurs. En effet, étant donné que le processus de transmutation concerne directement l'évolution sous irradiation de ces derniers, les effets des incertitudes sur les données peuvent se révéler notablement importants.

Aussi, dans l'optique d'apporter des éléments de réponse, nous avons entamé une étude dont l'objectif principal était de quantifier les effets de ces incertitudes sur des grandeurs ayant un intérêt certain pour la transmutation et l'incinération mais également pour la gestion des cibles transmutées. Cette étude est complémentaire à l'important travail réalisé par Aliberti [63] sur les paramètres intégraux associés au cœur et au cycle de combustible.

En pointant ainsi les paramètres sensibles pour la transmutation, des campagnes de mesures adaptées pourront être envisagées pour réduire les domaines d'indétermination qui affectent les études sur l'incinération. En effet, comme il sera montré dans la suite, une partie des conclusions de cette étude ont permis de focaliser les travaux expérimentaux du projet mini-INCA (et donc de cette thèse) vers certaines mesures d'intérêt.

2.2 Choix des cibles et réacteurs étudiés

2.2.1 L'américium-241 et le neptunium-237

Dans cette étude, nous avons choisi de traiter uniquement le neptunium-237 et l'américium-241. En effet, ce sont les deux actinides mineurs dont la formation est la plus grande dans les combustibles UOX et MOX irradiés dans les filières à eau actuelles. De plus, ce sont des

noyaux particulièrement radiotoxiques (cf. tableau 4), surtout l'américium-241 dont l'activité est bien plus forte que celle du ^{237}Np .

A ces deux noyaux, il faudrait également rajouter l'américium-243 et le curium-244, que nous avons choisi de ne pas traiter ici, car moins produits dans les combustibles usés. En outre, le curium-244 a la possibilité de décroître. A eux quatre, ils constituent les actinides mineurs les plus problématiques dans le cycle de retraitement du combustible irradié.

Par ailleurs, nous avons considéré l'implémentation de ces deux noyaux sous forme de cibles dont la présence est non perturbatrice pour les spectres neutroniques. En d'autres termes, les effets d'autoprotection générés par la présence de ces actinides (et des noyaux qu'ils forment durant leurs évolutions) dans les cœurs de réacteurs n'ont pas été pris en compte dans le calcul. Ceci revient à se positionner dans une hypothèse d'implémentation (homogène ou inhomogène) de ces isotopes dans le cœur comme étant inférieure à quelques pourcents (en masse).

Tableau 4 : Principales caractéristiques radiotoxiques de l'américium-241 et du neptunium-237.

noyau	période physique (en années)	mode de décroissance	groupe de radiotoxicité [65]	principaux organes cibles et périodes biologiques
Np-237	$2.144 \cdot 10^6$	α	1 – très forte	squelette : 50 ans foie : 20 ans
Am-241	432.2			

De plus, dans le cas de cibles de transmutation dédiées (i.e. implémentation inhomogène), celles-ci sont suffisamment fines pour ne pas générer d'effets d'auto-absorption. C'est pourquoi, les conclusions qui seront apportées ici ne seront pas valables dans le cas de cœurs fortement chargés en actinides, comme cela peut être envisagé pour les systèmes ADS [70].

2.2.2 Les réacteurs étudiés : EFR, GT-MHR et HI-HWR

Nous avons choisi de mener cette étude dans le cas de trois réacteurs représentatifs de trois domaines en énergie de flux: rapide, épithermique et thermique. En réalité, cette sélection des trois réacteurs s'est effectuée de telle manière à obtenir au final un panel varié de spectres neutroniques, s'étalant du rapide au fortement modéré. De cette manière, comme nous pourrions le constater tout au long de cette étude, les chemins de transmutation empruntés par l'américium et le neptunium seront bien différents en fonction du spectre considéré. De plus, deux des réacteurs choisis sont sur la liste des réacteurs de quatrième génération et sont donc susceptibles d'être construits dans l'avenir.

- Réacteur EFR (European Fast Reactor) : il s'agit d'un réacteur à spectre de neutrons rapides, d'une puissance de 3600MWth/1500MWe, refroidi par une circulation continue de sodium liquide (~ 500°C en sortie de cœur) [66]. Le combustible $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ est sous forme d'aiguilles. Ce concept de réacteur rapide refroidi au sodium (SFR – Sodium Fast Reactor) est étudié dans le cadre du forum génération-IV.
- Réacteur GT-MHR (Gas Turbine Modular Helium Reactor) : c'est un réacteur à spectre de neutrons modérés (modérateur graphite), défini par une puissance de 600MWth/285MWe. Le combustible, sous forme de petites particules (i.e. particules TRISO [67]) rassemblées sous forme de compact, est refroidi par un flux d'hélium gazeux à très haute température. Ce système est aussi étudié à l'intérieur du forum

génération-IV (concept du VHTR – Very High Temperature Reactor) [68].

- Réacteur HI-HWR (High-Intensity Heavy Water-moderated Reactor : ce dernier cas, qui n'est pas présent dans le forum génération-IV, représente un réacteur actuellement fictif. Celui-ci est basé sur les flux et spectres de neutrons mesurés à l'intérieur du canal d'irradiation V4 [69] du réacteur expérimental de l'institut Laue-Langevin à Grenoble (France). Ce modèle de réacteur HI-HWR symbolise un cas extrême de réacteur haute intensité (HFR – High Flux Réacteur) à modulation poussée (i.e. eau lourde).

Pour notre étude, nous avons considéré un fondement statique, sans évolution du flux de neutrons. Les valeurs de flux ainsi que la répartition spectrale sont indiqués dans le tableau 5. A titre de comparaison, nous avons indiqués également les flux correspondant à des combustibles UOX et MOX dans un PWR.

Tableau 5 : intensités et répartitions des flux de neutrons dans les trois grands principaux domaines en énergie pour les trois réacteurs étudiés EFR, GT-MHR et HI-HWR, ainsi que celles calculées pour des combustibles UOX et MOX irradiés dans un REP. Par ailleurs, la dernière colonne indique le code de calcul qui a été utilisé pour obtenir chaque spectre [communication interne].

réacteur	flux $\langle\Phi\rangle$ (n.cm ⁻² .s ⁻¹)	thermique (10 ⁻³ – 1 eV)	épi-thermique (1 eV – 100 keV)	rapide (100 keV – 20 MeV)	code de simulation
EFR	1.54 10 ¹⁵	0 %	42 %	58 %	ECCO/ERANOS
GT-MHR	1.83 10 ¹⁴	24 %	52 %	24 %	Tripoli-4
HI-HWR	1.00 10 ¹⁵	84 %	14 %	2 %	MCNP
PWR (UOX)	1.89 10 ¹⁴	13 %	39 %	48 %	APPOLO
PWR (MOX)	1.89 10 ¹⁴	10 %	40 %	50 %	APPOLO

Les flux calculés sont également représentés sur la figure 19. Il est possible de noter la grande différence entre les trois flux où le spectre du réacteur EFR est effectivement rapide : celui-ci chute rapidement en dessous de quelques milliers d'électrons-volts, alors que celui du HI-HWR est très modéré.

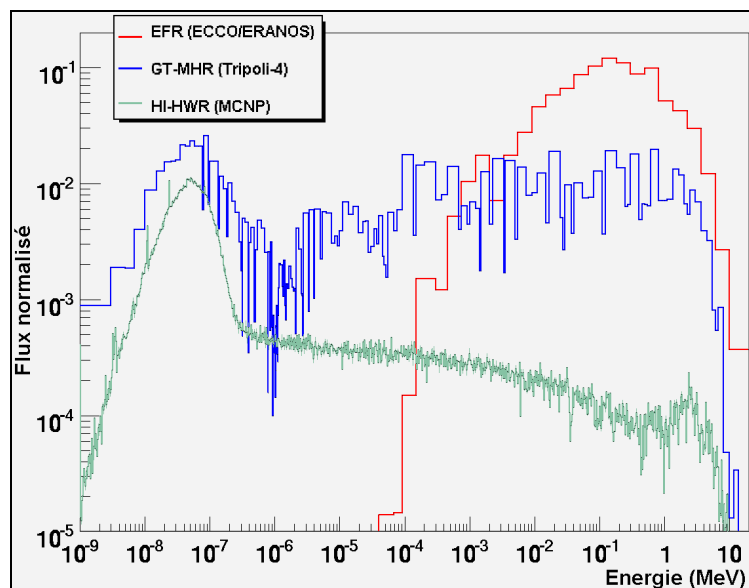


Figure 19 : Spectres neutroniques des trois réacteurs simulés : EFR, GT-MHR et HI-HWR.

Par ailleurs, le GT-MHR du fait de la quantité importante de modérateur graphite contenu dans son cœur, présente un spectre dont plus de la moitié des neutrons a une énergie incluse dans le domaine épithermique, c'est-à-dire dans le domaine des résonances résolues des sections efficaces. Enfin, en ce qui concerne le cas du réacteur HI-HWR, celui-ci se retrouve dans une configuration pour laquelle l'effet de la modération est supérieur à celle d'un combustible REP/UOX. En effet, plus de 84 % du spectre se trouve dans le domaine d'énergie thermique. Pour le reste, 14 % des neutrons sont présents dans le domaine épithermique et seulement 2 % dans le domaine rapide.

2.3 Les outils théoriques et numériques

2.3.1 Matrices de sensibilité et de covariances

Afin d'estimer l'impact des données nucléaires et de leurs incertitudes, nous avons calculé les coefficients de sensibilité de l'ensemble des paramètres nucléaires (i.e. sections efficaces et paramètres de décroissance) jouant dans les équations d'évolutions, lors de la transmutation de l'américium-241 et du neptunium-237.

Ces coefficients proviennent de la théorie généralisée des perturbations [73] et permettent de quantifier l'influence d'un paramètre nucléaire donné Ψ_j sur l'évolution d'une variable spécifique Ω_i (e.g. taux d'incinération), par la formule suivante :

$$S_{i,j}(t) = \frac{\partial \Omega_i}{\partial \Psi_j}(t) \cdot \frac{\Psi_j(t)}{\Omega_i(t)} \quad (1)$$

En d'autres termes, ce facteur qui est sans dimension, mesure la perturbation qui est induite sur la variable étudiée par une petite déviation du paramètre nucléaire autour de sa valeur initiale. En conséquence de quoi, plus la valeur de cette sensibilité $S_{i,j}$ est grande, plus l'impact du paramètre en question sur l'évolution de la variable est élevé. De plus, le signe que peut prendre ce coefficient ne fait qu'indiquer dans quel sens aura lieu la variation de la variable étudiée vis-à-vis de celle du paramètre. Enfin, ce type de coefficient est la plus part du temps, calculé et exprimé en « %/% », c'est-à-dire sur la base d'un écart relatif de ± 1 % autour de la valeur initiale du paramètre.

De surcroît, une fois l'ensemble des coefficients de sensibilités calculé, il est possible de chiffrer une estimation au premier ordre de l'erreur relative (i.e. en pourcents) associée à la variable étudiée. Pour cela, il est nécessaire d'utiliser la matrice de covariance associée :

$$\frac{\sigma_{\Omega_i}(t)^2}{\Omega_i(t)^2} = \sum_j S_{i,j}(t)^2 \cdot \frac{Var(\Psi_j)}{\Psi_j^2} + \sum_{k \neq l} S_{i,k}(t) \cdot S_{i,l}(t) \cdot \frac{Cov(\Psi_k, \Psi_l)}{\Psi_k \cdot \Psi_l} \quad (2)$$

La première partie de cette équation définit l'action directe des incertitudes attachées aux paramètres nucléaires (élément diagonaux de la matrice de variance-covariance) sur la variable intégrale Ω_i , tandis que la seconde partie dénote les effets des corrélations entre ces différents paramètres (éléments non-diagonaux).

Or, étant donné que ces corrélations restent actuellement encore très mal évaluées, nous avons choisi de porter nos erreurs uniquement sur la première partie de cette équation. En raison de quoi, les résultats qui seront présentés dans la suite de cette étude seront indubitablement

entachés d'un biais. Néanmoins, l'objectif de ce travail ne réside que dans une volonté de fournir des estimations sur l'impact des incertitudes attachées aux données nucléaires et non sur une qualification de celles-ci.

2.3.2 Les incertitudes des données nucléaires

Les incertitudes considérées pour les différents paramètres pris en compte durant cette étude proviennent de sources diverses (cf. annexe). Ainsi, pour les sections efficaces des réactions (n,γ), (n,f) et (n,2n) des actinides suivants : ^{232}Th , $^{233, 234, 235, 236, 238}\text{U}$, ^{237}Np , $^{238, 239, 240, 241, 242}\text{Pu}$, $^{241, 242\text{m}, 243}\text{Am}$ et $^{242, 243, 244, 245}\text{Cm}$, les incertitudes ont été calculées à partir de l'évaluation « ANL covariance matrix » [74]. En effet, les matrices de variances fournies dans ce document, dont un exemple est donnée par le tableau 6, ont permis de calculer les incertitudes de l'ensemble des paramètres nucléaires ci-dessus pour chaque spectre étudié.

En ce qui concerne les sections efficaces des autres actinides qui n'ont pas été énumérés ci-dessus, une erreur globale de $\pm 10\%$ a été considérée. Il s'agit bien entendu d'une hypothèse particulièrement optimiste, du fait que dans leur grande majorité, ces paramètres ont été très peu mesurés et évalués. Néanmoins, comme nous pourrions le constater dans la suite, exceptée dans le cas de la formation du californium-252, ces paramètres ne sont pas sources de grandes valeurs de sensibilités et/ou d'incertitudes potentielles.

Enfin, les incertitudes des paramètres de décroissance (constantes de décroissance et probabilités des différents modes : α , β^- , β^+ , etc.) ont été prélevées dans la table évaluée des isotopes du « LBNL (Lawrence Berkeley National Laboratory) isotopes project » [75].

Tableau 6 : Exemple de matrice de variances extraite de l'évaluation « ANL covariance matrix » [64] pour les sections efficaces de l'américium-241.

groupe	plage en énergie	$\sigma(n,f)$	$\sigma(n,\gamma)$	$\sigma(n,2n)$
1	55.2 MeV - 150 MeV	60 %	100 %	100 %
2	19.6 MeV - 55.2 MeV	40 %	80 %	100 %
3	6.07 MeV - 19.6 MeV	10 %	10 %	100 %
4	2.23 MeV - 6.07 MeV	10 %	10 %	100 %
5	1.35 MeV - 2.23 MeV	10 %	10 %	100 %
6	498 keV - 1.35 MeV	10 %	10 %	100 %
7	183 keV - 498 keV	10 %	10 %	100 %
8	67.4 keV - 183 keV	10 %	10 %	100 %
9	24.8 keV - 67.4 keV	10 %	10 %	100 %
10	9.12 keV - 24.8 keV	20 %	10 %	100 %
11	2.03 keV - 9.12 keV	20 %	10 %	100 %
12	454 eV - 2.03 keV	20 %	10 %	100 %
13	22.6 eV - 454 eV	20 %	10 %	100 %
14	4.00 eV - 22.6 eV	20 %	10 %	100 %
15	0.54 eV - 4.00 eV	20 %	10 %	100 %
16	0.10 eV - 0.54 eV	20 %	10 %	100 %
17	0.001 eV - 0.10 eV	20 %	10 %	100 %

2.3.3 Code d'évolution MERCS

Les évolutions des cibles de transmutation ^{241}Am et ^{237}Np , ainsi que les calculs de l'ensemble des coefficients de sensibilités ont été menées grâce à l'utilisation du code MERCS (Module d'Evolution sous ROOT et de Calcul de Sensibilité).

Le module MERCS a été initialement développé dans le cadre du projet mini-INCA pour analyser les données obtenues lors des expériences et répondre aux différentes questions qui peuvent être posées par les évolutions complexes des isotopes irradiés. Ce code, entièrement rédigé en langage C++ sous forme de bibliothèque partagée pour ROOT, résout les équations d'évolutions (dites de Bateman [76]) des actinides mineurs de manière numérique. Les équations considérées sont celles à un groupe en énergie (i.e. sections efficaces moyennées sur l'ensemble du spectre de neutrons) et prennent en considération les réactions (n,γ), (n,f) et (n,2n), ainsi que la totalité des processus de décroissance (même les plus minoritaires). Au final, plus de 100 actinides mineurs sont représentés à l'intérieur du programme (du thorium-226 à l'einsteinium-255). La figure 20 donne une représentation d'une partie des chaînes de transmutation qui ont été incluses dans le programme.

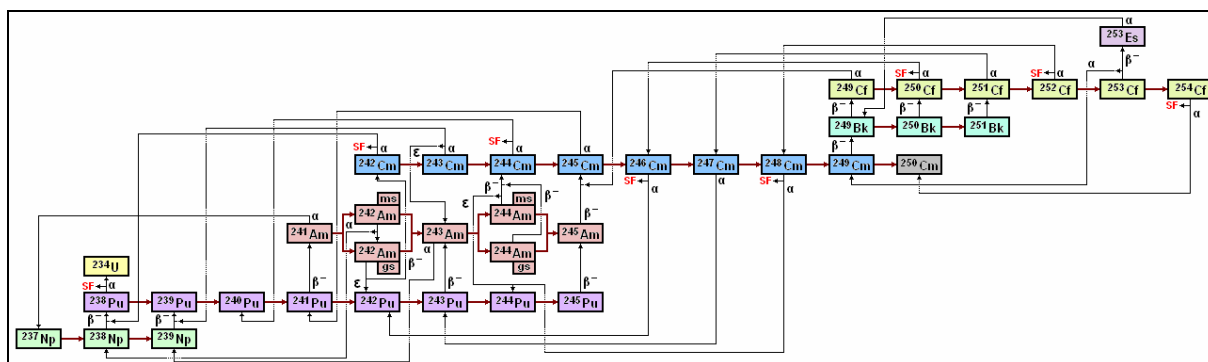


Figure 20 : Vue schématique réduite d'une partie des chaînes d'évolution comprises dans le module MERCS (du neptunium-237 à l'einsteinium-253).

Bien évidemment, celui-ci ne se substitue pas à des codes de calculs aussi élaborés que CINDER [77] ou encore MCNP/MURE [78]. Il ne traite notamment pas les produits de fission. Mais, il offre cependant de nombreuses possibilités et facilités, grâce à son couplage avec le logiciel ROOT du CERN [79]. Par exemple, le module MERCS peut calculer et tracer les évolutions d'un grand nombre de variables différentes (concentration, rapports isotopiques, taux de fissions, taux d'incinération et de transmutation, etc.), mais aussi il peut établir des bilans de sensibilités sur l'ensemble des paramètres nucléaires inclus dans le programme. Pour plus d'information, il est possible de consulter le site internet dédié, dans lequel il est possible de trouver la notice du code, ainsi que les calculs de validation effectués sur un scénario de combustible UOX irradié dans un REP [80].

2.4 Stratégie de simulation et choix des observables

2.4.1 Stratégie de simulation et d'analyse

Les sections efficaces qui ont servi pour ces évolutions sont celles de la bibliothèque ENDF/B-VI.8, complétées avec celles de JENDL-3.3, puis JEFF-3.0 (dans l'ordre), lorsque des paramètres nucléaires n'étaient pas présents dans l'une ou l'autre de ces bases de données. Une telle fusion a été réalisée afin de décrire au mieux l'ensemble des chemins de transmutation possibles.

De plus, afin de pouvoir mener une comparaison des résultats obtenus sur les trois scénarios, les irradiations ont été considérées comme étant continues et les temps d'irradiation ont été ajustés de tel manière à pouvoir effectuer un bilan simultané selon des valeurs équivalentes de taux d'incinération, à savoir : 20 %, 40 %, 60 % et 80 % (cf. tableau 7).

Tableau 7 : Temps d'irradiation considérés dans chaque cas de cible et de réacteur étudié, correspondants aux valeurs d'incinération : 20, 40, 60 et 80 %. On note la réduction de ces durées en corrélation avec la modération du spectre de neutrons.

		taux d'incinération	20 %	40 %	60 %	80 %
²³⁷ Np	EFR	temps d'irradiation	9 ans	16 ans	25 ans	39 ans
	GT-MHR	temps d'irradiation	3.5 ans	5.5 ans	8 ans	12 ans
	HI-HWR	temps d'irradiation	50 jours	87 jours	132 jours	208 jours
²⁴¹ Am	EFR	temps d'irradiation	8 ans	15 ans	25 ans	41 ans
	GT-MHR	temps d'irradiation	2 ans	4 ans	6 ans	11 ans
	HI-HWR	temps d'irradiation	53 jours	152 jours	288 jours	667 jours

En effet, comme expliqué plus haut, l'incinération représente l'objectif ultime des processus de transmutation des actinides mineurs, c'est pourquoi cette grandeur a été jugée comme étant le paramètre clef pour confronter les différents scénarios. Assurément, une hypothèse d'irradiation continue est peu réaliste du fait des temps de rechargement du combustible qui seront nécessaire dans un réacteur, ainsi que des probables périodes de cycles de retraitement si la gestion par multi-recyclage est adoptée.

Néanmoins, comme il l'a déjà été souligné plus haut, cette étude n'a pour but que de fournir des estimations des impacts des incertitudes des données nucléaires. De surcroît, la stratégie qui a été menée dans cette étude a été d'observer en premier lieu les évolutions du flot de la matière transmutée dans les différents réacteurs dans l'intention de mieux appréhender les évolutions des cibles et de ses variables, puis de calculer leurs coefficients de sensibilité et leurs incertitudes.

2.4.2 Les variables étudiées

Les évolutions sous irradiation de cible d'américium-241 et de neptunium-237 ont été simulées pour les trois réacteurs : EFR, GT-MHR et HI-HWR. Dans chaque cas, cinq variables d'intérêt pour la transmutation ont été étudiées : les taux de transmutation et d'incinération, le potentiel radiotoxique et les activités alpha et fission spontanée.

2.4.2.1 Les taux (ou potentiels) de transmutation et d'incinération

Ces deux premières grandeurs définissent l'efficacité effective de la transmutation et de l'incinération de l'actinide mineur cible. En premier lieu, le taux de transmutation symbolise la proportion de noyaux cibles qui a disparu pour se transformer en d'autres noyaux. Cette quantité est décrite par la formule suivante :

$$\text{taux_de_transmutation} = 1 - \frac{\sum_{\text{noyaux_initiaux}} N_i(t)}{\sum_{\text{noyaux_initiaux}} N_i(t=0)} \quad (3)$$

Ce taux de transmutation prend à la fois en considération les réactions et processus qui font disparaître ces actinides cibles : (n,γ), (n,f), (n,xn), décroissance radioactive, mais aussi ceux, de même types, qui les réapprovisionnent (et qui font donc diminuer le potentiel de transmutation d'autant).

Le taux d'incinération, quant à lui, correspond à la proportion de noyaux cibles qui ont disparu par fission :

$$\text{taux_d'incinération} = \frac{\sum_{\text{tous_noyaux}} \int_0^t \left(\langle \sigma_j^{\text{fission}} \cdot \Phi \rangle_{E_{\text{neutrons}}}(t) + P_{\text{fission_spontanée}} \cdot \lambda \right) \cdot N_j(t) \cdot dt}{\sum_{\text{noyaux_initiaux}} N_i(t=0)} \quad (4)$$

Comme le montre cette formule, le potentiel d'incinération prend en compte à la fois les fissions ayant eût lieu par interaction neutronique, mais également les fissions spontanées. Par exemple, le californium-252, dont la période de demi-vie vaut 2.645 années, possède une probabilité de décroissance en mode fission spontanée qui est de : $P_{\text{fission_spontanée}} = 3.092 \%$.

Par ailleurs, cette variable est très importante, étant donné que la fission nucléaire est une réaction extrêmement favorable sur de nombreux plans pour la gestion des déchets HAVL. En effet, les produits de fissions possèdent dans leur grande majorité des durées de vie bien plus petites que celles des actinides, mais sont aussi définis par des émissions radioactives, ainsi que des potentiels radiotoxiques bien plus faibles. C'est la raison pour laquelle la fission est considérée comme étant la finalité ultime dans les futurs processus de transmutation des actinides mineurs [71].

2.4.2.2 Le potentiel radiotoxique

Cette troisième grandeur se réfère justement au potentiel de dangerosité résiduel des cibles de transmutation, à travers l'ensemble des noyaux qu'elles contiennent. En fait, le danger biologique des radionucléides est principalement proportionnel aux types (e.g. γ , X, protons, neutrons, ^4He , produits de fissions, etc.) et à l'énergie (de quelques eV à plusieurs MeV) des rayonnements qu'ils émettent, à leurs activités, ainsi qu'à leurs dangerosités chimiques. Bien, évidemment, leurs potentiels radiotoxiques dépendent aussi de leurs modes de contact (e.g. externe, inhalation, ingestion, etc.) avec la victime et des organes cibles affectés.

Aussi, afin de pouvoir quantifier ce type de menaces, des coefficients de dose (i.e. $e(\tau)$) ont été établis pour de nombreux noyaux différents par la commission internationale de radioprotection [72] (ICRP – International Commission on Radiological Protection), en fonction de l'âge (i.e. « τ ») et du mode d'assimilation (inhalation ou ingestion). A partir de ces coefficients, il est alors possible de déterminer le potentiel radiotoxique (exprimé en Sievert) du colis ou de la cible de transmutation en fonction du temps, à travers la formule suivante :

$$\text{radiotoxicité} = \sum_{\text{tous_noyaux}} \lambda_j \cdot N_j(t) \cdot e_{\text{type_d'assimilation}}^{\text{âge}}(\tau) \quad (5)$$

Dans le cadre de cette étude, les coefficients qui ont été considérés sont ceux de référence pour ce genre de calcul, c'est-à-dire ceux qui correspondent à l'ingestion directe par un adulte (20 ans et plus). Ces valeurs se rapportent donc au cas hypothétique d'une absorption directe des radionucléides par le sujet.

2.4.2.3 Les activités de type alpha et fissions spontanées

Ces deux types de radioactivités ont été aussi étudiées, car elles représentent à la fois des

émissions de rayonnements particulièrement nocifs (i.e. ^4He , neutrons et produits de fissions), mais ont aussi une contribution essentielle dans le dégagement thermique des cibles et donc des futurs colis de déchets. De plus, en ce qui concerne l'activité de type fission spontanée, celle-ci possède aussi un intérêt durant l'irradiation puisque qu'elle représente une source de neutrons supplémentaires dans le cœur, ce qui peut rendre la conduite des réacteurs plus délicate.

2.5 Transmutation du neptunium-237

2.5.1 Evolution du flot de matière

Afin de mieux appréhender les évolutions de la cible de ^{237}Np , nous présentons ici l'évolution du flot de matière lors de la transmutation, pour chaque cas de réacteur étudié, et la répartition isotopique. La chaîne de transmutation du ^{237}Np étant relativement simple, les évolutions de matière ne présentent pas de très grandes différences selon le flux neutronique utilisé, contrairement à la chaîne de l' ^{241}Am , comme nous le verrons par la suite. C'est pourquoi nous avons cherché à regrouper les différents cas étudiés lorsque cela était possible, en commentant à chaque fois les différences qu'il pouvait y avoir entre eux.

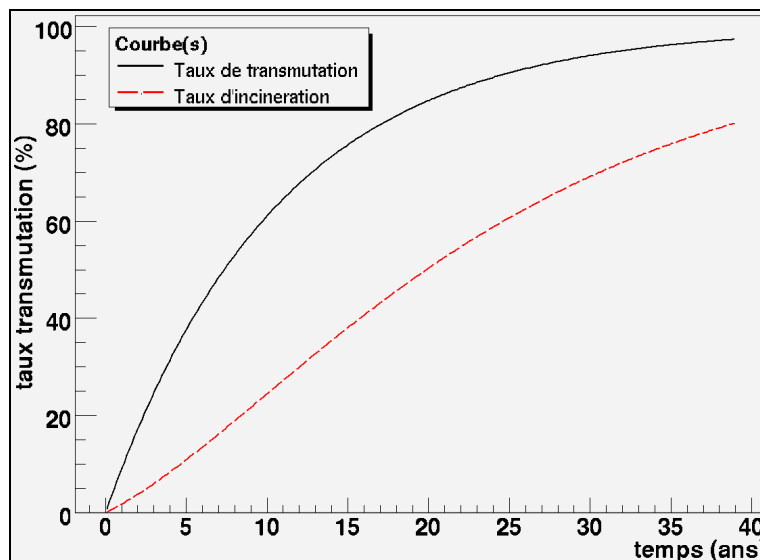


Figure 21 : Evolution du taux d'incinération et de transmutation du neptunium-237 irradié dans un réacteur EFR.

La figure 21 montre un exemple d'évolution des taux de transmutation et d'incinération du neptunium dans un réacteur EFR. Alors que la transmutation suit la loi exponentielle de disparition de cet actinide sous l'effet du flux de neutrons, le potentiel d'incinération suit une croissance à peu près constante ($\sim 2\%$ /an) durant la totalité du cycle. Cette incinération est principalement réalisée par le neptunium-237 et ses plus proches voisins (cf. figure 22), à savoir les deux isotopes de plutoniums : ^{238}Pu et ^{239}Pu . En effet, grâce au spectre rapide qui favorise les processus de fission, le chemin que doit parcourir la matière transmutée jusqu'aux isotopes fissiles est relativement court.

De plus, il est intéressant d'observer que le plutonium-238, qui est considéré comme un noyau fertile dans le domaine thermique, possède ici une section efficace de fission supérieure à celle de capture : $^{238}\text{Pu} \langle \sigma(n,\gamma) \rangle = 0.75$ barns et $^{238}\text{Pu} \langle \sigma(n,f) \rangle = 1.14$ barns. C'est d'ailleurs la raison pour laquelle, au final, ce dernier participe plus à l'incinération que son successeur fissile direct (i.e. ^{239}Pu).

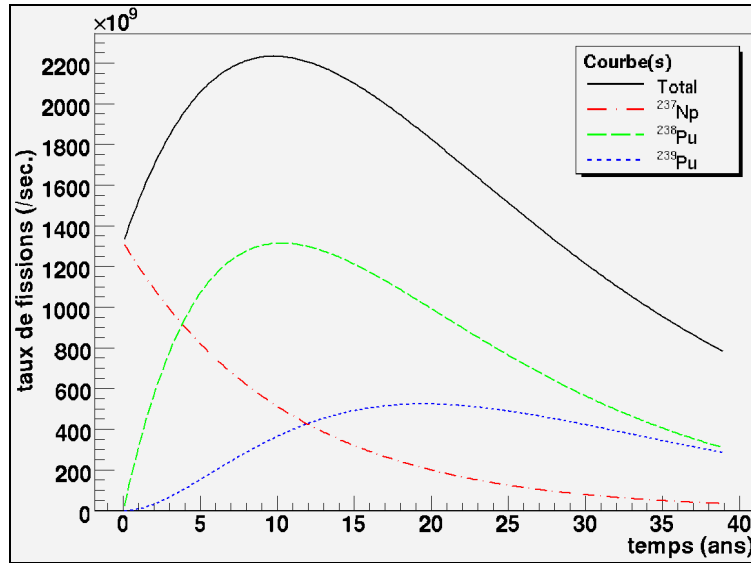


Figure 22 : Evolution du taux de fissions global d'un gramme de neptunium-237 irradié dans un réacteur EFR, ainsi que celles des contributeurs majoritaires (en pointillés).

Ce comportement général sur les taux de transmutation et d'incinération se retrouve également pour les deux autres cas de réacteurs étudiés, avec quelques différences cependant. Dans le cas du GT-MHR, le démarrage du taux d'incinération est un peu moins rapide (i.e. toujours à taux d'incinération donné). Ceci s'explique par la nécessité, pour le neptunium, d'effectuer deux captures successives avant de pouvoir atteindre son véritable premier noyau fissile, le plutonium-239. En effet, dans ce flux modéré, la section efficace de fission du neptunium-237 a notablement chuté : $^{237}\text{Np} \langle \sigma(n,f) \rangle = 0.2$ barns, tandis que le plutonium-238 est redevenu fertile : $^{238}\text{Pu} \langle \sigma(n,\gamma) \rangle = 117.7$ barns et $^{238}\text{Pu} \langle \sigma(n,f) \rangle = 4.56$ barns. Toutefois, malgré cette diminution, le plutonium-238 participe encore un peu à l'incinération, même si les deux noyaux incinérateurs majoritaires sont les deux principaux isotopes fissiles du plutonium : ^{239}Pu et ^{241}Pu .

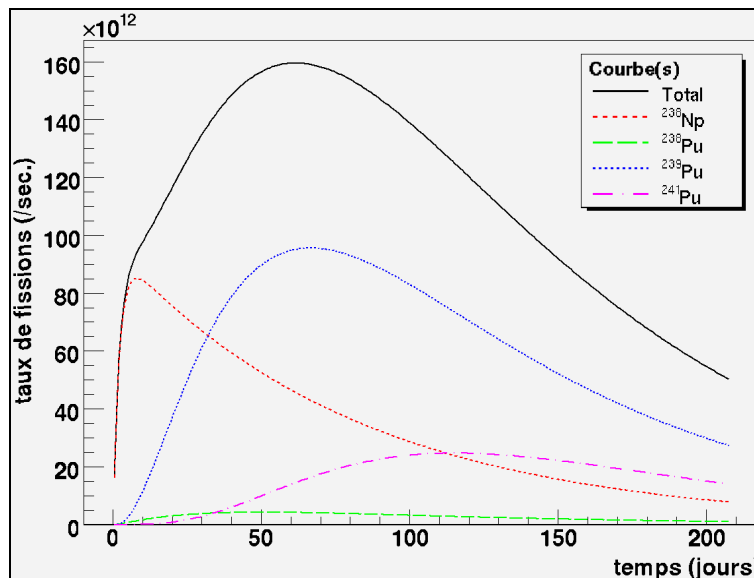


Figure 23 : Evolution du taux de fissions global d'un gramme de neptunium-237 irradié dans un réacteur HI-HWR, ainsi que celles des contributeurs majoritaires (en pointillés).

Le cas du HI-HWR se rapproche de l'EFR quant à la vitesse de démarrage de l'incinération, grâce à la participation inédite du neptunium-238 dans ce processus (cf. figure 23). En effet, dans les hauts flux de neutrons thermiques, la fission peut entrer en compétition avec la décroissance naturelle ($T_{1/2} = 2.117$ jours) de cet isotope. Dans ce cas précis, plus du quart des processus de disparition (i.e. décroissance et absorption neutronique) est du à la réaction de fission. Par ailleurs, comme nous le verrons dans la suite, l'apport de ce noyau réduit notablement les formations d'actinides néfastes comme le ^{238}Pu et le ^{244}Cm .

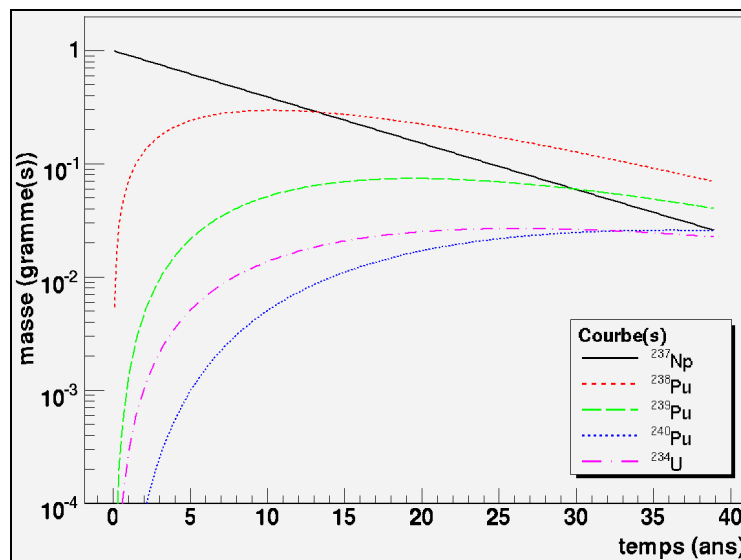


Figure 24 : Evolutions massiques des principaux actinides formés à partir de la transmutation d'un gramme de neptunium-237 dans un réacteur EFR.

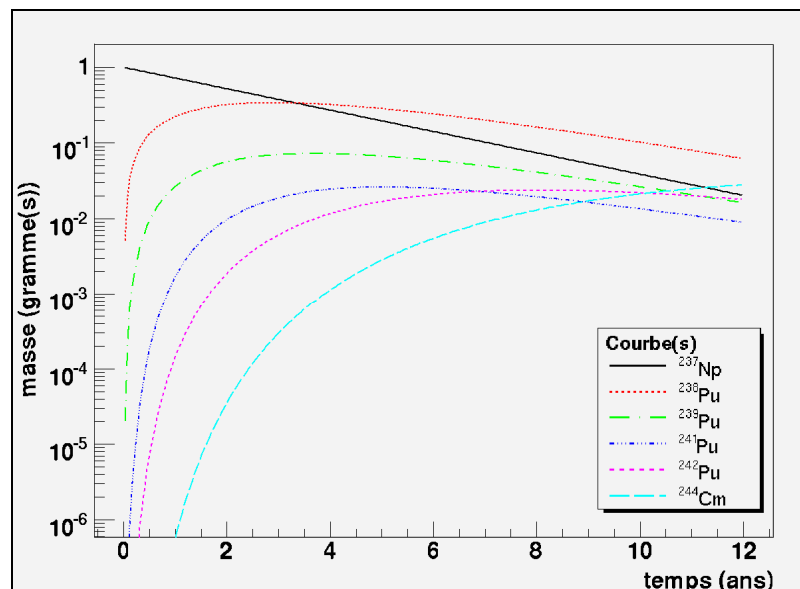


Figure 25 : Evolutions massiques des principaux actinides formés à partir de la transmutation d'un gramme de neptunium-237 dans un réacteur GT-MHR.

Toutefois, comme l'atteste la figure 23, malgré une participation conséquente de cet isotope dans le processus d'incinération, le ^{239}Pu reste tout de même l'actinide fissile dominant. En

début de cycle, celui-ci dépasse rapidement le taux de fission du ^{238}Np aux alentours du 30^e jour d'irradiation (~ 10 % d'incinération). Le reste de la masse qui n'est pas incinérée par ces deux actinides l'est finalement par le ^{241}Pu . Le ^{238}Pu participe également, mais à moindre échelle, bien que sa section efficace de fission se révèle ici supérieure à ce qu'elle était dans le cas du GT-MHR : $^{238}\text{Pu} \langle \sigma(n,f) \rangle = 11.47$ barns.

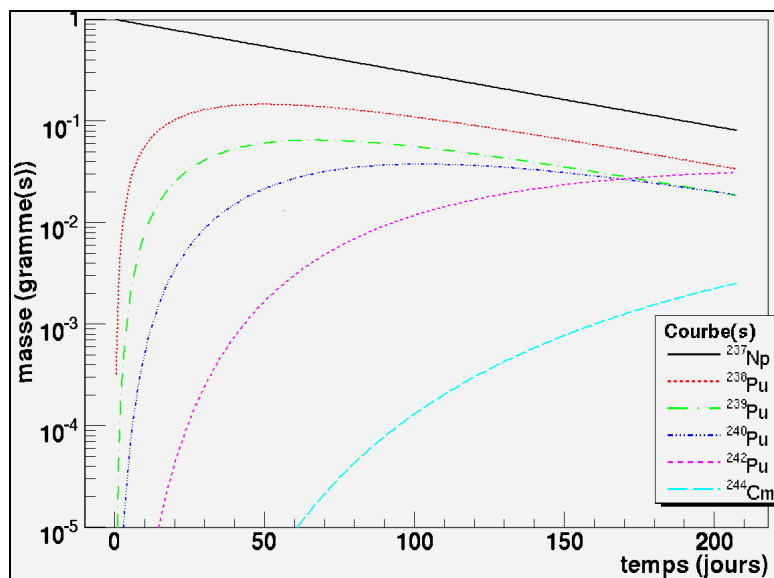


Figure 26 : Evolutions massiques des principaux actinides formés à partir de la transmutation d'un gramme de neptunium-237 dans un réacteur HI-HWR.

Au final, il faut noter que dans le cas de l'EFR et du GT-MHR, les taux de transmutation atteignent quasiment 100% en fin d'irradiation (41 et 11 ans, respectivement), alors qu'il n'est que de 92% dans le cas du HI-HWR au bout de 208 jours (cf. tableau 7).

Si on regarde les évolutions massiques (cf. figure 24 à figure 26), on s'aperçoit que le ^{237}Np se transmute essentiellement en ^{238}Pu qui émane de la décroissance β^- du ^{238}Np , puis en ^{239}Pu et ^{241}Pu , générés par captures neutroniques successives. Par ailleurs, dans le cas de l'EFR, une partie de la masse du ^{238}Pu ($T_{1/2} = 87.7$ ans) ainsi créée décroît sur l'uranium-234, du fait des temps d'irradiation particulièrement longs. Alors que dans le cas du GT-MHR et du HI-HWR, le parcours dans les chaînes neutroniques est plus important, du fait de la modulation, ce qui permet de former une quantité significative de curium-244. Près de 3 % de la matière initiale se retrouve dans cet actinide en fin de cycle pour le GT-MHR, alors qu'elle est notablement réduite pour le HI-HWR, du fait de l'action de l'incinération du ^{238}Np .

2.5.2 Potentiels radiotoxiques

Les potentiels radiotoxiques ont été calculés pour chaque cas d'incinération. La figure 27 montre un exemple d'évolution du potentiel radiotoxique global, dans le cas du GT-MHR, pour un gramme de neptunium-237. Bien que les évolutions du ^{238}Np du ^{239}Np aient été calculées correctement avec le module ROOT/MERCS, leurs masses ont été assimilées à celles de leurs noyaux fils respectifs (i.e. ^{238}Pu et ^{239}Pu). En effet, étant donné que ces deux isotopes sont définis à la fois par des durées de vie courtes ($T_{1/2} \sim 2$ jours), ainsi que par des radioactivités exclusivement β^- , ils ne constituent pas des menaces radiotoxiques dans les futurs colis de déchets (contrairement aux ^{238}Pu , ^{239}Pu). Quelques semaines de décroissance suffiront amplement à les faire disparaître complètement.

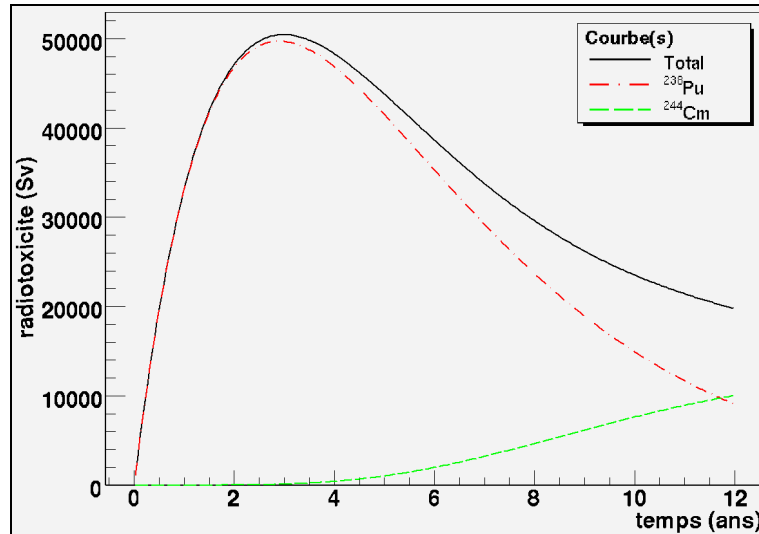


Figure 27 : Evolution du potentiel radiotoxique total d'un gramme de neptunium-237 irradié dans un réacteur GT-MHR. Les deux contributeurs majoritaires (en pointillés) sont également indiqués. Lors du tracé de ce graphique, la masse du ^{238}Np et celle du ^{239}Np ont été assimilées respectivement à celles du ^{238}Pu et du ^{239}Pu .

En conséquence de quoi, le potentiel radiotoxique global d'une cible de neptunium-237 est principalement dominé par celui du plutonium-238. Cet actinide qui est simultanément un émetteur alpha ($\alpha \sim 100\%$) et neutrons (S.F. $\sim 1.85 \cdot 10^{-7}\%$), possède une durée de vie de l'ordre du siècle ($T_{1/2} = 87.7$ ans), ce qui en fait un isotope particulièrement délicat à gérer dans l'aval du cycle.

Dans le cas de l'EFR, il atteint un maximum de 43 000 Sv/g au bout de dix ans d'irradiation (soit 25 % d'incinération), 50 000 Sv/g après 2.5 ans d'irradiation ($\sim 10\%$ de taux d'incinération) dans un GT-MHR, et 20 000 Sv/g après 50 jours (soit 20 % d'incinération) dans un HI-HWR. Cette valeur plus faible dans un HI-HWR est essentiellement liée à l'incinération du ^{238}Np qui limite la formation des masses supérieures.

Dans le cas du GT-MHR et de l'HI-HWR, on constate également une petite contribution du ^{244}Cm qui devient significative après 60 % d'incinération. Pour le GT-MHR, son potentiel radiotoxique finit par atteindre celui du ^{238}Pu ($\sim 10\,000$ Sv/g) en fin de cycle. En revanche, l'irradiation dans un réacteur HI-HWR amène une contribution du ^{244}Cm bien inférieure à celle du ^{238}Pu . En effet, même après 80 % d'incinération, le potentiel radiotoxique du ^{244}Cm ($\sim 1\,000$ Sv/g) est encore 5 fois inférieur à celui du ^{238}Pu ($\sim 5\,000$ Sv/g).

2.5.3 Activité α

De même que pour le potentiel radiotoxique, l'activité alpha provient majoritairement de celle du ^{238}Pu (cf. figure 28 à figure 30). Elle reste dominante sur tout le cycle, excepté pour le GT-MHR, où elle est rattrapée par le curium-244 vers 10 ans d'irradiation ($\sim 75\%$ d'incinération), qui, d'ailleurs, reste majoritaire jusqu'à la fin des 12 années d'irradiation (cf. figure 28).

De plus, pour ce type d'activité, le curium-242, est ici la seconde source d'émission α . Cet isotope de curium, dont la durée de vie est courte (i.e. $T_{1/2} = 162.8$ jours), provient essentiellement de la chaîne passant par la décroissance du plutonium-241 : $^{241}\text{Pu} \rightarrow$

$^{241,242}\text{Am} \rightarrow ^{242}\text{Cm}$. Les valeurs obtenues ici, surestiment probablement, la contribution réelle de ce noyau du fait de l'hypothèse d'irradiation continue. En effet, la prise en compte de temps de repos (e.g. changement de combustible, périodes de retraitement des cibles, etc.) peut faire rapidement disparaître cette participation. En fait, la plus grande fraction de l'énergie de sa décroissance sera évacuée dans le cœur du réacteur et la piscine de stockage plutôt que dans le colis de déchet final.

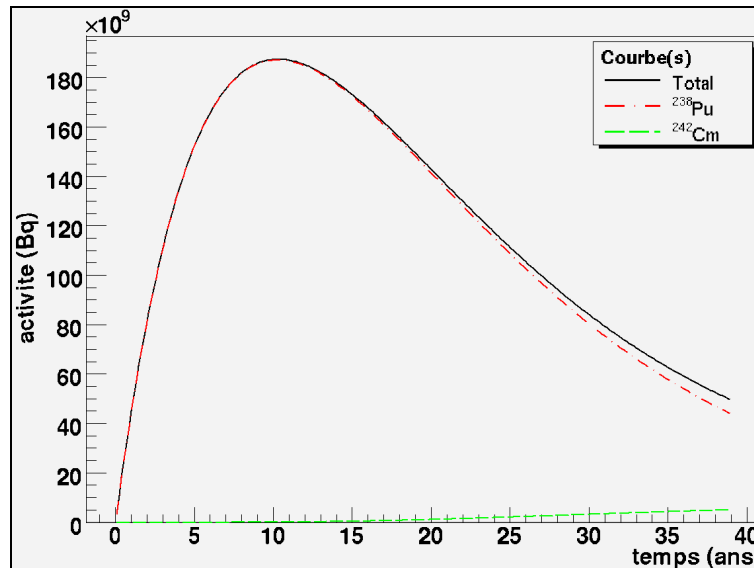


Figure 28 : Evolution de l'activité alpha globale d'un gramme de neptunium-237 irradié dans un réacteur EFR, ainsi que celles des contributeurs majoritaires (en pointillés).

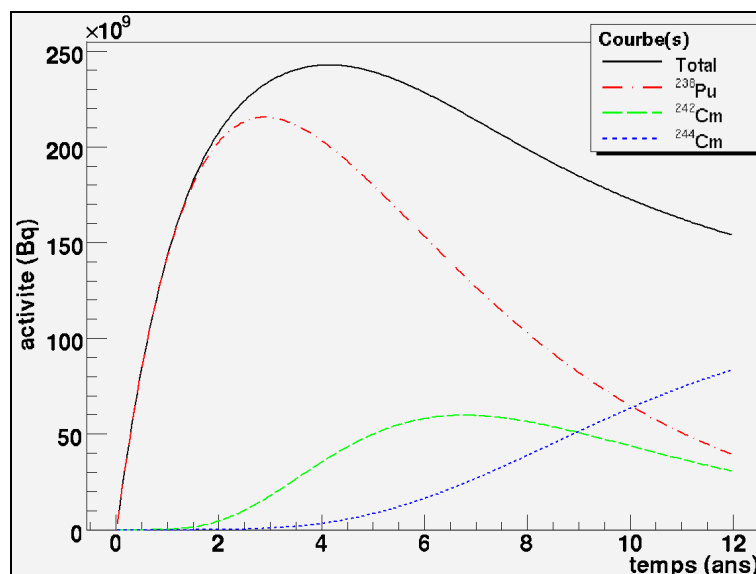


Figure 29 : Evolution de l'activité alpha globale d'un gramme de neptunium-237 irradié dans un réacteur GT-MHR, ainsi que celles des contributeurs majoritaires (en pointillés).

Au final, l'activité alpha marque un maximum d'émission aux alentours de 15 % d'incinération, avec une valeur proche de $2 \cdot 10^{11}$ Bq/g (Bq par gramme de ^{237}Np initial, $1\text{Bq/g} \sim 6.4 \cdot 10^{-10}$ W/kg pour un alpha de 4 MeV) pour l'EFR et le GT-MHR. Dans le cas du HI-HWR, les émissions des deux isotopes du curium (i.e. $^{242, 244}\text{Cm}$) restent en-deçà de celle du

^{238}Pu . De surcroît, l'activité α est environ deux à trois fois plus faible que celles calculées précédemment. Elle présente une valeur maximale voisine de 10^{11} Bq/g (~ 64 W/kg).

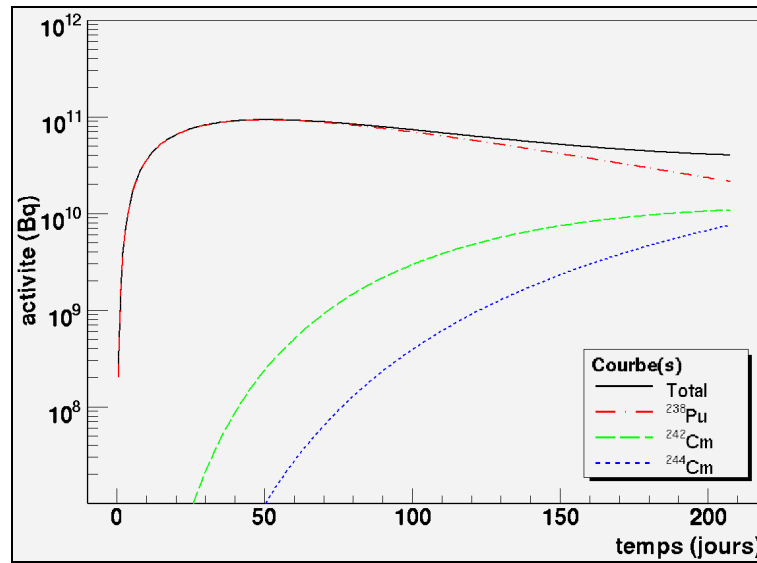


Figure 30 : Evolution de l'activité alpha globale d'un gramme de neptunium-237 irradié dans un réacteur HI-HWR, ainsi que celles des contributeurs majoritaires (en pointillés).

2.5.4 Activité fission spontanée (FS)

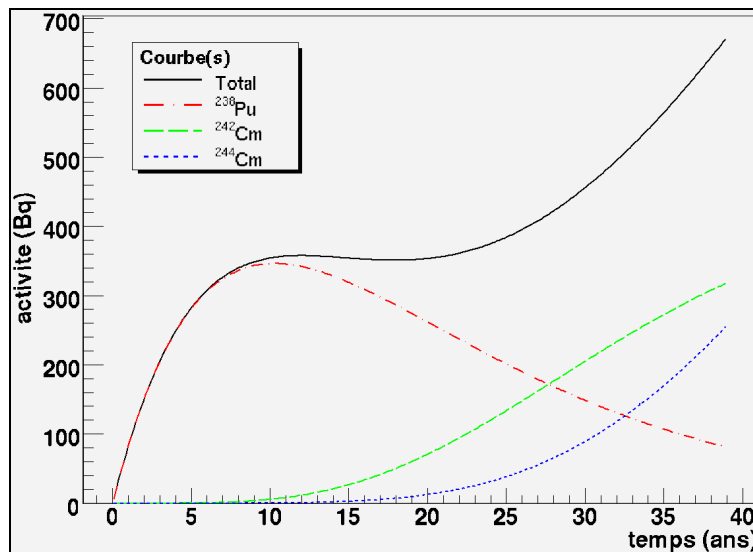


Figure 31 : Evolution de l'activité fission spontanée globale d'un gramme de neptunium-237 irradié dans un réacteur EFR, ainsi que celles des contributeurs majoritaires (en pointillés).

Dans le cas d'un EFR, ce deuxième type d'activité est aussi dominé par le ^{238}Pu (cf. figure 31). Néanmoins, contrairement aux cas de l'activité α et du potentiel radiotoxique, ce noyau finit par être surpassé par les activités du ^{242}Cm et du ^{244}Cm , respectivement au bout de 27 ans et 33 ans d'irradiations. La raison de ce dépassement provient à la fois des durées de vie plus courtes, mais aussi des probabilités plus élevées de fissions spontanées de ces deux isotopes : $^{238}\text{Pu} \sim 1.85 \cdot 10^{-7} \%$, $^{242}\text{Cm} \sim 6.37 \cdot 10^{-6} \%$ et $^{244}\text{Cm} \sim 1.371 \cdot 10^{-4} \%$. En conséquence de quoi, l'activité F.S. globale connaît un moment de stagnation entre 10 et 20 ans d'irradiation, avant de remonter pour atteindre une valeur maximale proche de 690 Bq/g ($1 \text{ Bq/g} \sim 3.2 \cdot 10^{-8} \text{ W/g}$,

pour 200 MeV d'énergie déposée) en fin de cycle.

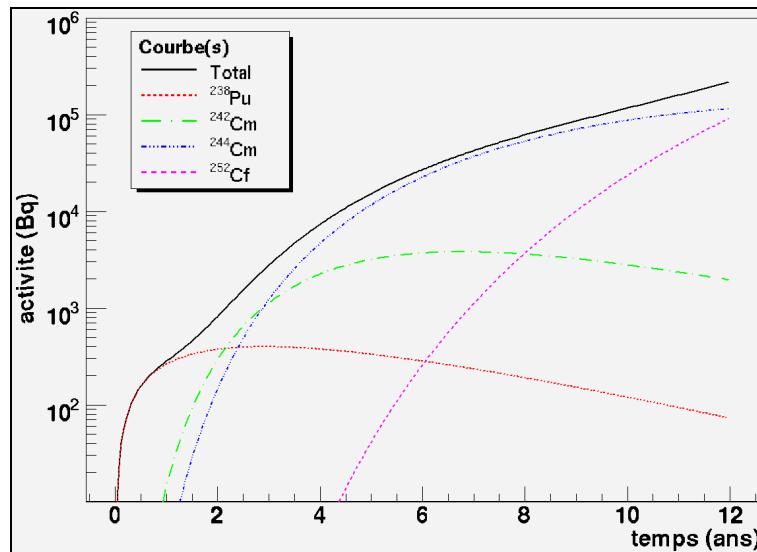


Figure 32 : Evolution de l'activité fission spontanée globale d'un gramme de neptunium-237 irradié dans un réacteur GT-MHR, ainsi que celles des contributeurs majoritaires (en pointillés).

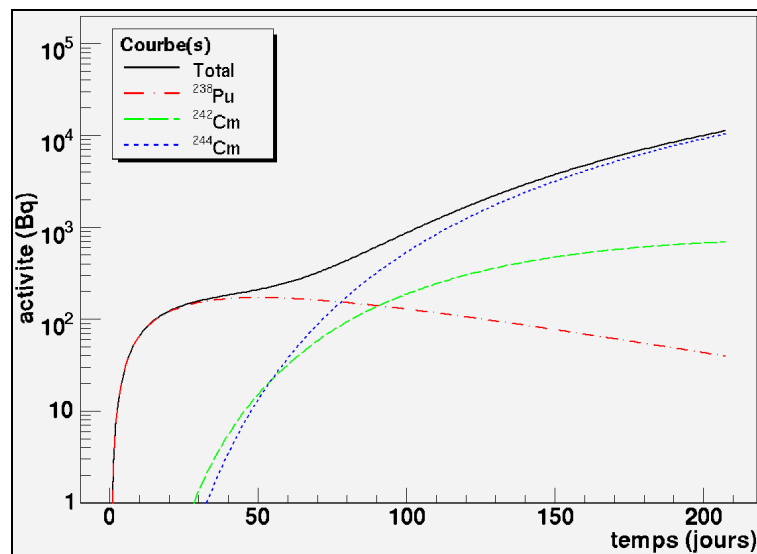


Figure 33 : Evolution de l'activité fission spontanée globale d'un gramme de neptunium-237 irradié dans un réacteur HI-HWR, ainsi que celles des contributeurs majoritaires (en pointillés).

A contrario, dans les cas GT-MHR et HI-HWR, l'actinide dominant n'est plus ici le ^{238}Pu mais le ^{244}Cm (cf. figure 32 et figure 33). En effet, l'activité du ^{238}Pu est rapidement dépassée par celles des deux isotopes du curium : ^{242}Cm , ^{244}Cm , aux environs de 10% du taux d'incinération pour le GT-MHR, et 40% pour le HI-HWR. La raison en est bien entendu leur formation favorisée par la modulation du spectre, ainsi que leur probabilité de fission spontanée plus grande et leur durée de vie plus courte. Le ^{244}Cm reste, par la suite, le noyau émetteur dominant, bien qu'il soit rattrapé par le ^{252}Cf en fin de cycle, dans le cas du GT-MHR.

L'activité de ce dernier se manifeste rapidement au-delà de 4 ans d'irradiation (30 % d'incinération). Cet actinide qui provient de la longue chaîne de transmutation suivante :

$^{237}\text{Np} \rightarrow ^{244, 245, 246, 247, 248, 249}\text{Cm} \rightarrow ^{249, 250}\text{Bk} \rightarrow ^{249, 250, 251, 252}\text{Cf}$, est défini par une durée de vie ($T_{1/2} = 2.645$ ans) encore plus courte que celle du curium-244 ($T_{1/2} = 18.1$ ans) et possède une probabilité de fission spontanée particulièrement forte : 3.092 %. C'est pourquoi, malgré son fort éloignement vis-à-vis du neptunium-237, une très faible quantité de ce dernier peut se révéler suffisante pour que son activité F.S. puisse devenir significative. A titre d'illustration, sa masse à la fin des douze années vaut : $1.5 \cdot 10^{-7}$ g (par gramme de ^{237}Np initial).

On peut constater que l'activité globale de fission pour le HI-HWR est dix fois moins élevée que celle du GT-MHR, bien qu'elle reste dix fois plus élevée que celle d'un EFR. La comparaison avec le scénario GT-MHR montre, une nouvelle fois, les bénéfices des hauts flux thermiques qui coupent la chaîne de transmutation (fission du ^{238}Np et du ^{245}Cm) atténuant de manière significative la formation du ^{252}Cf , dont l'activité F.S. n'est plus un facteur majeur dans ce cas.

2.6 Transmutation de l'américium-241

2.6.1 Etude du flot de matière

Dans le cas de l'américium-241, l'étude du flot de matière est un peu plus complexe que pour le neptunium-237. Il dépend énormément du flux choisi et donc du scénario. C'est pourquoi, dans la suite du texte nous avons conservé une étude détaillée par cas de scénario choisi.

2.6.1.1 Réacteur EFR

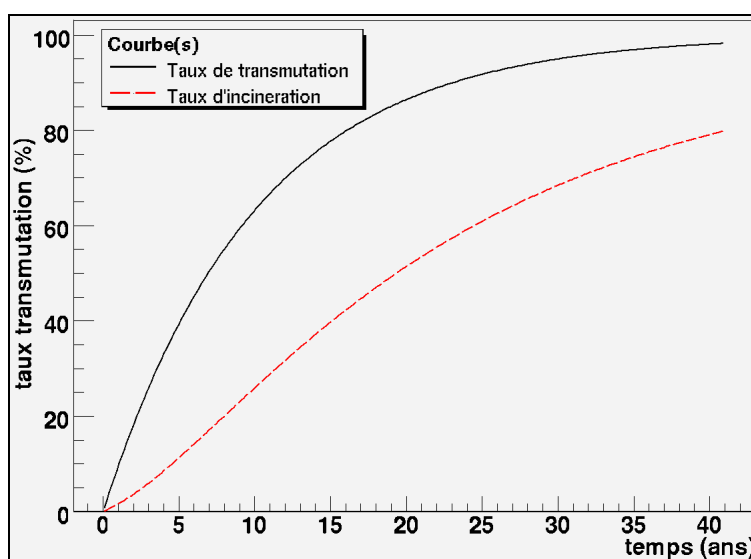


Figure 34 : Evolution du taux d'incinération et de transmutation de l'américium-241 irradié dans un réacteur EFR.

Le taux d'incinération de l'américium-241 dans un réacteur EFR croît linéairement durant les vingt premières années (~ 2.5 %/an), avant de ralentir peu à peu sa progression jusqu'à atteindre 80 % au bout de 41 années d'irradiation (cf. figure 34). Le premier contributeur au processus d'incinération est en fait le ^{241}Am qui brûle près d'un sixième de la masse totale transmutée (cf. figure 35). Le reste sera fissionné en grande partie par l'état isomère du ^{242}Am (i.e. ^{242m}Am) et par le ^{238}Pu . Ce dernier est formé par la chaîne de décroissance suivante : $^{242g}\text{Am} \rightarrow ^{242}\text{Cm} \rightarrow ^{238}\text{Pu}$. Etant donné que le rapport d'embranchement isomérique de l'américium-241 (i.e. ^{241}Am i.b.r.(n, γ)) vaut 75 % dans le spectre considéré, une bonne partie de la matière transmutée se dirige vers le ^{238}Pu , puis vers les isotopes de masse plus élevée du

plutonium (cf. figure 36). En effet, le ^{239}Pu arrive en renfort pour finir d'éliminer la matière qui n'a pas été brûlée par son parent neutronique.

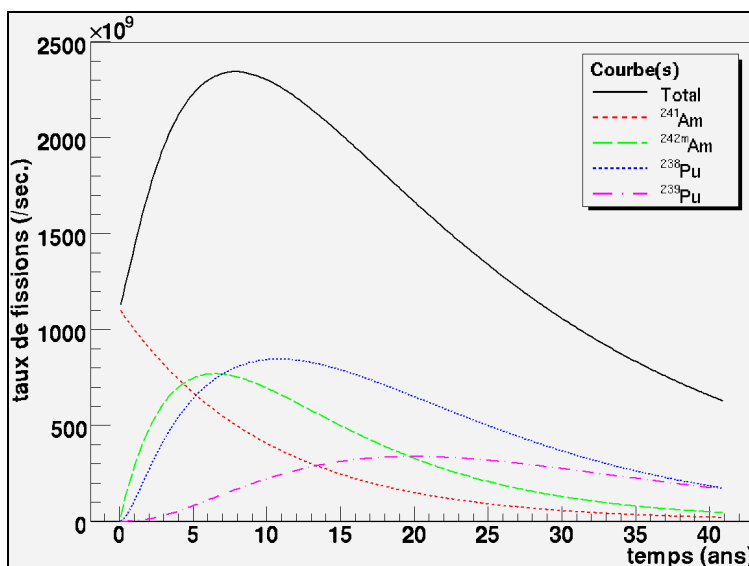


Figure 35 : Evolution du taux de fissions global d'un gramme de l'américium-241 irradié dans un réacteur EFR, ainsi que celles des contributeurs majeurs (en pointillés).

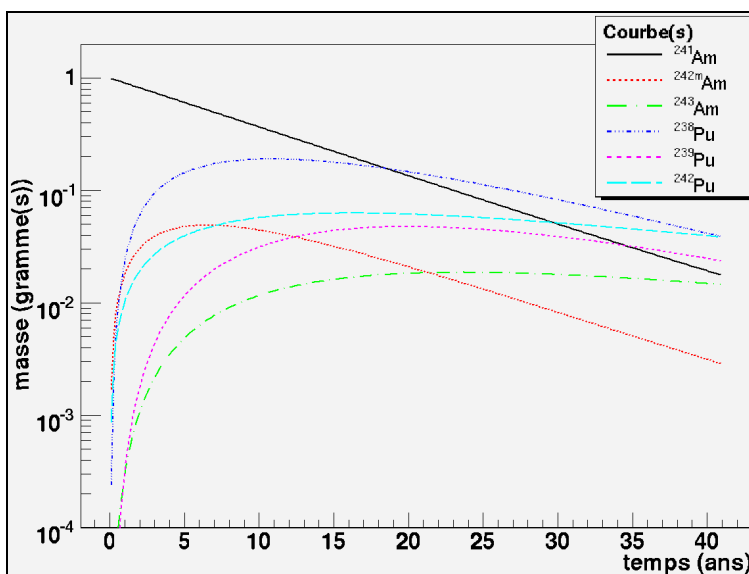


Figure 36 : Evolutions massiques des principaux actinides formés à partir de la transmutation d'un gramme d'américium-241 dans un réacteur EFR.

Tandis que le ^{238}Pu et le ^{242}Cm sont alimentés par la décroissance β^- (82.7 %) du ^{242g}Am , le ^{242}Pu provient de la décroissance β^+ (17.3 %). Par ailleurs, le ^{242}Pu est à l'origine de la formation du ^{243}Am avec le ^{242m}Am , via la décroissance β^- du ^{243}Pu ($T_{1/2} = 4.956$ heures).

2.6.1.2 Réacteur GT-MHR

Contrairement au cas EFR, le taux de transmutation sature rapidement, en moins de 3 ans (~ 30 % d'incinération), alors qu'il faut plus de 11 ans au taux d'incinération pour atteindre la valeur de 80 % (cf. figure 37). Cette dégradation provient essentiellement des effets de la

modération qui favorise les réactions de capture aux dépens des réactions de fission. Malgré cela, le ^{242m}Am fissile récolte ici 20 % de la masse de ^{241}Am transmutée, et reste donc un noyau incinérateur majeur (cf. figure 38). Le taux de fissions de ce noyau est prépondérant durant les deux premières années d'incinération, avant d'être rattrapé par le ^{239}Pu . La variation abrupte de taux de fission qu'il est possible de constater durant ce laps de temps s'explique à travers l'épuisement rapide de l'américium-241 (cf. figure 39), ainsi que la section efficace d'absorption importante du ^{242m}Am .

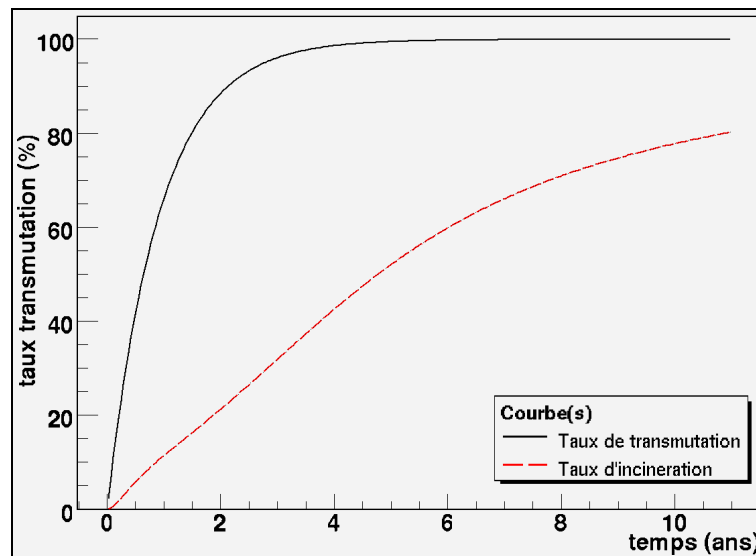


Figure 37 : Evolution du taux d'incinération et de transmutation de l'américium-241 irradié dans un réacteur GT-MHR.

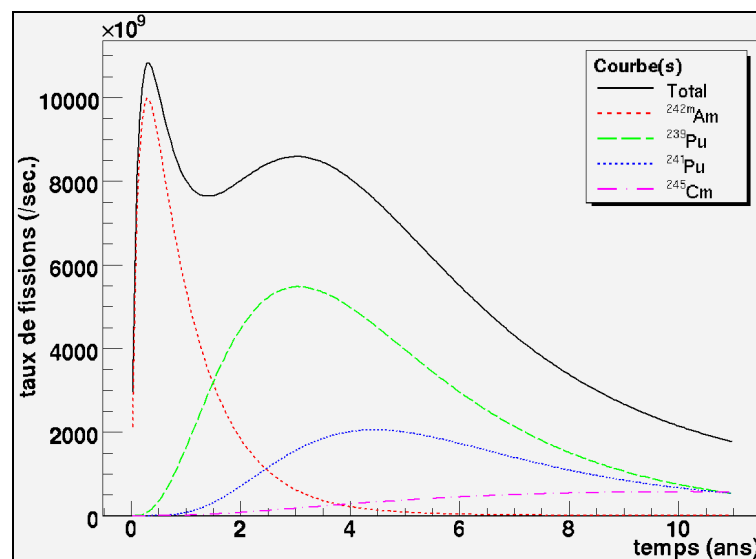


Figure 38 : Evolution du taux de fissions global d'un gramme d'américium-241 irradié dans un réacteur GT-MHR, ainsi que celles des contributeurs majoritaires (en pointillés).

Le ^{239}Pu et le ^{241}Pu prennent le relais du ^{242m}Am , après avoir attendu la descente de la masse accumulée dans le ^{242}Cm . Leurs taux de fissions respectifs parviennent à un maximum au environ de 3 et 4 ans d'irradiation. Ces deux isotopes sont finalement rejoints par le ^{245}Cm . Ce dernier forme un bon complément du fait que sa section efficace de fission est 6.5 fois plus

grande que celle de capture : $^{245}\text{Cm} \sigma(n,\gamma) = 35.52$ barns et $^{245}\text{Cm} \sigma(n,f) = 229.52$ barns.

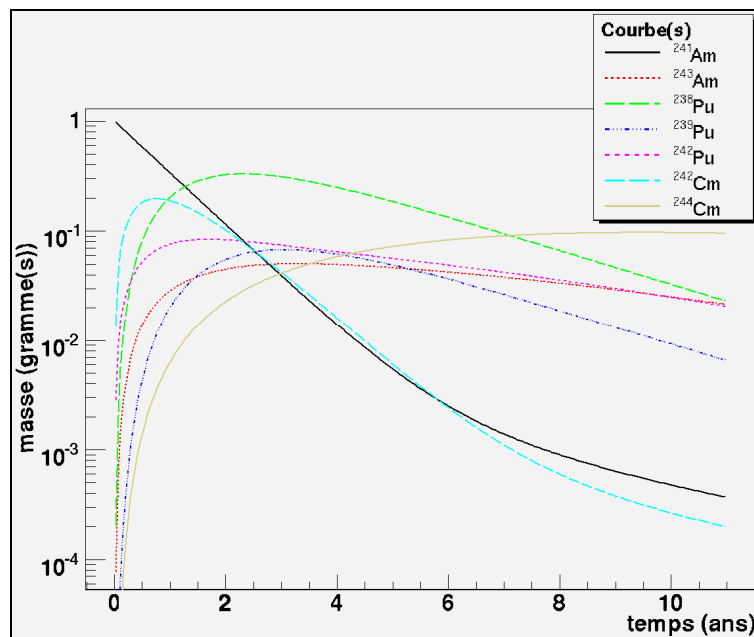


Figure 39 : Evolutions massiques des principaux actinides formés à partir de la transmutation d'un gramme d'américium-241 dans un réacteur GT-MHR.

Bien que le chemin de transmutation suivis par la matière nucléaire soit similaire à celui décrit dans le cas EFR, le parcours de ce dernier est plus important dans les spectres thermiques HI-HWR et GT-MHR (cf. figure 39). Ceci est particulièrement remarquable pour le ^{243}Am et le ^{244}Cm , pour lesquels apparaît un facteur deux et dix supérieurs en comparaison avec les concentrations calculées dans le spectre EFR (cf. figure 36). Ainsi, le curium-244 finit par accumuler près de 10 % de la masse initiale en fin de cycle.

2.6.1.3 Réacteur HI-HWR

Dans ce dernier scénario, le taux de transmutation sature encore plus rapidement, à savoir en moins de 100 jours (~ 30 % d'incinération), alors que le taux d'incinération met 7 fois plus de temps pour atteindre la valeur de 80 % (cf. figure 40). Cette différence émane bien entendu de la plus grande modération du spectre, mais aussi du pouvoir de rétention du ^{242}Cm sur la matière nucléaire qui se dirige vers la chaîne des isotopes de plutonium.

En effet, cet actinide est caractérisé par une durée de vie de l'ordre d'une demi-année, ce qui n'est plus négligeable ici du fait des temps d'irradiation considérés, mais aussi par des sections efficaces d'absorption particulièrement faibles : $^{242}\text{Cm} \langle \sigma(n,\gamma) \rangle = 13.17$ barns et $^{242}\text{Cm} \langle \sigma(n,f) \rangle = 2.10$ barns. Néanmoins, grâce à l'action du flux de neutrons intense, une partie du ^{242}Cm réussit tout de même à transiter vers le ^{243}Cm fissile et ainsi à participer au processus d'incinération (cf. figure 41).

Néanmoins, les noyaux fissiles dominants restent le ^{239}Pu et le ^{241}Pu , avec également les deux états (i.e. fondamental et isomère) du ^{242}Am qui contribuent principalement durant les 50 premiers jours. Il est d'ailleurs intéressant de remarquer que dans les conditions choisies, ces deux états possèdent des taux de fissions similaires, malgré la durée de vie courte du ^{242g}Am ($T_{1/2} = 16.02$ heures). Celle-ci est effectivement compensée par les taux de fissions importants et par le rapport d'embranchement isomérique de 1^{241}Am qui envoie plus de 90 %

de la matière transmutée en direction de cet isotope.

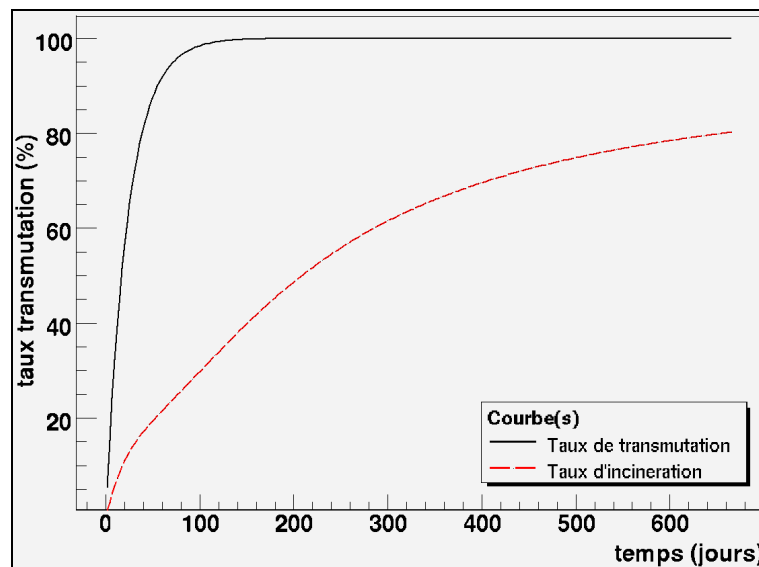


Figure 40 : Evolution du taux d'incinération et de transmutation de l'américium-241 irradié dans un réacteur HI-HWR.

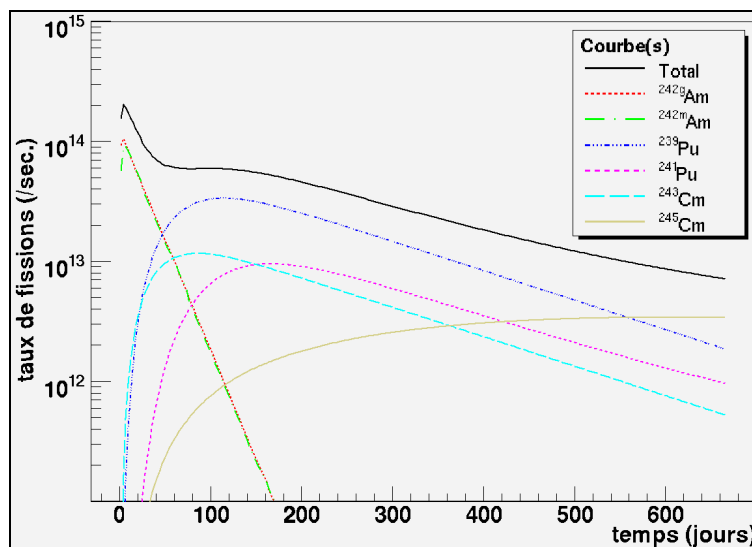


Figure 41 : Evolution du taux de fissions global d'un gramme d'américium-241 irradié dans un réacteur HI-HWR, ainsi que celles des contributeurs majoritaires (en pointillés).

Pour finir, le ^{245}Cm participe également au taux de fissions en fin de cycle. Malgré la plus forte modération du spectre, ce dernier reste un noyau fissile attrayant avec une section efficace de fissions près de cinq fois plus grande que celle de capture. Toutefois, ce constat est à mettre en balance avec le fait que la matière qui n'est pas incinérée par ce noyau se dirige vers la chaîne des isotopes de californium.

2.6.2 Potentiel radiotoxique

2.6.2.1 Réacteur EFR

Durant l'irradiation dans un réacteur EFR, le potentiel radiotoxique de l'américium-241 chute

en corrélation avec l'évolution de son taux de transmutation (cf. figure 42), tandis que celui du ^{242}Cm se développe rapidement.

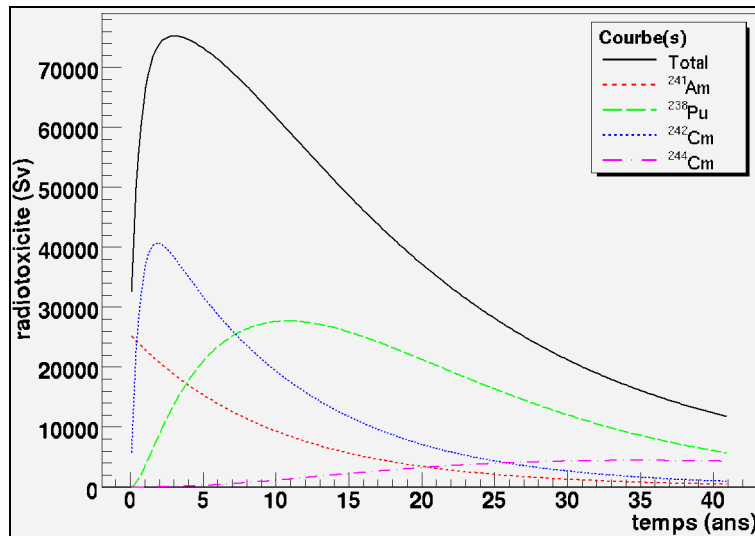


Figure 42 : Evolution du potentiel radiotoxique global d'un gramme d'américium-241 irradié dans un réacteur EFR, ainsi que celles des contributeurs majoritaires (en pointillés).

Du fait de sa courte durée de vie, ce dernier atteint un maximum de 40 000 Sv/g aux alentours de la 2^e année d'irradiation. Ceci n'est bien évidemment valable que dans le cadre d'une irradiation continue. En effet, si des périodes de repos sont présentes durant le cycle, un transfert plus rapide en direction du ^{238}Pu aura effectivement lieu. De plus, cet isotope de plutonium représente le véritable principal contributeur à moyen et long terme du potentiel radiotoxique. Il atteint un maximum à 30 000 Sv/g vers la 10^e année d'irradiation. Il restera d'ailleurs dominant jusqu'à la fin du cycle, et ce, malgré la constante progression du ^{244}Cm .

2.6.2.2 Réacteur GT-MHR et HI-HWR

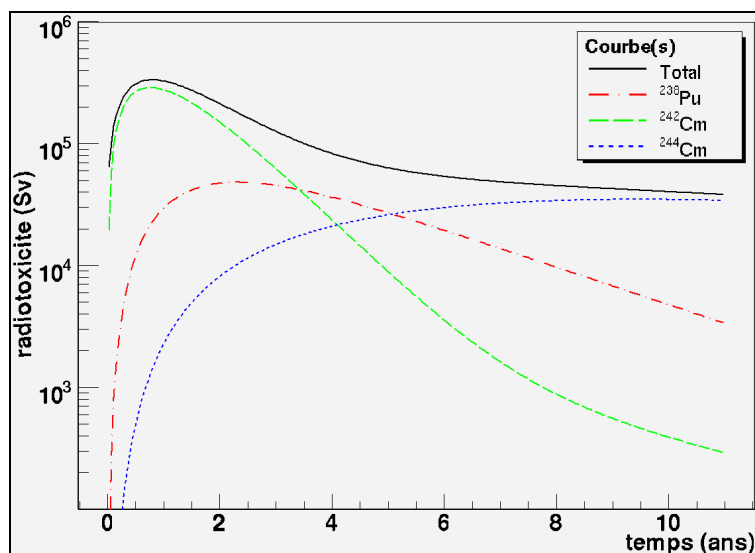


Figure 43 : Evolution du potentiel radiotoxique global d'un gramme d'américium-241 irradié dans un réacteur GT-MHR, ainsi que celles des contributeurs majoritaires (en pointillés).

Le ^{238}Pu et les $^{242}, ^{244}\text{Cm}$ sont les noyaux dont les potentiels radiotoxiques sont les plus

importants lors de l'incinération de l' ^{241}Am dans les flux thermiques GT-MHR et HI-HWR (cf. figure 43). A la différence du cas EFR, le ^{244}Cm est ici particulièrement significatif. Ici, son potentiel radiotoxique croissant finit par dépasser ceux des deux autres noyaux : ^{238}Pu et ^{242}Cm et atteint une valeur proche de 40 000 Sv/g en fin de cycle. En outre, du fait des durées de vie plus courte, le ^{242}Cm se révèle plus pénalisant pour le spectre thermique intense HI-HWR que celui du GT-MHR. Il constitue une réserve conséquente de futur ^{238}Pu . Aussi, la présence de périodes de repos est particulièrement bénéfique pour permettre un meilleur transfert en direction de la chaîne des isotope du plutonium, et notamment des deux noyaux fissiles : $^{239},^{241}\text{Pu}$.

2.6.3 Activité α

2.6.3.1 Réacteur EFR

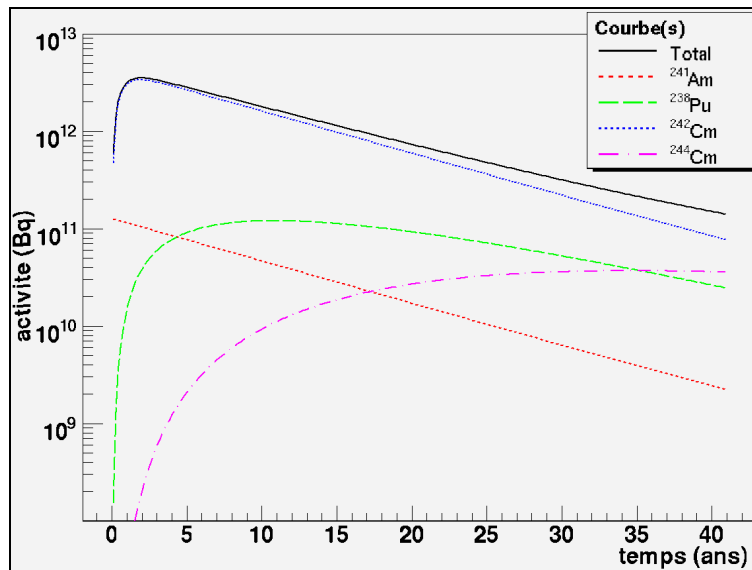


Figure 44 : Evolution de l'activité alpha globale d'un gramme d'américium-241 irradié dans un réacteur EFR, ainsi que celles des contributeurs majoritaires (en pointillés).

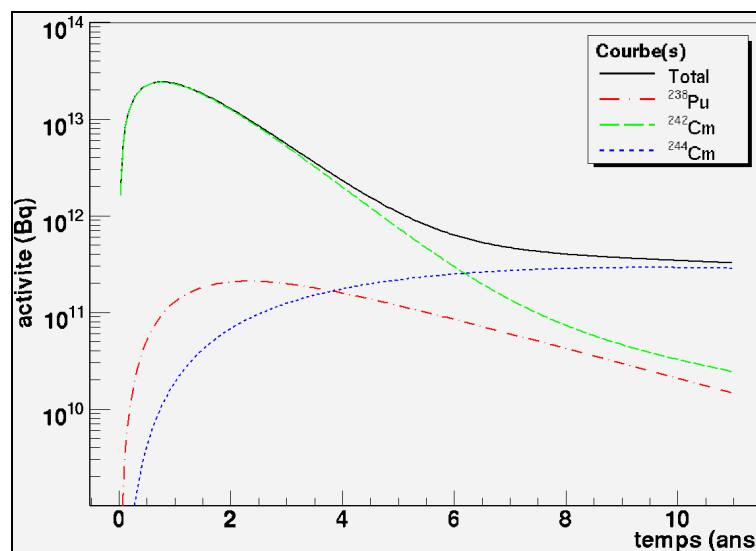


Figure 45 : Evolution de l'activité alpha globale d'un gramme d'américium-241 irradié dans un réacteur GT-MHR, ainsi que celles des contributeurs majoritaires (en pointillés).

L'activité alpha globale dégagée durant l'incinération dans un réacteur EFR est prédominée essentiellement par celles du ^{242}Cm et du ^{238}Pu , les activités de ces deux noyaux étant bien évidemment corrélées entre elles (cf. figure 44). Par ailleurs, la montée rapide du ^{244}Cm apporte une contribution non-négligeable à cette activité. Ce dernier parvient notamment à une valeur de $4 \cdot 10^{10}$ Bq/g en fin de cycle. Par conséquent, ce dernier constituera clairement avec le ^{238}Pu les deux sources d'échauffement principales (en ce qui concerne les actinides mineurs) dans les futurs colis de déchets issus de ce processus de transmutation.

2.6.3.2 Réacteur GT-MHR et HI-HWR

De manière identique pour le spectre EFR, l'activité α dans les cas GT-MHR et HI-HWR est conduite également par les trois actinides : ^{238}Pu et $^{242}, ^{244}\text{Cm}$ (cf. figure 45). De plus, de la même façon que pour le potentiel radiotoxique, le ^{244}Cm a ici plus de poids. Son activité α dépasse très rapidement celles du ^{238}Pu et du ^{242}Cm après respectivement 40 et 60 % d'incinération dans un réacteur GT-MHR et finit par atteindre un maximum de $3 \cdot 10^{11}$ Bq/g en fin de cycle, ce qui équivaut à une puissance de 280 W/kg.

2.6.4 Activité fission spontanée

2.6.4.1 Réacteur EFR

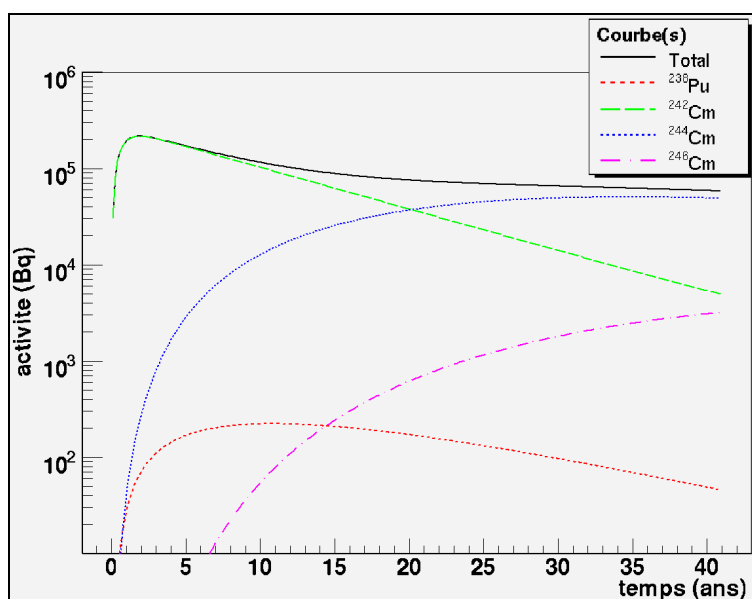


Figure 46 : Evolution de l'activité fission spontanée globale d'un gramme d'américium-241 irradié dans un réacteur EFR, ainsi que celles des contributeurs majoritaires (en pointillés).

Lors de l'incinération de l' ^{241}Am dans le spectre rapide du réacteur EFR, le ^{242}Cm représente en début de cycle une part importante de l'activité fission spontanée et de l'émission neutrons qui en découle. En revanche, le ^{238}Pu est ici beaucoup moins significatif bien que sa participation ne soit pas négligeable. Son maximum n'est que de quelques centaines de becquerels par gramme qu'il n'atteint qu'aux alentours de la 10^e année. Il est d'ailleurs rapidement surpassé par les activités des deux isotopes du curium : $^{244}, ^{246}\text{Cm}$.

Le ^{244}Cm est ici la source d'activité long terme dominante, avec notamment un maximum de l'ordre de $4 \cdot 10^{10}$ Bq/g vers la fin du cycle. En ce qui concerne le ^{246}Cm , celui-ci réussit à se manifester grâce, plus particulièrement, à sa probabilité de fission spontanée (i.e. 0.0263 %),

qui lui permet de contrecarrer sa durée de vie ($T_{1/2} = 4730$ années) bien plus longue que celles des autres noyaux cités ci-dessus. Il finit d'ailleurs par atteindre une valeur de l'ordre de $3\,200$ Bq/g au bout de 80% d'incinération.

2.6.4.2 Réacteur GT-MHR et HI-HWR

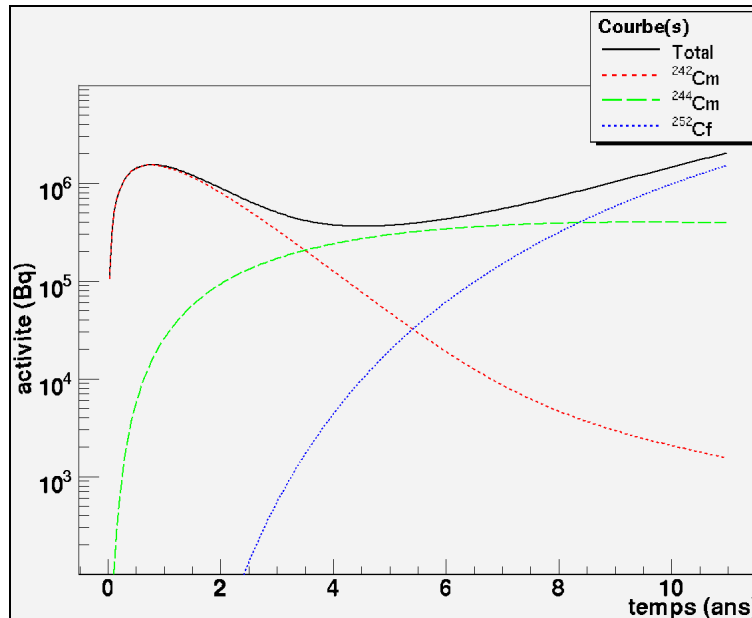


Figure 47 : Evolution de l'activité fission spontanée globale d'un gramme d'américium-241 irradié dans un réacteur GT-MHR, ainsi que celles des contributeurs majoritaires (en pointillés).

Dans les spectres thermiques GT-MHR et HI-HWR, la présence du ^{238}Pu n'est plus significative. En effet, l'activité de ce dernier est très en deçà de celles des $^{242}, ^{244}\text{Cm}$ et du ^{252}Cf (cf. figure 47). Ces actinides, dont les interventions se situent respectivement en début, milieu et fin de cycle, génèrent une activité globale comprise entre $3\,10^5$ Bq/g et 10^7 Bq/g. A l'instar de l'incinération du ^{237}Np , le ^{252}Cf est alimenté via la très longue chaîne de transmutation passant par le ^{244}Cm : $^{244}, ^{245}, ^{246}, ^{247}, ^{248}\text{Cm} \rightarrow ^{249}, ^{250}\text{Bk} \rightarrow ^{249}, ^{250}, ^{251}, ^{252}\text{Cf}$, ce qui explique une fois de plus, son intervention tardive. Il constitue néanmoins une source d'émission de neutrons non-négligeable.

2.7 Variables choisies pour l'étude sur l'impact des données nucléaires

Cette première partie de l'étude avait pour objectif de suivre l'évolution des variables que nous nous étions fixées (potentiel de radiotoxicité, activité alpha et fission spontanée) afin d'en identifier les principaux contributeurs, dans les différents cas de réacteurs étudiés. Nous avons pu constater que les flux thermiques favorisent la formation des noyaux radiotoxiques, sauf dans le cas de la transmutation du ^{237}Np où les flux intenses limitent fortement l'alimentation de ces derniers grâce à la contribution de la fission du ^{238}Np .

D'autre part, nous avons également constaté que seul un nombre réduit d'actinide a une forte participation aux différentes grandeurs radiotoxiques, à savoir : ^{238}Pu , ^{242}Cm et ^{244}Cm . On note également la présence du ^{252}Cf (GT-MHR : ^{237}Np et ^{241}Am , HI-HWR : ^{241}Am) et du ^{246}Cm (EFR : ^{241}Am) dans certains cas particuliers. C'est la raison pour laquelle, l'étude sur l'impact des incertitudes des données nucléaires s'est préférentiellement portée sur la formation de ces noyaux plutôt que sur les évolutions des variables intégrales. Cette approche

se révèle d'ailleurs plus intéressante en raison des hypothèses de calculs adoptées. En effet, en s'appuyant sur les réactions de formation et de disparition des actinides les plus importants, les conclusions deviennent moins dépendantes du cycle d'irradiation simulé.

Par ailleurs, en dehors de ces différents noyaux radiotoxiques, les impacts des incertitudes des données nucléaires seront aussi analysés sur l'évolution des taux d'incinération et de transmutation, du fait de l'importance de ces variables pour quantifier l'efficacité des processus.

Chapitre 3

Résultats et analyse de l'étude

Dans le chapitre précédent, nous avons exposé le cadre général de l'étude où nous avons mis en avant le choix des observables et des scénarios étudiés, ainsi que les outils de modélisation. En analysant l'évolution des deux actinides, ^{237}Np et ^{241}Am , dans les trois réacteurs choisis (EFR, GT-MHR et HI-HWR), nous avons pu mettre en évidence la complexité des chaînes de transmutation et d'incinération mais également quels isotopes pouvaient avoir un rôle majeur dans les observables choisies : radiotoxicité, activité alpha et fission spontanée.

Dans ce chapitre, nous présentons les résultats de l'étude réalisée sur l'impact des erreurs contenues dans les bases de données, sur la transmutation et l'incinération de cibles de ^{237}Np et d' ^{241}Am . Ces incertitudes ont pu être propagées sur les différentes variables d'intérêt pour la transmutation grâce au logiciel MERCUS qui calcule les coefficients de sensibilité. Bien que ces valeurs ne soient que des estimations des véritables erreurs, elles permettent néanmoins de quantifier ces dernières et de faire ressortir les paramètres ayant le plus d'impact.

3.1 Variables étudiées

Suite aux observations effectuées dans le chapitre précédent sur les évolutions des grandeurs d'intérêt que nous avons choisies pour la transmutation du ^{237}Np et de l' ^{241}Am , seuls quelques noyaux contribuent significativement. En conséquence de quoi, l'impact des incertitudes n'a été étudié que sur les variables suivantes :

- dans tous les scénarios : les évolutions du ^{238}Pu , du ^{242}Cm et du ^{244}Cm du fait de leurs contributions notables au potentiel radiotoxique et aux activités α et fission spontanée.
- dans le scénario EFR uniquement et pour l' ^{241}Am : l'évolution du ^{246}Cm , étant donné sa participation dans l'activité fission spontanée de ce scénario.
- dans les scénarios GT-MHR et HI-HWR uniquement : l'évolution du ^{252}Cf , de par sa contribution dans l'activité fission spontanée de ces deux scénarios. Dans le cas de la transmutation du ^{237}Np , celui-ci ne contribue que pour le GT-MHR.

Dans chaque cas, seules les incertitudes principales seront présentées et analysées, c'est-à-dire celles qui contribuent le plus à l'incertitude totale. Cette dernière est calculée selon la somme quadratique des incertitudes engendrées par la totalité des paramètres (minoritaires). De plus, du fait de leur relative similarité, les résultats obtenus pour les spectres thermiques GT-MHR et HI-HWR ont été regroupés afin de faciliter la lecture.

3.2 Impact des incertitudes sur la transmutation du ^{237}Np

3.2.1 Taux de transmutation

3.2.1.1 Réacteur EFR

Le taux de transmutation n'étant uniquement lié qu'à l'évolution du ^{237}Np initial, cette variable est donc exclusivement dépendante de ses paramètres de disparition, à savoir : la section efficace d'absorption (capture et fission) et sa constante de décroissance. La durée de

vie de ce noyau étant très grande, seules les sections efficaces de capture et fission contribuent à l'erreur globale, qui n'est ici que de quelques pourcents.

Tableau 8 : valeurs des coefficients de sensibilité (colonne de gauche, en %/%) et des erreurs relatives (colonne de droite, en %) des paramètres nucléaires participant majoritairement à l'incertitude associée au potentiel de transmutation du ^{237}Np irradié dans le spectre EFR.

taux d'incinération	20 %		40 %		60 %		80 %	
$^{237}\text{Np} \sigma(n,\gamma)$	0.52 %/%	5.25 %	0.35 %/%	3.54 %	0.20 %/%	2.04 %	0.08 %/%	0.79 %
$^{237}\text{Np} \sigma(n,f)$	0.11 %/%	1.37 %	0.07 %/%	0.92 %	0.04 %/%	0.53 %	0.02 %/%	0.21 %
incertitude globale		5.42 %		3.66 %		2.11 %		0.82 %

En outre, il est intéressant de remarquer que cette erreur globale chute rapidement au fur et à mesure que le taux se rapproche de sa limite de 100 %. Un tel phénomène peut être expliqué par le fait que plus cette variable converge et moins elle est sensible aux paramètres qui dirigent son évolution et donc à leurs incertitudes. En d'autres termes, les valeurs de ces paramètres ne font que contrôler la vitesse à laquelle le potentiel tend vers sa limite.

De plus, l'erreur générée par la section efficace de fission est d'ailleurs quatre fois plus petite que celle provenant de la section efficace de capture. Ce rapport respecte notamment les importances relatives de ces deux paramètres dans la section efficace d'absorption totale.

3.2.1.2 Réacteur GT-MHR et HI-HWR

Les potentiels de transmutation du ^{237}Np irradié dans les réacteurs GT-MHR et HI-HWR sont aussi affectés par des incertitudes très faibles, de l'ordre de quelques pourcents (cf. tableau 9). De par la modération plus importante du spectre, seule la section efficace de capture du ^{237}Np contribue aux erreurs. De plus, comme expliqué précédemment, les coefficients de sensibilité et les incertitudes chutent effectivement de manière corrélée avec la convergence des potentiels vers leur limite.

Tableau 9 : valeurs des coefficients de sensibilité et des erreurs (relatives, en %) des paramètres nucléaires participant majoritairement à l'incertitude associée au potentiel de transmutation du ^{237}Np irradié dans les spectres GT-MHR et HI-HWR.

	taux d'incinération	20 %		40 %		60 %		80 %	
GT-MHR	$^{237}\text{Np} \sigma(n,\gamma)$	0.54 %/%	3.49 %	0.36 %/%	2.34 %	0.21 %/%	1.36 %	0.08 %/%	0.53 %
	incertitude globale		3.49 %		2.34 %		1.36 %		0.53 %
HI-HWR	$^{237}\text{Np} \sigma(n,\gamma)$	0.73 %/%	3.22 %	0.56 %/%	2.50 %	0.41 %/%	1.80 %	0.22 %/%	0.98 %
	incertitude globale		3.22 %		2.50 %		1.80 %		0.98 %

3.2.2 Taux d'incinération

3.2.2.1 Réacteur EFR

En ce qui concerne le potentiel d'incinération du ^{237}Np irradié dans un spectre EFR, les incertitudes proviennent essentiellement des sections efficaces de fission des deux participants majoritaires au taux de fissions (cf. tableau 10) : ^{237}Np et ^{238}Pu . Ces deux paramètres engendrent des erreurs de plus de 5 % en début de cycle. De plus, du fait qu'elle alimente le ^{238}Pu , la section efficace de capture du ^{237}Np génère aussi une incertitude supplémentaire de l'ordre de quelques pourcents. Au final, l'incertitude globale décroît lentement d'environ 9 % à près de 3 % en fin de cycle. En effet, comme pour le taux de transmutation, les coefficients de sensibilité et les incertitudes attachées à ce potentiel d'incinération diminuent au fur et à mesure que ce dernier se rapproche de sa limite (i.e. 100 %).

Tableau 10 : valeurs des coefficients de sensibilité et des erreurs (relatives, en %) des paramètres nucléaires participant majoritairement à l'incertitude associée au potentiel d'incinération du ^{237}Np irradié dans le spectre EFR.

taux d'incinération	20 %		40 %		60 %		80 %	
$^{237}\text{Np } \sigma(n,\gamma)$	0.29 %/%	2.88 %	0.28 %/%	2.79 %	0.22 %/%	2.20 %	0.13 %/%	1.28 %
$^{237}\text{Np } \sigma(n,f)$	0.41 %/%	5.03 %	0.25 %/%	3.12 %	0.15 %/%	1.86 %	0.07 %/%	0.90 %
$^{238}\text{Pu } \sigma(n,f)$	0.38 %/%	6.50 %	0.36 %/%	6.12 %	0.28 %/%	4.75 %	0.17 %/%	2.83 %
incertitude globale		8.72 %		7.44 %		5.60 %		3.29 %

3.2.2.2 Réacteur GT-MHR et HI-HWR

Dans les deux spectres GT-MHR et HI-HWR, l'erreur globale reste en-deçà de 10 %. Or, le ^{239}Pu et le ^{241}Pu sont les principaux noyaux incinérateurs du ^{237}Np dans ces flux modérés. C'est pourquoi, l'incertitude globale du potentiel d'incinération provient en grande partie des sections efficaces de capture du ^{237}Np et du ^{238}Pu qui approvisionnent ces deux noyaux (cf. tableau 11). Ce sont, en outre, les paramètres ayant les indéterminations les plus fortes dans cette chaîne. En effet, les sections efficaces des isotopes : $^{239,240,241}\text{Pu}$ sont bien définies dans le domaine d'énergie thermique.

Tableau 11 : valeurs des coefficients de sensibilité et des erreurs (relatives, en %) des paramètres nucléaires participant majoritairement à l'incertitude associée au potentiel d'incinération du ^{237}Np irradié dans les spectres GT-MHR et HI-HWR.

	taux d'incinération	20 %		40 %		60 %		80 %	
GT-MHR	$^{237}\text{Np } \sigma(n,\gamma)$	0.68 %/%	4.46 %	0.54 %/%	3.50 %	0.38 %/%	2.46 %	0.20 %/%	1.27 %
	$^{238}\text{Pu } \sigma(n,\gamma)$	0.59 %/%	6.20 %	0.47 %/%	4.89 %	0.32 %/%	3.39 %	0.16 %/%	1.71 %
	incertitude globale		7.76 %		6.11 %		4.26 %		2.20 %
HI-HWR	$^{237}\text{Np } \sigma(n,\gamma)$	0.78 %/%	3.45 %	0.65 %/%	2.87 %	0.50 %/%	2.23 %	0.30 %/%	1.35 %
	$^{238}\text{Np } \sigma(n,f)$	0.32 %/%	3.16 %	0.16 %/%	1.64 %	0.09 %/%	0.87 %	0.04 %/%	0.40 %
	$^{238}\text{Pu } \sigma(n,\gamma)$	0.24 %/%	2.38 %	0.22 %/%	2.24 %	0.16 %/%	1.56 %	0.04 %/%	0.40 %
	incertitude globale		5.28 %		4.02 %		2.88 %		1.58 %

De plus, en ce qui concerne le cas HI-HWR, il est possible de noter la présence de la section efficace de fission du ^{238}Np . Comme nous l'avons remarqué dans le chapitre 2, grâce au taux de réaction élevé qui caractérise ce réacteur, le ^{238}Np apporte une contribution appréciable au taux de fissions, en limitant notamment les flux de matière en direction des isotopes néfastes comme le ^{238}Pu et le ^{244}Cm . Son incertitude reste tout de même du même ordre de grandeur que celles des sections efficaces de capture du ^{237}Np et du ^{238}Pu , à savoir de l'ordre de quelques pourcents.

3.2.3 Evolution du ^{238}Pu

3.2.3.1 Réacteur EFR

Etant donné que la chaîne de formation du ^{238}Pu est relativement courte : $^{237,238}\text{Np} \rightarrow ^{238}\text{Pu}$, seul un petit nombre de paramètres interviennent dans son évolution. Néanmoins, comme le montre le tableau 12, l'incertitude attachée à ce noyau est importante. Elle atteint plus de 20 % au bout de 80 % d'incinération.

Les principaux contributeurs à cette valeur sont les sections efficaces de capture et de fission du ^{238}Pu . Leur coefficient de sensibilité croît constamment durant l'irradiation en corrélation avec l'accumulation, de plus en plus importante, de ^{238}Pu qu'ils éliminent. A contrario, la

section efficace de capture du ^{237}Np participe avant tout en début de cycle, où son incertitude est dominante. Celle-ci diminue ensuite au fur et à mesure de l'irradiation. Toutefois, celle-ci reste en dessous de 10 %.

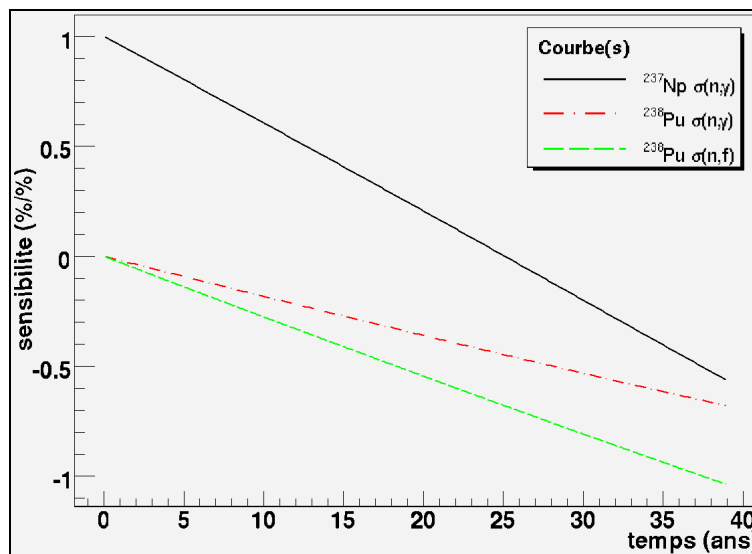


Figure 48 : Evolutions des coefficients de sensibilité du ^{238}Pu attachés aux sections efficaces de capture du ^{237}Np et du ^{238}Pu , ainsi qu'à la section efficace de fission du ^{238}Pu .

En outre, il est intéressant de remarquer que le coefficient de sensibilité de cette section efficace de capture change de signe aux alentours de la 25^e année d'irradiation (cf. figure 48). Comme il sera possible de le constater dans la suite de cette étude, cette inversion est un phénomène récurrent pour les paramètres nucléaires qui contribuent à la formation des actinides étudiés (i.e. ^{238}Pu , ^{242}Cm , ^{244}Cm , etc.). Elle souligne notamment l'accélération que peuvent provoquer ces paramètres nucléaires sur les évolutions des noyaux qu'ils alimentent.

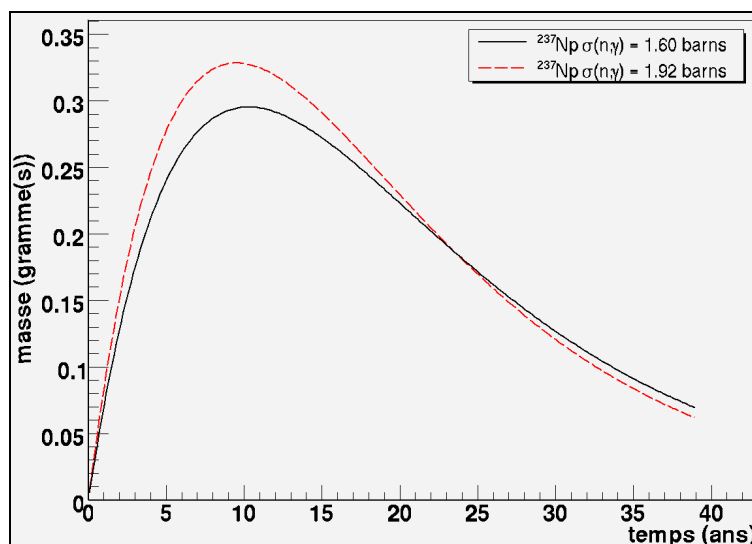


Figure 49 : Evolution de la masse du ^{238}Pu pour deux valeurs différentes de la section efficace de capture du ^{237}Np : 1.62 et 1.9 barns. On remarque le croisement des courbes aux environs de la 23^e année d'irradiation.

Pour mieux illustrer ce propos, la figure 49 donne l'exemple de l'évolution (dans un spectre EFR) de la masse du ^{238}Pu pour deux valeurs différentes de la section efficace de capture du

^{237}Np : 1.60 barns et 1.92 barns. Comme le montre ces deux courbes, une augmentation de cette section efficace amène un apport plus grand et plus rapide de matière vers le ^{238}Pu . En contrepartie, le noyau source (i.e. ^{237}Np) s'épuise plus vite, ce qui favorise aussi une disparition plus abrupte du ^{238}Pu . C'est pourquoi, étant donné que les courbes de sensibilité sont basées sur des variations de $\pm 1\%$, leur changement de signe marque un tel phénomène.

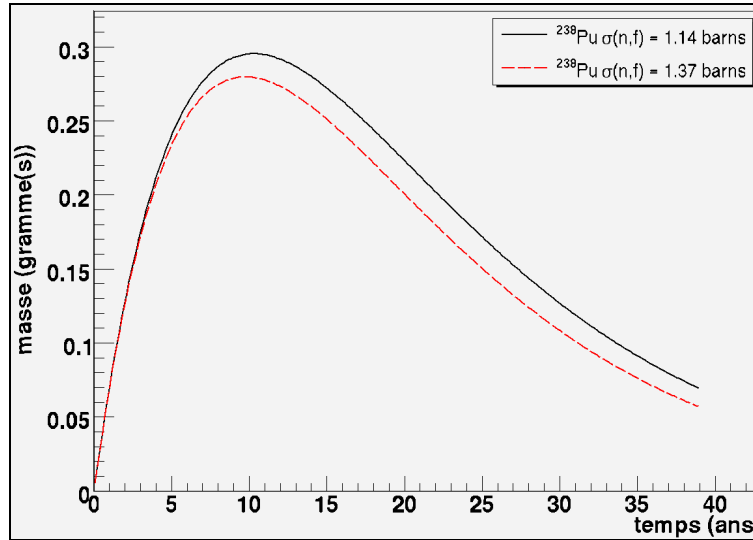


Figure 50 : Evolution de la masse du ^{238}Pu pour deux valeurs différentes de la section efficace de fission du ^{238}Pu : 1.14 et 1.37 barns. On remarque le tassement de la courbe lors de l'augmentation de cette section efficace.

Par ailleurs, ce changement de signe ne concerne pas les coefficients de sensibilité des paramètres qui ne contribuent pas à l'alimentation du noyau étudié (dans le cas présent : ^{238}Pu $\sigma(n,\gamma)$, ^{238}Pu $\sigma(n,\gamma)$ ou encore ^{237}Np $\sigma(n,\gamma)$). (cf. figure 48). En effet, comme le souligne la figure 50, sur l'exemple de la section efficace de fission du ^{238}Pu , l'augmentation de ces paramètres réduit immédiatement la concentration de l'actinide étudié, ce qui se transcrit par un effet de « tassement » des courbes d'évolution. C'est pourquoi, leur coefficient de sensibilité décroît directement dans les valeurs négatives.

Tableau 12 : valeurs des coefficients de sensibilité et des erreurs (relatives, en %) des paramètres nucléaires participant majoritairement à l'incertitude associée à la masse du ^{238}Pu formé lors de la transmutation du ^{237}Np dans le spectre EFR.

taux d'incinération	20 %		40 %		60 %		80 %	
^{237}Np $\sigma(n,\gamma)$	0.65 %/%	6.47 %	0.37 %/%	3.68 %	0.01 %/%	0.05 %	- 0.56 %/%	5.63 %
^{238}Pu $\sigma(n,\gamma)$	- 0.16 %/%	2.60 %	- 0.29 %/%	4.59 %	- 0.45 %/%	7.10 %	- 0.68 %/%	10.80 %
^{238}Pu $\sigma(n,f)$	- 0.25 %/%	4.22 %	- 0.44 %/%	7.45 %	- 0.68 %/%	11.53 %	- 0.56 %/%	17.67 %
incertitude globale		8.20 %		9.64 %		13.79 %		21.85 %

3.2.3.2 Réacteur GT-MHR et HI-HWR

Dans les spectres modérés GT-MHR et HI-HWR, l'erreur de la section efficace de fission du ^{238}Pu n'est plus présente parmi les incertitudes majoritaires. Seule la section efficace de capture de ce noyau reste une source d'indétermination conséquente. Dans les deux cas étudiés, celle-ci dépasse rapidement les 10 % durant le cycle et entraîne avec elle l'incertitude totale sur la masse du ^{238}Pu . En comparaison, la section efficace de capture du ^{237}Np et la section efficace de fission du ^{238}Np (cas HI-HWR) sont minoritaires. Au final, l'incertitude totale finit par atteindre des valeurs proches de 20 % et 15 %, respectivement, en fin de cycle.

Tableau 13 : valeurs des coefficients de sensibilité et des erreurs (relatives, en %) des paramètres nucléaires participant majoritairement à l'incertitude associée à la masse du ^{238}Pu formé lors de la transmutation du ^{237}Np dans les spectres GT-MHR et HI-HWR.

	taux d'incinération	20 %		40 %		60 %		80 %	
GT-MHR	$^{237}\text{Np } \sigma(n,\gamma)$	0.42 %/%	2.73 %	0.09 %/%	0.51 %	- 0.36 %/%	2.33 %	- 1.07 %/%	6.98 %
	$^{238}\text{Pu } \sigma(n,\gamma)$	- 0.56 %/%	6.11 %	- 0.90 %/%	9.44 %	- 1.28 %/%	13.43 %	- 1.85 %/%	19.46 %
	incertitude globale		6.73 %		9.52 %		13.71 %		20.79 %
HI-HWR	$^{237}\text{Np } \sigma(n,\gamma)$	0.66 %/%	2.94 %	0.34 %/%	1.52 %	- 0.11 %/%	0.45 %	- 0.94 %/%	4.18 %
	$^{238}\text{Pu } \sigma(n,\gamma)$	- 0.26 %/%	2.63 %	- 0.27 %/%	2.68 %	- 0.27 %/%	2.70 %	- 0.27 %/%	2.71 %
	$^{238}\text{Pu } \sigma(n,\gamma)$	- 0.64 %/%	6.41 %	- 0.97 %/%	9.78 %	- 1.24 %/%	12.38 %	- 1.44 %/%	14.42 %
	incertitude globale		7.55 %		10.27 %		12.71 %		15.29 %

3.2.4 Evolution du ^{242}Cm

3.2.4.1 Réacteur EFR

Le chemin de transmutation qui mène au ^{242}Cm est relativement long : $^{237, 238}\text{Np} \rightarrow ^{238, 241}\text{Pu} \rightarrow ^{241, 242}\text{Am} \rightarrow ^{242}\text{Cm}$. C'est pourquoi, de nombreux paramètres nucléaires interviennent dans son évolution (cf. tableau 14). L'erreur totale attachée à la masse de ce noyau dépasse plus de 20 %. Or, les incertitudes les plus importantes proviennent des paramètres de capture qui guide la matière transmutée en direction de cet isotope : $^{237}\text{Np } \sigma(n,\gamma)$, $^{238, 239, 240}\text{Pu } \sigma(n,\gamma)$, $^{241}\text{Am } \sigma(n,\gamma)$ et $^{241}\text{Am i.b.r.}(n,\gamma)$. La plupart de ces paramètres amènent une erreur comprise entre 5 à 10 %. Les sections efficaces de capture du ^{238}Pu et du ^{240}Pu sont les seuls paramètres pour lesquels l'incertitude associée dépasse 10 %.

Tableau 14 : valeurs des coefficients de sensibilité et des erreurs (relatives, en %) des paramètres nucléaires participant majoritairement à l'incertitude associée à la masse du ^{242}Cm formé lors de la transmutation du ^{237}Np dans un spectre EFR.

taux d'incinération	20 %		40 %		60 %		80 %	
$^{237}\text{Np } \sigma(n,\gamma)$	0.89 %/%	8.88 %	0.80 %/%	7.95 %	0.67 %/%	6.74 %	0.49 %/%	4.88 %
$^{238}\text{Pu } \sigma(n,\gamma)$	0.95 %/%	15.07 %	0.90 %/%	14.40 %	0.85 %/%	13.52 %	0.77 %/%	12.20 %
$^{238}\text{Pu } \sigma(n,\gamma)$	- 0.08 %/%	1.35 %	- 0.14 %/%	2.45 %	- 0.23 %/%	3.88 %	- 0.35 %/%	6.03 %
$^{239}\text{Pu } \sigma(n,\gamma)$	0.96 %/%	8.13 %	0.94 %/%	7.89 %	0.90 %/%	7.60 %	0.85 %/%	7.17 %
$^{240}\text{Pu } \sigma(n,\gamma)$	0.96 %/%	13.11 %	0.92 %/%	12.61 %	0.87 %/%	11.87 %	0.77 %/%	10.49 %
$^{241}\text{Am i.b.r.}(n,\gamma)$	0.99 %/%	9.92 %	0.99 %/%	9.87 %	0.98 %/%	9.82 %	0.98 %/%	9.76 %
$^{241}\text{Am } \sigma(n,\gamma)$	0.88 %/%	8.80 %	0.78 %/%	7.81 %	0.65 %/%	6.55 %	0.46 %/%	4.63 %
incertitude globale		26.94 %		25.82 %		24.54 %		22.96 %

En outre, il est intéressant de remarquer la constance de la sensibilité du rapport d'embranchement de l' ^{241}Am , durant la totalité de l'irradiation. Cette constance est expliquée par le fait que contrairement aux sections efficaces de capture citées ci-dessus, ce paramètre ne joue pas sur la vitesse de transition de la matière nucléaire, mais plutôt directement sur le chemin que celle-ci va emprunter : soit vers l'état fondamental ^{242g}Am ($T_{1/2} = 16.02$ heures) qui approvisionne le ^{242}Cm , ou bien vers l'état isomère ^{242m}Am ($T_{1/2} = 141$ ans).

3.2.4.2 Réacteur GT-MHR

La modération des neutrons ramène les sections efficaces dans des régions en énergie où elles sont mieux caractérisées (GT-MHR : tableau 15 et HI-HWR : tableau 16). C'est la raison pour laquelle moins de paramètres interviennent dans ces spectres modérés, à savoir : $^{237}\text{Np } \sigma(n,\gamma)$,

$^{238}\text{Pu } \sigma(n,\gamma)$, $^{241}\text{Am i.b.r.}(n,\gamma)$, $^{241}\text{Am } \sigma(n,\gamma)$ et $^{242}\text{Cm } \sigma(n,\gamma)$ (HI-HWR uniquement).

Tableau 15 : valeurs des coefficients de sensibilité et des erreurs (relatives, en %) des paramètres nucléaires participant majoritairement à l'incertitude associée à la masse du ^{242}Cm formé lors de la transmutation du ^{237}Np dans un spectre GT-MHR.

taux d'incinération	20 %		40 %		60 %		80 %	
$^{237}\text{Np } \sigma(n,\gamma)$	0.76 %/%	4.98 %	0.56 %/%	3.64 %	0.24 %/%	1.55 %	- 0.35 %/%	2.28 %
$^{238}\text{Pu } \sigma(n,\gamma)$	0.76 %/%	7.95 %	0.56 %/%	5.84 %	0.25 %/%	2.65 %	- 0.26 %/%	2.76 %
$^{241}\text{Am i.b.r.}(n,\gamma)$	1.00 %/%	9.99 %	1.00 %/%	10 %	1.00 %/%	10.01 %	1.01 %/%	10.07 %
$^{241}\text{Am } \sigma(n,\gamma)$	0.47 %/%	4.70 %	0.22 %/%	2.19 %	0 %/%	0.04 %	- 0.18 %/%	1.81 %
incertitude globale		14.91 %		12.76 %		11.06 %		11.58 %

On peut également noter des valeurs d'incertitudes moins fortes que précédemment. En effet, l'erreur totale reste inférieure à 20 %. Les contributions principales proviennent ici des sections efficaces de capture du ^{238}Pu et de l' ^{241}Am , ainsi que du rapport d'embranchement de l' ^{241}Am . Ce dernier représente d'ailleurs la source d'incertitude majoritaire.

Tableau 16 : valeurs des coefficients de sensibilité et des erreurs (relatives, en %) des paramètres nucléaires participant majoritairement à l'incertitude associée à la masse du ^{242}Cm formé lors de la transmutation du ^{237}Np dans un spectre HI-HWR.

taux d'incinération	20 %		40 %		60 %		80 %	
$^{237}\text{Np } \sigma(n,\gamma)$	0.90 %/%	3.99 %	0.81 %/%	3.58 %	0.68 %/%	2.99 %	0.43 %/%	1.88 %
$^{238}\text{Pu } \sigma(n,\gamma)$	0.69 %/%	6.90 %	0.56 %/%	5.63 %	0.40 %/%	4.01 %	0.18 %/%	1.76 %
$^{241}\text{Am i.b.r.}(n,\gamma)$	1.00 %/%	10 %	1.00 %/%	10 %	1.00 %/%	10 %	1.00 %/%	10 %
$^{241}\text{Am } \sigma(n,\gamma)$	0.72 %/%	7.19 %	0.53 %/%	5.30 %	0.34 %/%	3.41 %	0.12 %/%	1.20 %
$^{242}\text{Cm } \sigma(n,\gamma)$	- 0.01 %/%	0.39 %	- 0.02 %/%	0.79 %	- 0.04 %/%	1.41 %	- 0.07 %/%	2.82 %
incertitude globale		15.43 %		13.89 %		12.48 %		11.48 %

3.2.5 Evolution du ^{244}Cm

3.2.5.1 Réacteur EFR

Ce second isotope du curium est alimenté par la chaîne de transmutation particulièrement longue : $^{237}, ^{238}\text{Np} \rightarrow ^{238}, ^{243}\text{Pu} \rightarrow ^{243}, ^{244}\text{Am} \rightarrow ^{244}\text{Cm}$. Aussi, comme dans le cas du ^{242}Cm , ce sont les nombreuses sections efficaces de capture dirigeant l'alimentation du ^{244}Cm qui participent à majoritairement à son incertitude, qui est ici de l'ordre de 30 % (cf. tableau 17). Les erreurs apportées par chacun de ces paramètres restent aux alentours de 10 %.

Tableau 17 : valeurs des coefficients de sensibilité et des erreurs (relatives, en %) des paramètres nucléaires participant majoritairement à l'incertitude associée à la masse du ^{244}Cm formé lors de la transmutation du ^{237}Np dans un spectre EFR.

taux d'incinération	20 %		40 %		60 %		80 %	
$^{237}\text{Np } \sigma(n,\gamma)$	0.91 %/%	9.13 %	0.85 %/%	8.46 %	0.76 %/%	7.61 %	0.63 %/%	6.34 %
$^{238}\text{Pu } \sigma(n,\gamma)$	0.96 %/%	15.25 %	0.93 %/%	14.77 %	0.89 %/%	14.15 %	0.83 %/%	13.23 %
$^{239}\text{Pu } \sigma(n,\gamma)$	0.97 %/%	8.19 %	0.95 %/%	8.02 %	0.93 %/%	7.81 %	0.89 %/%	7.51 %
$^{240}\text{Pu } \sigma(n,\gamma)$	0.97 %/%	13.24 %	0.94 %/%	12.89 %	0.91 %/%	12.41 %	0.85 %/%	11.57 %
$^{241}\text{Pu } \sigma(n,\gamma)$	0.90 %/%	13.42 %	0.86 %/%	12.69 %	0.81 %/%	11.96 %	0.75 %/%	11.14 %
$^{242}\text{Pu } \sigma(n,\gamma)$	0.90 %/%	10.66 %	0.86 %/%	10.22 %	0.81 %/%	9.75 %	0.75 %/%	9.09 %
$^{243}\text{Am } \sigma(n,\gamma)$	0.91 %/%	9.36 %	0.84 %/%	8.69 %	0.76 %/%	7.83 %	0.63 %/%	6.51 %
incertitude globale		30.84 %		29.84 %		28.89 %		27.97 %

3.2.5.2 Réacteur GT-MHR et HI-HWR

Une fois de plus, la modération des spectres GT-MHR et HI-HWR amène une réduction

notable de l'incertitude attachée à l'évolution du ^{244}Cm . Celle-ci reste effectivement inférieure à 30 %. Les principaux contributeurs sont les sections efficaces de capture du ^{238}Pu , de l' ^{243}Am , ainsi que celle du ^{244}Cm dans le spectre GT-MHR. En effet, grâce notamment à la fission du ^{238}Np qui participe notablement dans les hauts flux thermiques HI-HWR, l'absorption du ^{244}Cm n'a pas le temps de se développer, ce qui permet de limiter l'impact de l'incertitude attachée à cette dernière section efficace.

Tableau 18 : valeurs des coefficients de sensibilité et des erreurs (relatives, en %) des paramètres nucléaires participant majoritairement à l'incertitude associée à la masse du ^{244}Cm formé lors de la transmutation du ^{237}Np dans un spectre GT-MHR.

taux d'incinération	20 %		40 %		60 %		80 %	
$^{237}\text{Np} \sigma(n,\gamma)$	0.83 %/%	5.43 %	0.73 %/%	4.72 %	0.59 %/%	3.81 %	0.36 %/%	2.35 %
$^{238}\text{Pu} \sigma(n,\gamma)$	0.82 %/%	8.67 %	0.72 %/%	7.55 %	0.58 %/%	6.12 %	0.37 %/%	3.92 %
$^{243}\text{Am} \sigma(n,\gamma)$	0.78 %/%	15.44 %	0.68 %/%	12.84 %	0.49 %/%	9.73 %	0.27 %/%	5.37 %
$^{244}\text{Cm} \sigma(n,\gamma)$	- 0.05 %/%	1.94 %	- 0.09 %/%	3.42 %	- 0.14 %/%	5.63 %	- 0.25 %/%	10.02 %
incertitude globale		19.73 %		16.9 %		14.29 %		13.05 %

En revanche, malgré ce bénéfice, l'erreur totale calculée dans le cas HI-HWR est supérieure à celle obtenue dans le spectre GT-MHR. La raison de cet écart provient de la section efficace de capture du ^{242}Pu qui est plus importante dans le spectre GT-MHR : 53.39 barns, que dans le spectre HI-HWR : 35.96 barns. Cette différence trouve son explication dans une sensibilité plus grande des flux épithermique GT-MHR aux premières résonances.

Tableau 19 : valeurs des coefficients de sensibilité et des erreurs (relatives, en %) des paramètres nucléaires participant majoritairement à l'incertitude associée à la masse du ^{244}Cm formé lors de la transmutation du ^{237}Np dans un spectre HI-HWR.

taux d'incinération	20 %		40 %		60 %		80 %	
$^{238}\text{Pu} \sigma(n,\gamma)$	0.71 %/%	7.10 %	0.62 %/%	6.25 %	0.51 %/%	5.15 %	0.36 %/%	3.64 %
$^{243}\text{Am} \sigma(n,\gamma)$	0.95 %/%	18.96 %	0.91 %/%	18.08 %	0.85 %/%	16.92 %	0.74 %/%	14.84 %
incertitude globale		21.76 %		20.58 %		19.11 %		16.77 %

En conséquence de quoi, le coefficient de sensibilité attaché à la section efficace de capture de l' ^{243}Am reste supérieur à 0.7 %/% dans le spectre HI-HWR, alors que ce dernier tombe en-dessous de 0.3 %/% dans le spectre GT-MHR.

3.2.6 Evolution du ^{252}Cf (GT-MHR uniquement)

L'évolution du ^{252}Cf ne sera étudiée que pour le spectre GT-MHR, étant donné que celui-ci n'amène pas de contribution notable sur l'activité fission spontanée dans les deux autres scénarios. Il trouve son origine à travers un très long chemin de transmutation qui traverse la totalité des chaînes isotopiques du neptunium, plutonium, américium, curium, berkélium et californium : $^{237}, ^{238}\text{Np} \rightarrow ^{238}, ^{243}\text{Pu} \rightarrow ^{243}, ^{244}\text{Am} \rightarrow ^{244}, ^{249}\text{Cm} \rightarrow ^{249}, ^{250}\text{Bk} \rightarrow ^{249}, ^{252}\text{Cf}$. Néanmoins, seul un petit nombre des paramètres présents sur ce parcours ont un apport significatif à l'incertitude attachée à la masse de ce californium (cf. tableau 20).

Ces paramètres sont principalement les sections efficaces de capture des isotopes du curium pour lesquels des valeurs d'erreur de plus de 40 % peuvent être observées. En effet, grâce aux valeurs très faibles des sections efficaces de capture des isotopes de nombre de masse pair (quelques barns) ces noyaux font office de frein pour le transport de la matière en direction des chaînes du berkélium et du californium. C'est la raison pour laquelle leurs coefficients de sensibilité restent très proches de l'unité.

Tableau 20 : valeurs des coefficients de sensibilité et des erreurs (relatives, en %) des paramètres nucléaires participant majoritairement à l'incertitude associée à la masse du ^{252}Cf formé lors de la transmutation du ^{237}Np dans un spectre GT-MHR.

taux d'incinération	20 %		40 %		60 %		80 %	
$^{238}\text{Pu } \sigma(n,\gamma)$	0.90 %/%	9.48 %	0.85 %/%	8.94 %	0.78 %/%	8.22 %	0.67 %/%	7.05 %
$^{243}\text{Am } \sigma(n,\gamma)$	0.89 %/%	17.54 %	0.81 %/%	16.14 %	0.73 %/%	14.39 %	0.59 %/%	11.77 %
$^{244}\text{Cm } \sigma(n,\gamma)$	0.97 %/%	38.89 %	0.96 %/%	38.30 %	0.93 %/%	37.40 %	0.89 %/%	35.73 %
$^{245}\text{Cm } \sigma(n,\gamma)$	0.96 %/%	38.37 %	0.94 %/%	37.66 %	0.92 %/%	36.97 %	0.91 %/%	36.21 %
$^{245}\text{Cm } \sigma(n,f)$	- 0.26 %/%	10.51 %	- 0.38 %/%	15.14 %	- 0.49 %/%	19.60 %	- 0.61 %/%	24.50 %
$^{246}\text{Cm } \sigma(n,\gamma)$	0.99 %/%	9.91 %	0.98 %/%	9.84 %	0.98 %/%	9.75 %	0.96 %/%	9.57 %
$^{247}\text{Cm } \sigma(n,\gamma)$	0.96 %/%	9.58 %	0.93 %/%	9.31 %	0.90 %/%	8.98 %	0.85 %/%	8.46 %
$^{248}\text{Cm } \sigma(n,\gamma)$	0.99 %/%	9.85 %	0.97 %/%	9.75 %	0.96 %/%	9.60 %	0.93 %/%	9.33 %
$^{249}\text{Bk } \sigma(n,\gamma)$	0.60 %/%	6.01 %	0.48 %/%	4.84 %	0.39 %/%	3.93 %	0.31 %/%	3.11 %
$^{251}\text{Cf } \sigma(n,\gamma)$	0.78 %/%	7.82 %	0.75 %/%	7.46 %	0.72 %/%	7.24 %	0.71 %/%	7.08 %
$^{251}\text{Cf } \sigma(n,f)$	- 0.46 %/%	4.63 %	- 0.54 %/%	5.39 %	- 0.59 %/%	5.89 %	- 0.63 %/%	6.39 %
incertitude globale		62.34 %		62.99 %		62.18 %		61.51 %

Par ailleurs, si l'on prend en considération l'hypothèse de calcul selon laquelle les sections efficaces des actinides se trouvant au-delà du ^{245}Cm ne sont affectées que par une incertitude de $\pm 10\%$ (contrairement aux $\pm 40\%$ attachés aux isotopes $^{244}, ^{245}\text{Cm}$), alors les sections efficaces de capture des $^{246}, ^{247}, ^{248}\text{Cm}$ doivent présenter également des erreurs du même ordre de grandeur que celles de leurs homologues $^{244}, ^{245}\text{Cm}$.

De plus, parmi ces isotopes du curium, on peut également constater que la participation de la section efficace de fission du curium-245 arrive à créer une incertitude croissante qui atteint 25 % en fin du cycle d'incinération. Ce constat peut paraître surprenant, étant donné qu'il n'est pas réciproque pour le ^{247}Cm . En fait, cette section efficace du ^{245}Cm est plus de quatre fois et demi plus élevée que la section efficace de capture associée : $^{245}\text{Cm } \langle \sigma(n,\gamma) \rangle_{\text{GT-MHR}} = 35.52$ barns et $^{245}\text{Cm } \langle \sigma(n,f) \rangle_{\text{GT-MHR}} = 229.52$ barns, tandis que la section efficace de fission du ^{247}Cm ne l'est que de une fois et demi : $^{247}\text{Cm } \langle \sigma(n,\gamma) \rangle_{\text{GT-MHR}} = 29.18$ barns et $^{247}\text{Cm } \langle \sigma(n,f) \rangle_{\text{GT-MHR}} = 44.02$ barns. Ce rapport élevé de la fission du ^{245}Cm vis-à-vis de la capture permet donc à ce paramètre de pouvoir s'exprimer parmi les incertitudes les plus importantes.

Au delà de cette chaîne isotopique du curium, il est possible d'observer que certains paramètres des isotopes du berkélium et du californium présentent aussi des contributions conséquentes. Ces paramètres, qui sont également affectés par l'hypothèse de $\pm 10\%$, sont les sections efficaces suivantes : $^{249}\text{Bk } \sigma(n,\gamma)$, $^{251}\text{Cf } \sigma(n,\gamma)$ et $^{251}\text{Cf } \sigma(n,f)$. La section efficace de capture du californium-251 est celle qui génère la plus grande source d'incertitude.

Enfin, en amont des isotopes du curium, les sections efficaces de capture du ^{238}Pu et de ^{243}Am sont les seuls paramètres qui offrent des erreurs importantes. La section efficace de capture de ^{243}Am génère notamment une incertitude comprise entre 10 % et 20 %.

Au final, l'incertitude totale attachée à l'évolution du ^{252}Cf est supérieure à 60 %, ici. Or, du fait de l'hypothèse initiale de $\pm 10\%$, la valeur de cette erreur doit être plus élevée et peut même probablement dépasser les 100 %.

3.3 Impact des incertitudes sur la transmutation de ^{241}Am

3.3.1 Taux de transmutation

L'incertitude du potentiel de transmutation de ^{241}Am irradié dans un réacteur EFR se révèle être majoritairement dépendant de la section efficace de capture de ce noyau (cf. tableau 21).

En effet, la section efficace de fission de cet actinide est ici dix fois plus faible que celle de capture. En outre, l'incertitude totale reste néanmoins bornée à quelques pourcents et décroît au fur et à mesure de la convergence du potentiel vers sa limite de 100 %. Ce constat peut être prolongé aux spectres thermiques GT-MHR et HI-HWR.

Tableau 21 : valeurs des coefficients de sensibilité et des erreurs (relatives, en %) des paramètres nucléaires participant majoritairement à l'incertitude associée au potentiel de transmutation de l'²⁴¹Am irradié dans le spectre EFR, GT-MHR et HI-HWR.

	taux d'incinération	20 %		40 %		60 %		80 %	
EFR	²⁴¹ Am $\sigma(n,\gamma)$	0.55 %/%	5.51 %	0.36 %/%	3.64 %	0.19 %/%	1.89 %	0.06 %/%	0.60 %
	incertitude globale		5.59 %		3.69 %		1.92 %		0.60 %
GT-MHR	²⁴¹ Am $\sigma(n,\gamma)$	0.28 %/%	2.80 %	0.06 %/%	0.58 %	0.01 %/%	0.11 %	0.00 %/%	0.00 %
	incertitude globale		2.80 %		0.58 %		0.11 %		0.00 %
HI-HWR	²⁴¹ Am $\sigma(n,\gamma)$	0.27 %/%	2.70 %	0.01 %/%	0.11 %	0.00 %/%	0.00 %	0.00 %/%	0.00 %
	incertitude globale		2.70 %		0.11 %		0.00 %		0.00 %

3.3.2 Taux d'incinération

3.3.2.1 Réacteur EFR

Tableau 22 : valeurs des coefficients de sensibilité et des erreurs (relatives, en %) des paramètres nucléaires participant majoritairement à l'incertitude associée au potentiel d'incinération de l'²⁴¹Am irradié dans le spectre EFR.

taux d'incinération	20 %		40 %		60 %		80 %	
²⁴¹ Am i.b.r.(n, γ)	- 0.61 %/%	6.07 %	- 0.48 %/%	4.82 %	- 0.31 %/%	3.12 %	- 0.16 %/%	1.76 %
²⁴¹ Am $\sigma(n,\gamma)$	0.37 %/%	3.70 %	0.32 %/%	3.24 %	0.22 %/%	2.22 %	0.11 %/%	1.06 %
²⁴¹ Am $\sigma(n,f)$	0.35 %/%	3.54 %	0.21 %/%	2.14 %	0.12 %/%	1.22 %	0.06 %/%	0.56 %
^{242m} Am $\sigma(n,f)$	0.17 %/%	2.67 %	0.11 %/%	1.62 %	0.05 %/%	0.77 %	0.02 %/%	0.29 %
²³⁸ Pu $\sigma(n,f)$	0.21 %/%	3.57 %	0.22 %/%	3.79 %	0.18 %/%	3.09 %	0.10 %/%	1.76 %
incertitude globale		9.13 %		7.84 %		5.19 %		2.75 %

Comme le montre le tableau 22, l'incertitude liée au taux d'incinération de l'²⁴¹Am dans un réacteur EFR est essentiellement la résultante de celles de cinq paramètres, qui sont : ²⁴¹Am i.b.r.(n, γ), ²⁴¹Am $\sigma(n,\gamma)$, ²⁴¹Am $\sigma(n,f)$, ^{242m}Am $\sigma(n,\gamma)$ et ²³⁸Pu $\sigma(n,f)$. Parmi ces paramètres sont présents les sections efficaces de fission des trois contributeurs majoritaires au taux de fission, à savoir : ²⁴¹Am, ^{242m}Am et ²³⁸Pu. On peut également noter les apports de la section efficace de capture et du rapport d'embranchement de l'²⁴¹Am qui dirigent le flux de matière vers ces différents noyaux. Au final l'ensemble de ces paramètres génère une erreur globale de l'ordre de 10 % au début du cycle. Celle-ci décroît au fur et à mesure de la convergence du taux d'incinération.

3.3.2.2 Réacteur GT-MHR et HI-HWR

Tableau 23 : valeurs des coefficients de sensibilité et des erreurs (relatives, en %) des paramètres nucléaires participant majoritairement à l'incertitude associée au potentiel d'incinération de l'²⁴¹Am irradié dans le spectre GT-MHR.

taux d'incinération	20 %		40 %		60 %		80 %	
²⁴¹ Am i.b.r.(n, γ)	- 2.40 %/%	23.99 %	- 0.97 %/%	9.65 %	- 0.45 %/%	4.51 %	- 0.14 %/%	1.64 %
²³⁸ Pu $\sigma(n,\gamma)$	0.20 %/%	2.05 %	0.33 %/%	3.42 %	0.28 %/%	2.98 %	0.11 %/%	1.11 %
²⁴⁴ Cm $\sigma(n,\gamma)$	0 %/%	0.10 %	0.01 %/%	0.43 %	0.02 %/%	0.80 %	0.04 %/%	1.64 %
incertitude globale		24.78 %		10.80 %		5.86 %		2.70 %

Dans les spectres thermiques GT-MHR et HI-HWR, la plus grande source d'incertitude sur le

taux d'incinération provient de celle du rapport d'embranchement de l' ^{241}Am (cf. tableau 23 et tableau 24). En effet, celle-ci dépasse plus de 25 % en début de cycle et diminue rapidement en fonction de la convergence du taux. En comparaison, les sections efficaces de capture du ^{238}Pu (GT-MHR), du ^{242}Cm (HI-HWR) et du ^{244}Cm ne sont vraiment significatives qu'à la fin, lorsque l'incertitude globale n'est plus que de quelques pourcents. La participation de la section efficace de capture du ^{242}Cm dans le spectre HI-HWR est uniquement due à la présence des flux de neutrons intenses et à l'absence de période de repos.

Tableau 24 : valeurs des coefficients de sensibilité et des erreurs (relatives, en %) des paramètres nucléaires participant majoritairement à l'incertitude associée au potentiel d'incinération de l' ^{241}Am irradié dans le spectre HI-HWR.

taux d'incinération	20 %		40 %		60 %		80 %	
^{241}Am i.b.r.(n, γ)	- 2.56 %/%	25.62 %	- 1.03 %/%	10.28 %	- 0.39 %/%	3.58 %	- 0.10 %/%	1.01 %
^{242}Cm σ (n, γ)	0.04 %/%	1.73 %	0.09 %/%	3.64 %	0.07 %/%	2.71 %	0.02 %/%	0.61 %
^{244}Cm σ (n, γ)	0 %/%	0.03 %	0.01 %/%	0.26 %	0.02 %/%	0.69 %	0.08 %/%	1.87 %
incertitude globale		26.28 %		11.34 %		5.12 %		2.49 %

3.3.3 Evolution du ^{238}Pu

3.3.3.1 Réacteur EFR

Tableau 25 : valeurs des coefficients de sensibilité et des erreurs (relatives, en %) des paramètres nucléaires participant majoritairement à l'incertitude associée à la masse du ^{238}Pu formé lors de la transmutation de l' ^{241}Am dans le spectre EFR.

taux d'incinération	20 %		40 %		60 %		80 %	
^{241}Am i.b.r.(n, γ)	0.97 %/%	9.72 %	0.95 %/%	9.54 %	0.94 %/%	9.34 %	0.92 %/%	9.17 %
^{241}Am σ (n, γ)	0.68 %/%	6.80 %	0.38 %/%	3.82 %	- 0.04 %/%	0.43 %	- 0.70 %/%	6.96 %
^{238}Pu σ (n, γ)	- 0.13 %/%	2.15 %	- 0.26 %/%	4.16 %	- 0.44 %/%	7.00 %	- 0.71 %/%	11.35 %
^{238}Pu σ (n,f)	- 0.20 %/%	3.48 %	- 0.39 %/%	6.74 %	- 0.67 %/%	11.37 %	- 1.09 %/%	18.59 %
incertitude globale		12.57 %		13.03 %		16.42 %		24.82 %

L'évolution de la masse du ^{238}Pu est soumise à une incertitude qui croît de plus de 10 % à environ 25 %. La section efficace de capture et le rapport d'embranchement de l' ^{241}Am sont les paramètres qui engendrent le plus d'incertitude au tout début de l'irradiation. Tandis que le rapport d'embranchement stagne entre 9 et 10 %, la section efficace de capture oscille entre 0 % et 7 %, du fait du changement de signe de son coefficient de sensibilité (cf. tableau 25). Cependant, durant cette irradiation, les erreurs des sections efficaces de capture et de fission du ^{238}Pu finissent par dépasser ces valeurs. Elles se développent rapidement jusqu'à atteindre respectivement près de 10 % et 20 %.

3.3.3.2 Réacteur GT-MHR et HI-HWR

Tableau 26 : valeurs des coefficients de sensibilité et des erreurs (relatives, en %) des paramètres nucléaires participant majoritairement à l'incertitude associée à la masse du ^{238}Pu formé lors de la transmutation de l' ^{241}Am dans le spectre GT-MHR.

taux d'incinération	20 %		40 %		60 %		80 %	
^{241}Am i.b.r.(n, γ)	1.00 %/%	9.98 %	1.00 %/%	9.99 %	1.00 %/%	10.03 %	1.04 %/%	10.36 %
^{241}Am σ (n, γ)	0.34 %/%	3.40 %	- 0.11 %/%	1.15 %	- 0.35 %/%	3.48 %	- 0.48 %/%	3.80 %
^{238}Pu σ (n, γ)	- 0.31 %/%	3.22 %	- 0.77 %/%	8.08 %	- 1.34 %/%	14.08 %	- 2.88 %/%	30.31 %
incertitude globale		11.07 %		12.98 %		17.75 %		32.59 %

Malgré ce qui avait été communément observé pour le cas du ^{237}Np , la modération du flux n'a pas amené une réduction notable de l'erreur totale. Au contraire, celle-ci devient rapidement

plus importante. Elle dépasse aisément les 30 % d'incertitude dans le spectre GT-MHR (cf. tableau 26) et atteint même plus de 50 % dans le cas HI-HWR (cf. tableau 27).

Tandis que le rapport d'embranchement de l' ^{241}Am introduit de nouveau une incertitude constante de 10 %, les sections efficaces de capture du ^{238}Pu et du ^{242}Cm (HI-HWR uniquement) apportent la majorité de l'erreur finale. De plus, du fait que la section de capture du ^{242}Cm est définie par une incertitude plus grande que celle du ^{238}Pu , ce paramètre se trouve à l'origine du dépassement de plus de 50 % de l'erreur totale dans le spectre HI-HWR. En fait, dans un cycle réel avec des temps de repos, cette erreur totale devrait se situer entre les valeurs indiquées dans le tableau 27 et celles présentes dans le tableau 26.

Tableau 27 : valeurs des coefficients de sensibilité et des erreurs (relatives, en %) des paramètres nucléaires participant majoritairement à l'incertitude associée à la masse du ^{238}Pu formé lors de la transmutation de l' ^{241}Am dans le spectre HI-HWR.

taux d'incinération	20 %		40 %		60 %		80 %	
^{241}Am i.b.r.(n, γ)	1.00 %/%	10 %	1.00 %/%	10 %	1.00 %/%	10.01%	1.00 %/%	10.03 %
^{241}Am σ (n, γ)	0.40 %/%	4.04 %	- 0.13 %/%	1.34 %	- 0.16 %/%	1.63 %	- 0.16 %/%	1.63 %
^{238}Pu σ (n, γ)	- 0.50 %/%	5.01 %	- 1.11 %/%	11.15 %	- 1.17 %/%	11.69 %	- 1.17 %/%	11.71 %
^{242}Cm σ (n, γ)	- 0.03 %/%	1.03 %	- 0.16 %/%	6.50 %	- 0.49 %/%	19.51 %	- 1.24 %/%	49.74 %
incertitude globale		11.99 %		16.48 %		25.13 %		52.72 %

3.3.4 Evolution du ^{242}Cm

3.3.4.1 Réacteur EFR

Du fait qu'il se trouve en aval de l' ^{242g}Am , l'incertitude sur l'évolution du ^{242}Cm est soumise essentiellement à la section efficace de capture et au rapport d'embranchement de l' ^{241}Am . La section efficace de capture voit son incertitude croître rapidement jusqu'à plus de 20 %, alors que le rapport d'embranchement reste aux alentours de 10 %, ce qui engendre au final une erreur totale qui monte jusqu'à près de 25 % en fin de cycle.

Par ailleurs, les taux de réaction sont ici trop faibles pour permettre à ses sections efficaces de capture et de fission de générer des incertitudes considérables. De même, la décroissance qui est le mode principal de disparition de ce noyau est définie par une erreur trop faible pour avoir un impact notable ($\delta\lambda_{\text{decay}}/\lambda_{\text{decay}} \sim 1 \text{‰}$).

Tableau 28 : valeurs des coefficients de sensibilité et des erreurs (relatives, en %) des paramètres nucléaires participant majoritairement à l'incertitude associée à la masse du ^{242}Cm formé lors de la transmutation de l' ^{241}Am dans le spectre EFR.

taux d'incinération	20 %		40 %		60 %		80 %	
^{241}Am i.b.r.(n, γ)	0.97 %/%	9.69 %	0.96 %/%	9.57 %	0.95 %/%	9.52 %	0.98 %/%	9.83 %
^{241}Am σ (n, γ)	0.39 %/%	3.85 %	- 0.20 %/%	2.01 %	- 1.03 %/%	10.32 %	- 2.20 %/%	22.01 %
incertitude globale		10.50 %		10.01 %		14.47 %		24.76 %

3.3.4.2 Réacteur GT-MHR

De manière identique au spectre EFR, l'erreur associée à l'évolution du ^{242}Cm ne dépend uniquement que du rapport d'embranchement et de la section efficace de capture de l' ^{241}Am (cf. tableau 29). Or, il est possible de constater l'évolution singulière des incertitudes de ces deux paramètres. En effet, l'incertitude attachée au rapport d'embranchement augmente le long du cycle jusqu'à parvenir à près de 20 %, alors que nous savions que ce paramètre avait pour habitude de rester aux alentours de 10 %. De même, l'incertitude de la section efficace

de capture de l' ^{241}Am croît jusqu'à atteindre un maximum à 30 % au environ de la 6^e année.

Tableau 29 : valeurs des coefficients de sensibilité et des erreurs (relatives, en %) des paramètres nucléaires participant majoritairement à l'incertitude associée à la masse du ^{242}Cm formé lors de la transmutation de l' ^{241}Am dans le spectre GT-MHR.

taux d'incinération	20 %		40 %		60 %		80 %	
^{241}Am i.b.r.(n,γ)	1.00 %/%	9.99 %	1.01 %/%	10.15 %	1.16 %/%	11.60 %	1.74 %/%	17.44 %
^{241}Am σ(n,γ)	- 0.25 %/%	2.52 %	- 1.79 %/%	17.68 %	- 2.96 %/%	29.58 %	- 0.89 %/%	8.85 %
incertitude globale		10.40 %		20.68 %		31.89 %		20.69 %

Ces variations sont en réalité la traduction de l'établissement d'une boucle d'évolution entre l' ^{241}Am et le ^{241}Pu formé lors de la transmutation de ce noyau : $^{241, 242g}\text{Am} \rightarrow ^{242}\text{Cm} \rightarrow ^{238, 239, 240, 241}\text{Pu} \rightarrow ^{241}\text{Am}$. La figure 51 illustre ce phénomène à travers le tracé des évolutions des noyaux : ^{241}Am , ^{242}Cm et ^{241}Pu . Ainsi, une partie de la matière transmutée transite par deux fois par le ^{242}Cm .

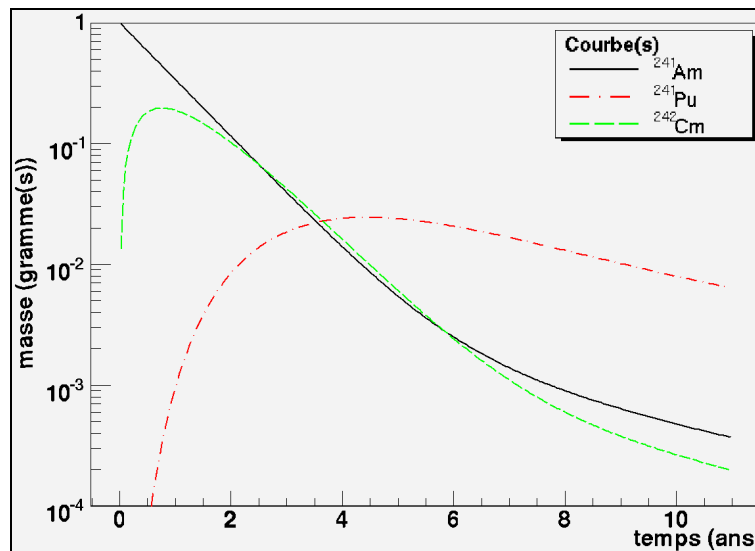


Figure 51 : Evolution massique de l' ^{241}Am , du ^{241}Pu et du ^{242}Cm . On note l'établissement des évolutions corrélées des courbes qui marquent la mise en équilibre de ces trois noyaux.

Ce phénomène n'est pas présent dans le cas du spectre EFR, étant donné la transmutation plus lente du ^{241}Am initial. Au final, ces fluctuations génèrent une incertitude totale sur la masse du ^{242}Cm qui varie entre 10 % et 30 % le long du cycle.

3.3.4.3 Réacteur HI-HWR

Tableau 30 : valeurs des coefficients de sensibilité et des erreurs (relatives, en %) des paramètres nucléaires participant majoritairement à l'incertitude associée à la masse du ^{242}Cm formé lors de la transmutation de l' ^{241}Am dans le spectre HI-HWR.

taux d'incinération	20 %		40 %		60 %		80 %	
^{241}Am i.b.r.(n,γ)	1.00 %/%	10 %	1.00 %/%	10 %	1.00 %/%	10 %	1.00 %/%	10.01 %
^{241}Am σ(n,γ)	0.22 %/%	2.23 %	- 0.14 %/%	1.37 %	- 0.16 %/%	1.63 %	- 0.16 %/%	1.63 %
^{242}Cm σ(n,γ)	- 0.04 %/%	1.55 %	- 0.14 %/%	5.67 %	- 0.30 %/%	11.83 %	- 0.73 %/%	29.08 %
incertitude globale		10.43 %		11.67 %		15.74 %		31.17 %

Du fait des taux de réaction intenses et des temps d'incinération plus courts, la boucle d'évolution $^{241}\text{Am} \rightarrow ^{241}\text{Pu} \rightarrow ^{241}\text{Am}$ observée précédemment n'est plus présente dans ce

dernier spectre. En conséquence de quoi, l'incertitude du rapport d'embranchement de l' ^{241}Am reste stationnaire à 10 %, tandis que celle de la section efficace de capture de l' ^{241}Am demeure inférieure à quelques pourcents (cf. tableau 30).

En fait, l'incertitude la plus importante est fournie par la section efficace du ^{242}Cm . En effet, cette erreur qui est croissante finit par parvenir à 30 %. Cette incertitude est évidemment l'erreur maximale que l'on obtiendra dans un cycle dénué de toute période de repos.

3.3.5 Evolution du ^{244}Cm

3.3.5.1 Réacteur EFR

Tableau 31 : valeurs des coefficients de sensibilité et des erreurs (relatives, en %) des paramètres nucléaires participant majoritairement à l'incertitude associée à la masse du ^{244}Cm formé lors de la transmutation de l' ^{241}Am dans le spectre EFR.

taux d'incinération	20 %		40 %		60 %		80 %	
^{241}Am i.b.r.(n, γ)	-1.04 %/%	10.44 %	- 0.85 %/%	8.47 %	- 0.50 %/%	5.03 %	- 0.01 %/%	0.06 %
^{241}Am σ (n, γ)	0.83 %/%	8.26 %	0.68 %/%	6.79 %	0.48 %/%	4.84 %	0.22 %/%	2.23 %
$^{242\text{m}}\text{Am}$ σ (n, γ)	0.49 %/%	19.60 %	0.43 %/%	17.25 %	0.34 %/%	13.62 %	0.22 %/%	8.79 %
^{243}Am σ (n, γ)	0.78 %/%	8.05 %	0.68 %/%	7.01 %	0.50 %/%	5.18 %	0.23 %/%	2.34 %
^{242}Pu σ (n, γ)	0.39 %/%	4.52 %	0.46 %/%	5.23 %	0.51 %/%	5.82 %	0.51 %/%	5.83 %
^{244}Cm σ (n, γ)	- 0.09 %/%	3.43 %	- 0.16 %/%	6.32 %	- 0.25 %/%	10.14 %	- 0.38 %/%	15.20 %
^{244}Cm σ (n,f)	- 0.04 %/%	1.77 %	- 0.08 %/%	3.25 %	- 0.13 %/%	5.22 %	- 0.20 %/%	7.83 %
incertitude globale		26.25 %		23.76 %		21.20 %		20.89 %

Lors de la transmutation de l' ^{241}Am dans un réacteur EFR, deux chemins de transmutation sont possibles pour atteindre le ^{244}Cm . Le premier passe par l'état isomère $^{242\text{m}}\text{Am}$: $^{241, 242\text{m}, 243, 244}\text{Am} \rightarrow ^{244}\text{Cm}$, tandis que le second passe par l'état fondamental $^{242\text{g}}\text{Am}$ et le ^{242}Pu : $^{241, 242\text{g}}\text{Am} \rightarrow ^{242, 243}\text{Pu} \rightarrow ^{243, 244}\text{Am} \rightarrow ^{244}\text{Cm}$. Le second chemin est plus long, mais la matière qui le traverse n'est pas soumise à la fission de l' $^{242\text{m}}\text{Am}$.

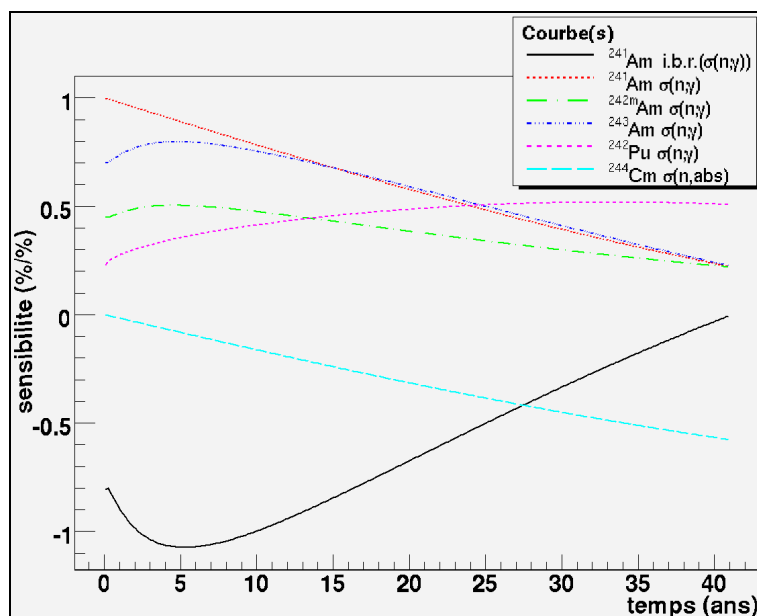


Figure 52 : Evolutions des coefficients de sensibilité du ^{244}Cm attachés aux paramètres figurants dans le tableau 31.

Les incertitudes les plus conséquentes proviennent du rapport d'embranchement et de la

section efficace de capture de l' ^{241}Am , ainsi que des sections efficaces de capture des deux isotopes : $^{242\text{m}}, ^{243}\text{Am}$ (cf. tableau 31). En début de cycle, l'incertitude attachée à la section efficace de l'état isomère $^{242\text{m}}\text{Am}$ est celle qui est la plus grande, avec une valeur proche de 20 %, alors qu'à la fin, l'erreur totale est dominée par celle de la section efficace de capture du ^{244}Cm . L'erreur totale attachée à la masse du ^{244}Cm reste ainsi supérieure à 20 %.

En outre, il est possible de remarquer que le coefficient de sensibilité du rapport d'embranchement de l' ^{241}Am évolue dans le temps (cf. figure 52). Celui-ci, tout d'abord négatif, croît dans le temps pour finalement atteindre une valeur nulle en fin de cycle. Cette variation démontre que le chemin passant par l' $^{242\text{m}}\text{Am}$ est le plus favorable en début de cycle pour former le ^{244}Cm . Néanmoins, la croissance de la sensibilité vers les valeurs positives souligne également la prise de poids de plus en plus conséquente du chemin passant par l' $^{242\text{g}}\text{Am}$ et le ^{242}Pu .

3.3.5.2 Réacteur GT-MHR

Les chemins d'évolution suivis par la matière transmutée jusqu'au ^{244}Cm sont les mêmes que ceux décrits précédemment. L'incertitude totale découle ici principalement du rapport d'embranchement de l' ^{241}Am et des sections efficaces de capture des $^{242\text{m}}, ^{243}\text{Am}$ et du ^{244}Cm (cf. tableau 32). Etant donné que la section efficace de capture du ^{242}Pu ($\delta\langle\sigma(n,\gamma)\rangle_{\text{GT-MHR}}/\langle\sigma(n,\gamma)\rangle_{\text{GT-MHR}} = 5.23 \%$) est mieux définie que celle de l' $^{242\text{m}}\text{Am}$ ($\delta\langle\sigma(n,\gamma)\rangle_{\text{GT-MHR}}/\langle\sigma(n,\gamma)\rangle_{\text{GT-MHR}} = 40 \%$), celle-ci n'est pas présente dans ce bilan.

Tableau 32 : valeurs des coefficients de sensibilité et des erreurs (relatives, en %) des paramètres nucléaires participant majoritairement à l'incertitude associée à la masse du ^{244}Cm formé lors de la transmutation de l' ^{241}Am dans le spectre GT-MHR.

taux d'incinération	20 %		40 %		60 %		80 %	
^{241}Am i.b.r.(n, γ)	- 1.42 %/%	14.23 %	- 0.62 %/%	6.19 %	- 0.18 %/%	1.79 %	0.32 %/%	3.20 %
$^{242\text{m}}\text{Am}$ $\sigma(n,\gamma)$	0.40 %/%	15.98 %	0.26 %/%	10.54 %	0.19 %/%	7.66 %	0.11 %/%	4.43 %
^{243}Am $\sigma(n,\gamma)$	0.71 %/%	14.10 %	0.50 %/%	9.90 %	0.33 %/%	9.90 %	0.05 %/%	1.03 %
^{244}Cm $\sigma(n,\gamma)$	- 0.06 %/%	2.32 %	- 0.13 %/%	5.12 %	- 0.20 %/%	8.17 %	- 0.41 %/%	16.59 %
incertitude globale		26.51 %		17.07 %		13.44 %		17.62 %

Tandis que les trois paramètres des isotopes d'américium sont ceux qui génèrent la plus grande partie de l'incertitude en début de cycle, avec notamment des contributions proches de 15 %, leur erreur finit par chuter, laissant place à l'incertitude croissante de la section efficace de capture du ^{244}Cm qui augmente jusqu'à plus de 16 %. Cependant, cette montée ne compense pas la chute des erreurs des trois autres paramètres et par conséquent l'incertitude globale régresse de plus de 25 % à moins de 18 %. Une fois de plus, du fait de l'incertitude plus importante de la section efficace de capture de l' ^{243}Am et malgré la modération du flux de neutrons, cette incertitude globale reste similaire à celle calculée dans le spectre EFR.

3.3.5.3 Réacteur HI-HWR

L'incertitude calculée pour la masse du ^{244}Cm lors de la transmutation de l' ^{241}Am dans un réacteur HI-HWR est supérieure à celle obtenue dans les deux scénarios précédents. Le rapport d'embranchement de l' ^{241}Am et les sections efficaces de capture de l' $^{242\text{m}}\text{Am}$ et de l' ^{243}Am représente une nouvelle fois les sources d'incertitude majoritaires lors des premières années d'irradiation (cf. tableau 33).

Le rapport d'embranchement manifeste en début de cycle une incertitude de plus de 20 %, qui

est le résultat d'un coefficient de sensibilité encore plus négatif que dans les deux spectres précédents. Cette sensibilité démontre que la modération du spectre rend le chemin passant par l' ^{242m}Am encore plus favorable pour la formation du ^{244}Cm que dans les cas précédents. En effet, le rapport de la section efficace de capture sur celle de fission de l' ^{242m}Am calculé dans le spectre EFR : ~ 0.10 , est inférieur à celui calculé dans les spectres GT-MHR et HI-HWR : ~ 0.20 . Ceci souligne la plus grande facilité pour la matière transmutée à traverser ce noyau. De plus, en comparaison avec le spectre GT-MHR, la section efficace du ^{242}Pu est 30 % plus faible ici ($^{242}\text{Pu} \langle \sigma(n,\gamma) \rangle_{\text{HI-HWR}} = 0.674$ barns), ce qui réduit l'intérêt de la voie passant par cet isotope de plutonium. Cependant, il est intéressant de remarquer que la sensibilité du rapport d'embranchement de l' ^{241}Am augmente dans le temps vers des valeurs positives, en corrélation avec l'épuisement de la masse initiale, ce qui traduit la prise de relai de la chaîne passant par le ^{242}Pu dans le cycle d'alimentation du ^{244}Cm .

Tableau 33 : valeurs des coefficients de sensibilité et des erreurs (relatives, en %) des paramètres nucléaires participant majoritairement à l'incertitude associée à la masse du ^{244}Cm formé lors de la transmutation de l' ^{241}Am dans le spectre HI-HWR.

taux d'incinération	20 %		40 %		60 %		80 %	
^{241}Am i.b.r.(n, γ)	- 2.43 %/%	24.68 %	- 1.22 %/%	12.18 %	- 0.5 %/%	4.95 %	0.24 %/%	2.38 %
^{242m}Am $\sigma(n,\gamma)$	0.33 %/%	13.27 %	0.21 %/%	8.54 %	0.14 %/%	5.74 %	0.07 %/%	2.93 %
^{243}Am $\sigma(n,\gamma)$	0.69 %/%	13.87 %	0.50 %/%	10.05 %	0.34 %/%	6.87 %	0.07 %/%	1.32 %
^{242}Cm $\sigma(n,\gamma)$	0.20 %/%	7.89 %	0.20 %/%	8.20 %	0.15 %/%	6.17 %	0.07 %/%	2.64 %
^{243}Cm $\sigma(n,\gamma)$	0.18 %/%	7.38 %	0.19 %/%	7.48 %	0.15 %/%	5.90 %	0.09 %/%	3.53 %
^{243}Cm $\sigma(n,f)$	- 0.08 %/%	3.20 %	- 0.15 %/%	6.18 %	- 0.14 %/%	5.70 %	- 0.09 %/%	3.64 %
^{244}Cm $\sigma(n,\gamma)$	- 0.03 %/%	1.06 %	- 0.09 %/%	3.48 %	- 0.18 %/%	7.13 %	- 0.46 %/%	18.28 %
incertitude globale		33.47 %		22.47 %		16.35 %		19.68 %

Par ailleurs, il est aussi possible d'observer que, grâce à l'action des flux de neutrons intenses, une partie de la masse de ^{244}Cm est engendrée via le chemin passant par le ^{242}Cm et le ^{243}Cm , ce qui entraîne un apport de quelques pourcents d'indétermination supplémentaire provenant des sections efficaces de capture du ^{242}Cm et du ^{243}Cm , ainsi que de la section efficace de fission du ^{243}Cm .

Ainsi, l'incertitude totale évolue durant le cycle entre 15 % et 34 %. Comme dans les cas précédents, la chute des incertitudes attachées aux paramètres de formation est compensée par la montée de l'erreur associée à la section efficace de capture du ^{244}Cm . Celle-ci engendre près de 20 % d'indétermination en fin de cycle.

3.3.6 Evolution du ^{246}Cm dans un réacteur EFR

Ce troisième isotope de curium se positionne à deux captures plus loin que le ^{244}Cm . C'est la raison pour laquelle quelques similitudes sont présentes entre les tableaux de ces deux noyaux (cf. tableau 31 et tableau 34). Néanmoins, l'erreur totale est ici bien plus grande puisque celle-ci dépasse 50 %.

En fait, la plus grande partie de l'incertitude trouve son origine dans les incertitudes attachées aux sections efficaces des isotopes du curium qui le précède, à savoir les sections efficaces de capture du ^{244}Cm et du ^{245}Cm , ainsi que la section efficace de fission du ^{245}Cm . Les deux sections efficaces de capture génèrent des erreurs comprises entre 30 % et 40 %, tandis que la section efficace de fission du ^{245}Cm amène une incertitude croissante qui atteint 25 % en fin de cycle.

Enfin, bien qu'elles soient moins importantes que celle des paramètres des curiums cités ci-dessus, l'incertitude de la section efficace de capture de l'état isomère ^{242m}Am apporte entre 10 à 20 % d'indétermination, tandis que 10 % supplémentaires sont produits en début de cycle par le rapport d'embranchement de ^{241}Am .

Tableau 34 : valeurs des coefficients de sensibilité et des erreurs (relatives, en %) des paramètres nucléaires participant majoritairement à l'incertitude associée à la masse du ^{246}Cm formé lors de la transmutation de ^{241}Am dans le spectre EFR.

taux d'incinération	20 %		40 %		60 %		80 %	
^{241}Am i.b.r.(n, γ)	- 1.06 %/%	10.61 %	- 0.99 %/%	9.89 %	- 0.79 %/%	7.91 %	- 0.45 %/%	4.47 %
^{242m}Am σ (n, γ)	0.50 %/%	19.99 %	0.47 %/%	18.94 %	0.42 %/%	16.69 %	0.33 %/%	13.13 %
^{244}Cm σ (n, γ)	0.94 %/%	37.73 %	0.89 %/%	35.79 %	0.83 %/%	33.14 %	0.73 %/%	29.36 %
^{245}Cm σ (n, γ)	0.97 %/%	38.67 %	0.94 %/%	37.67 %	0.91 %/%	36.47 %	0.88 %/%	35.03 %
^{245}Cm σ (n,f)	- 0.17 %/%	6.81 %	- 0.30 %/%	11.98 %	- 0.45 %/%	18.15 %	- 0.64 %/%	25.53 %
incertitude globale		60.74 %		58.94 %		57.02 %		55.42 %

3.3.7 Evolution du ^{252}Cf dans les réacteurs GT-MHR et HI-HWR

De manière identique à ce qui avait été constaté dans le cas de la transmutation du ^{237}Np , les erreurs des sections efficaces des isotopes du curium constituent les sources principales d'indétermination pour le ^{252}Cf formé dans les spectres GT-MHR et HI-HWR (cf. tableau 35 et tableau 36). Il s'agit essentiellement des sections efficaces de capture des noyaux présents sur la chaîne s'étalant du ^{244}Cm au ^{248}Cm et de la section efficace de fission du ^{245}Cm . En outre, en prenant en compte l'hypothèse de 10 % qui affecte les sections efficaces au-delà du ^{245}Cm , l'ensemble des sections efficaces de capture amènent chacune des erreurs qui sont comprises entre 30 et 40 %. En ce qui concerne la section efficace de fission du ^{245}Cm , cette dernière voit son erreur augmenter de manière constante durant le cycle jusqu'à parvenir à plus de 25 %.

Par ailleurs, les sections efficaces de capture du ^{249}Bk et du ^{251}Cf , ainsi que la section efficace de fission de ce dernier apportent également une contribution non-négligeable à l'incertitude totale. De même, le rapport d'embranchement de ^{241}Am et les sections efficaces de capture des $^{242m}, ^{243}\text{Am}$ sont ceux qui contribuent le plus en amont. Au final, l'incertitude totale sur la masse du ^{252}Cf est définie par des valeurs de plus de 60 %.

Tableau 35 : valeurs des coefficients de sensibilité et des erreurs (relatives, en %) des paramètres nucléaires participant majoritairement à l'incertitude associée à la masse du ^{252}Cf formé lors de la transmutation de ^{241}Am dans le spectre GT-MHR.

taux d'incinération	20 %		40 %		60 %		80 %	
^{241}Am i.b.r.(n, γ)	-2.45 %/%	24.47 %	- 1.84 %/%	18.40 %	- 1.40 %/%	13.99 %	- 0.72 %/%	7.17 %
^{242m}Am σ (n, γ)	0.60 %/%	24.00 %	0.48 %/%	19.12 %	0.40 %/%	15.93 %	0.28 %/%	11.25 %
^{243}Am σ (n, γ)	0.88 %/%	17.40 %	0.78 %/%	15.51 %	0.69 %/%	13.74 %	0.50 %/%	10 %
^{244}Cm σ (n, γ)	0.98 %/%	39.08 %	0.96 %/%	38.29 %	0.93 %/%	38.32 %	0.87 %/%	34.60 %
^{245}Cm σ (n, γ)	0.97 %/%	38.66 %	0.94 %/%	37.62 %	0.92 %/%	36.89 %	0.90 %/%	35.86 %
^{245}Cm σ (n,f)	- 0.22 %/%	8.63 %	- 0.38 %/%	15.35 %	- 0.50 %/%	20.09 %	- 0.67 %/%	26.76 %
^{246}Cm σ (n, γ)	0.99 %/%	9.93 %	0.98 %/%	8.85 %	0.97 %/%	9.75 %	0.94 %/%	9.44 %
^{247}Cm σ (n, γ)	0.97 %/%	9.67 %	0.93 %/%	9.31 %	0.89 %/%	8.95 %	0.82 %/%	8.16 %
^{248}Cm σ (n, γ)	0.99 %/%	9.89 %	0.97 %/%	9.75 %	0.96 %/%	9.59 %	0.91 %/%	9.14 %
^{249}Bk σ (n, γ)	0.66 %/%	6.56 %	0.48 %/%	4.78 %	0.38 %/%	3.83 %	0.28 %/%	2.78 %
^{251}Cf σ (n, γ)	0.80 %/%	8.00 %	0.74 %/%	7.44 %	0.72 %/%	7.21 %	0.70 %/%	7.03 %
^{251}Cf σ (n,f)	- 0.42 %/%	4.23 %	- 0.54 %/%	5.44 %	- 0.60 %/%	5.95 %	- 0.65 %/%	6.47 %
incertitude globale		71.36 %		67.18 %		64.89 %		62.00 %

Tableau 36 : valeurs des coefficients de sensibilité et des erreurs (relatives, en %) des paramètres nucléaires participant majoritairement à l'incertitude associée à la masse du ^{252}Cf formé lors de la transmutation de l' ^{241}Am dans le spectre HI-HWR.

temps d'irradiation	53 jours		152 jours		288 jours		667 jours	
^{241}Am i.b.r.(n, γ)	- 3.39 %/%	33.87 %	- 2.47 %/%	24.74 %	- 1.75 %/%	17.47 %	- 0.80 %/%	8.05 %
$^{242\text{m}}\text{Am}$ σ (n, γ)	0.44 %/%	17.48 %	0.34 %/%	13.50 %	0.27 %/%	10.61 %	0.17 %/%	6.95 %
^{243}Am σ (n, γ)	0.86 %/%	17.25 %	0.71 %/%	14.09 %	0.59 %/%	11.76 %	0.40 %/%	7.99 %
^{244}Cm σ (n, γ)	0.85 %/%	33.99 %	0.93 %/%	37.20 %	0.92 %/%	36.85 %	0.84 %/%	33.52 %
^{245}Cm σ (n, γ)	0.93 %/%	37.30 %	0.89 %/%	35.65 %	0.87 %/%	35.00 %	0.86 %/%	34.56 %
^{245}Cm σ (n,f)	- 0.41 %/%	16.38 %	- 0.66 %/%	26.37 %	- 0.76 %/%	30.31 %	- 0.82 %/%	32.93 %
^{246}Cm σ (n, γ)	1.00 %/%	9.99 %	1.00 %/%	9.95 %	0.99 %/%	9.90 %	0.97 %/%	9.72 %
^{247}Cm σ (n, γ)	0.97 %/%	9.75 %	0.92 %/%	9.24 %	0.86 %/%	8.62 %	0.75 %/%	7.49 %
^{248}Cm σ (n, γ)	1.00 %/%	9.97 %	0.99 %/%	9.90 %	0.98 %/%	9.78 %	0.94 %/%	9.41 %
^{249}Bk σ (n, γ)	0.67 %/%	6.65 %	0.36 %/%	3.63 %	0.21 %/%	2.09 %	0.09 %/%	0.93 %
^{251}Cf σ (n, γ)	0.65 %/%	6.54 %	0.65 %/%	6.54 %	0.65 %/%	6.55 %	0.66 %/%	6.58 %
^{251}Cf σ (n,f)	- 0.65 %/%	6.54 %	- 0.65 %/%	6.54 %	- 0.65 %/%	6.55 %	- 0.66 %/%	6.58 %
incertitude globale		71.78 %		69.82 %		67.68 %		63.60 %

Chapitre 4

Bilans de l'étude et discussion

L'étude présentée dans les deux chapitres précédents consistait à définir et mettre en avant les paramètres nucléaires dont les erreurs pouvaient avoir un impact significatif sur des quantités liées à l'économie de la transmutation (taux de transmutation et d'incinération) mais également à la sûreté et la manipulation des cibles de transmutation. Nous avons étudié trois scénarios de réacteur (EFR, GT-MHR et HI-HWR) dans lesquels nous avons regardé l'évolution d'une cible de ^{237}Np et d' ^{241}Am .

Il résulte de cette étude, très simplifiée de par les choix de simulation qui ont été faits, qu'un grand nombre de paramètres peuvent générer des incertitudes supérieures à 10%. L'ensemble de ces paramètres sont listés dans le tableau 37. Les paramètres mis entre crochet, sont ceux pour lesquels l'hypothèse d'une erreur fixe de $\pm 10\%$ s'applique, car il n'y a pas d'erreur évaluée associée, mais pour lesquels une erreur plus importante est pressentie.

Tableau 37 : Liste des paramètres nucléaires (intégrés) ayant réussi à apporter une incertitude supérieure à 10 % sur les variables d'intérêt pour l'incinération du neptunium-237 et de l'américium-241, dans chacun des trois cas de scénarios simulés : EFR, GT-MHR et HI-HWR.

	incinération Np-237	incinération Am-241
EFR	$^{238}\text{Pu}(n,\gamma)$, $^{238}\text{Pu}(n,f)$, $^{240}\text{Pu}(n,\gamma)$, $^{241}\text{Pu}(n,\gamma)$, $^{242}\text{Pu}(n,\gamma)$, $^{241}\text{Am i.b.r.}(n,\gamma)$	$^{241}\text{Am i.b.r.}(n,\gamma)$, $^{241}\text{Am}(n,\gamma)$, $^{242m}\text{Am}(n,\gamma)$, $^{238}\text{Pu}(n,\gamma)$, $^{238}\text{Pu}(n,f)$, $^{244}\text{Cm}(n,\gamma)$, $^{245}\text{Cm}(n,\gamma)$, $^{245}\text{Cm}(n,f)$
GT-MHR	$^{238}\text{Pu}(n,\gamma)$, $^{241}\text{Am i.b.r.}(n,\gamma)$, $^{243}\text{Am}(n,\gamma)$, $^{244}\text{Cm}(n,\gamma)$, $^{245}\text{Cm}(n,\gamma)$, $^{245}\text{Cm}(n,f)$, [$^{246}\text{Cm}(n,\gamma)$, $^{247}\text{Cm}(n,\gamma)$, $^{248}\text{Cm}(n,\gamma)$, $^{249}\text{Bk}(n,\gamma)$, $^{251}\text{Cf}(n,\gamma)$, $^{251}\text{Cf}(n,f)$]	$^{241}\text{Am i.b.r.}(n,\gamma)$, $^{241}\text{Am}(n,\gamma)$, $^{242m}\text{Am}(n,\gamma)$, $^{243}\text{Am}(n,\gamma)$, $^{244}\text{Cm}(n,\gamma)$, $^{245}\text{Cm}(n,\gamma)$, $^{245}\text{Cm}(n,f)$, [$^{246}\text{Cm}(n,\gamma)$, $^{247}\text{Cm}(n,\gamma)$, $^{248}\text{Cm}(n,\gamma)$, $^{249}\text{Bk}(n,\gamma)$, $^{251}\text{Cf}(n,\gamma)$, $^{251}\text{Cf}(n,f)$]
HI-HWR	[$^{238}\text{Np}(n,f)$], $^{238}\text{Pu}(n,\gamma)$, $^{241}\text{Am i.b.r.}(n,\gamma)$, $^{242m}\text{Am}(n,\gamma)$, $^{243}\text{Am}(n,\gamma)$	$^{241}\text{Am i.b.r.}(n,\gamma)$, $^{242m}\text{Am}(n,\gamma)$, $^{243}\text{Am}(n,\gamma)$, $^{242}\text{Cm}(n,\gamma)$, $^{244}\text{Cm}(n,\gamma)$, $^{245}\text{Cm}(n,\gamma)$, $^{245}\text{Cm}(n,f)$, [$^{246}\text{Cm}(n,\gamma)$, $^{247}\text{Cm}(n,\gamma)$, $^{248}\text{Cm}(n,\gamma)$, $^{249}\text{Bk}(n,\gamma)$, $^{251}\text{Cf}(n,\gamma)$, $^{251}\text{Cf}(n,f)$]

De par ce tableau bilan, il apparaît clairement que certains paramètres ont une grande importance dans l'incinération du ^{237}Np et de l' ^{241}Am puisqu'ils génèrent des erreurs dans les deux évolutions. C'est le cas, par exemple, de $^{241}\text{Am i.b.r.}(n,\gamma)$ et $^{244}\text{Cm}(n,\gamma)$. De plus, certaines réactions ont également un impact à la fois dans le domaine thermique (HI-HWR) mais aussi dans le domaine rapide (EFR). C'est pourquoi, dans la suite, nous avons détaillé la répartition des erreurs selon le domaine énergétique pour les quelques réactions ayant le plus d'importance.

4.1 Répartition en énergie des erreurs

Afin de fournir une estimation de la plage en énergie sur laquelle ces paramètres présentent le plus d'incertitude et devront donc être mieux qualifiés, nous présentons ici une répartition en énergie des incertitudes. Pour ce faire, les matrices de l'évaluation « ANL covariance matrix » ont été une nouvelle fois utilisées pour construire la répartition en énergie des sections

efficaces intégrées sur les différents spectres neutroniques. Les sections efficaces des noyaux suivants : ^{238}Np , $^{246, 247, 248}\text{Cm}$, ^{249}Bk et ^{251}Cf , de même que le rapport d'embranchement de ^{241}Am ne font pas partie de ces évaluations. C'est pourquoi, elles ne seront pas prises en compte dans la suite de cette analyse. Ainsi, le tableau 38, et le tableau 40 donnent la répartition (en %) des erreurs intégrées des paramètres choisis sur quinze plages en énergie.

4.1.1 Spectre EFR

Dans le spectre EFR, la majeure partie des erreurs des sections efficaces provient du domaine d'énergie compris entre 454 eV et 498 keV (cf. tableau 38). C'est une région dans laquelle se situent les domaines de résonances résolues et non-résolues. Or, du fait, de la difficulté des mesures pour certains noyaux, ces domaines sont souvent difficiles à caractériser par des mesures de temps vol. Seules des mesures intégrales peuvent apporter des contraintes expérimentales.

Tableau 38 : Répartition énergétique des erreurs intégrées des sections efficaces contribuant aux incertitudes les plus conséquentes dans le cadre de l'incinération et de la transmutation de ^{241}Am et du ^{237}Np dans un réacteur EFR. Les sections colorées représentent les contributions supérieures à 5 %.

	^{238}Pu $\sigma(n,\gamma)$	^{238}Pu $\sigma(n,f)$	^{240}Pu $\sigma(n,\gamma)$	^{241}Pu $\sigma(n,\gamma)$	^{242}Pu $\sigma(n,\gamma)$	^{241}Am $\sigma(n,\gamma)$	^{242m}Am $\sigma(n,\gamma)$	^{244}Cm $\sigma(n,\gamma)$	^{245}Cm $\sigma(n,\gamma)$	^{245}Cm $\sigma(n,f)$
6.07 MeV – 20 MeV	0 %	0.4 %	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %	0.2 %
2.23 MeV – 6.07 MeV	0.1 %	4.3 %	0.1 %	0.2 %	0.4 %	0.1 %	0 %	0.1 %	0.1 %	2.5 %
1.35 MeV – 2.23 MeV	0.4 %	4.2 %	0.5 %	0.5 %	1.2 %	0.3 %	0.3 %	0.3 %	0.3 %	2.8 %
498 keV – 1.35 MeV	1.9 %	13.1 %	5.3 %	3.9 %	6.2 %	2.7 %	3.2 %	3.1 %	3.1 %	8.8 %
183 keV – 498 keV	5.2 %	9.2 %	9.9 %	6.9 %	9.2 %	8.7 %	9.4 %	7.9 %	10.1 %	13.6 %
67.4 keV – 183 keV	8.2 %	6.6 %	16.1 %	9.6 %	13.3 %	17.9 %	20.3 %	15.7 %	17.8 %	17.4 %
24.8 keV – 67.4 keV	9.5 %	16.1 %	21.1 %	10.7 %	14.2 %	18.8 %	18.4 %	18.9 %	17.8 %	14.6 %
9.12 keV – 24.8 keV	19.0 %	14.1 %	12.0 %	21.2 %	16.4 %	17.3 %	16.4 %	18.1 %	16.5 %	13.2 %
2.03 keV - 9.12 keV	16.2 %	11.1 %	8.6 %	18.1 %	13.1 %	13.1 %	12.9 %	12.2 %	13.1 %	10.5 %
454 eV – 2.03 keV	26.7 %	16.5 %	20.7 %	26.1 %	21.6 %	17.6 %	16.1 %	16.9 %	17.8 %	13.7 %
22.6 eV – 454 eV	12.6 %	4.4 %	5.4 %	2.8 %	4.4 %	3.5 %	3.1 %	6.9 %	3.4 %	2.6 %
4 eV – 22.6 eV	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %
0.54 eV – 4 eV	0 %	0 %	0.1 %	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %
0.1 eV – 0.54 eV	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %
0.001 eV – 0.1 eV	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %

4.1.2 Spectre GT-MHR

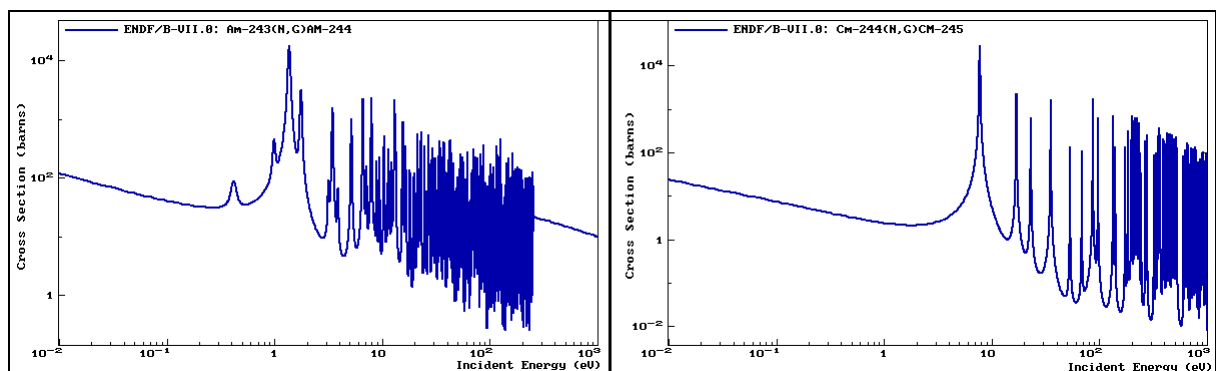


Figure 53 : Sections efficaces de capture évaluées (ENDF/B-VII.0) de ^{243}Am (à gauche) et du ^{244}Cm (à droite) entre 10^{-2} eV et 1 keV. On note l'importance des premières résonances à quelques eV.

En ce qui concerne les calculs effectués dans le spectre GT-MHR, les incertitudes des sections

efficaces se distribuent en grande partie en dessous de 454 eV (cf. tableau 39). Or, à la différence du scénario précédent, il est possible de constater ici des zones de concentration hétérogènes des incertitudes, et plus particulièrement en dessus de 0.54 eV. Celles-ci sont occasionnées par la présence de premières résonances particulièrement importantes de certains de ces paramètres.

Tableau 39 : Répartition énergétique des erreurs intégrées des sections efficaces contribuant aux incertitudes les plus conséquentes dans le cadre de l'incinération et de la transmutation de l'²⁴¹Am et du ²³⁷Np dans un réacteur GT-MHR. Les sections colorées représentent les contributions supérieures à 5 %.

	²³⁸ Pu σ(n,γ)	²⁴¹ Am σ(n,γ)	^{242m} Am σ(n,γ)	²⁴³ Am σ(n,γ)	²⁴⁴ Cm σ(n,γ)	²⁴⁵ Cm σ(n,γ)	²⁴⁵ Cm σ(n,f)
6.07 MeV – 20 MeV	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %
2.23 MeV – 6.07 MeV	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %	0.02 %
1.35 MeV – 2.23 MeV	0.01 %	0 %	0 %	0 %	0.01 %	0 %	0.03 %
498 keV – 1.35 MeV	0.01 %	0.01 %	0 %	0.01 %	0.07 %	0.02 %	0.05 %
183 keV – 498 keV	0.03 %	0.03 %	0.01 %	0.03 %	0.13 %	0.05 %	0.06 %
67.4 keV – 183 keV	0.04 %	0.04 %	0.01 %	0.05 %	0.22 %	0.08 %	0.06 %
24.8 keV – 67.4 keV	0.05 %	0.06 %	0.02 %	0.07 %	0.33 %	0.10 %	0.06 %
9.12 keV – 24.8 keV	0.15 %	0.08 %	0.02 %	0.10 %	0.47 %	0.14 %	0.09 %
2.03 keV – 9.12 keV	0.40 %	0.17 %	0.05 %	0.23 %	0.94 %	0.32 %	0.20 %
454 eV – 2.03 keV	1.06 %	0.37 %	0.09 %	0.47 %	2.25 %	0.67 %	0.41 %
22.6 eV – 454 eV	8.18 %	2.08 %	0.53 %	5.08 %	14.02 %	2.86 %	2.75 %
4 eV – 22.6 eV	2.85 %	2.98 %	0.63 %	9.41 %	73.72 %	3.82 %	4.86 %
0.54 eV – 4 eV	3.01 %	21.61 %	3.26 %	71.30 %	0.87 %	4.96 %	6.26 %
0.1 eV – 0.54 eV	18.15 %	48.17 %	37.19 %	5.06 %	2.20 %	16.29 %	18.57 %
0.001 eV – 0.1 eV	66.06 %	24.41 %	58.19 %	8.19 %	4.73 %	70.71 %	66.59 %

En effet, les exemples les plus révélateurs pour introduire ce phénomène sont ceux des sections efficaces de capture de l'²⁴³Am et du ²⁴⁴Cm, pour lesquelles la première résonance arrive à récolter plus de 70 % de l'incertitude finale. Celles-ci se trouvent aux alentours de 1 et 8 électronvolts, respectivement (cf. figure 53).

Tableau 40 : Répartition énergétique des erreurs intégrées des sections efficaces contribuant aux incertitudes les plus conséquentes dans le cadre de l'incinération et de la transmutation de l'²⁴¹Am et du ²³⁷Np dans un réacteur HI-HWR. Les sections colorées représentent les contributions supérieures à 5 %.

	²³⁸ Pu σ(n,γ)	^{242m} Am σ(n,γ)	²⁴³ Am σ(n,γ)	²⁴² Cm σ(n,γ)	²⁴⁴ Cm σ(n,γ)	²⁴⁵ Cm σ(n,γ)	²⁴⁵ Cm σ(n,f)
6.07 MeV – 20 MeV	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %
2.23 MeV – 6.07 MeV	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %
1.35 MeV – 2.23 MeV	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %
498 keV – 1.35 MeV	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %
183 keV – 498 keV	0 %	0 %	0 %	0 %	0.01 %	0 %	0 %
67.4 keV – 183 keV	0 %	0 %	0 %	0.01 %	0.02 %	0 %	0 %
24.8 keV – 67.4 keV	0 %	0 %	0.01 %	0.03 %	0.04 %	0 %	0 %
9.12 keV – 24.8 keV	0 %	0 %	0.01 %	0.06 %	0.08 %	0 %	0 %
2.03 keV – 9.12 keV	0.01 %	0 %	0.04 %	0.18 %	0.20 %	0.01 %	0 %
454 eV – 2.03 keV	0.04 %	0 %	0.11 %	0.54 %	0.62 %	0.03 %	0.02 %
22.6 eV – 454 eV	0.40 %	0.04 %	1.57 %	8.37 %	4.96 %	0.14 %	0.15 %
4 eV – 22.6 eV	0.17 %	0.05 %	3.70 %	4.56 %	48.93 %	0.21 %	0.29 %
0.54 eV – 4 eV	0.25 %	0.30 %	30.35 %	0.36 %	0.44 %	0.34 %	0.45 %
0.1 eV – 0.54 eV	4.41 %	10.54 %	5.19 %	5.56 %	3.06 %	3.63 %	4.18 %
0.001 eV – 0.1 eV	94.70 %	89.06 %	59.01 %	80.31 %	41.63 %	95.64 %	94.89 %

En définitive, dans ce type de spectre partiellement modéré, il est essentiel pour ces sections efficaces d'être à la fois bien définies dans le domaine d'énergie thermique ($E_n < 1$ eV), ainsi que sur le début de la région des résonances.

4.1.3 Spectre HI-HWR

Dans ce dernier spectre hautement modéré, la majeure partie des incertitudes se situe en dessous de 4 eV (cf. tableau 40). Cependant, malgré cette modération, les imposantes résonnances de l' ^{243}Am et du ^{244}Cm ont encore des contributions conséquentes sur les incertitudes. En effet, celles-ci arrivent tout de même à cumuler plus du tiers des erreurs finales. De même, dans le cas de la section efficace de capture du ^{242}Cm , au moins 10 % d'indétermination sont issues des résonnances localisées dans les premières dizaines d'électronvolts.

C'est pourquoi, malgré le fait que le flux HI-HWR soit fortement modéré, il sera néanmoins nécessaire de procéder à une meilleure caractérisation des premières résonnances afin d'affiner au mieux les sections efficaces d'intérêt. Par ailleurs, comme pour le cas GT-MHR, le domaine d'énergie thermique devra aussi bénéficier d'un intérêt particulier.

4.2 Discussion et Conclusions

Cette étude a permis de quantifier l'impact des incertitudes attachées aux données nucléaires sur des variables d'intérêt pour l'incinération et la transmutation de l' ^{241}Am et du ^{237}Np . L'étude s'est portée sur trois spectres neutroniques différents de réacteurs : EFR, GT-MHR et HI-HWR, correspondant chacun à un domaine en énergie particulier : rapide, épithermique et thermique. Les résultats obtenus ont montré que les erreurs des paramètres nucléaires pouvaient, dans certains cas, avoir un impact très important. L'exemple le plus notoire fut le cas de la production de ^{252}Cf , qui est une source non négligeable de neutrons, pour lequel des incertitudes de plus de 60 % ont été obtenues.

Par ailleurs, bien que les bilans inclus les erreurs des paramètres de décroissance, ceux-ci n'ont pas exprimés d'impacts notables sur les évolutions des variables étudiés. En effet, seule une partie des sections efficaces de réactions (n, γ) et (n,f) ont réussi à engendrer des incertitudes conséquentes. On peut citer, en exemple, l'erreur sur la capture de l' $^{242\text{m}}\text{Am}$, en grande partie responsable de l'erreur sur la production de ^{244}Cm qui tourne aux alentours de 20 à 30%, aussi bien en spectre thermique que rapide.

De plus, grâce à l'utilisation des matrices évaluées, une partie des sections efficaces ayant les plus fortes contributions (i.e. supérieures à 10 %) ont été détaillées en énergie. Ceci doit permettre de mieux appréhender les régions dans lesquels une meilleure validation est nécessaire. Ainsi, dans le réacteur rapide EFR, le domaine énergétique d'intérêt se situe à la fin de la région des résonnances, entre 0.5 keV et 500 keV, tandis que pour les deux spectres modérés GT-MHR et HI-HWR, la plupart des erreurs se localisent respectivement en deçà de 500 eV et quelques électronvolts.

Par ailleurs, pour ces deux derniers spectres, les bilans réalisés ont fait ressortir l'influence notable de certaines premières résonnances. Ceci est plus particulièrement vrai pour les sections efficaces de capture de l' ^{243}Am et du ^{244}Cm , où des participations de plus de 50 % ont été constatées. Dans le cas du GT-MHR, où le spectre est d'autant plus dur, ces résonnances ont un poids encore bien supérieur. Par conséquent, elles devront faire l'objet d'une attention plus poussée dans les qualifications.

En outre, il est nécessaire de rappeler que seule une partie des sections efficaces d'importance

ont été prises en considération dans cette dernière partie de l'analyse, étant donné que seule une partie des erreurs de ces paramètres ont été évaluées. Aussi, pour ces sections efficaces qui n'ont pas été prises en considération (e.g. ^{249}Bk $\sigma(n,\gamma)$, ^{238}Np $\sigma(n,f)$, etc.), nous pensons qu'elles devront faire l'objet de cibles prioritaires pour les futures mesures. En effet, ces dernières ont généralement été peu mesurées et caractérisées. La figure 54 donne l'exemple particulièrement éloquent de l'évaluation de la section efficace de fission du ^{238}Np , pour laquelle une seule mesure existe en fonction de l'énergie.

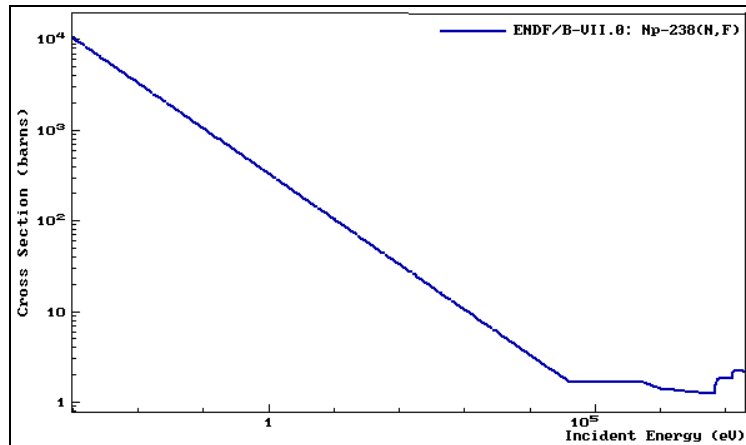


Figure 54 : Section efficace de fission évaluée (ENDF/B-7.0) du ^{238}Np entre 10^{-3} eV et 20 MeV.

Pour finir, bien que cette étude ait permis de mettre en lumière les paramètres nucléaires des actinides ayant le plus besoin de validation, nous devons observer que celle-ci est loin d'être exhaustive. De nombreux points sont absents de cette étude, comme la formation et l'évolution des produits de fission. En effet, certains d'entre eux sont particulièrement difficiles à gérer dans l'aval du cycle, à l'instar des noyaux à vies longues comme par exemple : le technétium-99 ($T_{1/2} = 2.111 \cdot 10^5$ ans) ou encore le zirconium-93 ($T_{1/2} = 1.5 \cdot 10^6$ ans). Le confinement de ces noyaux reste très délicat sur des périodes équivalentes à leur durée de vie, du fait notamment de leur grande mobilité. De surcroît, d'autres produits de fission à durées de vies plus courtes tels que le césium-137 ($T_{1/2} = 30.03$ ans) ou le strontium-90 ($T_{1/2} = 28.9$ ans) sont actuellement des contributeurs majoritaires aux dégagements thermiques dans les combustibles irradiés UOX (et MOX) et dans les colis de déchets vitrifiés. En outre, hormis, cet aspect sur les produits de fission, d'autres abords sur la transmutation n'ont pas été traité ici, comme les émissions de photons gammas, ou encore le réel effet des périodes de repos (e.g. déchargement du combustibles, retraitement des cibles) sur les évolutions des noyaux.

C'est pourquoi, au vue de toutes considérations, les résultats et les conclusions qui ont été tirés de ce travail ne sont que partiels et ne servent qu'à mettre en lumière une fraction des paramètres qui devront être qualifiés avec une meilleure précision. En outre, cette étude ne tient pas compte des évolutions de flux dans le cœur, ni du vieillissement du combustible, et le traitement des erreurs ne tient pas compte des corrélations entre les différents domaines en énergie. C'est pourquoi, dans le cadre d'un scénario spécifique, des calculs plus avancés seront nécessaires pour une meilleure appréhension des véritables incertitudes générées.

Deuxième Partie : Campagnes de mesures expérimentales menées dans le cadre du projet mini-INCA

Chapitre 5

Présentation du dispositif expérimental

Dans la première partie de cet exposé, nous avons vu que les incertitudes des données nucléaires, et plus particulièrement celles associées aux sections efficaces de capture et de fission des actinides mineurs, peuvent générer des indéterminations non-négligeables (i.e. de plusieurs dizaines de pourcents) sur les calculs des grandeurs liées à l'incinération et à la transmutation de l'américium-241 et du neptunium-237. Nous avons vu, par exemple, que la section efficace de capture de l'américium-241 et surtout le rapport d'embranchement avait une importance fondamentale dans la transmutation de cet isotope, mais également du neptunium-237, et ce pour les trois scénarios étudiés. De même, la capture de l'américium-242 isomère et du curium-244 ont une responsabilité dans la formation de sources de neutrons et l'activité alpha des cibles.

Des conclusions analogues ont été tirées pour des quantités touchant au fonctionnement des réacteurs de future génération pour lesquels les taux de combustion sont plus élevés que ceux des filières actuelles [63]. Afin de réduire ces marges, il est clair qu'une meilleure caractérisation des chaînes de transmutation des actinides mineurs est actuellement nécessaire pour les paramètres nucléaires ayant le plus d'impact.

C'est dans cet objectif que se sont déroulés les différents programmes expérimentaux que nous présentons dans la suite de cette seconde partie. Tout d'abord, nous nous sommes attachés à caractériser la chaîne de transmutation de l'américium-241, jusqu'à la formation du curium-242. Ensuite, nous avons étudié la chaîne de transmutation du curium-244, en caractérisant son incinération et en regardant le passage vers les californiums.

Ces programmes expérimentaux ont été réalisés à l'aide des installations du projet mini-INCA auprès du réacteur à haut flux de l'institut Laue-Langevin (Grenoble) qui offre un accès à des flux de neutrons de haute intensité. Les mesures effectuées ne s'attachent qu'à décrire la partie basse énergie des sections efficaces (25 meV). Cette partie sert de point de normalisation pour les mesures à plus haute énergie, si elles existent, et sont incontournables pour des réacteurs dont le flux est partiellement modéré (GT-MHR par exemple).

Dans ce chapitre, nous décrivons les caractéristiques des mesures, ainsi que l'installation Mini-INCA à l'ILL et le dispositif expérimental utilisé : spectrométrie de masse, chambres à fission miniatures et banc de spectroscopie α/γ .

5.1 Les mesures de sections efficaces

Pour explorer les réactions induites par neutrons, différentes techniques expérimentales existent. Celles-ci sont généralement subdivisées en deux catégories, à savoir : les mesures différentielles et les mesures intégrales ou semi-intégrales.

5.1.1 Les mesures différentielles

Les mesures différentielles sont, en principe, les plus riches en information puisqu'elles permettent d'établir la dépendance en énergie des sections efficaces. Pour ce faire, les

techniques de mesure par temps de vol sont très utilisées auprès d'installations fournissant des spectres « blancs » de neutrons. Ces derniers sont produits par l'interaction d'un faisceau d'électrons sur une cible d'uranium (comme la source GELINA à GEEL, Belgique) ou de protons de grandes énergies sur un massif de plomb (n_TOF au CERN). Les neutrons émis dans la cible de production se propagent dans la base de vol, dont la longueur peut s'étaler de quelques mètres à plusieurs centaines de mètres. En fonction du temps mis par les neutrons pour parcourir la base, il est possible de remonter directement à leur énergie, et ainsi en mesurant les particules émises, de pouvoir remonter aux sections efficaces des réactions étudiées. La figure 55 montre l'exemple de l'installation n_ToF [81] au CERN avec une base de vol de près de 200 mètres. Etant donné que la différenciation en énergie est d'autant plus importante que la base est longue, plus celle-ci sera grande, meilleure sera la résolution. Ainsi, des résolutions de quelques eV peuvent être atteintes dans une gamme en énergie couvrant les résonances résolues et non-résolues. En contre partie, le flux de neutrons qui atteint l'échantillon sera moindre puisqu'il varie comme l'inverse du carré de la distance parcourue (angle solide). D'autres techniques, comme les réactions de fusion D-T ou D-D, sont utilisées pour fournir des faisceaux mono-énergétiques de quelques MeV (14.1 MeV pour la réaction D-T).

Les mesures différentielles sont souvent sujettes à des incertitudes de normalisation et sont difficilement utilisables dans le domaine thermique. De plus, compte tenu des flux accessibles, des quantités de matière de l'ordre du gramme sont nécessaires, ce qui peut représenter un facteur très limitant lorsqu'il s'agit de manipuler des actinides mineurs. Pour finir, si on s'intéresse à des noyaux dont les durées de vie sont courtes (de quelques heures à quelques jours), il est bien évident que de telles cibles ne peuvent pas être fabriquées.

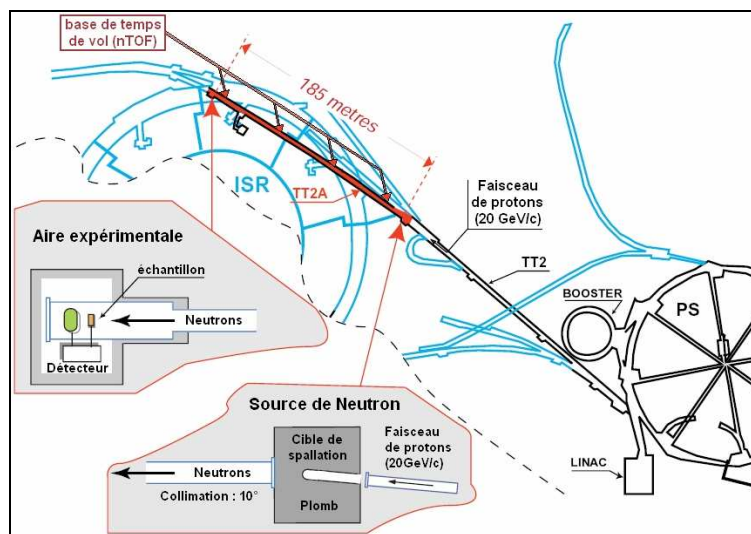


Figure 55 : Installation de mesure par temps de vol de n_ToF au CERN.

5.1.2 Les mesures intégrales

A la différence des mesures différentielles, les mesures intégrales portent sur la détermination de quantités qui s'expriment mathématiquement par des intégrales faisant intervenir des paramètres nucléaires (e.g. taux de réaction, taux de décroissance, facteur de multiplication, etc.). Elles sont généralement effectuées en réacteur nucléaire, et nécessitent des dispositifs permettant de mesurer l'évolution de la grandeur intégrale étudiée dans l'espace et dans le temps. Elles constituent des mesures de référence et de validation pour l'ingénierie nucléaire

et pour les bases de données. Dans le domaine thermique ($E_n \leq 1\text{eV}$), où les sections efficaces varient comme l'inverse de la vitesse du neutron et en utilisant de faibles quantités de matière, il est possible de remonter à une partie de la section efficace partielle. On parle alors de mesures semi-intégrales.

5.1.3 Présentation du projet mini-INCA

Le projet mini-INCA s'appuie sur des mesures semi-intégrales et a été lancé dans le cadre de la loi « Bataille » sur la gestion et le retraitement des déchets nucléaires. La majorité des expériences se déroulent auprès du réacteur à haut flux de l'institut Laue-Langevin. Les principales caractéristiques de ces expériences sont les suivantes :

- 1 *Spectre et intensité de flux neutroniques variables* : grâce aux différents canaux d'irradiation disponible (i.e. canaux V4, T4 et H9), ainsi qu'aux différentes positions d'irradiation qu'ils peuvent offrir, il est possible d'avoir accès à un choix étendu de flux. Ainsi, il est possible d'accéder à des intensités variables de $2 \cdot 10^{13} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ (canal T4) jusqu'à près de $1.5 \cdot 10^{15} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ (fond du canal V4), avec des spectres allant du maxwellien pur ($T = 50 \text{ }^\circ\text{C}$) jusqu'à un spectre possédant aux alentours de 15 % de composante non-thermique ($E_n > 1 \text{ eV}$).
- 2 *Echantillons de très faibles masses* : grâce à l'intensité des flux, des échantillons de masses inférieures à quelques dizaines de microgrammes peuvent être utilisés. Ceci permet de rendre négligeables les perturbations locales de flux ainsi que les phénomènes d'auto-absorption.
- 3 *Ensemble de détecteurs adaptés* : un effort conséquent de développement de l'instrumentation mais également des procédures d'analyses a été consenti afin d'offrir un dispositif complet de mesure et adapté à chaque section efficace étudiée, ainsi qu'aux conditions difficiles présentes dans certaines sections d'irradiation.

Grâce à l'ensemble de ces caractéristiques, le projet mini-INCA est capable de mener des analyses poussées des chaînes de transmutation et d'incinération des actinides mineurs dans le domaine d'énergie thermique. Ces mesures permettent aussi de déterminer le point d'énergie thermique ($E_n = 0.0253 \text{ eV}$) et peuvent contribuer à la modélisation et la validation des sections efficaces évaluées.

5.2 Réacteur à haut flux de neutrons de l'institut Laue-Langevin

La fondation de l'institut Laue-Langevin remonte à 1967. Elle est le fruit d'une étroite collaboration scientifique entre la France et l'Allemagne [82], rejoint par le Royaume-Uni en 1973. L'objectif de cette création fût la mise en place et l'utilisation d'une source intense de neutrons dédiée à la recherche fondamentale civile. Aujourd'hui, les domaines de recherche qui y sont développés sont particulièrement variés : physique nucléaire, chimie, biosciences, physique des matériaux, etc.

La source de neutrons est un réacteur de $58 \text{ MW}_{\text{th}}$ de puissance thermique, dont le cœur est enrichi en ^{235}U et les neutrons modérés par du D_2O . La configuration simplifiée de l'élément combustible piloté par une seule barre de contrôle, ainsi que les spectres très modérés et la haute intensité du flux en font un outil d'excellence pour des mesures semi-intégrales dans le

domaine d'énergie thermique.



Figure 56 : Photographie du réacteur de l'institut Laue-Langevin à Grenoble en France.

5.3 Les canaux d'irradiation T4, V4 et H9

Le canal V4 est un outil unique du fait qu'il permet d'accéder aux flux modérés les plus intenses au monde à savoir près de $1.5 \cdot 10^{15} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ au fond du canal. Il est situé à 10 centimètres de l'élément combustible dans sa partie basse et du fait de son inclinaison de 8° , il permet d'accéder à différents spectres de neutrons.

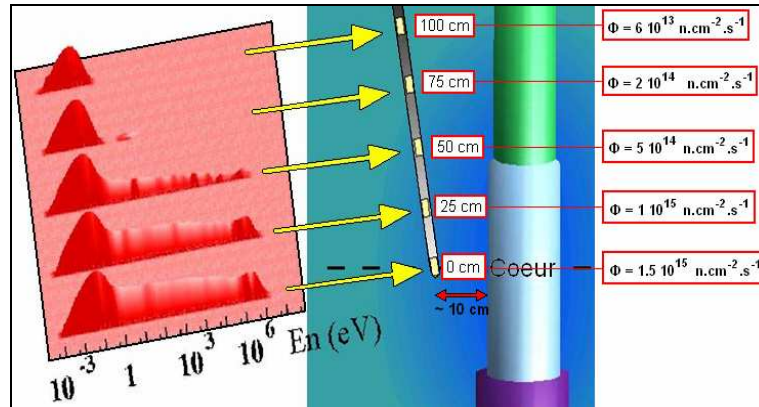


Figure 57 : Spectre et flux présents dans les différentes positions du canal V4. Plus celle-ci est proche du cœur et plus l'intensité du flux est grande et la modulation du spectre moindre.

Dans les mesures, cinq positions (i.e. hauteurs) standards sont généralement utilisées : 0 cm (fond du canal, plan médian du cœur), 25 cm, 50 cm, 75 cm et 100 cm. Plus on se rapproche du cœur, plus le flux de neutrons est élevé et moins ce dernier est modéré. Ainsi, une composante non-thermique de près de 15 % est présente au fond du canal. A l'opposé, la position 100 cm est caractérisée par un spectre purement maxwellien ($T = 50^\circ\text{C}$). L'intérêt de ces caractéristiques variées est de pouvoir quantifier les effets d'une partie des premières résonances sur les sections efficaces intégrées, et de pouvoir explorer différentes chaînes de transmutation en fonction de l'intensité des taux de réaction désirée. La figure 58 montre les résultats des simulations [83] qui ont été effectuées avec MCNP pour les canaux H9 et V4.

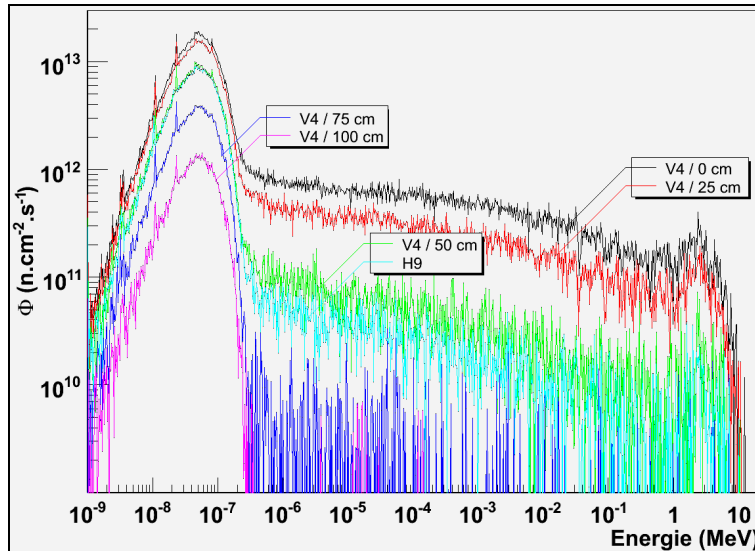


Figure 58 : Flux simulés (MCNP) pour les cinq positions du canal V4, ainsi que pour le canal H9.

En ce qui concerne les spectres neutroniques des deux autres canaux, c'est-à-dire H9 et T4, ces derniers sont assez similaires respectivement à ceux présents dans le canal V4 aux positions 50 cm et 100 cm. Néanmoins, dans le cas du canal T4, l'intensité est trois fois plus faible que celle présente en haut du canal V4 : $\Phi_{T4} \sim 2 \cdot 10^{13} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$.

5.4 Les techniques de mesure

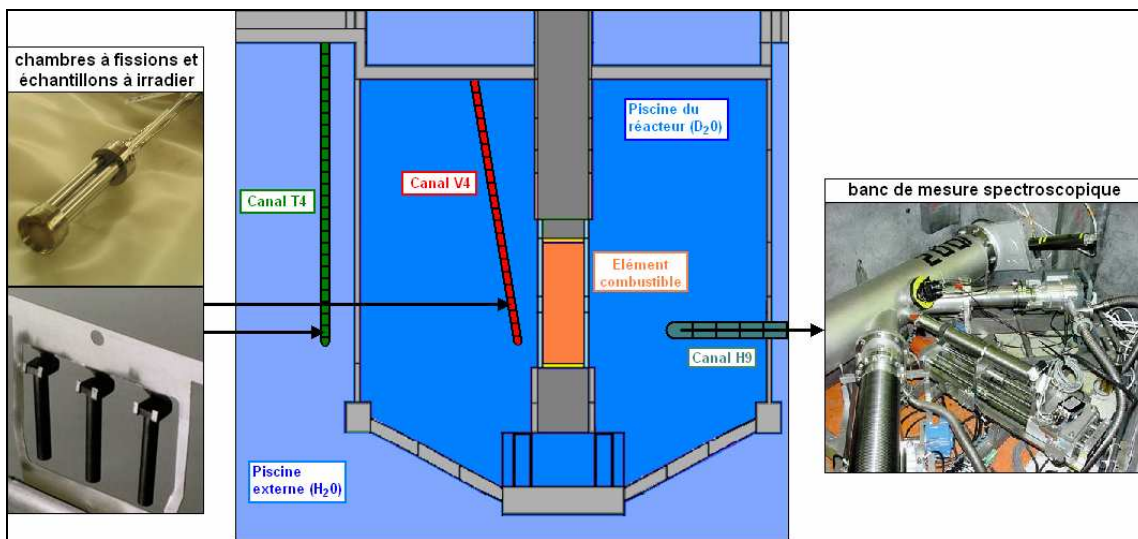


Figure 59 : Représentation générale du dispositif expérimental du projet mini-INCA (coupe de cœur de l'ILL, au centre). Les canaux T4 et V4 (à gauche) sont utilisés pour les irradiations de chambres à fissions et d'échantillons d'actinides mineurs (ultérieurement analysés par spectrométrie de masse). Le canal H9 (à droite) du spectromètre de masse Lohengrin sert de point d'irradiation pour les cibles qui sont ensuite convoyées en direction de la chambre de spectroscopie α - γ .

Trois techniques nucléaires complémentaires sont utilisées pour caractériser les échantillons après ou durant les irradiations (cf. figure 59) : l'analyse par spectrométrie de masse (canal T4, V4), les chambres à fissions miniatures (canal V4) et l'analyse par spectroscopie alpha/gamma (canal H9).

5.4.1 Analyses par spectrométrie de masse

Cette technique permet de caractériser l'évolution isotopique d'un échantillon d'actinide(s) suite à une irradiation réalisée dans un des canaux T4 ou V4. Pour cela, les techniques d'analyse utilisées sont soit la spectrométrie IC-PMS (i.e. Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry) ou la spectrométrie TIMS (i.e. Thermal Ionisation Mass Spectrometry), parfois les deux. Elles permettent notamment de mesurer avec une grande précision, généralement de l'ordre du pour mille, les masses des actinides et des isotopes formés.

En outre, puisque les résultats se présentent sous forme de rapports isotopiques (e.g. $^{239}\text{Pu}/^{238}\text{Pu}$, $^{241}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$), cette méthode est bien adaptée à la détermination des sections efficaces de capture dans une chaîne de transmutation. L'inconvénient, est qu'elle nécessite de manipuler et transporter l'échantillon après irradiation, ce qui impose en général un temps de repos suffisamment long pour réduire l'activité globale.

Ces analyses de masse sont réalisées au laboratoire d'analyses nucléaires isotopiques et élémentaires du CEA Saclay (CEA/DEN/SECR/LANIE). La méthodologie de ces analyses a été notamment détaillée dans l'article relatif aux mesures effectuées sur la transmutation du ^{232}Th [91], dont une partie des travaux est présentée dans le chapitre suivant (cf. chapitre 6).

5.4.2 Chambres à fissions miniatures dans le canal V4

5.4.2.1 Principe de fonctionnement

Les chambres à fissions sont des détecteurs à ionisation constitués de trois éléments distincts : l'anode, la cathode et le gaz de remplissage. Ils fonctionnent via les réactions de fissions générées dans le dépôt fissile présent sur la surface de l'anode, sous l'influence du flux externe de neutrons (cf. figure 60).

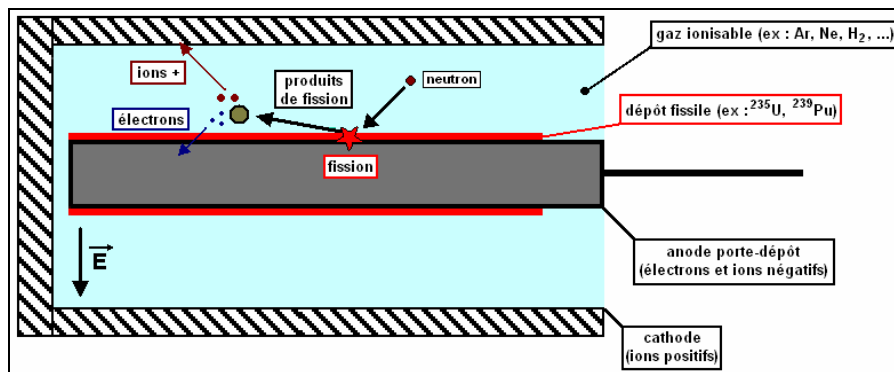


Figure 60 : Principe de fonctionnement des chambres à fissions.

Ces fissions vont effectivement émettre des produits de fissions (PF), fortement ionisants ($E_{PF} \sim 90 \text{ MeV}$), qui vont à leur tour générer des couples électrons-ions lors de la traversée du gaz de remplissage. En appliquant un champ électrique, les électrons et les ions positifs sont finalement collectés respectivement à l'anode et à la cathode, ce qui se traduit par un courant mesurable aux bornes de la chambre.

Ainsi, lorsque la proportionnalité est établie entre le courant débité et le taux de fissions du dépôt, il est alors possible de suivre l'évolution de ce dernier durant l'irradiation. Ainsi, ce type de détecteur est habituellement dédié à la mesure de puissance dans les réacteurs

électrogènes via la mesure du flux de neutrons. Dans notre cas, ces chambres ont été adaptées afin de suivre l'évolution des actinides mineurs soumis à un flux de neutron et de mesurer leur section efficace de fission et le taux d'incinération.

Par ailleurs, bien que les réactions de fissions soient le moteur principal de ces détecteurs, d'autres rayonnements parasites peuvent également interagir avec le gaz d'ionisation. C'est le cas par exemple des photons gamma, en majorité par effet photoélectrique sur les matériaux de la cathode, ou encore des rayonnements β émis suite à l'activation des matériaux de la chambre.

5.4.2.2 Le fonctionnement d'une chambre à fissions en mode « courant »

Compte tenu de l'intensité des flux présents dans le canal V4, le mode courant (ou encore mode continu) a été le choix jugé le plus judicieux pour les mesures réalisées avec des chambres à fissions. En effet, les taux de réaction des dépôts irradiés dans le canal V4 étant communément supérieurs à 10^9 fissions par seconde, le mode impulsion n'est plus utilisable, tandis que le mode fluctuation trouve rapidement ses limites pour des valeurs plus élevées.

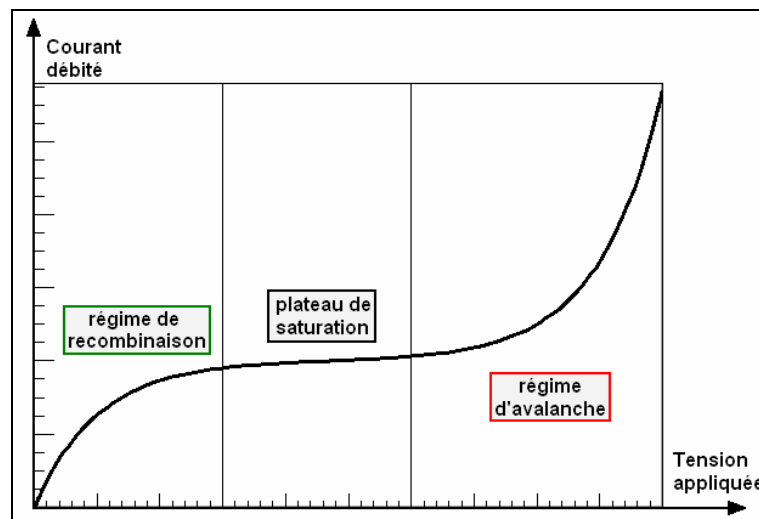


Figure 61 : Régimes de recombinaison, de saturation et d'avalanche mesurés lors de l'application d'une tension aux bornes d'une chambre à fissions mise sous irradiation. Le régime de saturation correspond à la proportionnalité entre le courant et les charges présentes dans le gaz d'ionisation.

Ce mode courant est basé sur la proportionnalité entre le courant débité par le détecteur et les charges réellement générées à chaque instant dans le gaz d'ionisation. En effet, lorsqu'une tension est appliquée aux bornes de la chambre, il est possible de distinguer trois domaines distincts pour le courant mesuré (cf. figure 61) :

- *le régime de recombinaison* : le champ électrique appliqué n'est pas suffisant pour permettre une collecte totale des charges créées dans le gaz. Une partie des ions et des électrons arrivent à se recombiner avant d'avoir atteint leurs électrodes respectives.
- *le régime de saturation* : le champ électrique est suffisant pour permettre une collecte totale des électrons. En conséquence, le courant mesuré en sortie de chambre est globalement invariant sur la plage (ou plateau) de saturation et est proportionnel aux charges créées.

- *le régime d'avalanche* : l'accélération des électrons par le champ électrique est telle que ceux-ci sont capables d'ioniser à leur tour le gaz et ainsi augmenter le nombre de charges collectées par l'anode.

C'est pourquoi, afin de suivre l'évolution du taux de fissions τ_f du dépôt au cours du temps, il est nécessaire de se placer aux tensions du régime de saturation, dans lequel la loi suivante est appliquée :

$$I_{\text{saturation}} = \frac{\tau_{\text{fissions}}}{\Gamma} = \frac{X_0 \cdot \tau_{\text{fissions}} \cdot e}{2 \cdot \pi} \cdot G(h, R_1, R_2, z_{\text{min}}, z_{\text{max}}) \quad (6)$$

Le facteur de calibration Γ (en $\text{A}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$) qui relie le taux de fissions au courant est uniquement dépendant de la géométrie de la chambre à fissions (facteur G) et de la nature du gaz (facteur X_0). Pour plus de détail, se reporter à la référence [84]. A titre d'illustration, le coefficient de calibration d'une chambre simple corps de type CFUT/C3 (cf. section 5.4.2.5) se situe aux environs de $3 \cdot 10^{13} \text{A}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$.

5.4.2.3 Les problématiques des hauts flux de neutrons sur les chambres à fissions

Même si le mode courant est le mode de fonctionnement le plus adapté à nos conditions d'irradiation, l'utilisation de chambres à fission standards fait face à quelques difficultés : accumulation néfaste de charges d'espace dans l'espace inter-électrode pour des taux de fissions élevés et pollution du gaz de remplissage en cours d'irradiation, notamment par l'accumulation des produits de fissions.

En effet, comme présenté sur la figure 62, l'évolution des courbes de calibration (i.e. courant débité par la chambre en fonction de la tension appliquée) avec le flux de neutrons, donc le taux de fissions, montre une disparition progressive du plateau de saturation pour ne plus donner qu'un point d'inflexion.

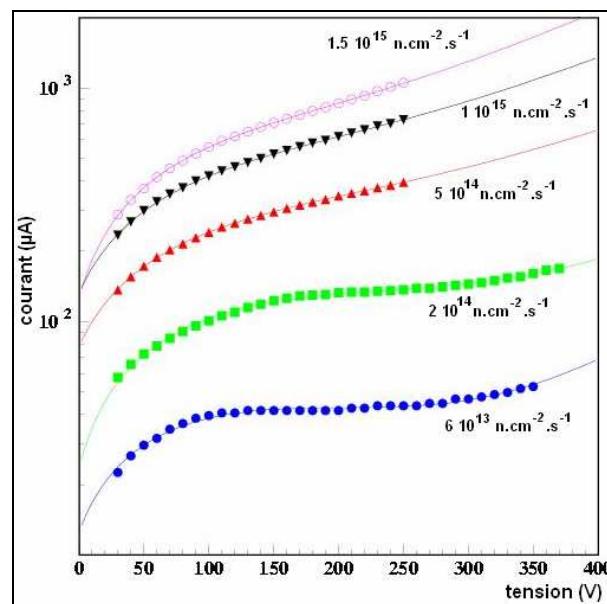


Figure 62 : Evolution des courbes de calibration mesurées en fonction de l'intensité du flux de neutrons (i.e. profondeur dans le canal V4) pour une chambre de type CFUT/C1 [85] avec un dépôt de ^{235}U irradié en 2002. On note la disparition du plateau de saturation au-delà de $2 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$.

Ce phénomène réside dans l'accumulation de charges (i.e. ions) dans l'espace inter-électrode dont la présence finit par distordre le champ électrique [84], jusqu'à l'inverser (cf. figure 63). La conséquence est un régime de recombinaison qui s'étend à plus haute tension pour finalement rejoindre la région d'avalanche, d'où la disparition du plateau de saturation.

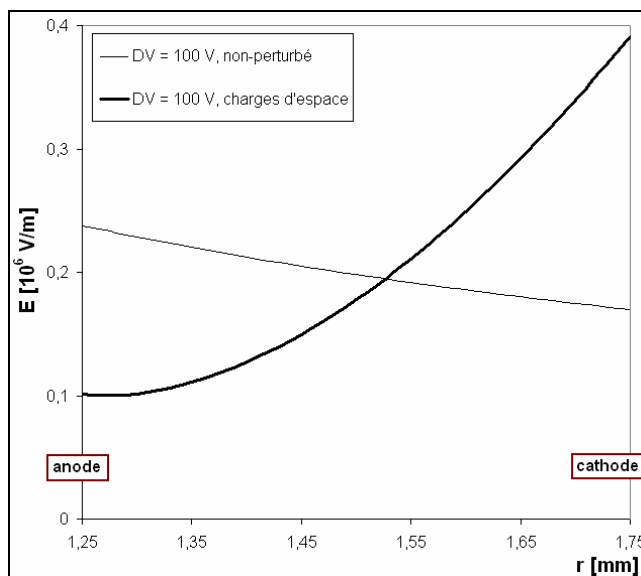


Figure 63 : Simulation des effets des charges d'espace sur le champ électrique d'une chambre à fissions CFUT/C3 [84], pour une tension appliquée de 100 V et un taux de fissions de $5 \cdot 10^9$ fissions/s.

La pollution du gaz par les produits de fissions ou par d'autres substances (e.g. vapeur d'eau, matière éjectée par le bombardement des ions sur la cathode) est un autre problème que l'on rencontre dans les hauts flux. En effet, les forts taux de fissions entraînent une combustion importante du dépôt fissile qui se transforme en produits de fission. Ceux-ci s'accumulent et polluent le gaz de remplissage, dégradant les propriétés isolantes de celui-ci au cours du temps (diminution du seuil d'ionisation).

Ceci entraîne une diminution du seuil du domaine d'avalanche (i.e. les électrons ont besoin de moins d'énergie pour ioniser) impliquant encore une fois une réduction de la largeur du plateau de saturation.

D'autre part, un soin extrême doit être apporté durant le processus de fabrication, lors de la fermeture des chambres par soudure, ainsi qu'au dégazage des pièces avant montage. En effet, la température régnant dans le canal V4 est d'environ 240°C, ce qui favorise un dégazage des pièces lors de la mise en irradiation, lorsque ces dernières ne sont pas traitées.

La figure 64 illustre un tel phénomène dans le cas de l'irradiation d'une chambre de type CFUT/C5 contenant un dépôt d' ^{235}U . Le dégazage en vapeur d'eau des pièces métalliques a entraîné une pollution du gaz d'argon présent dans la chambre. Cette contamination a donné lieu au déplacement du régime d'avalanche vers les zones de plus basse tension et donc à une disparition totale du plateau de saturation. Les molécules d'eau ainsi libérées ont finalement été dégradées par les rayonnements gamma intenses du réacteur pour être ensuite collectées aux électrodes. Ceci a permis un retour de la région de cascade à sa position d'origine, ainsi que la réapparition de la zone de saturation.

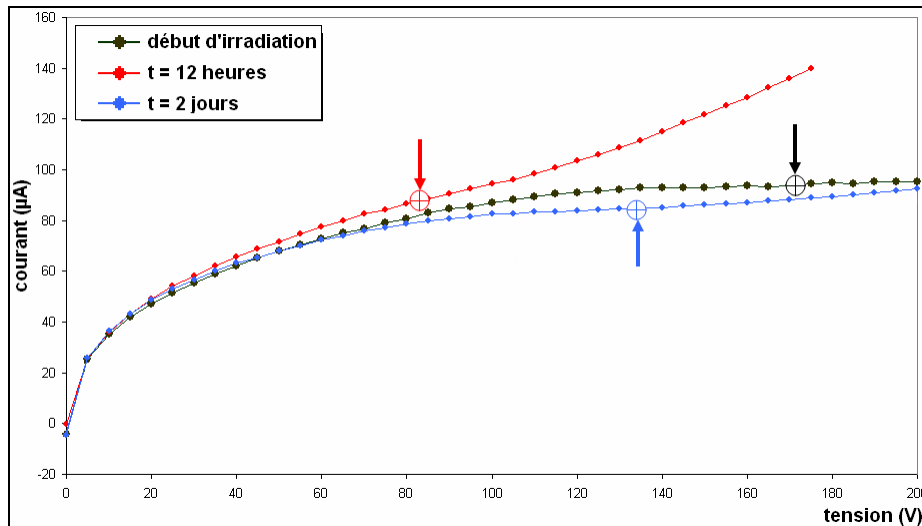


Figure 64 : Evolution des courbes de calibration d'une chambre à fissions triple corps CFUT/C5 avec un dépôt de ^{235}U , lors d'un dégazage (vapeur d'eau) des pièces de la chambre survenu durant les premières heures de l'expérience. On note le déplacement de la zone d'avalanche vers les tensions plus faibles à l'apogée du phénomène aux alentours de la 12^e heure.

5.4.2.4 Le développement des chambres à fissions

Dans l'optique d'une utilisation efficace des chambres à fissions pour l'étude de l'incinération des actinides mineurs dans les hauts flux thermiques, de nombreuses études et développements ont été menés sur ces détecteurs depuis le début du projet mini-INCA [84] [85] en partenariat avec la société Photonis et le CEA/DEN/DER/SPEX (Service de physique expérimentale). Ces travaux ont conduit à trois types de chambres miniatures spécifiques dont deux ont été utilisés durant les travaux de cette thèse (i.e. les chambres CFUT/C3 des expériences sur l'incinération de l' ^{241}Am en 2005 et la chambre CFUT/C7 pour l'étude de la transmutation du ^{244}Cm en 2006).

5.4.2.5 Chambre miniature simple corps CFUT/C3

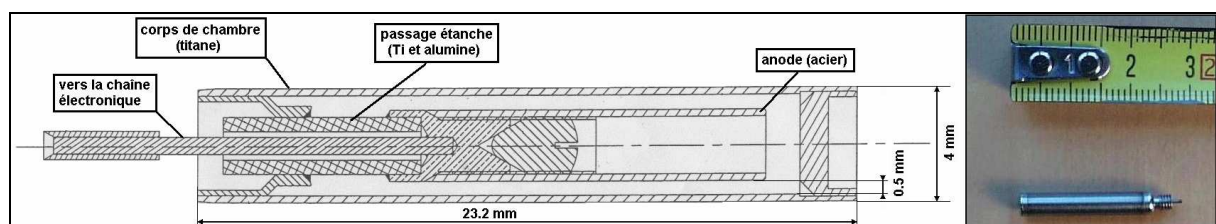


Figure 65 : Vue en coupe et photographie d'une chambre à fissions simple corps de type CFUT/C3.

La principale caractéristique de ces chambres à fissions est leurs dimensions réduites : 4 mm de diamètre pour 23 mm de longueur. L'anode et la cathode sont respectivement en acier inoxydable et en titane de qualité nucléaire, tandis que l'isolation électrique de ces deux éléments est effectuée par un passage étanche en alumine (cf. figure 65). Un gaz pur d'argon est utilisé comme gaz d'ionisation. Ce type de chambre a également été utilisé dans l'expérience MEGAPIE. Elle a été notamment qualifiée pour fonctionner dans une température de plus de 500°C [87].

5.4.2.6 Chambre simple corps gap réduit CFUT/C6

Ce deuxième détecteur est le fruit d'un développement plus avancé, dont une partie réalisée dans le cadre des travaux de cette thèse. Par rapport aux modèles précédents, cette chambre à fissions possède deux améliorations notables : la première est le double point d'ancrage de l'anode au niveau de l'alumine de centrage et de la tête de connecteur (cf. figure 66). En effet, grâce à l'excellente précision d'usinage des pièces, ce système permet d'obtenir une grande maîtrise sur le centrage de l'anode.

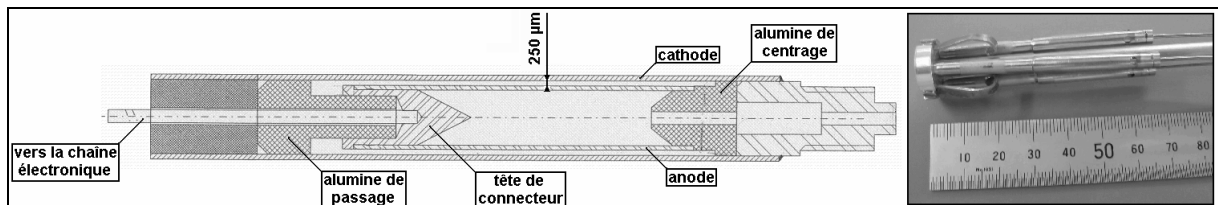


Figure 66 : Vue en coupe et photographie d'une chambre à fissions simple corps à gap réduit de type CFUT/C6.

Cette meilleure co-axialité entre les deux électrodes a permis la seconde amélioration : la réduction de l'espace (i.e. gap) inter-électrode d'un facteur 2, passant ainsi de 500 µm à 250 µm. Le but recherché par une telle modification est à la fois la diminution des charges créées dans l'espace inter-électrode ainsi qu'une collecte plus rapide de celles-ci [84]. Cette amélioration permet d'accéder à des flux plus élevés tels que ceux présents au fond du canal V4.

5.4.2.7 Chambre miniature triple corps à gap réduit CFUT/C7

Cette dernière évolution de détecteur qui est spécialement conçue pour la mesure de l'incinération des actinides mineurs dans les hauts flux de neutrons, se compose de trois corps de chambres à fissions à gap réduit reliées les unes aux autres par un passage gazeux au niveau du bouchon (cf. figure 67). Chaque corps de chambre possède une fonction propre dans la mesure :

- *le corps de l'actinide à mesurer* : ce corps de chambre contient le dépôt de l'actinide dont on souhaite mesurer le taux de fissions.
- *le corps de l'actinide de référence* : ce corps contient le dépôt d'un actinide de référence, généralement de l'uranium-235, dont le suivi du taux de fissions permet aussi de déterminer les fluctuations du flux de neutrons qui ont eût lieu durant l'incinération.
- *le corps sans dépôt* : aucun dépôt n'est présent dans ce corps de chambre, ce qui offre la possibilité de connaître les amplitudes des signaux parasites (flux γ et activation de la chambre) qui se rajoutent aux courants des deux corps précédents. De plus, grâce au passage gazeux qui relie les chambres, ce corps permet également de suivre les effets de la pollution du gaz d'ionisation durant l'irradiation, ainsi que de mettre à disposition un volume de dilution plus grand pour les produits de fissions générés dans les deux autres corps de chambre.

Par ailleurs, en supplément du volume offert par la chambre sans dépôt, l'espace interne des

anodes a été rattachée au volume gazeux utile par l'aménagement d'un passage dans l'alumine de centrage. Ceci permet une fois de plus de diluer au maximum les quantités de produits de fissions générées durant l'incinération. Les systèmes de double-ancrage et d'espace inter-électrode réduit sont aussi présents dans ce dernier modèle.

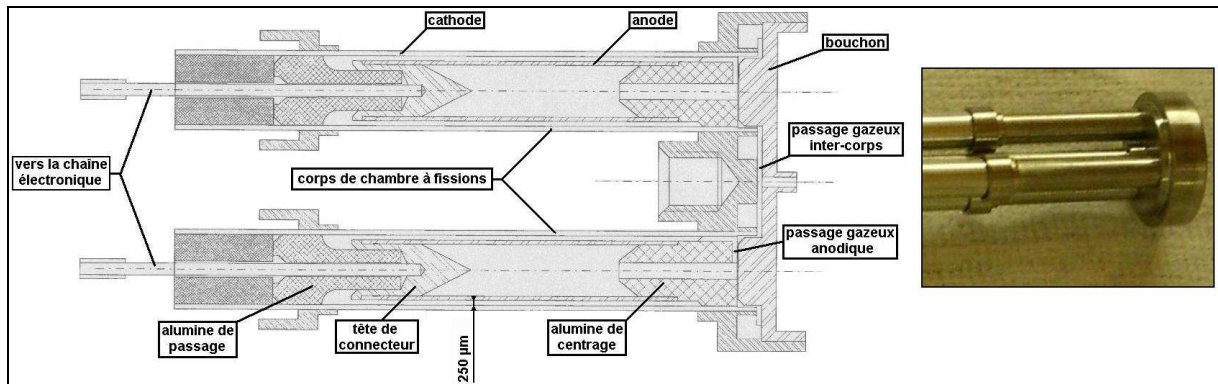


Figure 67 : Vue en coupe et photographie d'une chambre à fissions triple corps à gap réduit de type CFUT/C7.

5.4.3 Banc de mesure de spectroscopie α/γ

Ce système de spectroscopie permet de mesurer les spectres des particules alpha (détecteur silicium semi-conducteur PIPS) et gamma (détecteur germanium) émises par les cibles irradiées dans le canal H9 [86]. De plus, grâce au transfert rapide (~ 20 minutes) entre le doigt de gant H9 où a lieu l'irradiation et le banc, il est possible de mesurer l'activité, et par conséquent la formation des noyaux de courtes demi-vies (i.e. périodes de quelques minutes).

En effet, les systèmes d'acquisition électronique du détecteur PIPS (Passivated Implanted Planar Silicon Detector) et du détecteur Ge permettent d'effectuer des mesures jusqu'à 20 kHz et 80 kHz, respectivement. Il est aussi possible de régler la distance, et donc l'efficacité géométrique de ces détecteurs par rapport à la cible : entre 1 à 30 cm pour le PIPS et entre 40 à 80 cm pour le détecteur Ge. La fluence subie par la cible est déterminée par l'irradiation simultanée d'une pastille de cobalt-59.

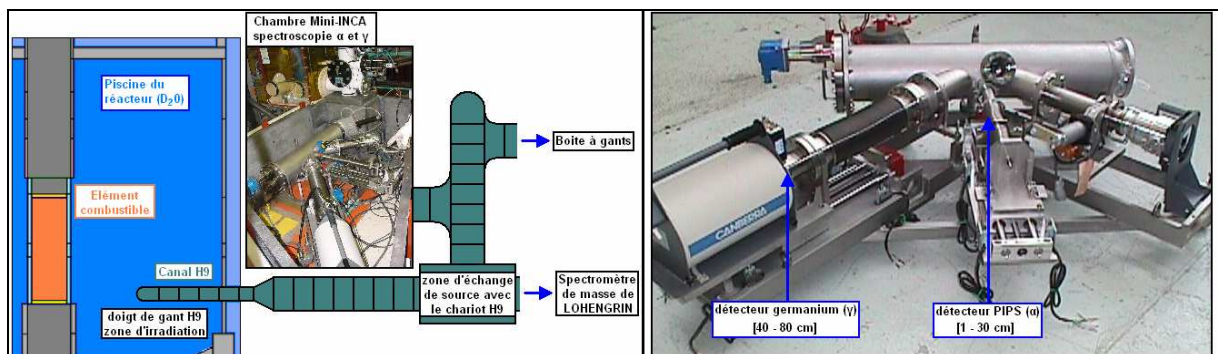


Figure 68 : Dispositif de mesures spectroscopiques. Le schéma de gauche représente le positionnement du banc dans le réacteur avec l'ensemble du système d'échange et d'irradiation des sources dans le canal H9. La photographie de droite montre l'emplacement des détecteurs germanium (spectroscopie γ) et PIPS (spectroscopie α) sur le dispositif.

En définitive, ce système est principalement focalisé sur la mesure des paramètres nucléaires (section efficace de formation et de disparition, paramètres de décroissance) de noyaux

difficilement accessibles par les méthodes de spectrométrie de masse et d'irradiation de chambres à fissions.

5.5 Conclusions

Le projet mini-INCA est un programme expérimental ambitieux dont l'intérêt majeur se situe dans la mesure des paramètres nucléaires d'actinides mineurs difficilement accessibles. Le projet bénéficie des flux de neutrons thermiques intenses présents dans les canaux d'irradiations V4, H9 et T4 installés dans la piscine du réacteur de l'ILL. Une large étendue de détecteurs est aussi utilisée pour réaliser ces mesures semi-intégrales, chacun possédant son propre domaine de spécialisation.

Ainsi, la caractérisation par spectrométrie de masse d'échantillons irradiés permet de marquer avec précision les paramètres nucléaires à la base des noyaux ainsi formés. Les chambres à fissions sont ciblées préférentiellement sur la mesure des paramètres gouvernant les taux de fissions des noyaux fissiles. Ces détecteurs ont par ailleurs bénéficié d'améliorations constantes depuis le début du projet, ainsi que d'un travail de compréhension conséquent des phénomènes physiques régissant leur fonctionnement. Enfin, la chambre de spectroscopie α/γ qui a été aussi développée durant le projet mini-INCA permet de suivre les activités radioactives des actinides produits lors de l'irradiation d'un échantillon dans le canal H9. Il est de cette manière possible d'accéder à des isotopes dont les durées de vie ne sont que de quelques minutes.

Ces trois systèmes de mesure ont été employés dans les différentes expériences menées sur l'étude de la transmutation et de l'incinération de l'américium-241, du curium-244 et du californium-249. Dans chaque cas, le choix s'est bien entendu porté sur la meilleure méthode pour déterminer la (ou les) grandeur(s) recherchée(s) avec la meilleure précision possible. Les données ont pu être exploitées grâce à l'utilisation des outils théoriques et numériques également développés durant les travaux de cette thèse.

Chapitre 6

Méthodologie d'analyse : application au thorium-232

Quel que soit le système de mesure utilisé et/ou l'observable étudiée (e.g. composition isotopique, évolution du taux de fission, activité alpha ou gamma, etc.), la méthodologie d'analyse a toujours suivi un schéma récurrent basé en grande partie sur l'utilisation des coefficients de sensibilité (cf. chapitre 2). Ces derniers permettent effectivement de quantifier les dépendances des quantités mesurées aux différents paramètres nucléaires qui dirigent leur évolution sous irradiation. Ainsi, ces coefficients offrent la possibilité de pouvoir à la fois optimiser la mesure en fonction des paramètres recherchés, ainsi que la procédure finale d'ajustement de ces paramètres sur la mesure.

Afin d'expliquer la méthodologie d'analyse qui sera reprise dans les chapitres suivants, nous avons choisi de l'illustrer sur l'analyse des résultats obtenus par spectrométrie de masse sur un échantillon de thorium-232 irradié dans le canal V4 [91]. Chaque étape de cette analyse va être commentée en détail, afin de dévoiler la logique sous-jacente de l'ensemble des études qui seront présentées dans la suite de ce manuscrit.

6.1 Intérêts et problématiques de la filière thorium à sel fondu

Un regain d'intérêt a été récemment constaté sur les cycles $^{233}\text{U}/^{232}\text{Th}$ [88], en corrélation avec les travaux menés dans le cadre du forum génération IV, et plus particulièrement dans l'optique de l'intégration d'un tel cycle dans un réacteur à sel fondu MSR (Molten Salt Reactor, cf. figure 69).

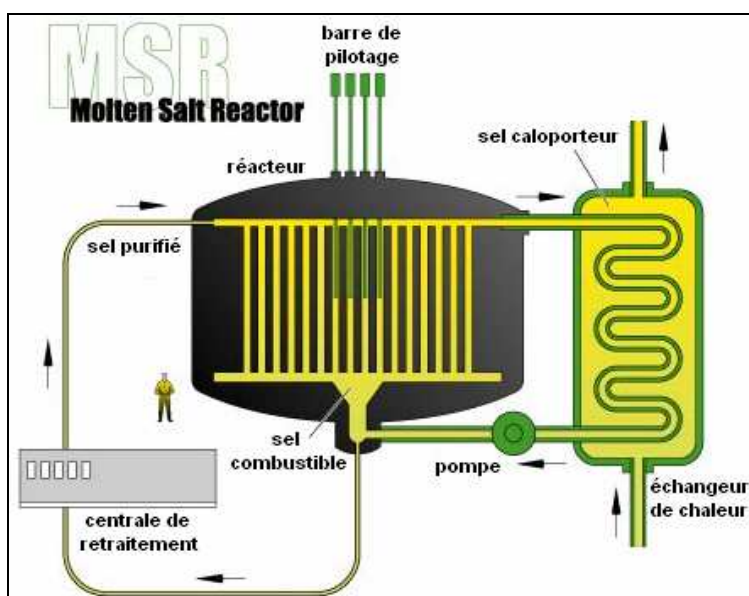


Figure 69 : Cœur d'un réacteur à sel fondu (MSR) tel qu'envisagé dans le cadre du forum génération IV. On note le retraitement en ligne du sel combustible, qui fait la particularité de ce système.

En fait, ce cycle présente de nombreux avantages en comparaison avec les réacteurs basés sur le cycle U/Pu. Tout d'abord, les ressources en thorium sont actuellement évaluées comme

étant trois fois plus importantes que celles d'uranium. De plus, les réacteurs à sel fondu thorium nécessitent moins de matière fissile pour démarrer, que les réacteurs rapides $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$. En outre, contrairement à ces derniers, les systèmes thorium peuvent tout aussi bien être surgénérateurs en spectre rapide que thermique. Par ailleurs, du fait de sa situation plus en amont dans la table périodique, ce cycle produit des quantités moindres d'actinides mineurs pénalisants et les poisons neutroniques (i.e. produits de fission et actinides) peuvent être retraités en continu grâce au retraitement en-ligne. Un tel constat explique l'intérêt des études menées actuellement sur de tels réacteurs, comme source d'énergie de masse pour l'avenir.

Cependant, bien que ce système offre des atouts indéniables, de nombreuses problématiques subsistent. L'une d'entre elles se trouve être la longue décroissance du protactinium-233 ($T_{1/2} \sim 27$ jours) présent dans la chaîne de transmutation du thorium en direction de l'uranium-233 fissile (cf. figure 70).

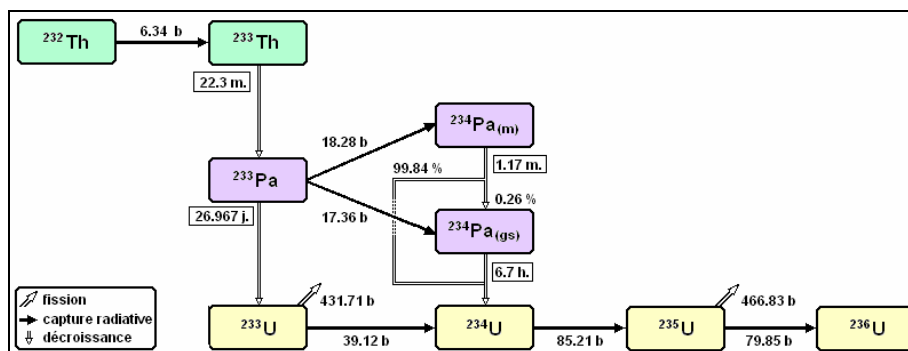


Figure 70 : Chaîne de transmutation du thorium-232. Les valeurs des sections efficaces intégrées qui sont données dans ce schéma sont celles qui ont été calculées pour la position 50 cm du canal d'irradiation V4.

Cette période de décroissance génère un délai non-négligeable entre la transmutation du ^{232}Th et l'alimentation de l' ^{233}U fissile. Ceci peut provoquer des montées de criticité conséquentes durant les phases d'arrêt du réacteur (en fonctionnement normal ou accidentel), rendant le redémarrage et le pilotage du cœur singulièrement ardu.

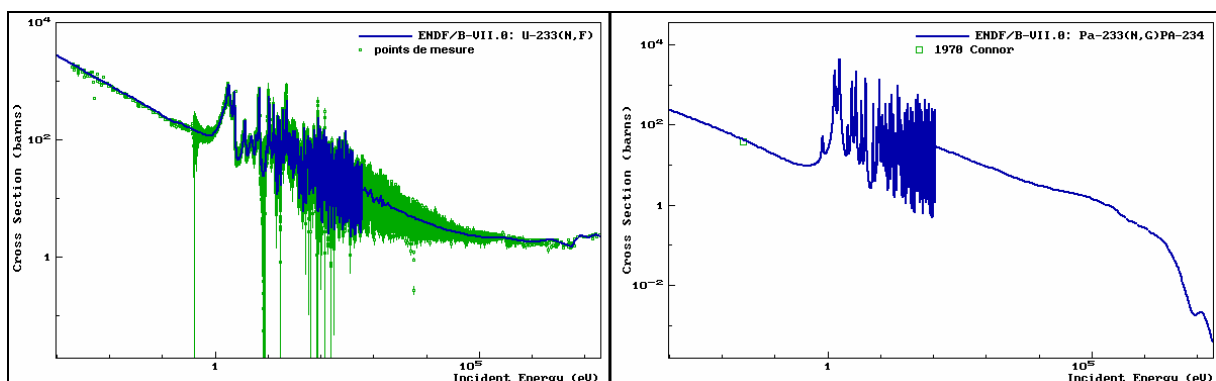


Figure 71 : Sections efficaces $^{233}\text{U}(n,f)$ (à gauche) et $^{233}\text{Pa}(n,\gamma)$ (à droite) évaluées (ENDF/B-VII.0) entre 10^{-3} eV et 20 MeV. Les mesures différentielles (i.e. non moyennées sur un spectre) extraites de la base CSISRS/EXFOR sont aussi représentées.

Ceci est particulièrement vrai pour les réacteurs à spectre thermique, pour lesquels la réaction de capture du protactinium est en compétition avec sa propre décroissance, redirigeant de

cette façon une partie de la masse vers l'uranium-234 fertile. Or, bien que les sections les plus fondamentales de ce cycle, à savoir : $^{232}\text{Th}(n,\gamma)$ et $^{233}\text{U}(n,f)$, sont plutôt bien connues sur une large bande en énergie, la section efficace de capture du ^{233}Pa est caractérisée par une insuffisance notable de données mesurées. Pour illustrer ce point, la figure 71 donne le tracé des sections efficaces évaluées $^{233}\text{U}(n,f)$ (à gauche) et $^{233}\text{Pa}(n,\gamma)$ (à droite), de la base de données ENDF/B-VII.0 [89], ainsi que les mesures extraites de la base de données expérimentales CSISRS/EXFOR [90].

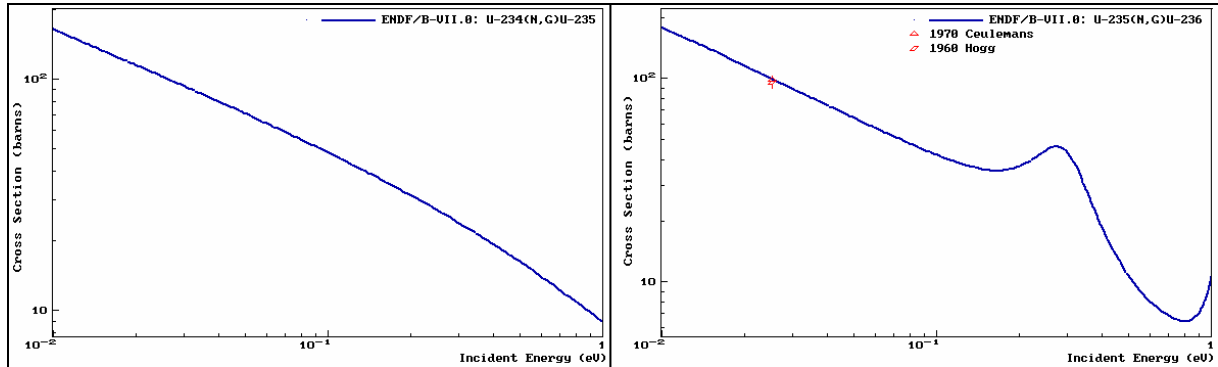


Figure 72: Sections efficaces de capture des isotopes ^{234}U (à gauche) et ^{235}U (à droite) évaluées (ENDF/B-VII.0) entre 10^{-2} eV et 1 eV. Les mesures différentielles (i.e. non moyennées sur un spectre) extraites de la base CSISRS/EXFOR sont aussi représentées. Dans le cas de la section $^{234}\text{U} \sigma(n,\gamma)$, il n'existe pas de mesure différentielle à l'énergie thermique.

Un constat similaire peut être effectué en ce qui concerne les deux sections efficaces de capture des isotopes $^{234}, ^{235}\text{U}$. En effet, il existe un manque cruel de mesure au point de normalisation thermique (cf. figure 72).

6.2 Analyse de la transmutation d'un échantillon de thorium-232

6.2.1 Présentation de l'irradiation

A la vue de ces observations et afin de caractériser ce cycle dans un spectre thermique, nous avons irradié un échantillon de 100 microgrammes de thorium-232 pur (i.e. 100 % ^{232}Th) en position 50 cm du canal V4 pendant 43 jours. La poudre de ^{232}Th était contenue dans une ampoule de quartz, scellée dans une capsule d'aluminium. Le choix de la position d'irradiation découle du fait qu'il est nécessaire d'avoir un flux d'intensité suffisante pour traverser la faible section efficace de capture du thorium : $^{232}\text{Th} \sigma(n,\gamma) = 7.36$ barns (ENDF/B-VII.0), afin notamment de former des quantités détectables d'isotopes de protactinium et d'uranium.

Néanmoins, il n'est pas favorable de descendre trop bas dans le canal V4, sous peine de faire face à un spectre de moins en moins thermique et donc d'amener des incertitudes supplémentaires sur les paramètres recherchés, du fait des incertitudes liées aux premières résonances de ces sections efficaces. En conséquence, le flux neutronique de la position intermédiaire semble le meilleur compromis, étant donné son intensité : $\Phi \sim 6 \cdot 10^{14}$ n.cm⁻².s⁻¹ et sa faible composante non-thermique : ~ 3 %.

6.2.2 Mesure de la fluence

Pour mesurer la fluence de neutrons supportée par l'échantillon durant la totalité de l'irradiation, une pastille d'aluminium-cobalt (Al-0.1% ^{59}Co) a été également introduite dans

la navette d'irradiation.

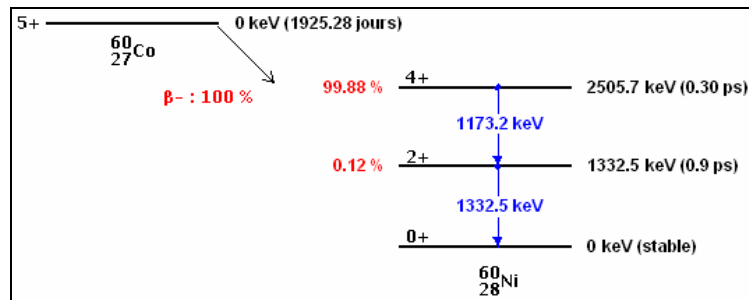


Figure 73 : Schéma de décroissance du cobalt-60 sur le nickel-60. On note la présence des deux raies gamma intenses supérieures à 1 MeV.

Après 6 mois de repos, la mesure de l'activité du ^{60}Co formé permet de remonter à la fluence subie par le ^{59}Co et donc par le ^{232}Th . En effet, grâce à une spectroscopie gamma ciblée sur les deux raies de 1.17 MeV et 1.33 MeV émises après décroissance sur le nickel-60 (cf. figure 73), on peut calculer la fluence via la formule suivante :

$$A_{\text{Co60}}(t) = \frac{\lambda_{\text{Co60}} \cdot \sigma_{\text{capt,Co59}} \cdot \Phi \cdot N_{\text{Co59}}(t=0)}{(\sigma_{\text{capt,Co60}} - \sigma_{\text{capt,Co59}}) \cdot \Phi + \lambda_{\text{Co60}}} \cdot \left(e^{-\sigma_{\text{capt,Co59}} \cdot \Phi \cdot t_{\text{irr}}} - e^{-(\sigma_{\text{capt,Co60}} \cdot \Phi + \lambda_{\text{Co60}}) \cdot t_{\text{irr}}} \right) \cdot e^{-\lambda_{\text{Co60}} \cdot t_{\text{repos}}} \quad (7)$$

On obtient finalement une valeur de flux de $(7.56 \pm 0.23) \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$. L'incertitude prend en compte les erreurs liées aux sections efficaces de capture du ^{59}Co (31 ± 1 barns, valeur intégrée sur le spectre de la position 50 cm) et du ^{60}Co (7.5 ± 7.5 barns), à la période du ^{60}Co ($T_{1/2} = 1925.28 \pm 0.14$ jours), ainsi que celles attachées à la concentration initiale ($\sim 2\%$).

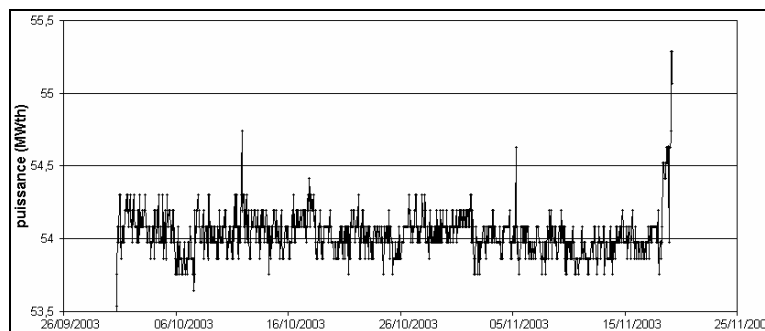


Figure 74: Evolution de la puissance thermique du réacteur durant le cycle d'irradiation.

Pour terminer, du fait que la puissance du réacteur a été relativement stable (cf. Figure 74) durant la totalité du cycle, on supposera le flux de neutrons dans les calculs comme étant fixé à la valeur donnée ci-dessus.

6.2.3 Analyse de l'échantillon par spectrométrie de masse

L'analyse de la composition isotopique de l'échantillon a été accomplie, après 7 mois de repos, par spectrométrie de masse au Laboratoire d'Analyses Nucléaires Isotopiques et Élémentaires du centre du CEA Saclay (CEA/DEN/DPC/SECR/LANIE). La détermination de l'isotopie de l'uranium formé a été réalisée par TIMS (i.e. Thermal Ionisation Mass Spectrometry), tandis que le rapport U/Th a été déterminé par MC-ICP-MS (i.e. Inductively Coupled Mass Spectrometry with Multiple Collection). La méthodologie suivie durant ces

analyses est décrite plus en détail dans la référence [91]. Les résultats obtenus sont présentés dans le tableau 41.

Tableau 41 : Rapports isotopiques obtenus suite aux différentes analyses isotopiques.

technique	MC-ICP-MS	TIMS		
	$^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$	$^{234}\text{U}/^{233}\text{U}$	$^{235}\text{U}/^{233}\text{U}$	$^{236}\text{U}/^{233}\text{U}$
rapport				
valeur	67.93(55)	0.05168(10)	0.00303(7)	0.000184(20)

Comme nous pouvons le constater d'après les valeurs inscrites dans ce tableau, excepté le rapport $^{236}\text{U}/^{233}\text{U}$, les différents rapports isotopiques ont été mesurés avec précision.

6.2.4 Simulation comparative avec les bases de données

Avant de procéder à un quelconque ajustement, ces rapports isotopiques ont été utilisés pour valider les bases de données (ENDF/B-VII.0, JEFF-3.1 et JENDL-3.3). Pour cela, l'évolution du thorium-232 irradié a été simulée avec le logiciel ROOT/MERCS et les rapports précédents ont été recalculés afin d'être comparés aux valeurs expérimentales. Les durées d'irradiation et de repos ont été strictement respectées et le flux est celui mesuré par le moniteur cobalt. De plus, grâce aux nombreuses fonctionnalités du logiciel MERCS, l'incertitude du flux a été propagée sur ces rapports par une méthode Monte-Carlo. Les valeurs ainsi obtenues avec les trois bibliothèques les plus courantes sont présentées dans le tableau 42.

Tableau 42 : Comparaison entre les rapports isotopiques mesurés et ceux calculés à partir des bases de données nucléaires ENDF/B-VII.0, JEFF-3.1, JENDL-3.3. La dernière colonne indique l'erreur propagée du flux de neutrons.

rapport isotopique	mesure expérimentale	ENDF/B-VII.0	JEFF-3.1	JENDL-3.3	erreur du flux propagée
$^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$	67.93 ± 0.55	67.41	66.63	66.56	± 1.73
$^{234}\text{U}/^{233}\text{U} (\times 10^{-2})$	5.172 ± 0.004	5.674	5.608	5.468	± 0.154
$^{235}\text{U}/^{233}\text{U} (\times 10^{-3})$	3.03 ± 0.07	3.25	3.17	3.08	± 0.16
$^{236}\text{U}/^{233}\text{U} (\times 10^{-4})$	1.84 ± 0.20	2.05	2.00	1.93	± 0.15

Excepté pour le rapport isotopique $^{234}\text{U}/^{233}\text{U}$, les comparaisons entre les valeurs simulées et mesurées montrent un bon accord, au moins dans les barres d'erreur calculées. Ce rapport $^{234}\text{U}/^{233}\text{U}$ qui a été mesuré avec une excellente précision, est surestimé par les bases de données nucléaires. Etant donné que deux tiers de la masse finale d' ^{233}U est généré suite à la décroissance du ^{233}Pa durant les sept mois qui ont suivi l'irradiation, il est possible de supposer que la section efficace de capture de cet isotope du protactinium est surestimée dans les bibliothèques.

6.2.5 Bilans de sensibilité

Avant toute procédure d'ajustement, il est nécessaire de connaître les paramètres nucléaires qui agissent le plus sur les grandeurs observées. Dans cette optique, l'utilisation des coefficients de sensibilité se révèle une aide précieuse pour mettre en valeur l'importance des dépendances des rapports mesurés envers l'ensemble des paramètres nucléaires présents dans la chaîne de transmutation du thorium-232. C'est pourquoi, avec l'aide du logiciel ROOT/MERCS, des bilans de sensibilité ont été établis pour chaque rapport. Le tableau 43

donne une partie de ces tables. Il y est indiqué uniquement les coefficients ayant une valeur absolue supérieure à 0.10 %/ %.

Tableau 43 : Bilans de sensibilités pour les quatre rapports isotopiques mesurés. Seuls les coefficients supérieurs à 0.10 %/ % sont indiqués ici. Les bilans des rapports $^{235}\text{U}/^{234}\text{U}$ et $^{236}\text{U}/^{235}\text{U}$ sont aussi présentés.

	$^{232}\text{Th} / ^{233}\text{U}$	$^{234}\text{U} / ^{233}\text{U}$	$^{235}\text{U} / ^{233}\text{U}$	$^{236}\text{U} / ^{233}\text{U}$	$^{235}\text{U} / ^{234}\text{U}$	$^{236}\text{U} / ^{235}\text{U}$
$^{232}\text{Th} \sigma(\text{n},\gamma)$	- 1.01 %/ %					
$^{233}\text{Pa} \lambda_{\text{decay}}$	0.10 %/ %					
$^{233}\text{Pa} \sigma(\text{n},\gamma)$		0.74 %/ %	0.79 %/ %	0.83 %/ %		
$^{233}\text{Pa} \text{ i.b.r.}(\text{n},\gamma)$			0.79 %/ %	0.39 %/ %		
$^{233}\text{U} \sigma(\text{n},\gamma)$		0.24 %/ %	0.21 %/ %	0.18 %/ %		
$^{233}\text{U} \sigma(\text{n},\text{f})$	0.11 %/ %					
$^{234}\text{U} \sigma(\text{n},\gamma)$			0.94 %/ %	0.95 %/ %	1.01 %/ %	
$^{235}\text{U} \sigma(\text{n},\gamma)$				0.96 %/ %		1.01 %/ %
$^{235}\text{U} \sigma(\text{n},\text{f})$			- 0.27 %/ %	- 0.22 %/ %	- 0.27 %/ %	
flux neutronique	- 0.85 %/ %	0.99 %/ %	1.71 %/ %	2.80 %/ %	1.01 %/ %	1.09 %/ %

D'après les valeurs indexées dans ce tableau, les paramètres qui ont le plus d'influence sur les évolutions des grandeurs mesurées sont les sections efficaces de capture des noyaux suivants : ^{232}Th , ^{233}Pa et $^{234}, ^{235}\text{U}$. Ce sont effectivement les paramètres nucléaires qui ont les plus grands coefficients de sensibilité en absolu (hors flux). Chacun de ces paramètres nucléaires domine un rapport spécifique.

En outre, comme mentionné précédemment, la section efficace de capture de ^{233}U possède trois fois moins d'impact sur le rapport $^{234}\text{U}/^{233}\text{U}$, que celle du ^{233}Pa . Or, bien que les rapports isotopiques mesurés puissent être ajustés en fonction des quatre sections efficaces de capture sélectionnées, cette manière de procéder présente l'inconvénient de générer de nombreuses corrélations entre les paramètres ajustés, de même qu'avec ceux qui ne le sont pas (i.e. non-ajustés). Ceci est particulièrement vrai pour les rapports $^{235}\text{U}/^{233}\text{U}$ et $^{236}\text{U}/^{233}\text{U}$ qui dépendent d'un nombre croissant de paramètres, en corrélation avec la distance effective qui sépare le numérateur du dénominateur dans la chaîne de transmutation.

Par conséquent, les quatre rapports qui ont été sélectionnés pour l'ajustement sont ceux qui dépendent majoritairement du plus petit nombre de paramètres, à savoir : $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$, $^{234}\text{U}/^{233}\text{U}$, $^{235}\text{U}/^{234}\text{U}$ et $^{236}\text{U}/^{235}\text{U}$.

6.2.6 Procédure d'ajustement

Les quatre sections efficaces de capture (i.e. ^{232}Th , ^{233}Pa et $^{234}, ^{235}\text{U}$) ont donc été ajustées sur le jeu de rapports choisi en utilisant le programme ROOT/MERCS. Ce dernier fait appel aux outils d'ajustement présents dans le logiciel CERN/ROOT. La procédure s'est déroulée en deux étapes.

Tableau 44 : Valeur et erreurs obtenues pour les quatre sections intégrées (sur le spectre d'irradiation) lors de l'ajustement préliminaire. Les erreurs présentées dans ce tableau ne prennent en compte que les incertitudes des données mesurées, ainsi que les corrélations entre les paramètres ajustés. Le chi carré réduit est aussi indiqué.

	$^{232}\text{Th} \sigma(\text{n},\gamma)$	$^{233}\text{Pa} \sigma(\text{n},\gamma)$	$^{234}\text{U} \sigma(\text{n},\gamma)$	$^{235}\text{U} \sigma(\text{n},\gamma)$	χ^2
valeur et erreur < σ >V4(50cm)	$6.27 \pm 0.05 \text{ b}$	$34.16 \pm 0.12 \text{ b}$	$87.34 \pm 2.03 \text{ b}$	$79.01 \pm 8.69 \text{ b}$	$5.02 \cdot 10^{-5}$

Tout d'abord, dans la première étape, les paramètres intervenant dans la chaîne de transmutation et non-ajustés ont été fixés à leur valeur d'origine. Cette première étape permet d'estimer les erreurs provenant à la fois des incertitudes sur les données mesurées et de leurs corrélations à travers leurs rôles dans les évolutions des observables intégrales. Les valeurs obtenues durant cette phase sont exposées dans le tableau 44. Le chi carré réduit est ici notablement inférieur à l'unité, ce qui marque un excellent accord des valeurs ajustées avec les mesures.

Afin de prendre en considération également les autres sources d'indétermination, c'est-à-dire celles des paramètres non ajustés (e.g. flux, ^{233}U $\sigma(n,\gamma)$, etc.), une seconde étape basée sur des techniques de type Monte-Carlo est nécessaire. Elle consiste notamment à effectuer de nombreux ajustements successifs dans lesquels les valeurs des paramètres non-ajustés sont tirés aléatoirement dans une loi gaussienne ayant pour moyenne leur valeur originale et comme écart type leur incertitude associée (cf. figure 75).

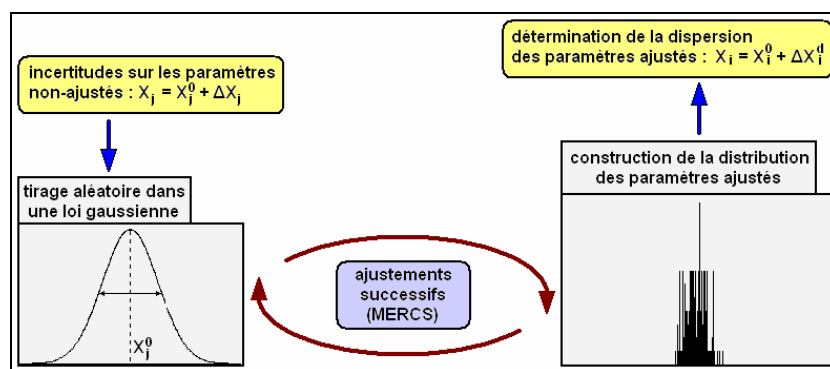


Figure 75: Procédure de calcul des erreurs générées sur les paramètres ajustés par les incertitudes des paramètres non-ajustés

De cette manière, il est possible de reconstruire les distributions des valeurs des paramètres ajustés issues des incertitudes des paramètres non-ajustés. Autrement dit, l'écart type de ces distributions représente l'erreur provenant des incertitudes attachées aux paramètres qui ne sont pas ajustés. Le tableau 45 donne les incertitudes supplémentaires ainsi considérées.

Tableau 45 : Valeurs et incertitudes des paramètres non-ajustés considérés dans la procédure d'ajustement.

^{233}Th $\sigma(n,\gamma)$	1183.26 ± 4.67 barns	^{233}Th λ_{decav}	$5.18047 \cdot 10^{-4} \pm 2.32 \cdot 10^{-6}$
^{233}Pa i.b.r.(n, γ)	0.487 ± 0.164	^{233}Pa λ_{decav}	$2.97406 \cdot 10^{-6} \pm 1.4 \cdot 10^{-10}$
^{233}U $\sigma(n,\gamma)$	39.12 ± 1.19 barns	^{234g}Pa λ_{decav}	$2.85246 \cdot 10^{-5} \pm 2.112 \cdot 10^{-7}$
^{233}U $\sigma(n,f)$	431.71 ± 8.76 barns	^{234m}Pa λ_{decav}	$9.87389 \cdot 10^{-3} \pm 2.5318 \cdot 10^{-4}$
^{235}U $\sigma(n,f)$	466.83 ± 4.67 barns	^{234m}Pa d.b.r.(n, γ)	$99.84 \% \pm 0.04 \%$
^{236}U $\sigma(n,\gamma)$	5.77 ± 0.28 barns	$\langle \Phi \rangle_{V4(50\text{cm})}$	$7.560 \cdot 10^{14} \pm 2.268 \cdot 10^{13}$

La majorité de ces incertitudes ont été extraites des évaluations « ANL covariance matrix » [74] et de la table des isotopes LBNL [75]. Hormis le flux, le seul paramètre qui ne provient pas de ces sources est le rapport d'embranchement isomérique du protactinium-233 (i.e. ^{233}Pa i.b.r.(n, γ)), dont la valeur est celle déterminée par Eastwood en 1960 [92], à savoir : 0.487 ± 0.164 .

De plus, il est nécessaire de remarquer que ces paramètres et leur incertitude sont considérés

comme étant totalement indépendants les uns des autres. Une telle hypothèse implique donc une surestimation des erreurs qui seront calculées sur les paramètres ajustés lors de cette procédure.

Au final, 650 cycles d'ajustement successifs ont été réalisés de cette manière, ce qui représente une erreur statistique de 4 %. Les incertitudes calculées à partir des écarts types des distributions ainsi obtenues et corrigées des erreurs statistiques, sont données dans le tableau 46. La moyenne de la distribution du chi carré réduit est aussi indiquée. Celle-ci se retrouve une nouvelle fois en dessous de l'unité.

Tableau 46 : Moyennes et écarts types des distributions obtenues suite aux 650 boucles d'ajustement (erreurs statistiques incluses). La moyenne du chi carré réduit est aussi indiquée.

	$^{232}\text{Th } \sigma(n,\gamma)$	$^{233}\text{Pa } \sigma(n,\gamma)$	$^{234}\text{U } \sigma(n,\gamma)$	$^{235}\text{U } \sigma(n,\gamma)$	$\langle \chi^2 \rangle$
valeur et erreur $\langle \sigma \rangle_{V4(50\text{cm})}$	$6.27 \pm 0.18 \text{ b}$	$34.16 \pm 1.54 \text{ b}$	$87.34 \pm 1.86 \text{ b}$	$79.01 \pm 2.49 \text{ b}$	0.013

Pour finir, chaque erreur contenue dans ce tableau est sommée en quadrature avec celle qui avait été calculée lors de l'ajustement préliminaire (cf. tableau 44). De cette manière, les incertitudes ainsi déterminées prennent en compte : les erreurs sur les données mesurées et les corrélations entre les paramètres ajustés et les incertitudes des paramètres non-ajustés. Les incertitudes sur la masse initiale ne sont pas prises en compte ici étant donné que d'une part, l'échantillon irradié se caractérise par une isotopie initiale pure en ^{232}Th , et que d'autre part, les rapports isotopiques ne sont pas dépendants de la masse initiale. Les valeurs finales ainsi obtenues pour les valeurs des sections efficaces intégrées sur le spectre de mesure sont données dans le tableau 47.

Tableau 47 : Valeur et erreurs finales des sections efficaces (intégrées sur le spectre d'irradiation) après l'addition en quadrature des incertitudes obtenues lors des deux étapes d'ajustement. La composante thermique (calculée) de chacune de ces sections efficaces est aussi présentée.

	$^{232}\text{Th } \sigma(n,\gamma)$	$^{233}\text{Pa } \sigma(n,\gamma)$	$^{234}\text{U } \sigma(n,\gamma)$	$^{235}\text{U } \sigma(n,\gamma)$
valeur et erreur $\langle \sigma \rangle_{V4(50\text{cm})}$	$6.27 \pm 0.18 \text{ b}$	$34.16 \pm 1.54 \text{ b}$	$87.34 \pm 2.75 \text{ b}$	$79.01 \pm 9.05 \text{ b}$
composante thermique $\langle \sigma \rangle_{\text{thermique}} / \langle \sigma \rangle_{\text{totale}}$	95.5 %	89.87 %	97.37 %	99.4 %

6.2.7 Extrapolation au point d'énergie thermique

Etant donné que les valeurs finalement recherchées sont celles au point d'énergie thermique, il est nécessaire de corriger ces sections efficaces intégrées du spectre qui les affecte. Cette déconvolution est opérée à travers l'utilisation des sections efficaces intégrées déjà calculées à l'aide des flux simulés par le logiciel MCNP et en utilisant la formule suivante :

$$\sigma_{25\text{meV}}^{\text{mesure}} = \left\langle \sigma^{\text{mesure}} \right\rangle_{V4} \cdot \frac{\sigma_{25\text{meV}}^{\text{bibliothèque}}}{\left\langle \sigma^{\text{bibliothèque}} \right\rangle_{V4}^{\text{MCNP}}} \quad (8)$$

Cette équation suppose que les formes des sections efficaces des bases de données soient correctement décrites sur l'ensemble du domaine d'énergie occupé par le spectre de la mesure, constitué à plus de 90 % par la région des énergies thermiques. Une telle hypothèse est effectivement vérifiée pour la section efficace de capture du ^{232}Th , pour laquelle de

nombreuses mesures ont déjà été réalisées. Un constat analogue peut être effectué pour les sections efficaces de capture des $^{234}, ^{235}\text{U}$, du fait des très bonnes caractérisations qui ont été accomplies sur leurs sections efficaces de fissions respectives.

Cette hypothèse n'est cependant pas vérifiée pour le ^{233}Pa , pour lequel très peu de mesures existent (cf. figure 76) et pour lequel les évaluations décrivent les premières résonances aux alentours de quelques électronvolts seulement. De plus, des quatre paramètres ajustés, il s'agit de celui pour lequel plus de 10 % de la valeur intégrée (cf. tableau 7) provient du domaine en énergie non-thermique (i.e. $E_n > 1$ eV). Aussi, l'impact des incertitudes attachées aux premières résonances sur la section efficace intégrée a dû être évaluée avec une méthode Monte-Carlo, en tirant notamment les valeurs des paramètres des résonances (i.e. $\Gamma_n, \Gamma_\gamma, E_0$, cf. tableau 48 [93]) aléatoirement dans une loi gaussienne ayant pour écart type leur incertitude associée.

Tableau 48 : Valeurs et incertitudes des paramètres de Breit-Wigner des premières résonances de la section efficace de capture du ^{233}Pa .

E_0 (eV)	$2 g \Gamma_n$	Γ_γ
0.795 ± 0.005	0.00143 ± 0.00040	50 ± 10
1.341 ± 0.003	0.140 ± 0.0140	40 ± 5
1.644 ± 0.004	0.43 ± 0.04	42 ± 5
2.356 ± 0.004	0.0117 ± 0.0020	50
2.830 ± 0.004	0.207 ± 0.020	46 ± 5
3.386 ± 0.006	0.41 ± 0.09	50 ± 5
4.288 ± 0.009	0.116 ± 0.010	48 ± 5
5.152 ± 0.010	0.524 ± 0.037	55 ± 5

Les sections efficaces absolues reconstruites de cette manière à travers le formalisme de Breit-Wigner ont ensuite été intégrées à chaque cycle, sur le flux de la position 50 cm. L'écart type de la distribution finale ainsi obtenue, exprime une erreur de 1.1 % supplémentaire. Cependant, en comparaison aux 4.5 % provenant de l'ensemble des indéterminations expérimentales, celle-ci reste négligeable. Ceci démontre donc, au vue d'un cas aussi extrême, que l'impact des incertitudes attachées aux premières résonances peut être finalement négligé pour les autres sections efficaces qui ont été ajustées ici.

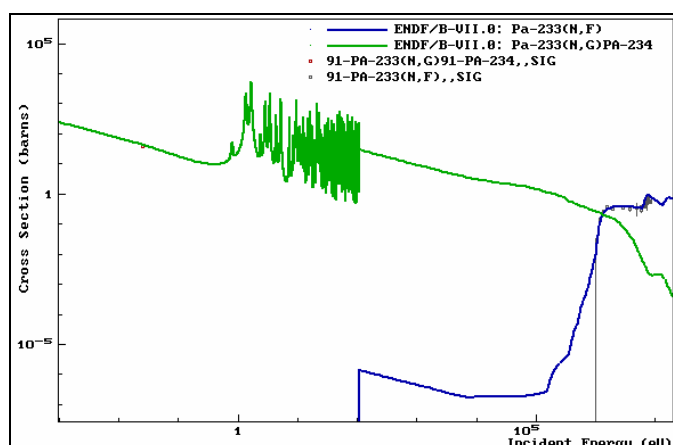


Figure 76 : Sections efficaces de capture et de fission évaluées (ENDF/B-VII.0) du protactinium-233 entre 10^{-3} eV et 20 MeV. Les mesures différentielles (i.e. non moyennées sur un spectre) extraites de la base CSISRS/EXFOR sont aussi représentées sur cette figure.

En définitive, l'ensemble des sections efficaces calculées au point d'énergie thermique sont fournies dans le tableau 49. A titre de comparaison, ce tableau indique également les valeurs présentes dans les bases de données les plus usuelles (i.e. ENDF/B-VII, JENDL-3.3 et JEFF-3.1), ainsi que les déviations minimales et maximales de ces dernières par rapport aux données mesurées.

6.2.8 Discussion sur les résultats

Les déviations entre la section efficace de capture du thorium-232 mesurée et les valeurs des bases de données restent en dessous de 1 %. Elle est notamment en excellent accord avec la bibliothèque ENDF/B-VII.0, ainsi qu'avec les mesures les plus récentes telles que celle obtenue par Maidana [92] en 2004 : (7.2 ± 0.2) barns. Un tel constat peut être considéré comme une validation de la méthode pour la détermination des sections efficaces recherchées.

Tableau 49 : Valeurs et erreurs finales des sections efficaces mesurées au point thermique. Les valeurs évaluées pour les trois bibliothèques les plus communes sont aussi présentées, avec également les écarts minimaux et maximaux de celles-ci vis-à-vis des données mesurées.

	$^{232}\text{Th } \sigma(n,\gamma)$	$^{233}\text{Pa } \sigma(n,\gamma)$	$^{234}\text{U } \sigma(n,\gamma)$	$^{235}\text{U } \sigma(n,\gamma)$
section efficace mesurée $\sigma_{V4(50\text{cm}), 25\text{meV}}$	7.34 ± 0.21 b	38.34 ± 1.78 b	106.12 ± 3.34 b	98.15 ± 11.24 b
ENDF/B-VII.0	7.36 b	42.70 b	101.31 b	98.81 b
JENDL-3.3	7.40 b	41.46 b	103.05 b	98.71 b
JEFF-3.1	7.40 b	41.60 b	100.10 b	98.81 b
[mesure/évaluation] déviation minimale	0.27 %	8.14 %	-2.89 %	0.57 %
[mesure/évaluation] déviation maximale	0.82 %	11.34 %	-5.67 %	0.67 %

Par ailleurs, comme déjà mentionné précédemment, la section efficace du protactinium, mesurée ici est effectivement 10 % plus faible que celle présente dans les bases de données. Néanmoins, cette mesure est cohérente avec les résultats les plus récents obtenus par Connor [95] : 39 ± 1.2 barns, en suivant une méthodologie similaire basée sur la séparation isotopique de ^{233}U et de ^{234}U .

En contrepartie, la section efficace de capture de ^{234}U qui a été mesurée ici est quelques pourcents plus grande que celle présente dans les bibliothèques. Elle est uniquement compatible (à 1 σ) avec la valeur de la base de données JENDL-3.3. Cependant, si l'on considère l'extrapolation maxwellienne de cette valeur mesurée : 88.73 ± 2.79 barns, alors il est possible d'affirmer que celle-ci est en meilleure compatibilité avec la mesure effectuée par Pomerance [96] : (88 ± 6) barns, que celles réalisées par Lounsbury [97] : (95.6 ± 2.1) barns ou Cabell [95] : (100.5 ± 1.5) barns.

Enfin, bien que défini par une incertitude élevée, la section efficace de capture de ^{235}U est en accord avec les bases de données, avec notamment des écarts inférieurs à 1%, ce qui peut être vu comme une seconde validation de la méthode d'analyse.

6.3 Conclusions

Cette analyse menée sur l'irradiation d'un échantillon de thorium-232 dans le canal V4 a permis d'extraire quatre nouvelles valeurs de sections efficaces de capture (i.e. ^{232}Th , ^{233}Pa et $^{234,235}\text{U}$) à partir des rapports isotopiques mesurés par spectrométrie de masse. La

méthodologie qui a été suivie a consisté tout d'abord à effectuer les bilans de sensibilité de ces grandeurs afin de connaître les paramètres auxquels elles sont le plus sensibles et par voie de conséquence les meilleurs candidats à l'ajustement. Suite à cela, les rapports $^{235}\text{U}/^{233}\text{U}$ et $^{236}\text{U}/^{233}\text{U}$ ont été respectivement remplacés par les rapports $^{235}\text{U}/^{234}\text{U}$ et $^{236}\text{U}/^{235}\text{U}$, dans l'optique de réduire les corrélations entre les paramètres ajustés.

Puis, en seconde partie, la procédure d'ajustement a été réalisée. Elle s'est subdivisée en deux parties distinctes. En premier lieu, un ajustement standard a été pratiqué sur les quatre sections efficaces recherchées afin de dégager l'erreur provenant des incertitudes attachées aux données mesurées et prenant également en compte les corrélations entre les paramètres ajustés. Dans un second temps, plusieurs boucles d'ajustement ont été effectuées à la suite, avec à chaque fois un tirage aléatoire des paramètres non-ajustés dans leurs barres d'erreurs. Ceci a permis d'établir, à travers la dispersion des distributions des paramètres ajustés, les erreurs engendrées par les incertitudes de ces paramètres non-ajustés sur ceux ajustés.

Au final, l'addition en quadrature de ces deux erreurs a permis de dégager l'erreur définitive sur les quatre sections efficaces de capture. Les valeurs ainsi obtenues se sont d'ailleurs révélées assez proches des bases de données, et plus particulièrement pour les sections efficaces de capture du ^{232}Th et du ^{235}U dont les écarts avec les bibliothèques sont restés inférieurs à 1 %. En outre, les sections efficaces de capture du ^{233}Pa et de ^{234}U ont montré des valeurs 10 % inférieure et 3 à 6 % supérieure, respectivement, à celles des bibliothèques, c'est-à-dire au-delà des erreurs (1σ) qui leur sont attachées. Cependant, ces mesures restent tout de même compatibles avec une partie des mesures réalisées antérieurement.

En définitive, ces quatre nouvelles données améliorent la caractérisation de la chaîne de transmutation du thorium-232 et par voie de conséquence vont permettre une meilleure précision sur les simulations qui seront réalisées sur les combustibles et réacteurs utilisant ce cycle.

Chapitre 7

Etude de la chaîne de transmutation de l'américium-241

Au vu des conclusions présentées dans la première partie, il est clair que la chaîne de transmutation de l'américium-241 a besoin d'être mieux caractérisée. En particulier, nous avons vu que le rapport d'embranchement ainsi que la section efficace de capture de l'état métastable de l'américium-242 avaient un fort impact sur les erreurs calculées.

Une première expérience avait déjà été réalisée dans le canal H9 pour déterminer la section efficace de capture et le rapport d'embranchement de l'américium-241 [99] : $^{241}\text{Am i.b.r.}(n,\gamma) = (0.914 \pm 0.007)$ et $^{241}\text{Am } \sigma(n,\gamma) = (696 \pm 48)$ b, ainsi que la capture de l'état fondamental de l'américium-242 ($\sigma(n,\gamma) = (330 \pm 50)$ b). En réalité, d'autres échantillons avaient également été irradiés dans le canal T4 pendant la même expérience. Faute d'outil suffisamment performant, les données n'avaient pas été analysées.

Nous avons décidé de reprendre l'analyse de ces expériences, au vu des outils que nous avons développés (ROOT/MERCS). L'idée sous-jacente était d'estimer l'importance des premières résonnances sur la détermination des sections efficaces, en comparant les mesures dans T4 et H9. C'est pourquoi nous avons également complété ces données par une irradiation dans le canal V4, dans un spectre moins modéré. Compte tenu de la méthode utilisée, à savoir, l'irradiation d'échantillons suivie d'une analyse par spectrométrie de masse, d'autres grandeurs ont pu être obtenues telles que la capture de l'américium-242 métastable et du curium-242.

Pour compléter ce tableau, nous avons également utilisé des chambres à fissions pour mesurer la fission des deux états de l'américium-242 dans un spectre purement maxwellien. Il faut ajouter que cette dernière mesure sert également de référence pour les irradiations réalisées dans le cadre de l'expérience MEGAPIE [84].

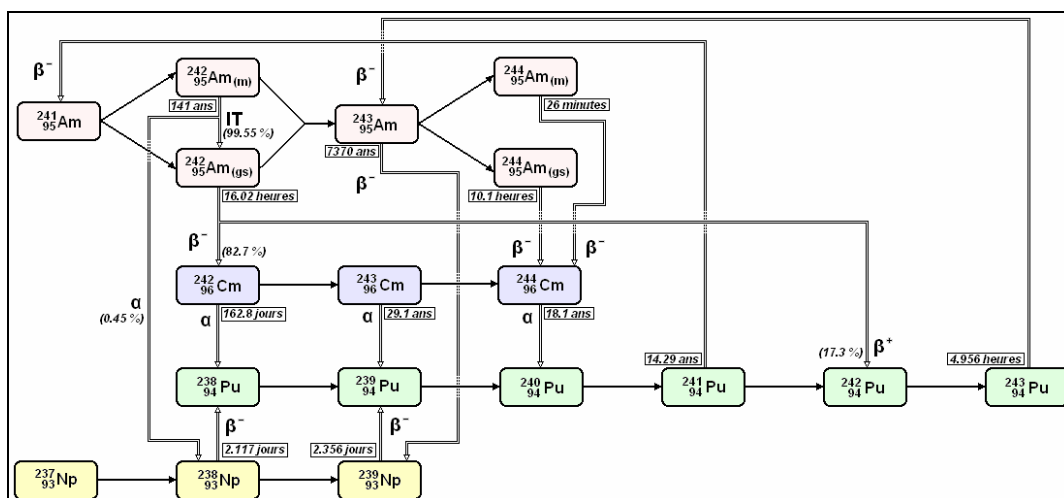


Figure 77 : Représentation simplifiée de la chaîne de transmutation de l'américium-241 et du neptunium-237.

Ces nouvelles mesures viennent compléter, les données obtenues précédemment sur

l'américium-243 ($\sigma(n,\gamma) = (81.8 \pm 3.6) \text{ b}$ [100]) et le plutonium-242 ($\sigma(n,\gamma) = (22.5 \pm 1.1) \text{ b}$ [100]). Ces deux derniers noyaux contrôlent en grande partie la formation du ^{244}Cm .

Nous présentons dans ce chapitre, les différentes expériences réalisées pour étudier la chaîne de l'américium-241. En effet, comme le souligne la figure 77, la chaîne de transmutation de l'américium-241 est singulièrement complexe. En fait, le chemin suivi par la matière transmutée dans un spectre modéré sera fortement dépendant de l'intensité du flux de neutrons appliqué (cf. chapitre 2). C'est pourquoi, plusieurs irradiations ont été réalisées dans des conditions variées, afin notamment de pouvoir explorer la totalité des voies offertes par cette chaîne. Ainsi, une dizaine d'échantillons ont été irradiés avec différentes durées dans les canaux T4, H9 et V4. Toutefois, dans ce dernier cas, seul un examen préliminaire sera opéré quant aux résultats obtenus, étant donné que l'analyse spectrométrique de masse n'a pas encore eu lieu.

7.1 Irradiation d'échantillons d' ^{241}Am dans les canaux T4 et H9

7.1.1 Présentation des irradiations

En vue d'étudier le taux d'incinération de l'américium-241 dans les hauts flux de neutrons thermiques, une douzaine d'ampoules de quartz contenant chacune une masse d'environ 30 μg d'américium-241 avaient été irradiées dans le réacteur de l'ILL [99]. La composition isotopique initiale de ces échantillons, déterminée par spectrométrie de masse, est présentée dans le tableau 50.

Tableau 50 : Composition isotopique initiale des échantillons mesurée par ICP-MS et TIMS

$^{237}\text{Np} / ^{241}\text{Am}$ (10^{-3})	$^{239}\text{Pu} / ^{241}\text{Am}$ (10^{-3})	$^{238}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$ (10^{-3})	$^{240}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$ (10^{-3})	$^{241}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$ (10^{-3})	$^{242}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$ (10^{-3})
25.3 ± 0.8	3.64 ± 0.04	11.32 ± 0.20	371.9 ± 1.5	42.42 ± 0.20	44.85 ± 0.25

On peut noter que près de 2.5 % de neptunium-237, ainsi que des traces de différents isotopes de plutonium sont présents.

Tableau 51 : Détail du programme d'irradiation. Les masses des échantillons ont été déterminées avant irradiation par l'utilisation de la spectrométrie γ . En outre, dans trois cas spécifiques, deux échantillons d'américium-241 ont été irradiés simultanément afin de pouvoir effectuer par la suite deux analyses de masse indépendantes.

^{241}Am initial mass (μg)	durée d'irradiation (jours)	canal d'irradiation
29.52 ± 0.53	$2.08 \cdot 10^{-2}$	H9
25.94 ± 0.47	0.95	H9
30.21 ± 0.54	2.01	H9
27.89 ± 0.50	5.02	H9
31.52 ± 0.57	10.98	H9
25.24 ± 0.45	10.98	H9
25.32 ± 0.46	19.03	H9
38.14 ± 0.69	19.03	H9
37.92 ± 0.68	5.01	T4
27.95 ± 0.50	11.01	T4
29.81 ± 0.54	24.0	T4
29.85 ± 0.54	24.0	T4

Par ailleurs, chaque capsule a été irradiée dans des conditions différentes, en termes de durée et de flux de neutrons. Ainsi, le flux du canal H9 ($\Phi \sim 6 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, 98 % de composante

thermique), qui est habituellement exploité par la plateforme spectroscopique mini-INCA, a été utilisé pour 8 échantillons. Tandis que les quatre autres ont été irradiés dans le canal T4 ($\Phi \sim 2 \cdot 10^{13} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$, spectre purement maxwellien) qui se trouve dans la piscine secondaire du réacteur. Au final, les durées d'irradiation se sont étalées entre 30 minutes et 24 jours (cf. tableau 51).

7.1.2 Détermination du flux de neutrons

De manière identique à ce qui avait été réalisé pour l'expérience sur l'échantillon de thorium-232, le flux de neutron subi par chaque ampoule a été caractérisé grâce à l'utilisation d'un moniteur neutronique standard. Dans le cas présent, ce sont des pastilles de fer-58 qui ont été utilisées. En effet, ce noyau forme par capture neutronique ($\sigma(n,\gamma)_{0.0253 \text{ eV}} = 1.3 \text{ barns}$) le fer-59 qui décroît ($T_{1/2} = 44.495 \text{ jours}$) par la suite sur le cobalt-59 (cf. figure 78) en émettant notamment deux raies gammas à 1099.2 keV ($I = 56.5 \%$) et 1291.6 keV ($I = 43.2 \%$).

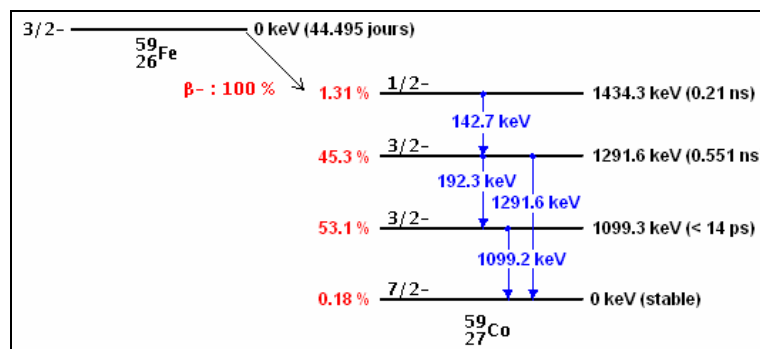


Figure 78 : Schéma de décroissance du fer-59 sur le cobalt-59. On note la présence des deux raies gamma intenses supérieures à 1 MeV.

Le flux moyen déterminé pour chaque capsule de quartz, avec une précision relative proche de 4 % est donné dans le tableau 3, en dehors de celle de 30 minutes dont la durée d'irradiation est ici bien trop courte pour pouvoir être exploitée.

Tableau 52 : Valeurs et incertitudes des flux de neutrons calculés à partir des résultats des spectroscopies gamma réalisées sur les moniteurs de ^{58}Fe irradiés avec les capsules d' ^{241}Am .

canal	H9	H9	H9
durée d'irradiation	0.95 jours	5.02 jours	10.98 jours
flux ($\text{n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$)	$(6.319 \pm 0.259) \cdot 10^{14}$	$(6.420 \pm 0.263) \cdot 10^{14}$	$(5.891 \pm 0.240) \cdot 10^{14}$
canal	H9	T4	T4
durée d'irradiation	19.03 jours	11.01 jours	24.0 jours
flux ($\text{n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$)	$(6.019 \pm 0.246) \cdot 10^{14}$	$(2.463 \pm 0.101) \cdot 10^{13}$	$(2.159 \pm 0.088) \cdot 10^{13}$

Par ailleurs, les valeurs de flux obtenues pour les échantillons irradiés dans le canal H9 ont été mises à jour par rapport à la référence [99]. En effet, la valeur de la section efficace de capture du ^{58}Fe utilisée dans les travaux présentés dans cet article était identique pour les deux canaux T4 et H9, et plus précisément, était la moyenne maxwellienne. Or, bien que cette valeur soit correcte dans le cas du canal T4, le spectre de neutrons du canal H9 présente 2 % de composante épithermique et la température du modérateur est à 323 K, et non pas à 300 K. En conséquence, les sections efficaces moyennes calculées sont $\langle\sigma(n,\gamma)\rangle_{\text{H9}} = 1.21 \text{ barns}$ et $\langle\sigma(n,\gamma)\rangle_{\text{T4}} = 1.3 \text{ barns}$.

7.1.3 Spectrométrie de masse

Plus de six mois de repos ont été nécessaires pour atteindre les seuils d'émission radioactive admissibles par les laboratoires du CEA/LANIE dans lesquels les analyses spectrométriques ont été réalisées. Les compositions isotopiques d'américium, de curium et de plutonium des échantillons sont données dans le tableau 53 et le tableau 54.

Tableau 53 : Compositions relatives en isotope d'américium et de curium obtenues par TIMS.

	$^{242}\text{Am} / ^{241}\text{Am}$ (10^{-3})	$^{243}\text{Am} / ^{241}\text{Am}$ (10^{-3})	$^{243}\text{Cm} / ^{242}\text{Cm}$ (10^{-3})	$^{244}\text{Cm} / ^{242}\text{Cm}$ (10^{-3})	$^{242}\text{Cm} / ^{241}\text{Am}$ (10^{-3})
H9, 0.95 jours	2.90 ± 0.02	0.20 ± 0.01			
H9, 5.02 jours	8.64 ± 0.04	3.05 ± 0.06			
H9, 10.98 jours	9.99 ± 0.05	7.20 ± 0.04	29.16 ± 0.15	3.709 ± 0.025	31.19 ± 0.35
H9, 19.03 jours	10.45 ± 0.05	15.94 ± 0.08	38.18 ± 0.20	6.393 ± 0.035	85.38 ± 0.90
T4, 11.01 jours	1.361 ± 0.008	0.024 ± 0.002			
T4, 24.00 jours	2.505 ± 0.013	0.079 ± 0.003	1.682 ± 0.015	0.016 ± 0.003	4.57 ± 0.05

Tableau 54 : Compositions relatives en isotope de plutonium obtenues par TIMS.

	$^{239}\text{Pu} / ^{238}\text{Pu}$ (10^{-3})	$^{240}\text{Pu} / ^{238}\text{Pu}$ (10^{-3})	$^{241}\text{Pu} / ^{238}\text{Pu}$ (10^{-3})	$^{242}\text{Pu} / ^{238}\text{Pu}$ (10^{-3})	$^{238}\text{Pu} / ^{241}\text{Am}$ (10^{-3})
H9, 10.98 jours	15.43 ± 0.07	9.436 ± 0.040	1.442 ± 0.008	233.8 ± 0.8	249.3 ± 2.5
H9, 19.03 jours	11.94 ± 0.06	6.70 ± 0.03	1.131 ± 0.006	241.3 ± 0.8	429.2 ± 4.5
T4, 24.00 jours	219.0 ± 0.9	86.88 ± 0.30	10.22 ± 0.03	277.9 ± 0.9	15.99 ± 0.16

Pour les temps d'irradiation courts, les compositions en curium et plutonium n'ont pas pu être déterminées car les taux de production étaient en-deçà du seuil limite de détection.

7.1.4 Simulation comparative avec la base de données ENDF/B-VII.0

Tableau 55 : Rapports isotopiques Am et Cm simulés à l'aide de la base de données ENDF/B-VII.0. Les valeurs entre crochets indiquent les différences relatives entre ces valeurs et les données mesurées.

	$^{242}\text{Am} / ^{241}\text{Am}$ (10^{-3})	$^{243}\text{Am} / ^{241}\text{Am}$ (10^{-3})	$^{243}\text{Cm} / ^{242}\text{Cm}$ (10^{-3})	$^{244}\text{Cm} / ^{242}\text{Cm}$ (10^{-3})	$^{242}\text{Cm} / ^{241}\text{Am}$ (10^{-3})
H9, 0.95 jours	2.35 [-19 %]	0.17 [-15 %]			
H9, 5.02 jours	6.80 [-21 %]	2.67 [-12 %]			
H9, 10.98 jours	7.88 [-21 %]	7.05 [-5 %]	27.19 [-7 %]	4.841 [+31 %]	26.55 [-15 %]
H9, 19.03 jours	8.08 [-22 %]	15.84 [-1 %]	31.67 [-17 %]	7.337 [+15 %]	81.09 [-5 %]
T4, 11.01 jours	1.159 [-15 %]	0.021 [-12 %]			
T4, 24.00 jours	2.066 [-18 %]	0.067 [-15 %]	1.279 [-14 %]	0.019 [+19 %]	4.57 [-12 %]

A l'aide du programme MERCs, nous avons calculé l'évolution de chacun des rapports isotopiques mesurés ci-dessus. Seule la base de données ENDF/B-VII.0 a été utilisée étant donné le grand nombre d'observables. Les résultats des calculs sont présentés en détails dans le tableau 55 et le tableau 56. Les écarts de ces valeurs simulées vis-à-vis des données mesurées sont donnés entre crochets. Ces derniers restent globalement inférieurs à 20 %.

Il est tout d'abord possible de remarquer que le rapport $^{242}\text{Am} / ^{241}\text{Am}$ est sous-estimé par la simulation, ce qui tendrait à signifier que la section efficace de capture de ^{241}Am est sous-

estimée ou que le rapport d'embranchement est surestimé, étant donné que seul l'état métastable est présent dans cette observable (^{242g}Am $T_{1/2} = 16.02$ heures, ^{242m}Am $T_{1/2} = 141$ ans). La sous-estimation de la valeur calculée pour le rapport $^{242}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ semble néanmoins aller dans le sens de la première hypothèse.

Tableau 56 : Rapports isotopiques Pu simulés à l'aide de la base de données ENDF/B-VII.0. Les valeurs entre crochets indiquent les différences relatives entre ces valeurs et les données mesurées.

	$^{239}\text{Pu} / ^{238}\text{Pu}$ (10^{-3})	$^{240}\text{Pu} / ^{238}\text{Pu}$ (10^{-3})	$^{241}\text{Pu} / ^{238}\text{Pu}$ (10^{-3})	$^{242}\text{Pu} / ^{238}\text{Pu}$ (10^{-3})	$^{238}\text{Pu} / ^{241}\text{Am}$ (10^{-3})
H9, 10.98 jours	16.25 [+5 %]	10.171 [+8 %]	1.541 [+7 %]	236.7 [+1 %]	210.0 [-16 %]
H9, 19.03 jours	12.95 [+8 %]	7.48 [+12 %]	1.267 [+12 %]	254.2 [+5 %]	386.5 [-10 %]
T4, 24.00 jours	254.4 [+16 %]	100.1 [+15 %]	12.29 [+21 %]	278.2 [+0 %]	14.21 [-11 %]

En revanche, les déviations moins importantes de l'observable $^{243}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ que celles du $^{242m}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ indiquent que la section efficace de capture de l' ^{242m}Am est ici surestimée dans la base ENDF/B-VII.0. Enfin, la valeur calculée pour la variable $^{243}\text{Cm}/^{242}\text{Cm}$ est inférieure à ce qui a été obtenu par la mesure, exprimant une sous-estimation de la section efficace de capture du ^{242}Cm , alors que celle attachée au rapport $^{239}\text{Pu}/^{238}\text{Pu}$ marque une surestimation de la section efficace de capture du ^{238}Pu .

7.1.5 Bilans de sensibilités

Comme dans le cas de l'échantillon de ^{232}Th , les bilans de sensibilités ont été établis pour l'ensemble des rapports mesurés ou pouvant être potentiellement reconstruits à partir de ces derniers, ce qui correspond au total à 55 rapports isotopiques possibles (non-identiques). De ce fait, le détail du bilan de sensibilité ne sera pas donné pour chacun d'entre eux, mais uniquement pour la phase [H9, 19 jours], très représentative des rapports choisis au final.

Tableau 57 : Bilans de sensibilités des rapports isotopiques sélectionnés pour être ajustés. Seuls les coefficients de sensibilité supérieurs à 0.10 %/% sont présentés ici.

	$^{242m}\text{Am} / ^{241}\text{Am}$	$^{243}\text{Am} / ^{242m}\text{Am}$	$(^{242}\text{Cm} + ^{238}\text{Pu}) / ^{241}\text{Am}$	$^{243}\text{Cm} / (^{242}\text{Cm} + ^{238}\text{Pu})$	$^{242}\text{Pu} / ^{241}\text{Am}$
^{241}Am i.b.r.(n, γ)	- 8.93 %/%	3.86 %/%	0.99 %/%		1.00 %/%
^{241}Am σ (n, γ)	1.08 %/%	0.23 %/%	1.28 %/%		1.28 %/%
^{242g}Am σ (n, γ)		0.32 %/%			
^{242m}Am σ (n, γ)	- 0.18 %/%	0.70 %/%			
^{242m}Am σ (n,f)	- 0.90 %/%	0.45 %/%			
^{242}Cm σ (n, γ)				1.00 %/%	
^{243}Cm σ (n,f)				- 0.16 %/%	
flux de neutrons		1.70 %/%	1.18 %/%	0.90 %/%	1.18 %/%

Compte tenu du choix des rapports isotopiques, les paramètres nucléaires qui représentent les meilleurs candidats à l'ajustement sont les sections efficaces : ^{241}Am σ (n, γ), ^{242m}Am σ (n, γ), ^{242m}Am σ (n,f) et ^{242}Cm σ (n, γ), de même que le rapport d'embranchement de la réaction de capture de l' ^{241}Am (i.e. ^{241}Am i.b.r.(n, γ)). Par ailleurs, il est possible de remarquer que les concentrations du ^{242}Cm et du ^{238}Pu ont été rassemblées en une seule grandeur. En réalité, du fait des temps d'irradiation courts (< 25 jours) et des temps de repos importants (> 1 an), une grande partie du ^{242}Cm ($T_{1/2} = 162.8$ jours) a déchu sur le ^{238}Pu (cf. figure 79). C'est pourquoi afin de retrouver la majorité des informations contenues dans la masse de ^{242}Cm en fin d'irradiation, il est nécessaire de sommer ces deux quantités.

Par ailleurs, il est possible de remarquer qu'en dehors du ^{238}Pu et du ^{242}Pu qui proviennent tout deux de la décroissance de l' ^{242}gAm , aucun autre isotope du plutonium n'est présent dans l'ensemble des observables à ajuster. En fait, les évolutions des noyaux $^{239, 240, 241}\text{Pu}$ suivent à la fois la formation du ^{238}Pu par la décroissance du ^{242}Cm , ainsi que sa formation à travers la décroissance du ^{238}Np formé par la transmutation du ^{237}Np . Cela amène au final à de nombreuses incertitudes, tant aux niveaux des erreurs sur les paramètres nucléaires conduisant à la formation du plutonium que celles liées aux concentrations des noyaux initiaux (e.g. 4 % d'incertitude pour la masse du ^{237}Np).

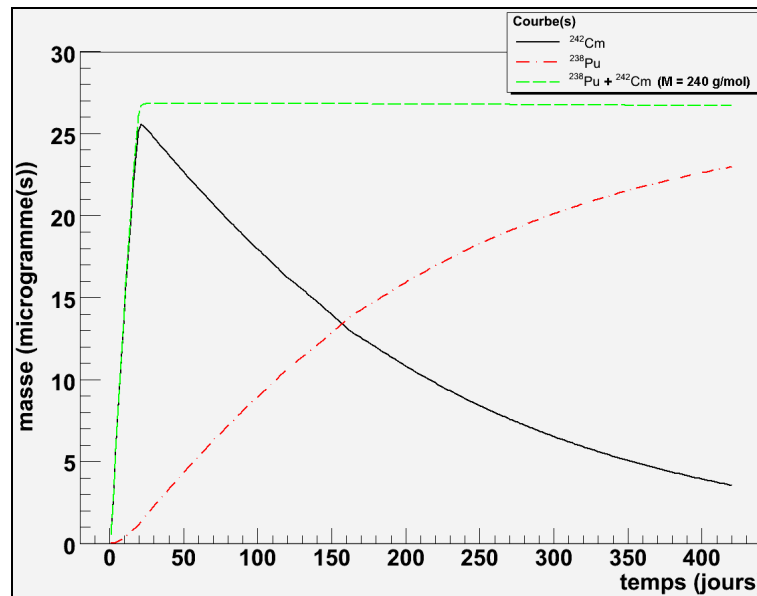


Figure 79 : Evolutions des masses de ^{238}Pu et de ^{242}Cm , ainsi que de leur somme (masse molaire moyenne de 240 g/mol) durant et après la phase d'irradiation H9/19 jours. On note la constance de cette dernière variable durant la phase de repos.

L'ajustement des rapports isotopiques du plutonium n'a pas permis d'extraire les sections efficaces de capture de ces isotopes, et n'a pas apporté non plus d'amélioration quant à la précision des autres paramètres ajustés (i.e. américiums et curiums). En conséquence, ces rapports n'ont finalement pas été inclus dans la procédure d'ajustement.

Tableau 58 : Bilans de sensibilités des rapports isotopiques sélectionnés pour les isotopes : $^{238, 239, 240}\text{Pu}$. Seuls les coefficients de sensibilité supérieurs à 0.10 %/% sont présentés ici.

	$^{239}\text{Pu} / ^{238}\text{Pu}$	$^{240}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$	$^{241}\text{Pu} / ^{240}\text{Pu}$
^{241}Am i.b.r.(n, γ)	- 0.58 %/%	- 0.40 %/%	
^{241}Am σ (n, γ)	- 0.39 %/%	- 0.31 %/%	
^{238}Pu σ (n, γ)	0.45 %/%	- 0.39 %/%	
^{239}Pu σ (n, γ)	- 0.16 %/%	0.50 %/%	- 0.14 %/%
^{239}Pu σ (n,f)	- 0.41 %/%	0.30 %/%	
^{240}Pu σ (n, γ)		- 0.22 %/%	0.93 %/%
^{241}Pu σ (n, γ)			- 0.15 %/%
^{241}Pu σ (n,f)			- 0.44 %/%
flux de neutrons	- 0.37 %/%	- 0.14 %/%	0.16 %/%

7.1.6 Ajustement des données expérimentales

Les rapports isotopiques ainsi sélectionnés ont été divisés et ajustés séparément sur deux

histogrammes distincts, correspondant chacun à un spectre d'irradiation donné (i.e. H9 et T4). Les paramètres nucléaires intégrés : ^{241}Am i.b.r.(n, γ), ^{241}Am σ (n, γ), $^{242\text{m}}\text{Am}$ σ (n, γ), ^{242}Am σ (n,f) (H9 uniquement) et ^{242}Cm σ (n, γ) ont donc été ajustés sur chacun des ces ensembles. La procédure d'ajustement suivie est identique à celle décrite pour le cas du thorium-232.

Tableau 59 : Valeurs et incertitudes des paramètres non-ajustés considérés dans la procédure d'ajustement. Les sections efficaces intégrées et les flux de chaque position sont indiqués à gauche.

	T4	H9		H9 et T4
$^{242\text{g}}\text{Am}$ σ (n, γ)	216.0 ± 107.6 b	207.3 ± 103.7 b	^{241}Am λ_{decav}	$5.08202 \cdot 10^{-11} \pm 8.23 \cdot 10^{-14}$
$^{242\text{g}}\text{Am}$ σ (n,f)	1944.1 ± 972.1 b	1866.1 ± 933.1 b	$^{242\text{g}}\text{Am}$ λ_{decav}	$1.20188 \cdot 10^{-5} \pm 1.500 \cdot 10^{-7}$
$^{242\text{m}}\text{Am}$ σ (n,f)	6382.1 ± 319.1 b		$^{242\text{m}}\text{Am}$ λ_{decav}	$1.55777 \cdot 10^{-10} \pm 2.210 \cdot 10^{-12}$
^{243}Cm σ (n, γ)	110.8 ± 44.3 b	105.9 ± 42.4 b	^{242}Cm λ_{decav}	$4.92361 \cdot 10^{-8} \pm 1.81 \cdot 10^{-11}$
^{243}Cm σ (n,f)	534.1 ± 213.6 b	514.4 ± 205.8 b	^{243}Cm λ_{decav}	$7.57794 \cdot 10^{-10} \pm 7.781 \cdot 10^{-12}$
^{237}Np σ (n, γ)	155.49 ± 6.22 b	151.3 ± 6.2 b	^{238}Np λ_{decav}	$3.78958 \cdot 10^{-6} \pm 3.58 \cdot 10^{-9}$
^{238}Pu σ (n, γ)	462.4 ± 46.2 b	441.0 ± 44.1 b	^{239}Np λ_{decav}	$3.40515 \cdot 10^{-6} \pm 4.33 \cdot 10^{-9}$
^{242}Pu σ (n, γ)	16.79 ± 0.51 b	19.3 ± 0.7 b	^{238}Pu λ_{decav}	$2.5045 \cdot 10^{-10} \pm 2.8 \cdot 10^{-13}$
			^{243}Pu λ_{decav}	$3.8850 \cdot 10^{-10} \pm 2.3 \cdot 10^{-13}$
$\langle \Phi \rangle_{\text{T4},11\text{j}}$	$2.463 \pm 0.101 \cdot 10^{13}$			
$\langle \Phi \rangle_{\text{T4},24\text{j}}$	$2.159 \pm 0.088 \cdot 10^{13}$		$^{242\text{g}}\text{Am}$ d.b.r.(β^-) ¹	0.827 ± 0.003
$\langle \Phi \rangle_{\text{T4},01\text{j}}$		$6.319 \pm 0.259 \cdot 10^{13}$		
$\langle \Phi \rangle_{\text{T4},05\text{j}}$		$6.420 \pm 0.250 \cdot 10^{13}$		
$\langle \Phi \rangle_{\text{T4},11\text{j}}$		$5.891 \pm 0.240 \cdot 10^{13}$		
$\langle \Phi \rangle_{\text{T4},19\text{j}}$		$6.019 \pm 0.246 \cdot 10^{13}$		
$\langle \Phi \rangle_{\text{T4},01\text{j}}$		$6.319 \pm 0.259 \cdot 10^{13}$		

En supplément des indéterminations associées aux concentrations initiales, les paramètres (non-ajustés) dont les incertitudes ont été prises en considération durant l'ajustement sont énumérés dans le tableau 59. Les incertitudes des paramètres de décroissance ont été une nouvelle fois extraites de la référence [75], tandis que celles des sections efficaces ont été calculées à partir des matrices de variances évaluées [74], excepté pour le cas de la section efficace de capture de l' $^{242\text{g}}\text{Am}$ pour laquelle une erreur de plus de 50 % a été supposée. La volonté de prendre une indétermination aussi large pour cette section efficace, malgré la mesure antérieure réalisée durant le projet mini-INCA : $^{242\text{g}}\text{Am}$ σ (n, γ) = 330 ± 50 barns [99], s'explique par les nombreuses inconnues qui résident encore quant au début du domaine des résonances, du fait du manque flagrant de données qui caractérise ce paramètre nucléaire. Néanmoins, l'influence de ce dernier sur les évolutions des rapports mesurés n'est pas suffisamment importante pour que cette hypothèse soit réellement pénalisante.

Tableau 60 : Valeurs et erreurs totales finales des sections efficaces intégrales mesurées sur les échantillons irradiés dans les canaux T4 et H9.

	^{241}Am i.b.r.(n, γ)	^{241}Am σ (n, γ)	$^{242\text{m}}\text{Am}$ σ (n, γ)	$^{242\text{m}}\text{Am}$ σ (n,f)	^{242}Cm σ (n, γ)
valeurs ajustées T4 $\langle \sigma \rangle_{\text{T4}}$	0.8947 ± 0.0041	609.4 ± 27.5 b	1134.3 ± 113.4 b		19.36 ± 2.89 b
valeurs ajustées H9 $\langle \sigma \rangle_{\text{H9}}$	0.8948 ± 0.0101	588.3 ± 28.9 b	900.3 ± 348.6 b	5491.8 ± 971.7 b	15.26 ± 1.34 b

La procédure est encore une fois réalisée en deux temps avec un tirage Monte-Carlo des

¹ $^{242\text{g}}\text{Am}$ d.b.r.(β^-) : probabilité de décroissance (ou encore rapport d'embranchement de décroissance) selon le mode β^- de l'état fondamental du ^{242}Am . Dans le cas présent, à chaque instant, 82.7 % de la masse de ce noyau qui disparaît par décroissance radioactive se dirige vers le ^{242}Cm , tandis que les 17.3 % restant va en direction du ^{242}Pu (mode β^+).

paramètres non-ajustés pendant la seconde phase. Les sections efficaces intégrées finales ainsi obtenues sont données dans le tableau 60. Il est important de remarquer qu'afin d'obtenir un χ^2 réduit de l'ordre de l'unité, 2.5 % et 7.9 % d'erreurs complémentaires ont du être rajoutées respectivement aux données obtenues en T4 et H9. Les sources de celles-ci sont attribuées essentiellement aux inconnues présentes dans la procédure expérimentale.

7.1.7 Extrapolation au point d'énergie thermique

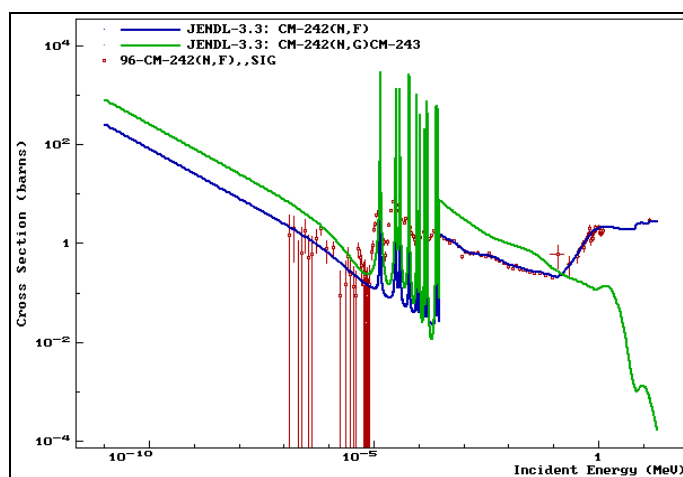


Figure 80 : Sections efficaces de capture et de fission évaluées (JENDL-3.3) du curium-242 entre 10^{-5} eV et 20 MeV. Les points de mesures absolus (i.e. non moyennés sur un spectre) extraits de la base CSISRS/EXFOR pour la réaction de fission sont aussi représentés sur cette figure.

En ce qui concerne la détermination des sections efficaces à 0.0253 eV, l'impact des incertitudes des premières résonances n'a été évalué que pour la section efficace de capture du ^{242}Cm . En effet, il s'agit du seul paramètre ajusté pour lequel les résonances sont mal définies, et ce, autant pour la réaction de fission que pour celle de capture (cf. figure 80).

Tableau 61 : Valeurs et erreurs finales des sections efficaces mesurées au point thermique pour les positions T4 et H9, ainsi que la moyenne de celles-ci. Les valeurs évaluées pour les trois bibliothèques les plus communes sont aussi présentées, avec également les écarts minimaux et maximaux de ces dernières vis-à-vis des résultats finaux.

	^{241}Am i.b.r.(n, γ)	^{241}Am σ (n, γ)	$^{242\text{m}}\text{Am}$ σ (n, γ)	$^{242\text{m}}\text{Am}$ σ (n,f)	^{242}Cm σ (n, γ)
T4	0.8947	704.5 b	1171.3 b		22.4 b
$\sigma_{\text{T4}, 25\text{meV}}$	± 0.0040	± 31.8 b	± 117.1 b		± 3.3 b
H9	0.8948	695.4 b	965.0 b	5917.9 b	18.29 b
$\sigma_{\text{H9}, 25\text{meV}}$	± 0.0102	± 34.2 b	± 373.7 b	± 1047.1 b	± 1.68 b
moyenne H9/T4	0.8947 ± 0.0038 (± 0.4 %)	700.3 b ± 23.3 b (± 3.3 %)	1152.3 b ± 111.7 b (± 7.2 %)	5917.9 b ± 1047.1 b (± 17.7 %)	19.1 b ± 1.5 b (± 7.9 %)
ENDF/B-VII.0	0.9000	620.8 b	1234.2 b	6416 b	16.95 b
JEFF-3.1	0.9000	650.4 b	1234.2 b	6416 b	15.95 b
JENDL-3.3	0.9100	639.5 b	1231.1 b	6400 b	15.90 b
[mesure/évaluation] déviation minimale	0.6 %	- 7.1 %	6.8 %	8.1 %	- 11.3 %
[mesure/évaluation] déviation maximale	1.7 %	- 11.4 %	7.1 %	8.4 %	- 16.8 %

En conséquence, la prise en compte des inconnues sur les paramètres de résonance [93] a permis de calculer une incertitude supplémentaire de 2.4 % (spectre T4) et 2.7 % (spectre H9)

sur la valeur extrapolée au point thermique de cette section efficace. Une fois encore, l'impact des inconnues sur les résonances est négligeable vis-à-vis des erreurs provenant des incertitudes expérimentales. Néanmoins, cette indétermination est prise en compte dans le tableau 61 qui répertorie l'ensemble des valeurs extrapolées au point d'énergie thermique des paramètres ajustés. La moyenne des résultats obtenus sur la position H9 et sur celle de T4 est aussi indiquée dans ce tableau.

7.1.8 Discussion sur les résultats

La première remarque qui peut être effectuée quant à ces résultats est que les valeurs obtenues sur les positions d'irradiation H9 et T4 sont compatibles dans leurs barres d'erreurs, ce qui indique un effet faible des premières résonances.

Le rapport d'embranchement et la section efficace de capture de l'américium-241 confirme la mesure la plus récente effectuée par Shinohara [101] : 0.90 ± 0.09 . Il est par ailleurs intéressant de noter qu'en comparaison avec cette dernière, la valeur obtenue ici est un ordre de grandeur plus précise ($\pm 0.4\%$). En revanche, cette nouvelle valeur ne coïncide pas avec la précédente mesure du rapport d'embranchement réalisée par Fioni, par spectroscopie γ [99] : (0.914 ± 0.007) , alors que la section efficace de capture obtenue dans cette même expérience : (696 ± 48) b, est compatible avec la valeur obtenue ici.

Par ailleurs, en ce qui concerne ce second paramètre, la valeur mesurée dévie de près de 10 % (i.e. 3σ) avec les évaluations des bibliothèques. Néanmoins, cette mesure est encore une fois en accord avec celle de Shinohara : $(768 \text{ b} \pm 58)$ b. En revanche, elle infirme la mesure la plus récente réalisée par Maidana [102] : $(609 \text{ b} \pm 9)$ b.

Enfin, les sections efficaces de capture du ^{242}Cm et de l' $^{242\text{m}}\text{Am}$ qui sont ici les paramètres les plus affectés par des carences en mesures directes, ont été déterminées avec des précisions proches de 10 %. Or, bien que la valeur qui a été extraite ici pour l' $^{242\text{m}}\text{Am}$ soit assez proche de celle des bases de données, plus de 11 % (i.e. plus de 1σ) de différence sont observés pour le ^{242}Cm . C'est pourquoi, il est possible d'affirmer que cette dernière valeur met en évidence un biais dans les bases de données évaluées. Bien que caractérisé par une erreur importante ($\pm 17\%$), la valeur qui a été mesurée pour la section efficace de fission du $^{242\text{m}}\text{Am}$ offre une validation supplémentaire des données évaluées. Une mesure plus précise de cette section est présentée au paragraphe suivant.

7.2 Chambres à fissions dédiées à l'étude de l'incinération de l' ^{241}Am

7.2.1 Présentation de l'expérience

Trois chambres à fissions CFUT/C3 ont été irradiées simultanément à l'intérieur du canal V4 en position 100 cm, dans un flux caractérisé par une intensité proche de $6 \cdot 10^{13} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ et par un spectre purement maxwellien ($T = 50 \text{ }^\circ\text{C}$). Ces chambres sont identiques à celles utilisées dans l'expérience MEGAPIE [87]. Cette mesure sert d'ailleurs de référence pour l'expérience MEGAPIE. En supplément des chambres ^{235}U (mesure du flux) et sans dépôt (mesure des signaux parasites), une troisième chambre avec un dépôt de $(103.1 \pm 0.3) \mu\text{g}$ d'américium-241 a été utilisée. La composition isotopique de cet échantillon d'américium a été déterminée par spectrométrie de masse, est de plus de 97 % de ^{241}Am , 2.7 % de ^{237}Np et des traces de ^{239}Pu et ^{240}Pu . L'électrodéposition de l'uranium et de l'américium sur les anodes des chambres à fissions a été réalisée par le service de physique expérimentale du CEA/DEN Cadarache (cf. figure 81).

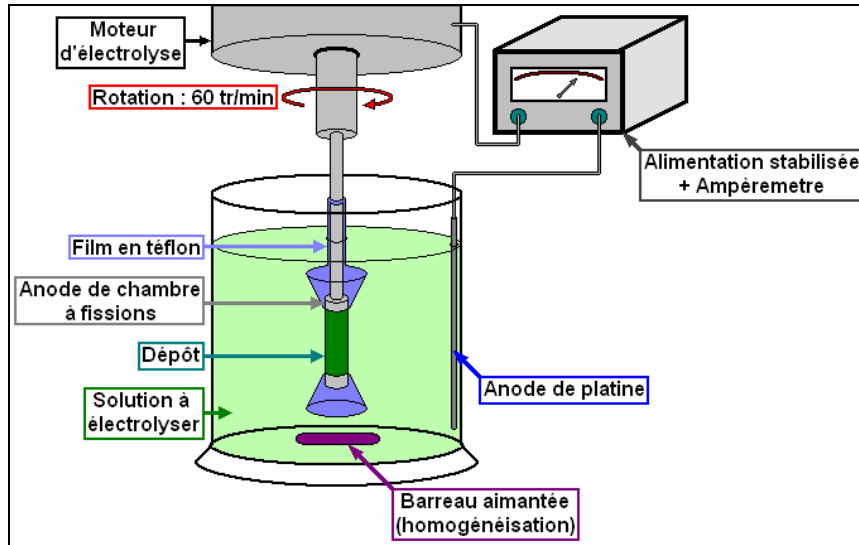


Figure 81 : Principe du processus d'électrodéposition des oxydes d'actinide sur les anodes des chambres à fissions tel que réalisé au CEA/DEN/SPEX Cadarache. Un film de téflon permet le contrôle de la zone de dépôt, tandis que l'homogénéisation est assurée par le mouvement d'un barreau aimantée ainsi que par la rotation continue de l'anode.

Durant les 44 jours d'irradiation dans le canal V4, les courants ont été mesurés avec un pas en temps fixe d'une seconde. La figure 82 montre l'évolution des signaux nets (i.e. corrigés du courant de la chambre sans dépôt) de la chambre du ^{235}U et de celle d' ^{241}Am .

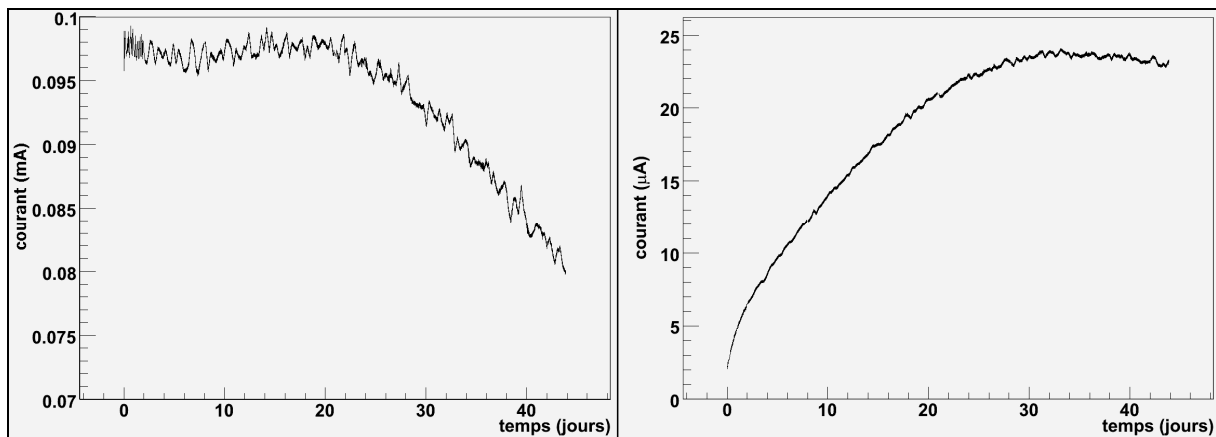


Figure 82 : Courants mesurés (corrigés du signal de bruit) des deux chambres ^{235}U (à gauche) et ^{241}Am (à droite) le long des 44 jours d'irradiation dans le canal V4 en position 100cm.

7.2.2 Coefficient de calibration et calcul de l'évolution du flux de neutrons

7.2.2.1 Méthode de calcul du flux de neutrons

L'évolution du signal de la chambre ^{235}U en fonction du temps dépend de l'évolution du flux de neutrons. En effet, un simple ajustement par une loi exponentielle représentatif de la combustion de l' ^{235}U , selon un flux constant n'est pas réalisable (χ^2 réduit supérieur à 10^{12} !). Il est donc nécessaire de reconstruire l'évolution du flux à partir de la formule suivante :

$$\Phi(t) = \frac{I_{U235}(t)}{I_{U235}(t=0)} \cdot \Phi(t=0) \cdot \prod_{k=0}^{k=t-dt} \frac{1}{(1 - \sigma_{U235}(n, abs) \cdot \Phi(k) \cdot dt)} \quad (9)$$

« dt » représente le pas en temps qui sépare les points de mesure. Cette formule est établie à partir des équations d'évolution (i.e. équation de Bateman) discrètes de l'uranium au cours du temps. Elle n'est valide que si l'évolution de l'uranium-235 est suffisamment petite entre les points de mesure, ce qui est le cas ici puisque les mesures ont été réalisées chaque seconde, alors que le taux de transmutation de ce noyau dépasse à peine 10 % au bout de 44 jours. Par ailleurs, afin de pouvoir utiliser cette formule, il est nécessaire de connaître l'intensité du flux au temps initial, et donc le coefficient de calibration Γ des chambres à fissions :

$$\Phi(t=0) = \frac{I_{U235}(t=0) \cdot \Gamma}{\sigma_{U235}(n, f) \cdot N_{U235}(t=0)} \quad (10)$$

7.2.2.2 Détermination du coefficient Γ

Suite aux travaux menés sur les chambres à fissions [84], la valeur du coefficient de calibration peut-être estimée par une modélisation du fonctionnement de ces détecteurs. Pour les chambres CFUT/C3 utilisées dans cette expérience, une valeur de $\Gamma = 3.26 \cdot 10^{13} \cdot A^{-1} \cdot sec^{-1}$ a été obtenue, pour un gaz d'argon pur à une pression d'équilibre de 1 bar.

Cependant, l'estimation théorique peut, dans les faits, être biaisée par de nombreux problèmes de maîtrise liés à l'introduction du gaz dans d'aussi petits détecteurs : pression du gaz lors du scellement hermétique et pollution potentielle lors des soudures. Aussi, plusieurs méthodes basées sur les résultats expérimentaux ont été étudiées pour déterminer ce coefficient.

La première a consisté à essayer d'ajuster Γ sur les données de la chambre ^{241}Am en même temps que les autres sections efficaces recherchées. Le facteur ainsi obtenu est ensuite réinjecté dans la construction de l'évolution du flux de neutrons sur le signal ^{235}U , avant de recommencer l'ajustement sur les données ^{241}Am et ainsi de suite, jusqu'à la convergence de la procédure (cf. figure 83).

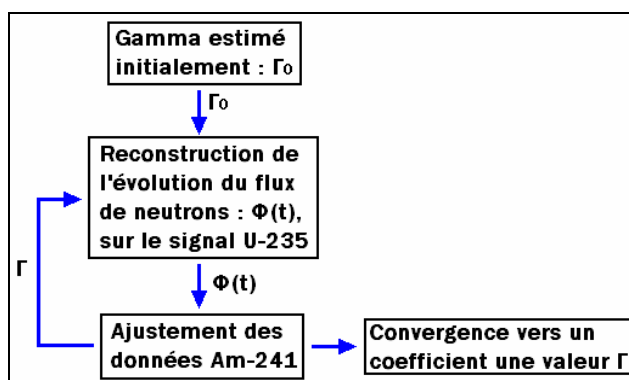


Figure 83 : Procédure d'ajustement en boucle orienté sur la convergence vers un coefficient de calibration du détecteur.

Malencontreusement, l'ajustement du coefficient de calibration ne peut être réalisé simultanément avec celui des sections efficaces de fissions, et plus particulièrement celle de l'état métastable ^{242m}Am . La raison à cela provient du fait que cette section efficace et le coefficient de calibration Γ ont des domaines d'action relativement similaires dans le temps (cf. figure 84), et donc une variation de l'un de ces paramètres est compensée par une rétroaction sur la valeur de l'autre.

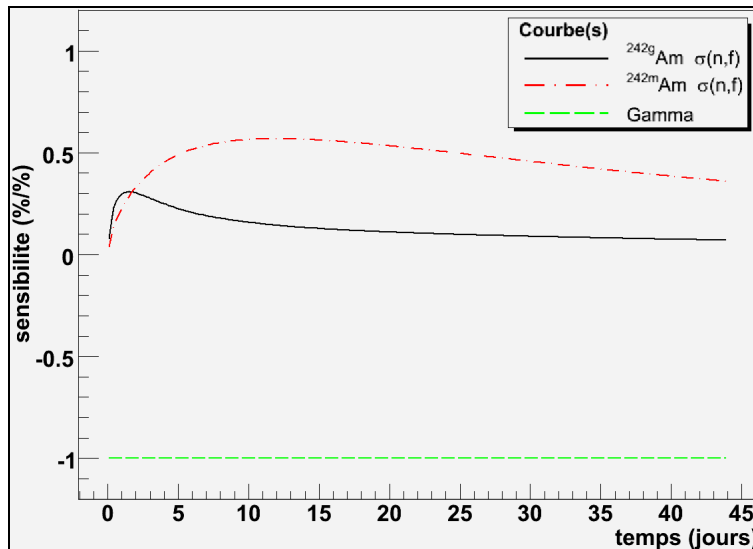


Figure 84 : Coefficients de sensibilités des sections efficaces de fission du ^{242}Am , ainsi que du coefficient de calibration de la chambre.

Aussi, avons-nous cherché un autre moyen de déterminer ce coefficient. Pour cela, nous nous sommes basés sur l'évolution du courant de la chambre sans dépôt. En effet, il a été remarqué à plusieurs reprises dans les mesures antérieures du projet mini-INCA, que l'évolution du courant de cette chambre était relativement similaire avec celle du flux reconstruit. Si le courant de la chambre sans-dépôt est proportionnel au flux de neutrons, alors le courant net de la chambre ^{235}U rapporté à celui de la chambre sans-dépôt doit montrer une décroissance exponentielle correspondant à la combustion de ^{235}U . Or, comme le montre la figure 85, cette observable peut effectivement être ajustée par une exponentielle au-delà de 15 jours, ce qui tendrait à valider cette hypothèse. Le flux moyen ainsi obtenu vaut : $\Phi = (6.07 \pm 0.08) 10^{13} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$, ce qui est une valeur compatible avec ce qui avait été observé lors d'expériences antérieures.

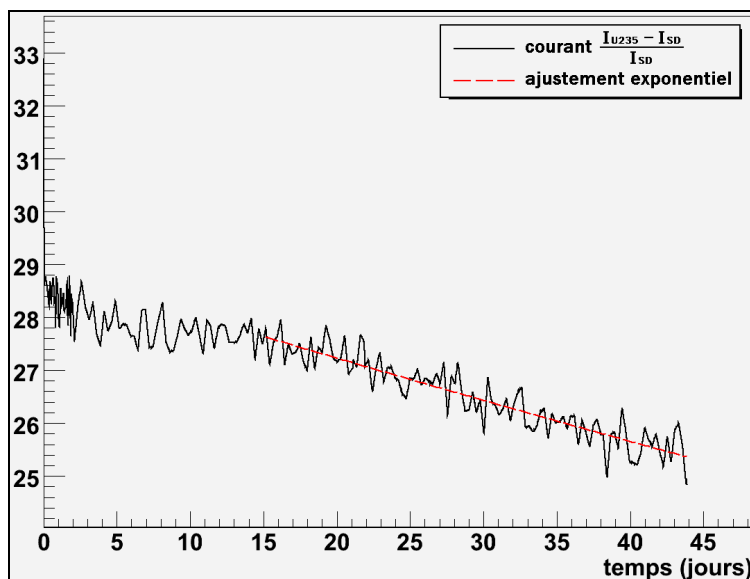


Figure 85 : Signal du courant net de la chambre rapporté à celui de la chambre sans dépôt. On remarque qu'au-delà de 15 jours, il est possible d'ajuster cette fonction par une loi exponentielle.

L'explication réside dans le fait que les phénomènes parasites (flux γ du cœur et de la barre de

contrôle et activation des chambres à fissions) finissent par être en équilibre et donc proportionnels au flux de neutrons. En effet, les réactions de capture et de fissions sont toujours proportionnelles au flux de neutrons, tandis qu'il faut généralement 24 heures en début de cycle pour que le cœur soit en équilibre avec ses produits de fissions.

De même, les produits d'activation et de fission de courte durée de vie (i.e. périodes inférieures à quelques jours) se mettent rapidement en équilibre avec leur précurseur. Seuls les noyaux de longue durée de vie tels que ^{59}Fe ($T_{1/2} = 44.495$ jours, produit par capture sur ^{58}Fe présent dans l'acier des chambres) peuvent rendre cette loi caduque. Néanmoins des mesures effectuées lors de l'arrêt du réacteur sur des chambres CFUT/C7 irradiées en 2006 dans un flux encore plus intense : $\Phi \sim 10^{15} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$, ont montré que les contributions de tels noyaux (i.e. courant résiduel de 8 nA mesuré après 20 minutes hors flux) étaient complètement négligeables vis-à-vis des autres phénomènes (20 μA pour la chambre de bruit sous irradiation).

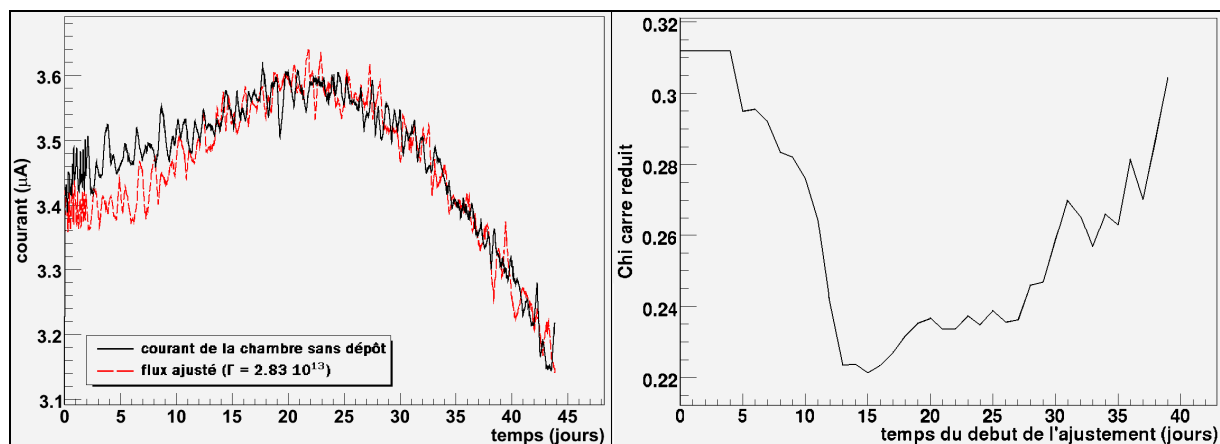


Figure 86 : Tracé du flux ajusté sur la forme du courant de la chambre sans dépôt entre [15, 44] jours (à gauche) et χ^2 réduit obtenu sur les différents intervalles [$t_{\text{début}}$, 44] jours (à droite). Les écarts entre ce flux reconstruit et le signal SD sont inférieurs aux barres d'erreurs.

C'est pourquoi, la détermination du coefficient gamma a été effectuée par l'ajustement de la forme du flux reconstruit sur celle du courant de la chambre sans dépôt après 15 jours de fonctionnement (cf. figure 86). Ce domaine temporel correspond en effet à celui qui minimise le chi-carré. La valeur du coefficient de calibration ainsi obtenu est de $(2.83 \pm 0.03) 10^{13} \text{ /A.s}$, ce qui correspond en théorie à une pression de 1.14 bars pour le gaz. Cela représente 14 % de déviation en comparaison à la valeur théorique. De plus, la moyenne du flux reconstruit avec ce coefficient vaut : $(5.92 \pm 0.29) 10^{13} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$. Cette valeur est compatible avec celle qui avait été déterminée par l'ajustement exponentiel.

7.2.3 Bilans de sensibilités

Sachant que les deux contributeurs majoritaires au taux de fissions de la chambre ^{241}Am sont les états métastable et fondamental du ^{242}Am , le nombre de paramètres sensibles est relativement limité. En dehors du coefficient de calibration et du flux, il s'agit essentiellement de la section efficace de capture et du rapport d'embranchement de l' ^{241}Am , ainsi que des sections efficaces de fission des deux états de l' ^{242}Am . En outre, du fait de la supériorité de l'impact des paramètres de capture de l' ^{241}Am , les résultats précis qui ont été obtenus sur l'analyse de l'expérience T4/H9 se révèlent précieux pour cette nouvelle analyse.

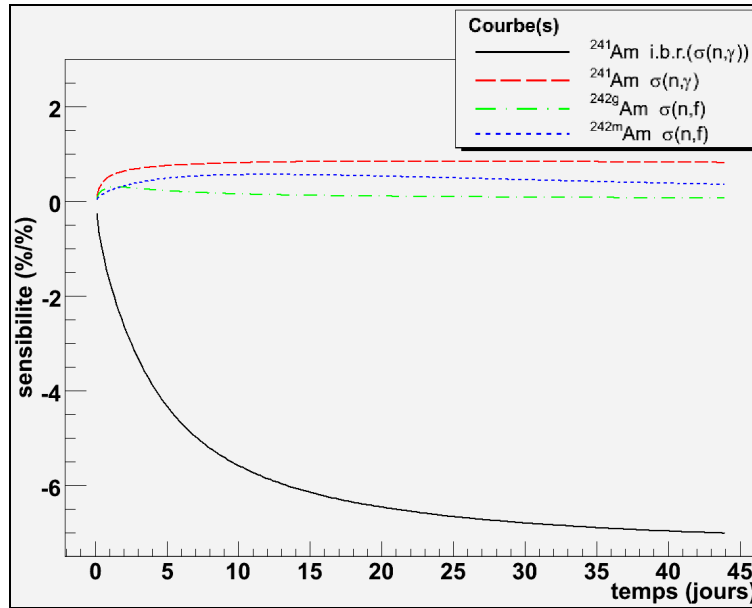


Figure 87 : Evolution des coefficients de sensibilité des paramètres nucléaires les plus sensibles (en dehors du flux et du coefficient de calibration) du taux de fission de la chambre ^{241}Am .

De plus, comme le montre la figure 87, les trois premiers jours de l'irradiation sont les plus importants pour la section efficace de fission de l' ^{242g}Am . Son coefficient de sensibilité y est notamment supérieur à celui de la section efficace de fission de l'état isomère. Au-delà de cette limite, la section efficace de fission de l' ^{242m}Am devient le paramètre de fission dominant jusqu'à la fin du cycle.

7.2.4 Ajustement des données expérimentales

Comme pour les analyses des expériences précédentes, la procédure d'ajustement est effectuée en deux phases avec l'estimation des erreurs corrélées des paramètres ajustés et celles provenant des incertitudes des paramètres nucléaires non-ajustés et des concentrations initiales. Les valeurs et incertitudes qui ont été considérées pour ces paramètres non-ajustés sont présentées dans le tableau 62.

Tableau 62 : Valeurs et incertitudes des paramètres non-ajustés considérés dans la procédure d'ajustement.

^{241}Am i.b.r.(n,γ)	0.8947 ± 0.0017	^{242}Pu $\sigma(n,\gamma)$	16.62 ± 0.51 barns
^{241}Am $\sigma(n,\gamma)$	587.72 ± 24.93 barns	^{237}Np $\sigma(n,\gamma)$	153.01 ± 6.12 barns
^{242g}Am $\sigma(n,\gamma)$	213.25 ± 106.63 barns		
^{242m}Am $\sigma(n,\gamma)$	1091.8 ± 112.3 barns	^{241}Am λ_{decay}	$5.08202 \cdot 10^{-11} \pm 8.23 \cdot 10^{-14}$
^{243}Am $\sigma(n,\gamma)$	65.03 ± 13.01 barns	^{242g}Am λ_{decay}	$1.20188 \cdot 10^{-5} \pm 1.50 \cdot 10^{-8}$
^{242}Cm $\sigma(n,\gamma)$	18.65 ± 0.83 barns	^{242m}Am λ_{decay}	$1.55777 \cdot 10^{-10} \pm 2.210 \cdot 10^{-12}$
^{238}Pu $\sigma(n,\gamma)$	454.29 ± 45.43 barns	^{243}Am λ_{decay}	$2.98026 \cdot 10^{-12} \pm 6.06 \cdot 10^{-15}$
^{239}Pu $\sigma(n,\gamma)$	276.07 ± 5.83 barns	^{242}Cm λ_{decay}	$4.92361 \cdot 10^{-8} \pm 1.81 \cdot 10^{-11}$
^{239}Pu $\sigma(n,f)$	686.24 ± 7.40 barns	^{238}Pu λ_{decay}	$2.5045 \cdot 10^{-10} \pm 2.8 \cdot 10^{-13}$
^{240}Pu $\sigma(n,\gamma)$	253.44 ± 5.22 barns	^{241}Pu λ_{decay}	$1.53063 \cdot 10^{-9} \pm 1.06 \cdot 10^{-11}$
^{241}Pu $\sigma(n,\gamma)$	313.94 ± 9.42 barns	^{238}Np λ_{decay}	$3.78958 \cdot 10^{-6} \pm 3.58 \cdot 10^{-9}$
^{241}Pu $\sigma(n,f)$	911.39 ± 18.24 barns	^{242g}Am d.b.r.(β)	0.827 ± 0.003

Celles du rapport d'embranchement de l' ^{241}Am et des sections efficaces de capture des ^{241}Am , ^{242m}Am et du ^{242}Cm ont été calculées à partir des valeurs obtenues lors des irradiations des

échantillons dans les canaux T4 et H9. Le coefficient de calibration a également été tiré aléatoirement dans une loi gaussienne dans deux ajustements différents. Pour chaque valeur prise par ce paramètre, les évolutions du flux ont été reconstruites en conséquence. De plus, les corrélations entre les différents paramètres n'ont pas été prises en compte, ce qui maximise les erreurs. Les sections efficaces intégrales finalement ajustées sont données dans le tableau ci-dessous. Pour les deux sections efficaces de fission, les incertitudes obtenues sont proches de 10 %.

Tableau 63 : Valeurs ajustées pour les sections efficaces intégrales de fission de ^{242g}Am et ^{242m}Am lors de l'ajustement basé sur le coefficient de calibration expérimental.

^{242g}Am $\sigma(n,f)$	2224 ± 215 barns
^{242m}Am $\sigma(n,f)$	6527 ± 625 barns

7.2.5 Extrapolation au point d'énergie thermique

A la différence notable de l'état isomère, la section efficace de fission de l'état fondamental est très mal caractérisée en énergie. En fait, un seul point de mesure existe [103] avec une indétermination en énergie comprise entre 0 et 0.4 eV (cf. figure 88). De plus, les incertitudes des paramètres de résonances n'ont pas été évaluées. C'est pourquoi, étant donné que les évaluations estiment le début du domaine des résonances dès 0.1 eV, une incertitude de 100 % a été supposée pour cette région, ce qui correspond au final à une erreur supplémentaire de 4.36 % pour ce paramètre.

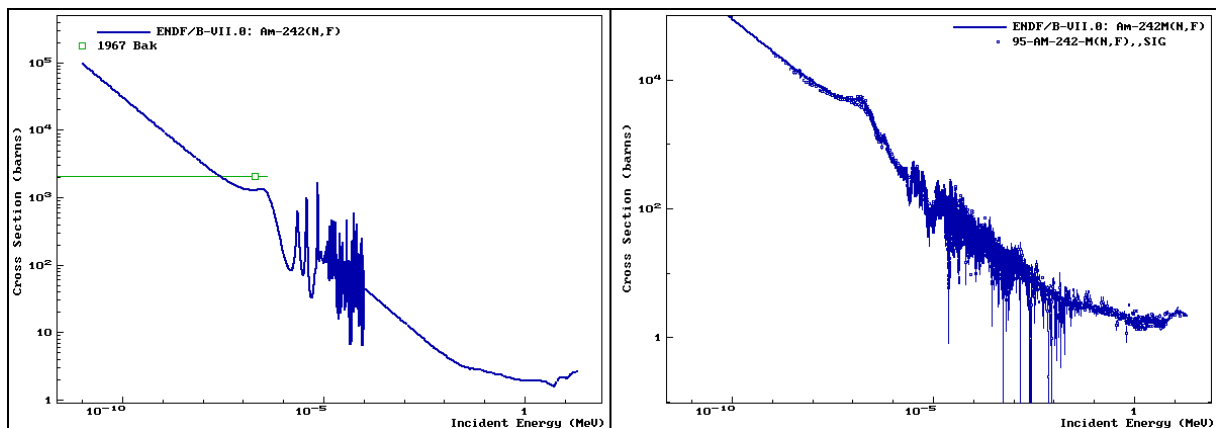


Figure 88 : Sections efficaces de fission évaluées (ENDF/B-VII.0) des deux états de l'américium-242 entre 10-5 eV et 20 MeV. Les points de mesures absolus (i.e. non moyennés sur un spectre) extraits de la base CSISRS/EXFOR pour la réaction de fission sont aussi représentés.

7.2.6 Discussions sur les résultats

Tableau 64 : Valeurs et erreurs finales des sections efficaces de fission mesurées au point thermique. Les valeurs évaluées pour les trois bibliothèques les plus communes sont aussi présentées.

	^{242g}Am $\sigma(n,f)$	^{242m}Am $\sigma(n,f)$
section efficace mesurée	2644 ± 281 b	6856 ± 656 b
$\sigma_{V4(100\text{cm}), 25\text{meV}}$	(± 10.6 %)	(± 9.6 %)
ENDF/B-VII.0	2104 b	6416.0 b
JEFF-3.1	—	6416.0 b
JENDL-3.3	—	6399.7 b

Les valeurs et erreurs finalement produites au point d'énergie thermique sont exposées dans le tableau 64. Les valeurs des principales bases de données nucléaires sont aussi fournies.

Le premier constat que l'on peut faire est que la section efficace de fission de ^{242m}Am est compatible avec les bases de données, dans sa barre d'erreur, tandis que celle de ^{242g}Am est sous-estimée par les bases. De surcroît, les mesures effectuées antérieurement sur ^{242m}Am , dans le domaine d'énergie thermique, confirment cette valeur (cf. tableau 65).

Tableau 65 : Mesures effectuées sur la section efficace de fission du ^{242m}Am dans la région d'énergie thermique.

auteur	année	référence	valeurs au point thermique
Kai, Kobayashi, Yamamoto et al.	2004	[104]	7010.2 ± 295.6 b
Browne, White, Howe et al.	1984	[105]	6328 ± 320 b
Dabbs, Bemis, Raman et al.	1983	[106]	6971.9 ± 262.1 b
Bowman, Auchampaugh, Fultz et al.	1968	[107]	6967.4 b

Il faut rappeler néanmoins que le coefficient de calibration a été considéré comme étant le même pour toutes les chambres. Or, cette hypothèse n'est pas totalement vraie puisque de par sa masse supérieure, ^{241}Am génère des produits de fissions dont la masse et la charge est en moyenne plus élevée que dans le cas de ^{235}U . Un calcul avec le logiciel SRIM/TRIM a montré que l'énergie déposée dans l'Argon par les produits de fission était 2 % plus grande pour le ^{241}Am . Cette correction est de fait négligeable vis-à-vis des 10 % d'incertitude qui affecte les sections efficaces de fissions.

7.3 Transmutation d'un échantillon de ^{241}Am au fond du canal V4

7.3.1 Présentation de l'expérience

Afin de clore cette série d'étude sur l'incinération et la transmutation de l'américium dans les spectres thermiques, un dernier échantillon de 100 μg d'américium-241 a été irradié en 2005 au fond du canal V4 durant 50 jours à une hauteur de 25 cm au dessus du plan médian du cœur. A cette position, le flux de neutrons est caractérisé par une intensité de 10^{15} $\text{n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ et un spectre à plus de 10 % non-thermique. Le but recherché par cette expérience est de mener une exploration plus poussée de cette chaîne de transmutation et de pouvoir notamment atteindre la section efficace de capture de l'état fondamental ^{242g}Am afin d'amener une détermination plus précise de ce paramètre. La composition isotopique de cet échantillon est similaire à celui qui a été déposé dans la chambre à fissions irradiée la même année (cf. section 7.7.2.1).

Cependant, du fait de l'importance de l'activité en sortie de réacteur, à savoir plus de 200 mCi, l'analyse isotopique n'a pas pu encore être réalisée. En effet, la majorité de l'activité provient du ^{242}Cm ($T_{1/2} = 162.8$ jours) qui est à la fois un émetteur alpha et une source de fission spontanée, ce qui rend obligatoire une période d'au moins un an de repos avant de pouvoir mener à bien la caractérisation de l'échantillon irradié. C'est pourquoi, seuls les résultats de l'analyse préliminaire seront présentés ici.

7.3.2 Evolution massique de l'échantillon

Durant les 50 jours d'irradiation dans le canal V4, la plus grande partie des 90 % d'américium transmuté se dirige vers le ^{242}Pu et le ^{242}Cm . Grâce à l'apport des flux de neutrons intenses, la

masse de cet isotope du curium représente plus de dix fois celle du ^{238}Pu en fin d'irradiation, ce qui permet par ailleurs la formation d'une quantité non-négligeable de ^{243}Cm . Finalement, durant la phase de repos la plus grande partie de ce ^{242}Cm ($T_{1/2} = 162.8$ jours) finit par décroître sur le ^{238}Pu .

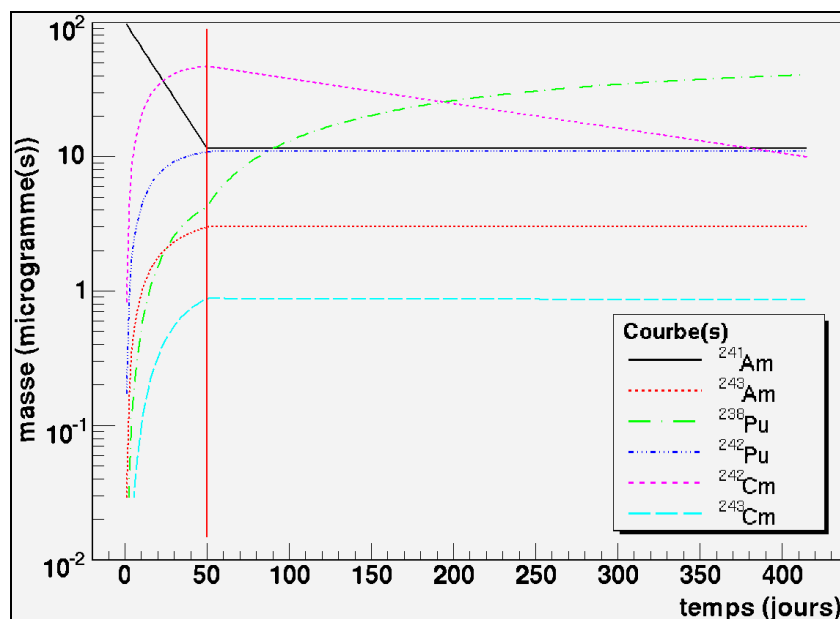


Figure 89 : Evolution massique des principaux noyaux formés lors de la transmutation de l'américium-241 lors des 50 jours d'irradiation dans le canal V4 et pendant un an de repos.

7.3.3 Bilans de sensibilités

Afin de connaître à l'avance les paramètres qui pourront potentiellement être extraits des données mesurées par spectrométrie de masse, les bilans de sensibilité de nombreux rapports isotopiques ont été calculés. Ceux qui possèdent le plus d'intérêt sont donnés dans le tableau 66. Ils ont été calculés en fin d'irradiation. C'est pourquoi, en prenant en compte la durée de décroissance, il est clair qu'une partie des informations contenues dans le ^{242}Cm seront retrouvées en grande partie dans la masse du ^{238}Pu finale.

Tableau 66 : Bilans de sensibilités calculés en fin d'irradiation pour les rapports isotopiques présentant le plus d'intérêt. Seuls les coefficients supérieurs à 0.10 %/% sont indiqués ici.

	$^{242m}\text{Am}/^{241}\text{Am}$	$^{243}\text{Am}/^{242}\text{Pu}$	$^{242}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$	$^{242}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$	$^{243}\text{Cm}/^{242}\text{Cm}$	$^{244}\text{Cm}/^{243}\text{Am}$
^{241}Am i.b.r.(n, γ)	- 8.11 %/%	- 3.12 %/%	1.00 %/%	1.00 %/%		0.21 %/%
^{241}Am σ (n, γ)	1.08 %/%		3.34 %/%	2.40 %/%	0.13 %/%	0.23 %/%
^{242g}Am σ (n, γ)		0.31 %/%				
^{242g}Am σ (n,f)			- 0.17 %/%			
^{242m}Am σ (n, γ)	- 0.18 %/%	- 0.29 %/%				
^{242m}Am σ (n,f)	- 0.90 %/%	- 0.28 %/%		- 0.12 %/%		
^{243}Am σ (n, γ)		- 0.30 %/%				0.94 %/%
^{242}Pu σ (n, γ)		0.46 %/%	0.14 %/%			- 0.16 %/%
^{242}Cm σ (n, γ)					1.02 %/%	0.22 %/%
^{243}Cm σ (n, γ)					- 0.14 %/%	0.20 %/%
^{243}Cm σ (n,f)					- 0.69 %/%	- 0.11 %/%
flux neutronique		0.56 %/%	3.04 %/%	2.23 %/%	0.33 %/%	1.24 %/%

Par ailleurs, de nouvelles mesures pourront être réalisées sur une partie des paramètres déjà

mesurés lors des précédentes campagnes, tels que le rapport d'embranchement ($^{242m}\text{Am}/^{241}\text{Am}$) et la section efficace de capture de l' ^{241}Am ($^{242}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ et $^{242}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$), de même que la section efficace de capture du ^{243}Am ($^{244}\text{Cm}/^{243}\text{Am}$). En outre, l'aspect moins modéré du spectre de neutrons offrira la possibilité d'explorer plus en profondeur le début de la région des résonances pour ces sections efficaces.

De plus, grâce aux valeurs obtenues lors des expériences antérieures, il sera possible de faire ressortir les valeurs de paramètres aussi difficiles d'accès que la section efficace de capture du ^{242g}Am ($^{243}\text{Am}/^{242}\text{Pu}$) ou encore la section efficace de fission du ^{243}Cm ($^{243}\text{Cm}/^{242}\text{Cm}$). Bien que les valeurs qui pourront être obtenues pour ces sections efficaces seront respectivement limitées par la précision sur la section efficace de capture du ^{242m}Am et du ^{242}Cm , elles pourront néanmoins apporter de précieux renseignements aux évaluateurs de données.

7.4 Conclusions

Les trois expériences et analyses correspondantes ont permis de compléter les travaux déjà entrepris sur la chaîne de transmutation de l'américium-241. Ces analyses se sont basées essentiellement sur l'utilisation des coefficients de sensibilités calculés avec le logiciel ROOT/MERCS afin d'extraire le maximum d'information des données.

Ainsi, les dix échantillons irradiés dans les canaux T4 et H9 du réacteur de l'ILL ont permis d'extraire 4 paramètres nucléaires de la chaîne de transmutation de l'américium-241 à partir des données obtenues par spectrométrie de masse : ^{241}Am i.b.r.(n, γ), ^{241}Am σ (n, γ), ^{242m}Am σ (n, γ) et ^{242}Cm σ (n, γ), avec une très bonne précision.

Par ailleurs, l'irradiation de trois chambres à fissions CFUT/C3 dans le canal V4 a permis d'extraire les sections efficaces de fission des deux états de l'américium-242, avec une précision de l'ordre de 10 %. Chaque détecteur a été dédié à une tâche particulière, à savoir : la mesure du flux de neutrons, celle des signaux parasites et celle du taux de fission recherché. La mesure de la section efficace de capture du ^{242}Cm et de fission de l' ^{242g}Am peut se définir comme un événement notable ici, puisqu'il s'agit de la première détermination de ces paramètres nucléaires dans le domaine d'énergie thermique.

Enfin, une analyse préliminaire a été réalisée quant aux résultats qui pourront être obtenus suite à l'analyse spectrométrique de l'échantillon de ^{241}Am qui a été irradié en 2005 dans le canal V4. Cette dernière mesure permettra à la fois d'apporter une nouvelle validation de paramètres déjà mesurés antérieurement, ainsi que d'explorer le début du domaine des résonances. Elle offrira aussi la possibilité d'atteindre des paramètres aussi difficile d'accès que la section efficace de capture de l'état fondamental ^{242g}Am , de même que la section efficace de fission du ^{243}Cm . Pour finir, cette expérience sera complétée par les mesures réalisées lors de l'expérience MEGAPIE. En effet, grâce à une chambre à fissions avec un dépôt d' ^{241}Am placée au centre de la cible, l'incinération de cet actinide a pu être suivie dans un spectre très proche de celui d'un réacteur GT-MHR, ce qui permettra, à terme, de pouvoir extraire la section efficace intégrale de fission de l' ^{242m}Am et ^{242g}Am .

Chapitre 8

Etude de la transmutation et de l'incinération du curium-244

Le curium-244 est l'un des actinides mineurs le plus néfaste et difficile à gérer dans l'aval du cycle électronucléaire. De plus, il est un des produits manifeste de la transmutation de l'américium-241 et du neptunium-237. Or, comme tous les noyaux de la chaîne des curiums, il existe peu de données attachées à sa section efficace de capture. Or, celle-ci représente une source d'incertitude notable sur l'évaluation de sa masse, de même que sur celle du ^{252}Cf , comme nous l'avons vu dans la première partie.

C'est pourquoi, dans l'optique de déterminer sa capacité à être transmuté et incinéré, nous avons décidé d'utiliser une chambre à fissions triple corps gap réduit CFUT/C7 contenant un dépôt de curium-244, afin de mesurer sa section efficace de capture ainsi que son incinération via la fission du curium-245.

Nous présentons, dans ce chapitre, la description de l'expérience, ainsi que les résultats obtenus sur la capture du curium-244 et la fission du curium-245.

8.1 Présentation de l'expérience

En 2006, une chambre triple corps gap réduit CFUT/C7 dédiée à l'étude de l'incinération du ^{244}Cm a été irradiée dans le canal V4 en position 25 cm. Une masse de $(4.22 \pm 0.04) \mu\text{g}$ d' ^{235}U a été déposée dans un corps de chambre, tandis que $(26.40 \pm 0.44) \mu\text{g}$ de ^{244}Cm ont été déposés sur l'anode d'un second corps de chambre. La masse de cet échantillon de ^{244}Cm qui a été initialement obtenu auprès du LBNL (Lawrence Berkeley National Laboratory), a été vérifiée par spectroscopie α et par comptage neutronique et sa composition isotopique qui a été mesurée par spectrométrie de masse est donnée dans le tableau 67.

Tableau 67 : Composition isotopique de l'échantillon ^{244}Cm .

	^{243}Cm	^{244}Cm	^{245}Cm	^{246}Cm	^{247}Cm	^{248}Cm	^{238}Pu	^{239}Pu	^{240}Pu
masse (μg)	0.0757 ± 0.0014	26.20 ± 0.44	1.539 ± 0.027	2.269 ± 0.039	0.0841 ± 0.0015	0.0567 ± 0.0011	0.0752 ± 0.0013	0.0113 ± 0.0002	7.83 ± 0.13

Par ailleurs, il est important de faire remarquer que l'échantillon de curium choisi était âgé de plus de sept années depuis sa séparation chimique, de telle sorte qu'un quart de celui-ci a réussi à décroître sur le ^{240}Pu durant cette période, soit près de $8 \mu\text{g}$. Une quantité significative de ^{245}Cm fissile (i.e. $1.54 \mu\text{g}$) était aussi présente dans la composition isotopique initiale de ce dépôt, de sorte que l'on a pu déterminer la section efficace de fission de ce noyau. Pour ce faire, nous avons suivi le démarrage du réacteur de l'ILL.

Excepté pour le corps de chambre sans dépôt, le détecteur a fonctionné convenablement durant le cycle. En effet, peu de temps après les 48 heures de mise à l'équilibre du cœur, ce corps de chambre a commencé à présenter un fonctionnement erratique, avec plus spécifiquement une montée rapide du courant débité, dépassant même celui des autres corps ^{235}U et ^{244}Cm , avant de subir un claquage définitif au bout de 20 jours d'irradiation. En conséquence de quoi, le signal correspondant a été considéré comme inexploitable pour l'analyse au-delà des deux premiers jours.

De plus, contrairement à ce qui avait été prédit par les modèles théoriques [85] les courbes de calibration n'ont pas présenté de plateau de saturation en position 25 cm du canal V4 (cf. figure 90). En réalité, malgré leur espace inter-électrode réduit, celles-ci ont montré un comportement presque analogue à celui des chambres CFUT/C3, avec plus particulièrement une disparition du plateau de saturation lorsque celles-ci étaient descendu au-delà de la position 75 cm du canal V4. Les raisons de cet écart vis-à-vis de la théorie n'ont pas encore trouvé d'explication précise.

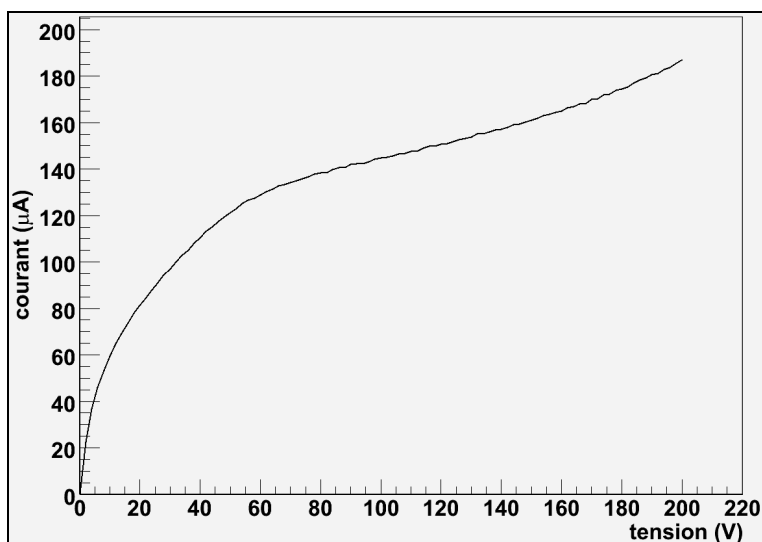


Figure 90 : Courbe de calibration mesurée sur le corps de chambre ^{235}U irradié en position 25 cm, deux jours après le début du cycle. On note la disparition du plateau de saturation.

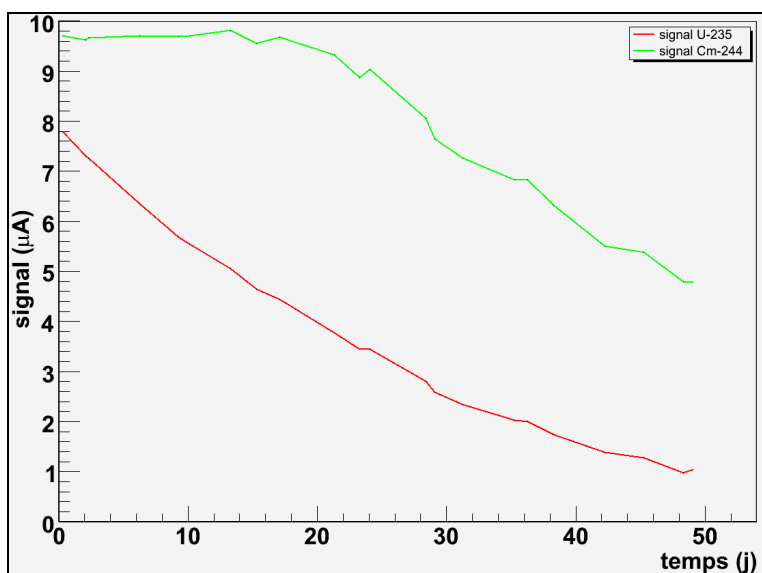


Figure 91 : Signaux nets mesurés durant les cinquante jours de cycle sur les corps de chambres ^{235}U et ^{244}Cm (en position 100 cm). Les erreurs de mesure sont de l'ordre du pour mille.

C'est la raison pour laquelle au final, en dépit du fait que les chambres ont été tout de même irradiées en position 25cm, de fréquentes remontées de ce détecteur en position 100 cm ont été effectuées durant le cycle afin de bénéficier d'un flux plus faible et du régime de

saturation bien établie à cette position et ainsi d'avoir un moyen de suivre l'évolution des taux de fissions.

Les signaux nets qui ont été finalement obtenus le long de ce cycle sont présentés dans la figure 91. Etant donné que la soustraction du courant de la chambre sans-dépôt n'a pas pu être effectuée, du fait de son mauvais fonctionnement, seule une valeur constante de $1.78 \mu\text{A}$ a été soustraite sur les courants ^{235}U et ^{244}Cm . Celle-ci correspond à la valeur du courant délivré par le corps sans-dépôt en position 100 cm durant les premiers jours d'irradiation.

8.2 Coefficient de calibration et flux de neutrons utilisés dans l'analyse

Contrairement à ce qui avait été réalisé pour les trois chambres CFUT/C3 irradiées dans le canal V4 en 2005, il n'est pas possible d'ajuster le coefficient de calibration de ce détecteur CFUT/C7 de la même manière, étant donné la perte du corps sans-dépôt. De plus, bien qu'il soit possible de calculer par les modèles théoriques un coefficient de calibration : $\Gamma_{\text{théorique}} = 5.59 \mu\text{A}$, l'utilisation de ce dernier a montré un écart de plus de 40 % entre les courants simulés et ceux mesurés, quelque soit la hauteur dans le canal V4 à laquelle est placé le détecteur.

C'est pourquoi, le flux de neutrons a été finalement considéré comme étant constant durant l'irradiation. Le calcul de cette moyenne a été effectué en considérant une évolution exponentielle pour le courant mesuré sur le corps de chambre ^{235}U . En ajoutant une erreur systématique de 5 % que l'on associe aux inconnues des variations des courants qui n'ont pu être suivies ici, on obtient un flux moyen de : $\langle\Phi\rangle_{25\text{cm}} = (9.683 \pm 0.1807) 10^{14} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ($\chi_{\text{réduit}} = 1$). Cet ajustement peut paraître surprenant, étant donné qu'un tel calcul n'a pu être accompli lors de l'analyse des chambres CFUT/C3 irradiées en 2005. En fait, à la différence de cette dernière expérience, le flux de neutrons est suffisamment intense en position 25 cm, pour que la fonction exponentielle qui décrit l'épuisement de l'uranium puisse atténuer les variations de celui-ci.

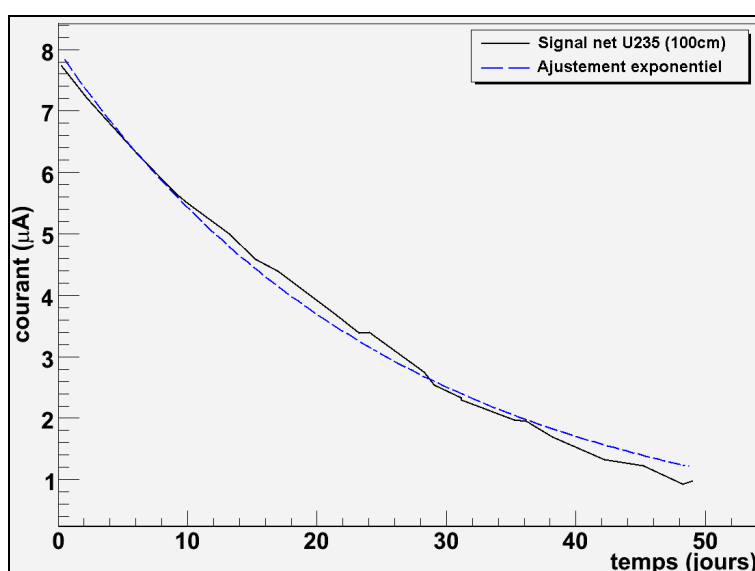


Figure 92 : Evolution du courant délivré par le corps de chambre ^{235}U et ajustement exponentiel effectué sur cette courbe. Les barres d'erreurs sont incluses dans la taille des symboles.

Par ailleurs, grâce aux remontées effectuées durant les premiers jours de cycle, le flux moyen

en position 100 cm a pu être déduit de celui en position 25 cm : $\langle \Phi \rangle_{100\text{cm}} = (5.401 \pm 0.010) 10^{13} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$.

8.3 Bilan de sensibilité

Comme le montre la figure 93, le début du cycle est le meilleur moment pour déterminer la section efficace de fission du ^{245}Cm , étant donné qu'il s'agit du seul isotope fissile dominant initialement dans la chambre à fissions. C'est la raison pour laquelle, nous avons décidé de suivre le démarrage du réacteur.

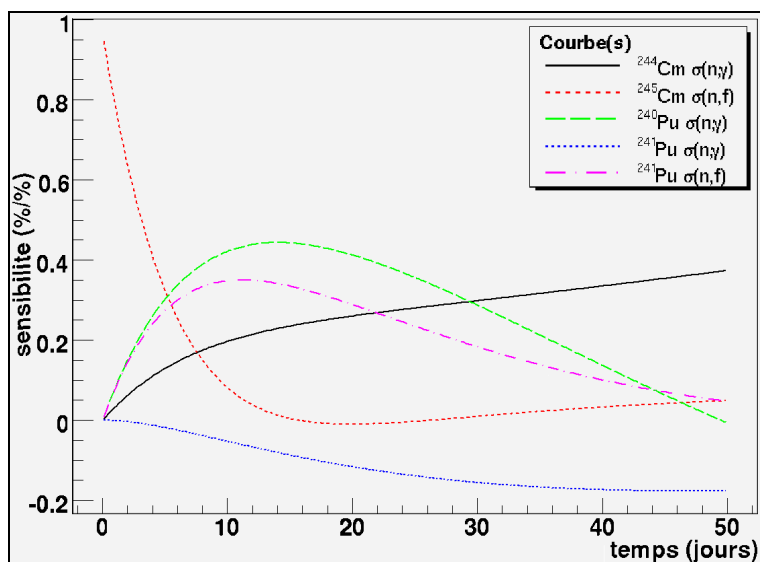


Figure 93 : Coefficients de sensibilités des principaux paramètres nucléaires affectant l'évolution du taux de fissions du corps de chambre curium.

En outre, il faut attendre la seconde moitié du cycle pour que la sensibilité attachée à la section efficace de capture du ^{244}Cm devienne significative. La raison à cela est que le taux de fissions du ^{241}Pu , formé durant l'irradiation par le ^{240}Pu , rend difficile la mesure de cette section efficace. Il faut attendre que la consommation de ce dernier soit suffisante pour pouvoir distinguer la contribution du taux de fissions du ^{245}Cm formé à partir de la transmutation du ^{244}Cm . Néanmoins, malgré cela, les incertitudes des sections efficaces du ^{240}Pu et du ^{241}Pu auront tout de même un impact certain sur la précision finale avec laquelle ce paramètre pourra être déterminé.

8.4 Mesure de la section efficace de fission du ^{245}Cm lors du démarrage du réacteur

Le démarrage du réacteur de l'ILL s'est effectué suivant trois paliers successifs : 10, 30, 45 et 53 MWth. Nous avons suivi cette montée en puissance (cf. figure 94). Par ailleurs, ces courbes ont présentés des comportements remarquablement linéaires avec la puissance thermique dégagée par le cœur, ce qui a permis d'établir un rapport direct entre la section efficace de fission du ^{245}Cm et celle de ^{235}U avec une précision de l'ordre de 0.1 % :

$$\frac{I_{\text{Cm}}}{I_{\text{U5}}} = 1.147 \pm 0.001 \propto \frac{\tau_{\text{fissions}}^{\text{Cm}}}{\tau_{\text{fissions}}^{\text{U5}}} \propto \frac{\langle \sigma_{\text{fission}}^{\text{Cm}245} \rangle_{V4,25\text{cm}} \cdot N_{\text{Cm}245}(0)}{\langle \sigma_{\text{fission}}^{\text{U5}} \rangle_{V4,25\text{cm}} \cdot N_{\text{U5}}(0)} \quad (11)$$

Le temps de démarrage étant relativement court (i.e. moins de 2 heures), les concentrations en ^{245}Cm et ^{235}U n'ont pas évoluées. La valeur ainsi obtenue pour la section efficace de fission intégrée du ^{245}Cm est de : (1352.4 ± 22.7) b. Ce calcul a bien évidemment pris en considération les contributions des réactions de fissions (et les incertitudes associées) des autres noyaux minoritaires tels que : ^{243}Cm , ^{244}Cm , ^{239}Pu , etc. De plus, l'incertitude indiquée ici tient compte des indéterminations attachées aux concentrations initiales, ainsi que des incertitudes des autres sections efficaces.

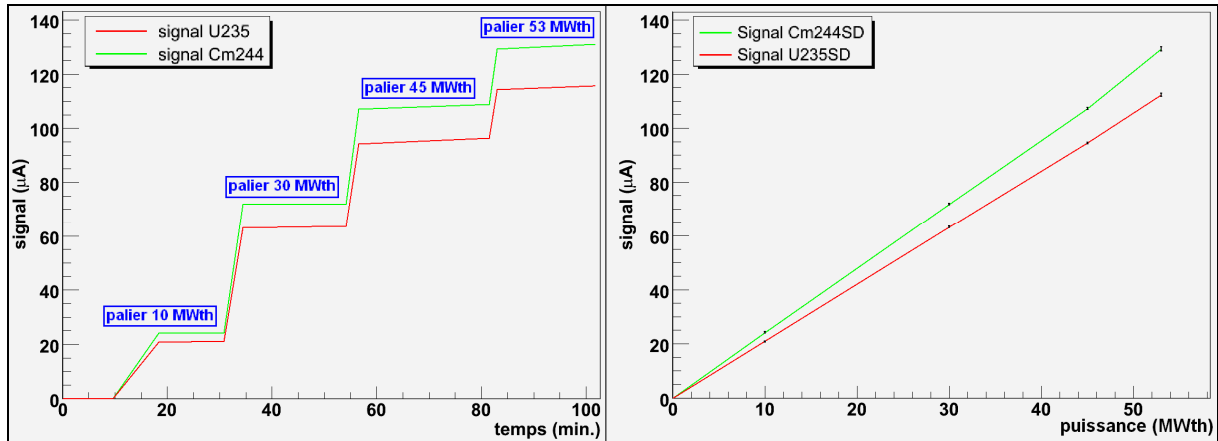


Figure 94 : Evolutions des courants des corps de chambres ^{235}U et ^{244}Cm durant le démarrage du réacteur de l'ILL en fonction du temps (à gauche) et de la puissance (à droite). Les barres d'erreurs sont incluses dans la taille des symboles.

8.5 Ajustement des données expérimentales

Pour palier l'indétermination du coefficient de calibration et afin de tirer parti du concept de triple corps, l'ajustement des paramètres nucléaires a été réalisé sur le rapport des courants nets mesurés, en position 100 cm, des corps de chambre ^{235}U et ^{244}Cm :

$$\rho(t) = \frac{I_{Cm}(t) - I_{SD}}{I_{U5}(t) - I_{SD}} \propto \frac{\tau_{fissions}^{Cm}(t)}{\tau_{fissions}^{U5}(t)} \propto \frac{\sum_i^{Cm} \langle \sigma_{fission}^{Cm} \rangle_{V_{4,25cm}} \cdot N_i(t)}{\langle \sigma_{fission}^{U5} \rangle_{V_{4,25cm}} \cdot N_{U5}(t)} \quad (12)$$

Les bénéfices d'une telle variable sont bien entendu la limitation de l'impact de l'inconnue sur le coefficient de calibration, mais aussi la suppression des indéterminations liées au positionnement des chambres à fissions lors des remontées en position 100 cm. En effet, à la différence de la position 25 cm où une entretoise permet de maintenir le détecteur à une position fixe, les remontées se font grâce à l'utilisation d'un câble sur lequel sont notées les positions. Etant donné que le moindre millimètre d'écart entre deux mesures peut faire varier de quelques pourcents la valeur du flux appliquée, des déviations sont immanquablement présentes entre deux mesures. Il faut également remarquer que cette variable dépend des sections efficaces de fission moyennées sur un flux maxwellien, du fait des remontées en position 100 cm et des sections efficaces de capture et fission en position 25 cm dans les variables d'évolution.

Les incertitudes des paramètres non-ajustés qui ont été considérés dans cette analyse sont données dans le tableau 68. Elles ont été calculées à partir des matrices de covariances [74]

sans tenir compte des corrélations entre noyaux. Par ailleurs, il s'agit essentiellement de sections efficaces dirigeant l'évolution des noyaux fissiles principaux.

Tableau 68 : Valeurs et incertitudes des paramètres non-ajustés considérés dans la procédure d'ajustement.

$\langle \sigma \rangle_{V4(25cm)}$	$(9.683 \pm 0.181) 10^{14}$	$^{241}\text{Pu } \sigma(n,\gamma)$	$279.0 \pm 8.4 \text{ b}$
		$^{241}\text{Pu } \sigma(n,f)$	$807.8 \pm 16.6 \text{ b}$
$^{235}\text{U } \sigma(n,\gamma)$	$73.3 \pm 0.8 \text{ b}$	$^{243}\text{Cm } \sigma(n,f)$	$474.3 \pm 189.7 \text{ b}$
$^{235}\text{U } \sigma(n,f)$	$424.7 \pm 4.3 \text{ b}$	$^{244}\text{Cm } \sigma(n,f)$	$0.813 \pm 0.325 \text{ b}$
$^{240}\text{Pu } \sigma(n,\gamma)$	$336.9 \pm 12.7 \text{ b}$	$^{245}\text{Cm } \sigma(n,\gamma)$	$236.8 \pm 94.7 \text{ b}$

De plus, 1.5 % d'incertitude a été rajouté sur chaque point de mesure afin de tenir compte de l'approximation de flux moyen constant (cf. section 8.2). Cette erreur inclue également les fluctuations du signal du corps SD, qui ont été considérée comme étant similaires à celles qui avaient été mesurée lors de l'irradiation des chambres à fissions CFUT/C3 dédiée à la mesure de l'incinération de l' ^{241}Am .

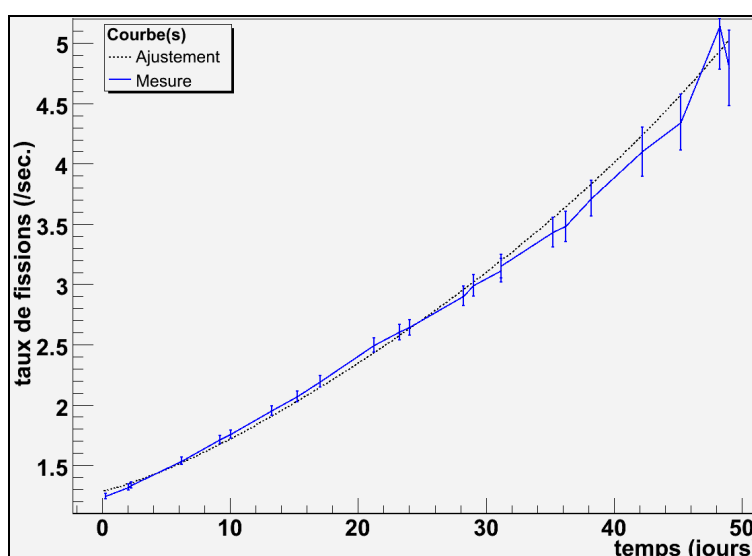


Figure 95 : Rapport du signal net du corps de chambre ^{244}Cm sur celui du ^{235}U mesuré et ajusté.

Comme pour les analyses précédentes, l'ajustement a été réalisé en deux étapes, avec tout d'abord une évaluation des erreurs corrélées entre les paramètres ajustés, puis la détermination des incertitudes générées par les paramètres non-ajustés. La figure 95 montre les courbes de rapports mesurés et ajustés. La valeur de la section efficace intégrée finalement obtenue est de : $(19.11 \pm 2.67) \text{ b}$. Malgré les nombreuses difficultés rencontrées, il est possible de faire remarquer que l'incertitude ne représente que 14 % de la valeur finale. Cette valeur est probablement surestimée compte tenu de l'approximation de flux constant. Une meilleure paramétrisation de celui-ci permettrait de réduire l'erreur globale.

8.6 Normalisation au point d'énergie thermique

Lors de la normalisation des deux valeurs acquises pour la section efficace de capture du ^{244}Cm et de celle de fission du ^{245}Cm , l'impact des incertitudes attachées aux premières résonances a été évalué pour ces deux paramètres. Les erreurs qui ont été ainsi calculées par méthode Monte-Carlo, sont respectivement : 7 % et 1.7 %. L'incertitude générée sur la

section efficace de capture du ^{244}Cm est notablement élevée du fait de l'importance de la première résonance dont la largeur radiative (Γ_γ) est définie à 10 % près. Or, cette résonance joue un rôle très important, puisque la section efficace intégrée dans le flux de la position 25 cm du canal V4 dépasse la valeur maxwellienne de plus de 40 %. En tenant compte de ces indéterminations, les valeurs et erreurs finales sont données dans le tableau 69.

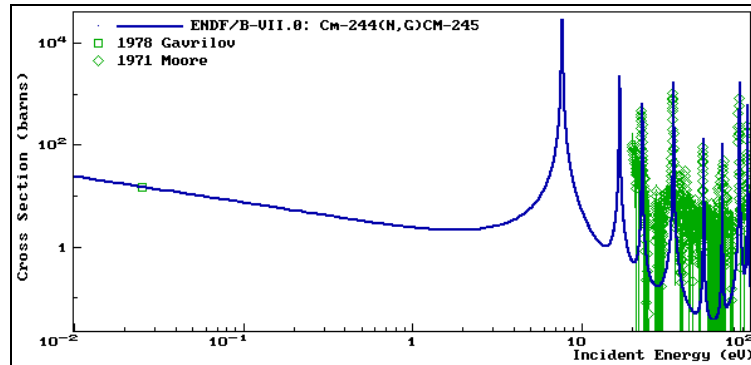


Figure 96 : Section efficace de capture évaluée (ENDF/B-7.0) du curium-244 entre 10^{-2} eV et 100 eV. Les points de mesures absolus (i.e. non moyennés sur un spectre) extraits de la base CSISRS/EXFOR sont aussi représentés sur cette figure.

8.7 Discussions sur les résultats

Les erreurs attachées à la section efficace de capture du ^{244}Cm et à la section efficace de fission du ^{245}Cm sont respectivement de 15.8 % et 3.4 %. Bien que l'erreur soit grande pour la section efficace de capture, celle-ci rentre tout de même en désaccord avec l'évaluation de la base de données JEFF-3.1. En contrepartie la mesure est en accord avec les bibliothèques ENDF/B-VII.0 et JENDL-3.3 qui se sont basées sur la valeur mesurée par Gravitov [108]: (15.2 ± 1.2) barns. Celle-ci constitue pour le moment le seul point de référence absolue dans le domaine d'énergie thermique.

Tableau 69 : Valeurs et erreurs finales des sections efficaces de capture et de fission mesurées au point thermique. Les valeurs évaluées pour les trois bibliothèques les plus communes sont aussi présentées, ainsi que les déviations minimales et maximales de ces dernières avec les mesures.

	^{244}Cm $\sigma(n,\gamma)$	^{245}Cm $\sigma(n,f)$
section efficace mesurée $\sigma_{V4(25\text{cm}), 25\text{meV}}$	$13.9 \text{ b} \pm 2.2 \text{ b}$	$1943.5 \pm 65.4 \text{ b}$
ENDF/B-VII.0	15.18 b	2149.1 b
JEFF-3.1	10.40 b	2149.1 b
JENDL-3.3	15.11 b	2141.5 b
[mesure/évaluation] déviations minimale	8.4 %	9.6 %
[mesure/évaluation] déviations maximale	- 33.6 %	9.6 %

En ce qui concerne la section efficace de fission du ^{245}Cm , celle-ci connaît des écarts avec les bibliothèques de plus de 10 % et n'est notamment pas compatible avec ces dernières. Il semblerait que ces trois évaluations se soient fondées sur la mesure la plus récente fournie par Browne en 1978 [109] : (2143 ± 58) b. Néanmoins, cette dernière n'est pas compatible avec les résultats obtenus peu de temps avant par Gavrilo [110] : (1900 ± 100) b, et par Benjamin [111] : (2018 ± 37) b, alors que la valeur mesurée ici l'est. En conséquence de quoi,

il est possible d'affirmer que les valeurs inscrites dans les bases de données actuelles surévaluent très certainement la section efficace réelle.

8.8 Conclusions

L'étude de l'incinération du ^{244}Cm dans les flux thermique a pu être réalisée grâce à l'irradiation d'une chambre à fissions triple corps gap réduit CFUT/C7 dédiée dans un flux d'environ 10^{15} n/cm²/s. Ceci a pu être réalisé malgré la perte de la chambre sans dépôt qui mesure la participation des signaux parasites.

Les informations qui ont pu être extraites des signaux mesurés se sont révélées suffisantes pour permettre d'ajuster les deux paramètres recherchés, à savoir : la section efficace de capture du ^{244}Cm et la section efficace de fission du ^{245}Cm . Cette dernière a d'ailleurs pu être caractérisée avec une précision de 3.4 % à travers le suivi du démarrage en palier du réacteur. En ce qui concerne la section efficace de capture du ^{244}Cm , la précision obtenue sur ce paramètre est moindre : 15.8 %, du fait des problèmes rencontrés durant le cycle, ainsi que de par la présence non-négligeable du ^{240}Pu , fils de décroissance du ^{244}Cm .

Néanmoins, malgré cela, ces deux nouvelles valeurs constituent un apport non-négligeable pour les bases de données évaluées, puisque elles démontrent toutes deux des écarts significatifs avec celles-ci, sans pour autant être incompatibles avec une partie des mesures plus anciennes.

De plus, cette expérience a également permis de caractériser le potentiel de transmutation et d'incinération d'un échantillon de ^{244}Cm âgé de plus de 7 ans irradié durant 50 jours dans un flux intense et fortement modéré, à savoir respectivement : 27.3 % et 23.8 %.

Chapitre 9

Etude de la transmutation du californium-249

Le californium-249 ($T_{1/2} = 351$ ans) constitue un des éléments clés situé entre la fin de la chaîne des isotopes du curium, via notamment la décroissance successive du curium-249 ($T_{1/2} = 64.15$ min.) et du berkelium-249 ($T_{1/2} = 320$ jours), et le début de celle des californiums (cf. figure 97). De plus, bien que formé en bien faible quantité dans les combustibles UOX et MOX irradiés, ce noyau possède un potentiel radiotoxique aussi développé que celui de l'américium-241.

Au vue de ces deux constatations, un intérêt particulier s'est développé quant à la mesure de la transmutation de ce noyau dans le cadre du projet mini-INCA. L'étude correspondante a été réalisée en 2005, grâce à l'utilisation couplée du banc spectroscopique et du spectromètre de masse LOHENGRIN [112]. L'objectif était de mesurer la section efficace de capture et d'absorption du ^{249}Cf . En effet, ce noyau qui est intimement lié à son père, le ^{249}Bk , est aussi un point de passage obligatoire en direction du néfaste ^{252}Cf . Or, sa section efficace de capture est très mal définie (cf. figure 104).

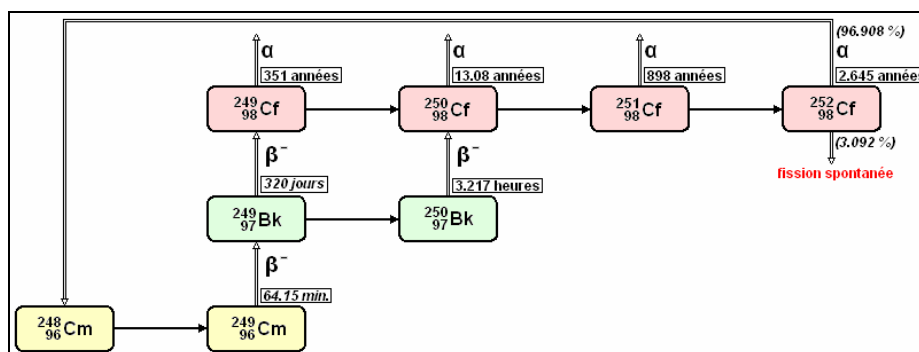


Figure 97 : Représentation simplifiée de la chaîne isotopique des isotopes du californium, ainsi que de sa formation via la fin de la chaîne des isotopes du curium et du berkelium.

Cependant, malgré le fait que la section efficace de capture de ce noyau ait pu être déterminée avec précision, la section efficace d'absorption n'a pu être mesurée à cause des effets observés de perte de masse du dépôt cible durant l'irradiation.

9.1 Présentation de l'expérience

9.1.1 Méthodologie

Un échantillon de (4.400 ± 0.014) μg de ^{249}Cf qui a été également obtenu auprès du LBNL a été déposé sur un support de Nickel et irradié en compagnie d'une pastille de $\text{Al-}^{59}\text{Co}$ dans le canal H9. Cette dernière, placée à moins de deux centimètres de l'échantillon, a pour objectif d'offrir une mesure précise (i.e. spectrométrie γ) de la fluence subie lors de l'irradiation. Par ailleurs, la détermination des quantités des différents isotopes de californium présent dans la cible avant et après irradiation est essentiellement réalisée par spectroscopie α .

La procédure expérimentale a été scindée en trois phases successives distinctes. En premier lieu, une caractérisation isotopique de l'échantillon a été accomplie par spectroscopie alpha et

gamma. La mesure de la section efficace de capture du ^{249}Cf a été ensuite réalisée via une irradiation courte de deux heures dans le canal H9, afin de former une quantité suffisante de ^{250}Cf . Enfin, la mesure de la section efficace d'absorption du ^{249}Cf a été planifiée selon une seconde irradiation de plus de 18 heures.

En fait, ces durées ont été optimisées de façon à limiter la formation de ^{251}Cf et de ^{252}Cf lors de la transmutation du ^{249}Cf . Ce point est effectivement particulièrement important, étant donné que les raies d'émissions alpha des isotopes de californium sont très proches les unes des autres (cf. tableau 70). La pollution (avant ou après irradiation) en ^{251}Cf ou en ^{252}Cf peut dégrader la mesure des activités alpha du ^{249}Cf et du ^{250}Cf .

Tableau 70 : Energies et intensités des principales raies α des quatre isotopes $^{249}, ^{250}, ^{251}, ^{252}\text{Cf}$. Les durées de vie de ces noyaux sont aussi indiquées. On peut remarquer le chevauchement des raies des noyaux $^{251}, ^{252}\text{Cf}$ avec celles des isotopes $^{249}, ^{250}\text{Cf}$.

^{249}Cf ($T_{1/2} = 351$ ans)		^{250}Cf ($T_{1/2} = 13.08$ ans)		^{251}Cf ($T_{1/2} = 898$ ans)		^{252}Cf ($T_{1/2} = 2.645$ ans)	
5813.3 keV	82.2 %			5679.3 keV	35 %		
				5854 keV	27 %		
		5989.1 keV	15.1 %				
		6030.4 keV	84.6 %	6016 keV	11.6 %	6075.8 keV	15.7 %
						6118.2 keV	84.2 %

La figure 98 montre les résultats des activités α simulées pour les quatre isotopes du californium durant les deux phases d'irradiations planifiées. On peut remarquer qu'effectivement sur les 20 heures totales d'irradiation, les activités des $^{251}, ^{252}\text{Cf}$ sont complètement négligeables en comparaison de celles des $^{249}, ^{250}\text{Cf}$.

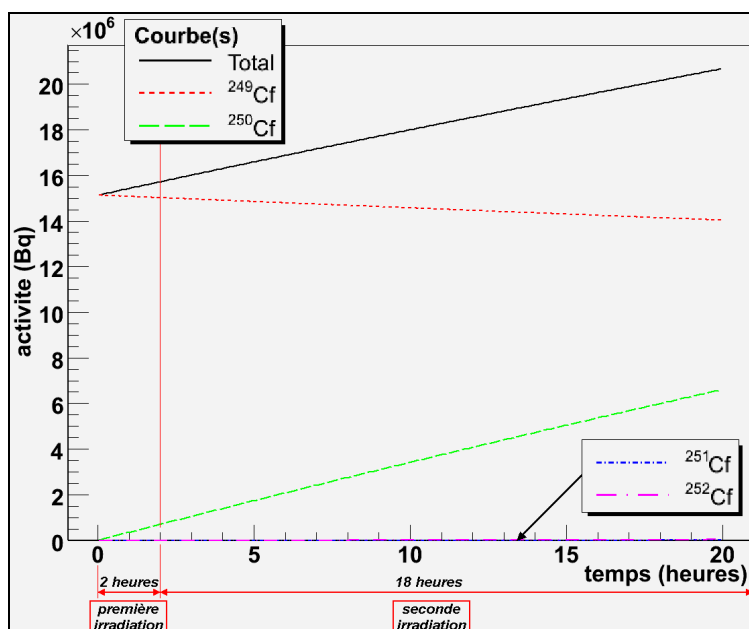


Figure 98 : Simulations des activités α des quatre isotopes de californiums durant les deux phases d'irradiations. Les émissions des $^{251}, ^{252}\text{Cf}$ sont ici totalement négligeables.

9.1.2 Etalonnage en énergie des détecteurs

Avant toute opération, les deux détecteurs Si (spectroscopie α) et Ge (spectroscopie γ) ont été tout deux calibrés en énergie. Le détecteur Ge a été étalonné avec une source d'euprimum-152

et de cobalt-60 dont les activités sont connues à 1.25 % (i.e. à 2σ). Bien que seule la position 75 cm ait été utilisée pour les mesures, différentes positions (i.e. distance cible/détecteur) ont été calibrées durant cette opération. Au final, l'efficacité totale (intrinsèque et géométrique) à 1173 keV pour la position de mesure est de $2.68(2) \cdot 10^{-3}$ % pour une résolution de 2 keV à cette énergie.

A contrario, la calibration du détecteur Si a été effectuée directement sur le spectre α émis par la cible de ^{249}Cf . Les trois raies qui ont été utilisées pour cette opération sont les deux raies du ^{249}Cf à 5813.3(10) keV ($I_\alpha = 82.2(5)$ %) et à 6193.8(7) keV ($I_\alpha = 2.46(2)$ %), ainsi que la raie principale du ^{245}Cm à 5362.0(7) keV ($I_\alpha = 93.2(5)$ %), qui est également présent dans le dépôt comme nous le verrons dans la section suivante.

9.1.3 Caractérisation isotopique de la cible avant irradiation

Tableau 71 : Energies et intensités des raies α du ^{249}Cf évaluées [75] et mesurées durant l'opération de calibration du détecteur Si.

valeurs évaluées		valeurs mesurées	
énergie (keV)	intensité	énergie (keV)	intensité
5849.3(10)	1.43(2)	5850.18(5)	1.540(5)
5903.2(10)	3.21(3)	5903.84(3)	3.256(6)
5946.0(10)	3.33(3)	5945.94(1)	3.412(5)
5999.6(20)	0.026	5997.10(39)	0.0464(8)
6071.9(20)	0.346(7)	6074.45(11)	0.347(2)
6139.3(7)	1.33(1)	6139.81(4)	1.316(3)

Afin de s'assurer de la pureté du dépôt, une analyse spectroscopique α et γ a été réalisée sur celui-ci avant son introduction dans le canal d'irradiation H9. Cette mesure qui a duré plus de deux jours, a permis de caractériser le contenu α et γ du dépôt ainsi que de repreciser quelques intensités de raie du ^{249}Cf (cf. tableau 71).

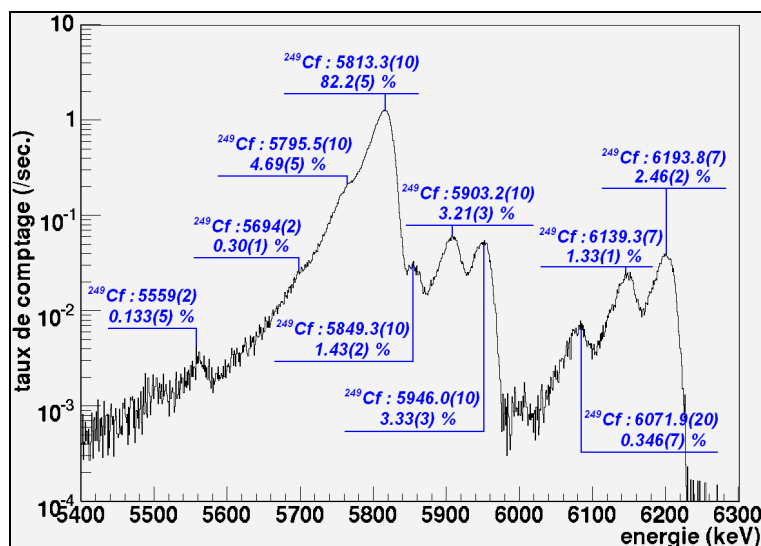


Figure 99 : Spectroscopie α mesurée pour le dépôt cible avant irradiation. L'ensemble des raies détectées entre 5400 et 6200 keV appartiennent exclusivement au ^{249}Cf .

Ces énergies et intensités mesurées restent compatibles avec les évaluations [75]. De plus, la caractérisation a permis de mettre en évidence que le ^{249}Cf était dominant avec une faible

contamination en ^{245}Cm (~ 7 % en nombre d'atomes) qui est le fils de décroissance du ^{249}Cf .

Néanmoins, il ne représente pas une menace pour la mesure étant donné que ces principales raies alpha, ainsi que celle de son successeur neutronique le ^{246}Cm sont très éloignées (i.e. ~ 5300 keV) de celles des isotopes du californium. De plus, les durées de vie des noyaux de curiums sont au moins dix fois plus élevées que celles des californiums. Par ailleurs, aucune contamination de ^{250}Cf , ^{251}Cf ou ^{252}Cf n'ont pu être mise en évidence.

9.1.4 Irradiation courte de 2 heures

Suite à cette première étape de caractérisation isotopique, l'échantillon et le moniteur de cobalt ont été placés dans le canal H9 pour y subir une irradiation de deux heures, afin de générer une quantité significative de ^{250}Cf (cf. figure 98).

Deux jours de refroidissement ont été ensuite nécessaires afin de réaliser les mesures spectroscopiques, de façon à laisser décroître les noyaux à durée de vie courte présents essentiellement dans la matière du porte échantillon et qui dominent le taux de comptage des détecteurs Si et Ge.

Suite à cette phase de repos, la spectroscopie α de la cible a été effectuée pendant un total de 16 heures. Les spectres ainsi mesurés ont été enregistrés séparément toutes les heures, afin de pouvoir détecter une éventuelle évolution en activité de ces derniers. Néanmoins, aucune variation significative n'a pu être mise en évidence. C'est la raison pour laquelle, les spectres ont pu être sommés afin d'obtenir une erreur statistique raisonnable. Comme attendu, il est possible de distinguer sur ce spectre final les deux raies principales du ^{250}Cf (i.e. 5989.1 et 6030.35 keV).

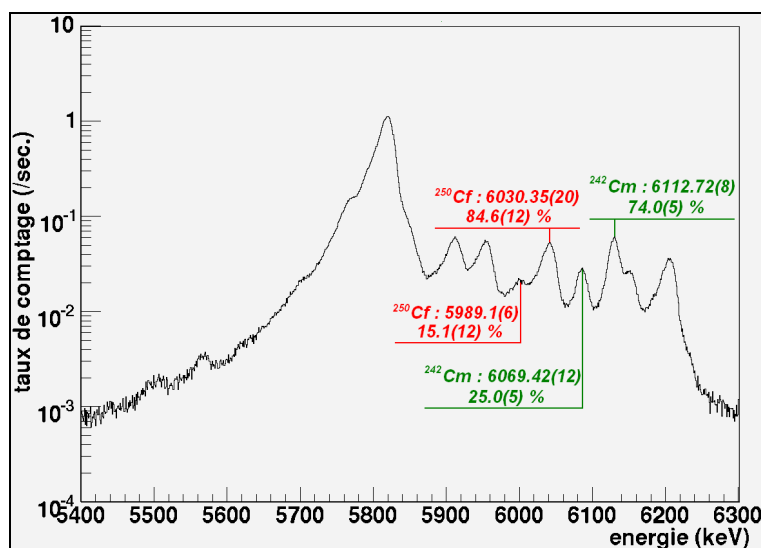


Figure 100 : Spectroscopie α mesurée pour le dépôt cible après deux heures d'irradiation dans le canal H9. On distingue clairement les deux raies principales du ^{250}Cf , ainsi que celles du ^{242}Cm .

En supplément, deux raies supplémentaires inattendues sont apparues aux environs de 6070 keV et 6120 keV (cf. figure 100). Or, d'après les bases de données, seuls le ^{242}Cm et le ^{252}Cf peuvent correspondre à ces énergies. Bien que le ^{252}Cf semble le plus logique pour expliquer une telle apparition, sa formation soudaine n'est pas expliquée ni par les résultats de la caractérisation isotopique (pas de ^{251}Cf détecté initialement !), ni par les calculs de simulation.

De plus, lors de l'ajustement, ces deux raies se sont révélées comme étant les seules pour lesquelles les formes ne correspondaient pas avec le reste du spectre. Leurs formes sont très proches d'une forme gaussienne non-dégradée à basse énergie, ce qui peut suggérer un dépôt fortuit directement sur la surface de la cible. Par ailleurs, le rapport des intensités de ces deux raies s'est révélé plus proche de celui des raies du ^{242}Cm (25 % et 75 %) que de celui des raies du ^{252}Cf (15.7 % et 84.2 %).

Une des raisons qui a été avancée pour expliquer ce dépôt parasite de ^{242}Cm sur la cible est la potentielle contamination du doigt de gant du canal H9 lors d'expériences antérieures. L'hypothèse la plus vraisemblable se situe dans une perte de masse par pulvérisation lors de l'étude d'une cible de plusieurs grammes d' ^{241}Am par le groupe d'étude du spectromètre de Lohengrin. Cette hypothèse est validée par la présence de ^{242}Cm ainsi que de ^{238}Pu , en plus faible quantité, sur le moniteur de flux.

Enfin, afin de connaître l'ampleur de la fluence subie par la cible durant cette première incinération, l'activité γ de la pastille ^{60}Co a elle-aussi été mesurée durant cette période, via notamment ses deux raies de décroissance à 1173.237(4) keV et 1332.501(5) keV.

9.1.5 Seconde irradiation de 18 heures suivie par le spectromètre de Lohengrin

La cible a ensuite été remise en irradiation, une seconde fois, dans le canal H9 durant plus de 18 heures. Comme expliqué plus haut (cf. section 9.1.1), cette période plus longue a eu pour objectif de consommer une quantité significative de ^{249}Cf . Le paramètre nucléaire qui est recherché ici est la section efficace d'absorption totale de ce noyau. Dans ce but, il a été jugé essentiel de s'assurer qu'aucun phénomène de perte de masse notable ne soit présent durant les phases d'irradiations. C'est pourquoi, le spectromètre de masse Lohengrin [112] a été utilisé tout au long de l'irradiation pour suivre l'évolution générale du dépôt.

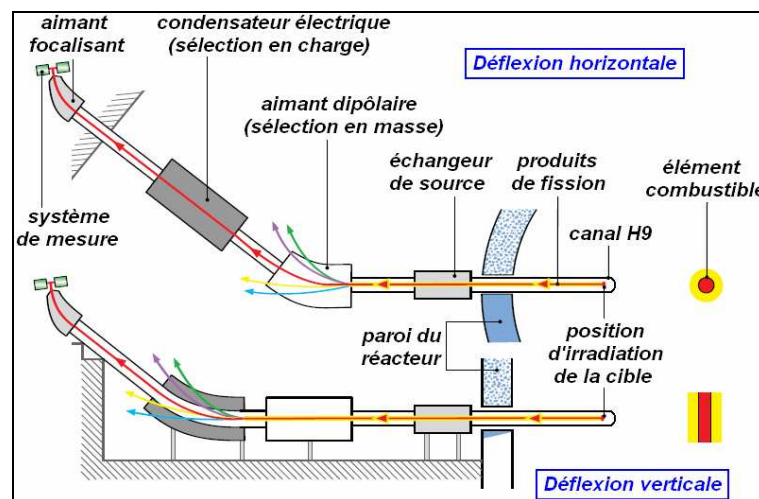


Figure 101 : Schéma de fonctionnement du spectromètre de masse de Lohengrin. Ce système permet de suivre l'évolution des produits de fission sélectionnés en masse et/ou en charges qui sont émis depuis la cible d'irradiation.

En effet, cet instrument permet de séparer, en masse, les produits de fission émis depuis la cible placée dans le doigt de gant H9 et de les détecter dans une chambre à ionisation. En sélectionnant une masse, il offre donc la possibilité de suivre directement la disparition du ^{249}Cf durant cette seconde incinération à travers les produits de fissions qu'il émet.

Dans le cas présent, le choix s'est porté sur les produits de fissions de masse $A=136$, du fait de leur important rendement : ^{249}Cf $Y(A = 136) = 5.6(20) \%$. Il n'a pas été jugé utile d'opérer une sélection en charge. Les mesures qui ont été ainsi recueillies durant les 18 heures d'irradiation ont montré une évolution très différente de ce qui pouvait être prédit par les simulations. En réalité, la chute du ^{249}Cf s'est montrée cinq fois plus importante que prévue (cf. figure 102). Ce constat a été confirmé par les spectres α mesurés ultérieurement.

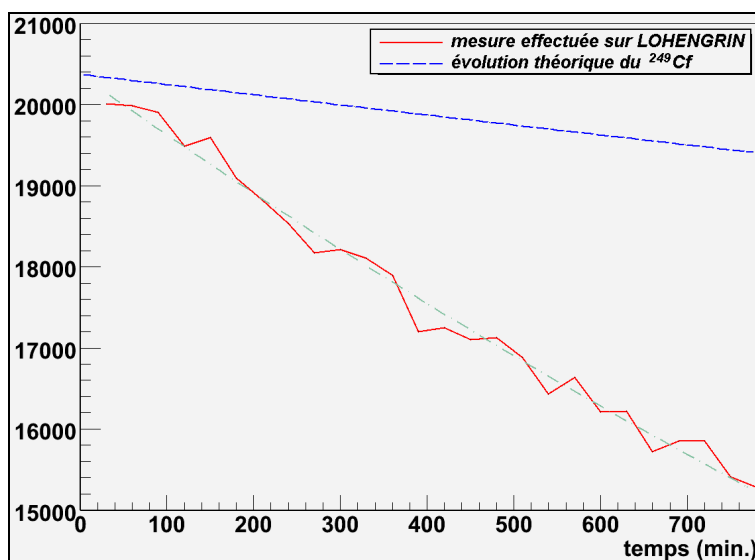


Figure 102 : Mesure de la disparition du ^{249}Cf lors du suivi de l'évolution des produits de fission de masse 136 émis depuis la cible à l'aide du spectromètre de masse de LOHENGRIN durant la deuxième d'irradiation. On note la chute cinq fois plus importante que prévu, ce qui dénote clairement un effet de perte de masse du dépôt cible durant les phases d'irradiation.

Or, un tel écart se trouve en dehors de toutes incertitudes attachées aux sections efficaces d'absorption du ^{249}Cf . On peut donc penser à un important effet de perte de masse par un phénomène de « sputtering ». Cette dégradation est provoquée par les produits de fissions qui en sortant de la cible éjectent également d'autres atomes du dépôt (environ une dizaine par produit de fission). En conséquence de quoi, du fait de l'incapacité de pouvoir quantifier avec exactitude la proportion de cet effet sur la mesure, il s'est révélé impossible d'extraire la section efficace d'absorption du ^{249}Cf .

9.2 Analyse des résultats obtenus suite à la première irradiation

9.2.1 Mesure du flux de neutrons

La fluence subie par l'échantillon de ^{249}Cf , lors de l'irradiation, a été déterminée par spectroscopie γ sur la pastille de cobalt (Al-Co contenant 1 % de ^{59}Co). Après correction de l'efficacité totale de détection (intrinsèque et géométrique), une activité de (45187 ± 361) Bq a été extraite des deux raies du ^{60}Co . Or, étant donné que la quantité de ^{59}Co qui a disparue pendant les deux heures d'irradiation est faible ($\sim 10^{-2}$ % de la masse initiale de ^{59}Co) et que le temps de repos, de deux jours, est négligeable devant la durée de vie de ce noyau ($T_{1/2} = 5.2714$ années), la concentration du ^{60}Co mesurée après ce délai peut être calculée par la formule simplifiée suivante :

$$N_{\text{Co}60}(t_1) = N_{\text{Co}59}(t=0) \cdot \langle \sigma_{\text{Co}59}(n, \gamma) \rangle_{H9} \cdot \langle \Phi \rangle_t \cdot t_1 \quad (13)$$

Où $N_{Co59}(t = 0)$ désigne la quantité initiale de ^{59}Co , $\langle \sigma_{Co59}(n,\gamma) \rangle_{H9}$ est la section efficace de capture du ^{59}Co intégrée sur le spectre du canal H9 et $\langle \Phi \rangle_t$ symbolise le flux moyen et le temps d'irradiation. La pastille a été pesée préalablement au moyen d'une balance microgrammique. La masse, ainsi obtenue, est de (7.2235 ± 1) mg. En considérant une valeur de section efficace calculée à : $\langle \sigma_{Co59}(n,\gamma) \rangle_{H9} = (31.1 \pm 0.1)$ barns, on obtient une fluence totale de $(4.74 \pm 0.10) 10^{18} \text{ n.cm}^{-2}$, ce qui correspond à un flux moyen de $(6.05 \pm 0.12) 10^{14} \text{ n.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$. L'erreur dominante sur ces résultats provient de l'incertitude (2%) sur l'homogénéité du cobalt dans la pastille d'aluminium.

9.2.2 Ajustement des spectres α mesurés sur l'échantillon de ^{249}Cf

9.2.2.1 Modélisation des raies α

L'énergie d'une particule α émise lors de la désintégration d'un noyau est caractérisée par une énergie bien définie E_0 qui correspond à la différence d'énergie entre le noyau père et le noyau fils (dans son état excité ou non). Or, ces particules étant chargées, elles sont diffusées par interaction électromagnétique et perdent de l'énergie lorsqu'elles traversent de la matière. Dans le cas présent, les pics mesurés sur les spectres α présentent généralement « une traine » en dessous de l'énergie E_0 qui dépend de l'épaisseur du dépôt et de la rétrodiffusion dans le détecteur. En conséquence de quoi, cette partie des pics α ne peut être modélisée uniquement par une forme gaussienne. C'est pourquoi, une somme de quatre fonctions exponentielles croissantes a été rajoutée en convolution à la fonction gaussienne du pic, dont la largeur σ correspond à la résolution du détecteur :

$$pic_{avant_irradiation}(E) = \alpha \cdot \rho \cdot e^{-\frac{(E-E_0)^2}{2\sigma^2}} + \sum_{i=1}^4 \int_{-\infty}^{E_0} \rho \cdot \beta_i \cdot e^{\lambda_i \cdot (U-E_0)} \cdot e^{-\frac{(U-E_0)^2}{2\sigma^2}} \cdot dU \quad (14)$$

Où ρ symbolise le facteur de normalisation du pic et α , β_i , λ_i sont des paramètres de forme ajustés. Excepté pour les deux raies principales du ^{242}Cm , où seule la forme Gaussienne a été traitée, les paramètres ajustés sont communs pour toutes les raies et ont été ajustés sur la raie principale du ^{249}Cf .

Par ailleurs, après irradiation, les activités β et γ sont tellement importantes, en comparaison à l'activité α , que des empilements viennent dégrader la zone du pic se trouvant au-delà de l'énergie E_0 . Pour déduire ces empilements, nous avons rajouté une somme de trois fonctions exponentielles décroissantes en convolution avec la gaussienne de chaque raie. La forme globale d'un pic s'écrit :

$$pic_{après_irradiation}(E) = pic_{avant_irradiation}(E) + \sum_{i=5}^7 \int_{-\infty}^{E_0} \rho \cdot \beta_i \cdot e^{-\lambda_i \cdot (U-E_0)} \cdot e^{-\frac{(U-E_0)^2}{2\sigma^2}} \cdot dU \quad (15)$$

9.2.2.2 Ajustement des activités du ^{249}Cf et du ^{250}Cf après 2 heures d'irradiation

Un bon ajustement des empilements est extrêmement important puisque le pic α du ^{250}Cf est en partie construit sur ceux de la raie principale du ^{249}Cf (cf. figure 103). C'est pourquoi, le spectre à basse énergie (e.g. électron β , photons X, γ , compton, etc.) a été utilisé pour contraindre ces empilements, en supposant notamment que toutes les particules α ont la même probabilité de s'empiler avec les événements de basse énergie. Au final, le résultat de

l'ajustement fournit respectivement un taux de comptage de (0.1291 ± 6) cp.s⁻¹ et de (3.169 ± 3) cp.s⁻¹ pour le ²⁵⁰Cf et le ²⁴⁹Cf. Ce taux de comptage est de 15 % inférieur au taux mesuré avant irradiation, ce qui se traduit par une perte de masse pendant l'irradiation. Ce résultat est confirmé par l'évolution de l'activité α du ²⁴⁹Cf durant ces deux heures d'irradiation et a été confirmé sur celle de la raie γ de ce noyau à 388.16(2) keV ($I_\gamma = 66$ %), ainsi que sur celle de la raie α du ²⁴⁵Cm à 5362.0(7) keV ($I_\alpha = 93.2(5)$ %). Par ailleurs, l'activité du ²⁵¹Cf est compatible avec zéro.

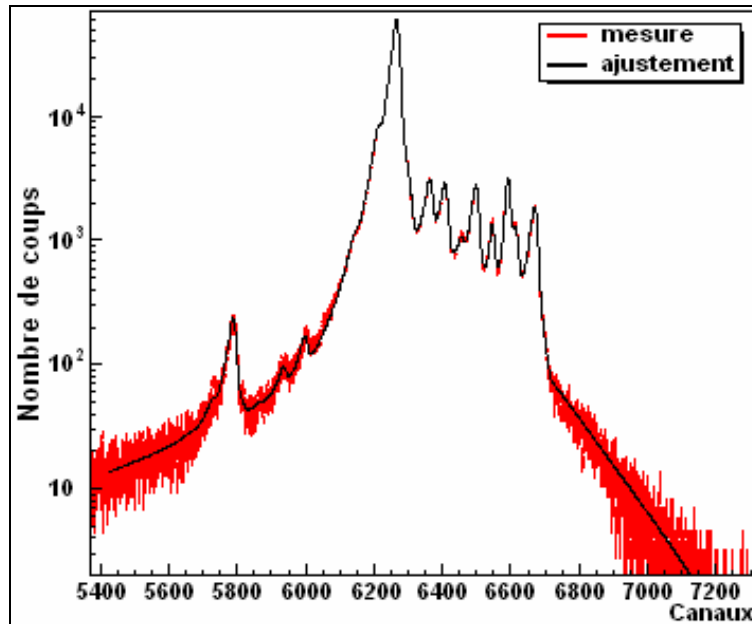


Figure 103 : Ajustement du spectre α mesuré après 2 heures pour l'échantillon ²⁴⁹Cf. On note que les empilements sont correctement décrits par la fonction d'ajustement.

9.2.3 Détermination de la section efficace de capture du ²⁴⁹Cf

Le rapport des deux activités mesurées du ²⁴⁹Cf et du ²⁵⁰Cf sert donc à ajuster la section efficace de capture du ²⁴⁹Cf avec le logiciel MERCUS. Cette observable présente l'avantage d'être insensible aux effets de pertes de masses, de temps mort, de positionnement du détecteur, etc. Seules les erreurs de modélisation du spectre, les incertitudes attachées aux flux de neutrons et aux autres sections efficaces de ces deux isotopes persistent. En considérant une erreur de 10 % pour les paramètres ²⁴⁹Cf(n,f) [113] et ²⁵⁰Cf(n, γ) [114], on obtient pour la section efficace de capture du ²⁴⁹Cf intégrée sur le spectre du canal H9 : (308.6 ± 8.2) b. Bien que cette valeur prenne en compte l'incertitude du flux de neutrons mesurés, celle-ci reste tout de même préliminaire, étant donné que les erreurs de modélisation ne sont pas encore incluses.

9.2.4 Normalisation au point d'énergie thermique

Pour finir, la valeur normalisée au point d'énergie thermique de cette section efficace est estimée à : (384.3 ± 8.2) b. Aucune erreur supplémentaire n'a été considérée durant cette normalisation. Ce point est critiquable, étant donné qu'aucune largeur radiative Γ_γ n'est définie. Néanmoins, les résonances ont déjà été caractérisées pour la section efficace de fission correspondante, sur l'ensemble du domaine d'énergie d'intérêt pour cette mesure (cf. figure 104).

9.2.5 Discussions sur les résultats

Bien que ces résultats soient préliminaires, il est déjà possible de faire remarquer que la valeur obtenue dévie de plus de 30 % avec les bases de données (cf. tableau 61). De même, on note des écarts importants avec la mesure réalisée par Gavrilov en 1976 [113] : (530.33 ± 33) b, ainsi qu'avec celle effectuée par Halperin en 1972 [114] : (478 ± 25) b (valeur maxwellienne). De tels décalages n'ont, pour le moment, pas trouvés d'explication.

Tableau 72 : Valeur mesurée au point thermique pour la section efficace de capture du ^{249}Cf . Les valeurs évaluées pour les trois bibliothèques les plus communes sont aussi présentées, avec également les écarts minimaux et maximaux de ces dernières vis-à-vis des résultats finaux.

$^{249}\text{Cf} \sigma(n,\gamma)$	
valeurs mesurée $\sigma_{\text{H9}, 25\text{meV}}$	384.3 ± 10.2 b
ENDF/B-VII.0	498.65 b
JEFF-3.1	506.12 b
JENDL-3.3	504.40 b
[mesure/évaluation] déviations minimale	29.7 %
[mesure/évaluation] déviations maximale	31.7 %

9.3 Conclusions

Cette expérience s'est fondée sur deux irradiations successives d'un échantillon de ^{249}Cf dans le canal H9. Préalablement, la pureté isotopique de ce dernier a été validée par des mesures spectroscopiques alpha et gamma. Bien que quelques pourcents de ^{245}Cm aient été détectés, cet actinide n'a pas représenté une réelle menace lors du suivi de l'évolution.

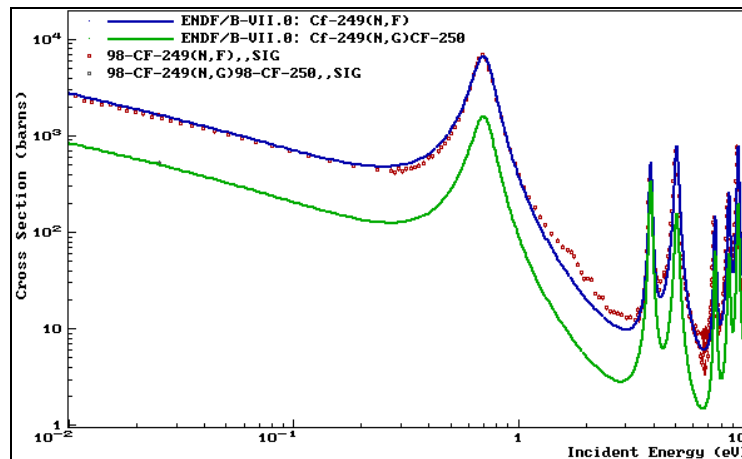


Figure 104 : Sections efficaces de capture et de fission évaluées (ENDF/B-7.0) du ^{249}Cf entre 10^{-2} eV et 10 eV. Les points de mesures absolues (i.e. non moyennés sur un spectre) extraits de la base CSISRS/EXFOR sont aussi représentés.

Suite à la première irradiation de 2 heures, la mesure de la quantité de ^{250}Cf formé a été effectuée avec succès par spectroscopie α . A contrario, du fait de phénomènes de pertes de masse conséquent qui ont été mis en lumière lors du suivi de l'évolution du ^{249}Cf sous irradiation par le spectromètre de masse Lohengrin, la disparition du ^{249}Cf n'a pu être quantifiée. En conséquence de quoi, la section efficace d'absorption associée n'a pu être

définie.

Néanmoins, malgré cet échec, une nouvelle valeur pour la section efficace de capture a pu être ajustée sur les résultats obtenus lors de la première irradiation. Or, cette mesure a notamment présentée des écarts de plus de 30 % avec les bases de données et les deux mesures qui ont été effectués antérieurement sur ce paramètre. Les raisons de telles déviations n'ont pu être expliquées à ce jour. C'est pourquoi, des mesures supplémentaires seront nécessaires pour confirmer ou infirmer la validité de cette nouvelle valeur.

Conclusions

La transmutation des déchets radioactifs de haute activité et à vie longue représente un atout considérable dans la mise en place d'une utilisation durable de l'énergie nucléaire. Elle permettra notamment la réduction des charges thermiques et radiotoxiques des flux de déchets qui seront introduits dans les sites de stockage permanent. Néanmoins, afin qu'un tel processus puisse être mis en place de manière effective, de nombreuses études restent à effectuer. Or, ces dernières s'appuient en grande partie sur des travaux de simulation numérique utilisant des bibliothèques de données nucléaires, évaluées à partir de mesures expérimentales. A chacune de ces données est associée une incertitude qui se répercute sur les résultats des simulations. Dans le cas des paramètres nucléaires des actinides mineurs, ces incertitudes peuvent se révéler particulièrement importantes en comparaison avec les actinides majeurs et leurs isotopes, tels que l'uranium et le plutonium.

Aussi, dans l'objectif de mettre en lumière les paramètres nucléaires ayant le plus d'impact sur les incertitudes associées à la transmutation de l' ^{241}Am et du ^{237}Np , des calculs d'erreurs ont été réalisés avec le logiciel MERCS [80]. Ces derniers ont été effectués pour trois spectres de réacteurs spécifiques : EFR, GT-MHR et HI-HWR. Ces flux ont été choisis de telle manière à ce que chacun d'entre eux corresponde à un domaine en énergie représentatif, à savoir respectivement : rapide, épi-thermique et thermique.

En premier lieu, les évolutions des grandeurs d'intérêt (taux d'incinération et de transmutation, potentiel radiotoxique, activités alpha et fission spontanée) pour la transmutation de l' ^{241}Am et du ^{237}Np ont été effectuées dans chaque spectre pour offrir la meilleure description possible des phénomènes mis en jeu et afin de pouvoir mettre en évidence les noyaux contribuant majoritairement aux potentiels radiotoxiques et aux activités alpha et fission spontanée à court et moyen terme (i.e. de l'ordre de quelques siècles).

Les calculs d'erreurs ont ensuite été réalisés. Ils ont pris en considération les incertitudes de plus de 250 paramètres différents. Les résultats obtenus ont notamment montré que les erreurs calculées pour ces grandeurs peuvent être conséquentes, et plus particulièrement pour les noyaux contribuant majoritairement au potentiel radiotoxique et aux activités alpha et fission spontanée tels que : ^{238}Pu , $^{242, 244, 246}\text{Cm}$, ^{252}Cf . Ces incertitudes sont généralement le résultat d'un nombre limité de sections efficaces (e.g. $^{241, 242m, 243}\text{Am}(n,\gamma)$, $^{238}\text{Pu}(n,\gamma)$, $^{244, 245}\text{Cm}(n,\gamma)$, etc.) qui dépendent du noyau et du spectre dans lequel la transmutation est opérée. Les erreurs intégrées de ces paramètres ont donc été analysées en énergie, afin de souligner les domaines sur lesquels, il faudra porter notre attention pour de futures mesures, en fonction du scénario d'incinération choisi.

Aussi, c'est à la vue de ces conclusions que différentes campagnes expérimentales ont été menées dans le cadre du projet mini-INCA, notamment sur l'étude de la transmutation de l' ^{241}Am , du ^{244}Cm et du ^{249}Cf . Celles-ci ont été accomplies dans le réacteur à haut flux de neutrons fortement modérés de l'Institut Laue-Langevin. Trois canaux d'irradiations : T4, V4 et H9, et différents systèmes de mesures : chambres à fission simple et triple corps, banc spectroscopique α/γ , ou encore spectromètre de masse, ont été utilisés. Ces différents canaux permettent l'accès à différents spectres et intensités de flux de neutrons, tandis que chaque système de mesure a un rôle et des capacités de mesure spécifiques.

Par ailleurs, les données obtenues lors de ces expériences ont fait l'objet d'analyses complètes

et rigoureuses. Celles-ci ont notamment été réalisées avec l'utilisation d'outils numériques (programmes MERCS, MCNP) et d'outils théoriques (coefficients de sensibilités, théorie des perturbations) dans l'objectif d'extraire avec la meilleure précision possible les paramètres nucléaires d'intérêt.

Cette méthodologie a été notamment validée sur l'analyse d'un échantillon de ^{232}Th irradié en position 25 cm du canal V4. En effet, quatre sections efficaces de capture ont ainsi été extraites au point d'énergie thermique, à savoir celles des noyaux : ^{232}Th , ^{233}Pa , ^{234}U et ^{235}U . Les valeurs obtenues pour celles du ^{232}Th et de ^{235}U diffèrent de moins d'un pourcent des valeurs recommandées dans les bases de données. En outre, les nouvelles mesures de la section efficace de capture du ^{233}Pa et de ^{234}U permettront d'améliorer les évaluations de ces noyaux dans les bibliothèques.

Suite à cette validation, l'étude sur la transmutation et l'incinération de ^{241}Am a été introduite. La première, basée sur l'irradiation de plusieurs échantillons dans les canaux T4 et H9, a permis d'extraire divers paramètres essentiels à la transmutation de ^{241}Am , tels que le rapport d'embranchement isomérique et la section efficace de capture de ce noyau. De plus, grâce à cette mesure, il a été également possible de déterminer les sections efficaces de capture de $^{242\text{m}}\text{Am}$ et du ^{242}Cm pour la première fois dans ce domaine en énergie.

La seconde expérience mise en place était l'irradiation de trois chambres à fissions simple corps en position 100 cm du canal V4. Les taux de fissions des états fondamental et métastable de ^{242}Am ont ainsi pu être suivis à travers les courants débités par ces détecteurs. Ainsi, les deux sections efficaces de fission correspondantes ont pu être extraites, avec des précisions proches de 10 %. D'ailleurs, la mesure de la section efficace de fission de $^{242\text{m}}\text{Am}$ a mis en évidence une possible sous-estimation des valeurs évaluées. En ce qui concerne, la section efficace de fission de $^{242\text{g}}\text{Am}$, il s'agit de la toute première mesure de ce paramètre dans le domaine d'énergie thermique.

Enfin, la dernière expérience de cette campagne sur ^{241}Am fut l'irradiation d'un échantillon en position 25 cm du canal V4, sous l'influence des hauts flux de neutrons. Bien que l'analyse de masse de cet échantillon n'ait pas encore été réalisée, l'étude préliminaire a montré que les résultats donneront accès à d'autres paramètres, comme la section efficace de capture du $^{242\text{g}}\text{Am}$ ou la section efficace de fission du ^{243}Cm . Cette expérience permettra aussi de quantifier avec plus de précision l'impact des premières résonances sur certaines des sections efficaces mesurées précédemment.

La campagne expérimentale sur la transmutation du ^{244}Cm a été réalisée à travers l'irradiation d'une chambre à fission triple corps gap réduit en position 25 cm du canal V4. Pour la première fois, le démarrage en palier du réacteur de l'ILL a été suivi, ce qui a notamment permis de mesurer la section efficace de fission du ^{245}Cm avec précision. De plus, bien que ces nouvelles chambres aient présenté quelques problèmes de fonctionnement, le suivi des évolutions du courant débité durant les cinquante jours d'irradiation a tout de même permis d'extraire la section efficace de capture du ^{244}Cm .

Enfin, la dernière campagne sur la transmutation et l'incinération du ^{249}Cf était constituée de deux irradiations successives dans le canal H9. La première irradiation de deux heures a permis de mesurer par spectroscopie α la section efficace de capture du ^{249}Cf à travers la mesure de la quantité de ^{250}Cf formé. En revanche, la seconde irradiation de 18 heures n'a pas offert la possibilité de mesurer la section efficace d'absorption du ^{249}Cf à cause de la perte de

matière observée avec le spectromètre de masse Lohengrin.

Au final, sur l'ensemble de ces trois campagnes, 9 paramètres nucléaires ont pu être mesurés sur différents isotopes d'américium, de curium et de californium. Chacune de ces mesures possède un réel intérêt pour l'amélioration et la validation des bases de données, en amenant notamment certaines corrections sur les valeurs et en réduisant les incertitudes sur le domaine d'énergie thermique. Ces mesures ayant été effectuées en spectre thermique, elles ont un intérêt tout particulier pour la transmutation dans les réacteurs modérés (e.g. GT-MHR) ou dans les cibles à spectres modérés. Pour ce dernier cas, on peut citer les expériences ECRIX [115] et PROFIL-M [116] réalisées dans le réacteur rapide PHENIX. Ces deux expériences corroborent l'hypothèse selon laquelle la transmutation des actinides mineurs dans les réacteurs rapides est nettement améliorée dans des flux localement modérés [117].

Pour finir, comme nous avons pu le constater, suite au bilan sur l'impact des incertitudes des données nucléaires sur la transmutation du ^{241}Am et du ^{237}Np , de nombreuses mesures sont encore nécessaires afin d'abaisser les incertitudes sur les simulations. On peut citer par exemple, la capture du ^{238}Pu qui est effectivement une source d'incertitude notable pour la transmutation du ^{237}Np et dans une moindre mesure pour celle de l' ^{241}Am . D'une manière générale, toutes les sections efficaces de capture des isotopes de la chaîne du curium : du ^{245}Cm au ^{248}Cm et du californium sont essentiels dans la formation du ^{252}Cf et des sources de neutrons.

Ces expériences sont nécessaires pour améliorer les bases de données à basse énergie. Des mesures sont également indispensables à plus hautes énergies et plus particulièrement dans le domaine des résonances. En effet, comme il a été souligné dans l'étude d'impact, cette région est mal définie pour les sections efficaces de capture des actinides mineurs et se révèle pourtant essentielle pour la transmutation dans des spectres moins modérés voir rapides.

Ce n'est qu'avec de tels efforts de mesure que pourra être mis en place avec efficacité et rentabilité la transmutation des déchets nucléaires, ainsi qu'un développement durable de l'énergie nucléaire. Le rejet d'une telle politique pérenne ne ferait que rendre plus grand le poids que devront supporter les générations futures et laisserait également le nucléaire comme une source d'énergie non-profitable, du fait des ressources limitées en ^{235}U . En réalité, à la consommation actuelle, l'épuisement des ressources totales estimées est envisagé aux environs de 2070 [119].

Or, seules les énergies renouvelables et nucléaires peuvent offrir une porte de sortie face à la problématique de l'épuisement des ressources fossiles, aux changements climatiques, à la consommation énergétique mondiale croissante, ainsi qu'à l'établissement du vecteur hydrogène comme nouvelle source d'énergie pour les transports [120].

« On ne devrait jamais tourner le dos à un danger pour tenter de le fuir. Si vous le faites, vous le multipliez par deux. Mais si vous l'affrontez rapidement et sans vous dérober, vous le réduirez de moitié », Winston Churchill.

Références

- [1] Philippe d'Iribarne, *Les Français et les déchets nucléaires*, Rapport au Ministre délégué à l'industrie, Avril 2005.
- [2] Pinstrup-Andersen P., Pandya-Lorch R., *Food security and sustainable use of natural resources: a 2020 Vision*, *Ecological Economics*, Vol. 26, Issue 1, July 1998, 1-10.
- [3] World Health Organization, *World in danger of missing sanitation target ; drinking-water target also at risk, new report shows*, Report, 2006.
- [4] World Health Organization, *Air quality guidelines for particulate matter, ozone, nitrogen dioxide and sulfur dioxide - Global update 2005 - Summary of risk assessment*, Report, 2005.
- [5] International Energy Agency, *World Energy Outlook*, Report, 2006.
- [6] United Nations Organization, *Millennium Ecosystem Assessment*, Report, 2005.
- [7] Ş. Ediger V., Hoşgör E., *Fossil fuel sustainability index: An application of resource management*, *Energy Policy*, Vol. 35, Issue 5, May 2007, 2969-2977.
- [8] Asif M., Muneer T., *Energy supply, its demand and security issues for developed and emerging economies*, *Renewable and Sustainable Energy Rev.*, Vol. 11, Issue 7, Sept. 2007, 1388-1413.
- [9] International Energy Agency, *World Energy Outlook*, Report, 2004.
- [10] Campbell C.J., *The Rimini Protocol an oil depletion protocol: Heading off economic chaos and political conflict during the second half of the age of oil*, *Energy Policy*, Vol. 34, Issue 12, Aug. 2006, 1319-1325.
- [11] Bockris J.O'M., *Will lack of energy lead to the demise of high-technology countries in this century ?*, *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 32, Issue 2, Feb. 2007, 153-158.
- [12] <http://www.bp.com>
- [13] Alexiadis A., *Global warming and human activity: A model for studying the potential instability of the carbon dioxide/temperature feedback mechanism*, *Ecological Modelling*, Vol. 203, Issues 3-4, May 2007, 243-256.
- [14] Mann M.E., Jones D., *Global Surface Temperatures over the Past Two Millennia*, *Geophysical Research Letters*, Vol. 30, 15, 1820, 2003.
- [15] Intergovernmental Panel on Climate Change, *Climate Change 2007*, The fourth assessment report, May 2007.
- [16] World Meteorological Organization, *Statement on the Tropical Cyclones and Climate Change*, WMO International Workshop on Tropical Cyclones, ITWC-6, San Jose, Costa Rica, November 2006.
- [17] Stern N., *The Economics of Climate Change*, Report, Oct. 2006.
- [18] M. Fthenakis V., Chul Kim H., *Greenhouse-gas emissions from solar electric- and nuclear power: A life cycle study*, *Energy Policy*, Vol. 35, Issue 4, April 2007, 2549-2557.
- [19] Marban G., Valdes-Solis T., *Towards the hydrogen economy ?*, *International Journal of Hydrogen Energy*, In Press, Corrected Proof, Available online 2 February 2007.
- [20] Schäfer A., B. Heywood J., A. Weiss M., *Future fuel cell and internal combustion engine automobile technologies: A 25-year life cycle and fleet impact assessment*, *Energy*, Vol. 31, Issue 12, Sept. 2006, 2064-2087.
- [21] *Hydrogen energy and Fuel cells – A vision of our future*, report of the European Commission's

High Level Group (HLG) on Hydrogen and Fuel Cells :

https://www.hfpeurope.org/uploads/59/hydrogen-vision-report_HLG_2003_en.pdf

- [22] Steinberg M. and C. Cheng H., *Modern and prospective technologies for hydrogen production from fossil fuels*, International Journal of Hydrogen Energy, Vol. 14, Issue 11, 1989, 797-820.
- [23] Soong Y. et al., *CO₂ sequestration with brine and fly ashes*, Energy Conversion and Management, Vol. 47, Issue 13-14, August 2006, 1676-1685.
- [24] Schuckert M., *CUTE – a major step towards cleaner urban transport*, Proceeding, Hydrogen and Fuel Cell Expert Workshop, IEA, 2005.
- [25] Kubo S. et al., *A demonstration study on a closed-cycle hydrogen production by the thermochemical water splitting iodine-sulfur process*, Nuclear Engineering and Design, Vol. 233, Issues 1-3, Oct. 2004, 347-354.
- [26] Rothstein J., *Nuclear energy, environmental problems and the hydrogen energy economy*, International Journal of Hydrogen Energy, Vol. 20, Issue 4, April 1995, 275-281.
- [27] Del Frari B., *The Global Nuclear Fuel Market supply and demand 2001-2020*, World Nuclear Association Symposium, 5-7 sept. 2001, Londres.
- [28] CEA, *Les centrales nucléaires dans le monde*, ELECNUC, édition 2006.
- [29] Fulkerson W., E. Jones J., *CO₂ and the world energy system: the role of nuclear power*, Nuclear Engineering and Design, Volume 136, Issues 1-2, 1 August 1992, Pages 23-28.
- [30] IAEA. In Focus: Chernobyl. Report. March 2006.
- [31] U.S. Nuclear Regulatory Commission. *Severe Accident Risks: An Assessment for Five U.S. Nuclear Power Plants. NUREG 1150*. Report. 1991.
- [32] International Nuclear Safety, *Improving Safety at Soviet-Designed Nuclear Power Plants, Ten Years of Safety Improvements*, Status Report, 2003.
- [33] Berry N., *Nuclear Power Plants — Double-Edged Swords*, The Defense Monitor, Center for Defense Information, Vol. XXIX, No. 1, 2000.
- [34] Hirsch D., *The NRC: 'What Me Worry?'* Bulletin of the Atomic Scientists, Vol. 58, No. 1, January 2002, 38-44.
- [35] U.S. government, *Homeland Security Act.*, Pub. L. No. 107-296, 116 Stat. 2135. Nov. 2002.
- [36] Assemblée de l'Union Européenne *La lutte contre le terrorisme international : un défi pour l'Europe*, Doc. A/1914, Dec. 2005.
- [37] U.S. Congress, Office of Technology Assessment, *Proliferation of Weapons of Mass Destruction: Assessing the Risks*, OTA-ISC-559, Washington, DC: U.S. Government Printing Office, August 1993.
- [38] <http://disarmament2.un.org/wmd/npt/npt%20authenticated%20text-french.pdf>
- [39] *Pyongyang annonce avoir effectué un essai nucléaire*, Nouvel Observateur, 9 octobre 2006.
- [40] Lasserre T., W. Sobel H., *Reactor neutrinos*, Comptes Rendus Physique, Volume 6, Issue 7, September 2005, Pages 749-757.
- [41] J. Gonzales. A., *The safety of radioactive waste management : achieving internationally acceptable solutions*, IAEA General Conference, 2000.
- [42] ANDRA. *Déchets radioactifs et matières valorisables en France*. Résumé de l'inventaire national. Edition 2006.

- [43] CEA. *Les recherches pour la gestion des déchets nucléaires*. Clefs du CEA. Vol. 46, 2002.
- [44] Doubre H., *Les déchets de la fission nucléaire*, disponible à l'adresse suivante :
http://sfp.in2p3.fr/Debat/debat_energie/E2PHY/Dobre-tot.pdf
- [45] Ministère français délégué à la recherche et aux nouvelles technologies, Direction de la Technologie, *Stratégie et programmes des recherches au titre de la loi du 30 décembre 1991 relative à la gestion des déchets radioactifs à haute activité à vie longue 2000 – 2006*, Rapport, Ed. avril 2000.
- [46] ANDRA. *Inventaire National des Déchets Radioactifs et des Matières Valorisables*. Rapport de Synthèse. Edition 2006.
- [47] David S., *Déchets radioactifs à vie longue – Quel scénarios pour le futur ?*, Débat public, Paris, 8 Oct. 2005.
- [48] H. Zabunoglu O., Özdemir L., *Purex co-processing of spent LWR fuels: flow sheet*, Annals of Nuclear Energy, Vol. 32, Issue 2, Jan. 2005, 151-162.
- [49] Ministère français délégué à la recherche et aux nouvelles technologies, Direction de la Technologie, *Stratégie et programmes de recherches sur la gestion des déchets radioactifs à haute activité et à vie longue – Acquis et perspectives*, Rapport, Ed. 2004.
- [50] OCDE/NEA, *La R-D en France sur la séparation et la transmutation des radionucléides à vie longue*, Rapport NEA 6211, 2006.
- [51] Loi n° 2006-739 du 28 juin 2006 de programme relative à la gestion durable des matières et déchets radioactifs :
<http://www.legifrance.gouv.fr/WAspad/UnTexteDeJorf?numjo=ECOX0600036L>
- [52] Hwang Y.S., *Environmental impact of advanced management of spent nuclear fuel on permanent disposal of high level waste in Korea*, Progress in Nuclear Energy, Vol. 46, Issue 2, 2005, 143-150.
- [53] Generation IV International Forum, official website: <http://www.gen-4.org/>
- [54] H. Marcus G., *Considering the next generation of nuclear power plants*, Progress in Nuclear Energy, Vol. 37, Issues 1-4, 2000, 5-10.
- [55] Commission des communautés européennes, *Amended proposal for a council decision concerning the 7th framework programme of the European Atomic Energy Community (Euratom) for nuclear research and training activities (2007-2011)*, Bruxelles, 28 juin 2006.
- [56] Beauvais PY et al., *Status report on the Saclay I.P.H.I. project*, Proceedings of the 7^e EPAC, Vienne, Autriche, 283, 2000.
- [57] I. Ponomarev L., *High power accelerators in fundamental physics and nuclear technology*, Progress in Nuclear Energy, Vol. 40, Issues 3-4, April-May 2002, 655-660.
- [58] Bauer G. S., Salvatores M., Heusener G., *MEGAPIE, a 1 MW pilot experiment for a liquid metal spallation target*, Journal of Nuclear Materials, Vol. 296, Issues 1-3, July 2001, 17-3.
- [59] Destouches C., Fruneau M., Belmont J.L. et al., *The GENEPI accelerator operation feedback at the MASURCA reactor facility*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, Vol. 562, Issue 2, June 2006, 601-609.
- [60] Aït Abderrahim H., Baeten P., Verboomen B. et al., *The GUINEVERE-project at the VENUS facility*, Proceeding, Utilisation and Reliability of High Power Proton Accelerators, Mol, Belgium, May 2007.
- [61] Abderrahim H.A., Kupschus P., Malambu E. et al., *MYRRHA: A multipurpose accelerator driven system for research & development*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, Vol. 463, Issue 3, 2001, 487-494.

- [62] OECD/NEA, *Present Status of Minor Actinide Data*, Report, Nuclear Energy Agency, Working Party on International Evaluation Co-operation of the NEA Nuclear Science Committee, Vol. 8, 1999.
- [63] Aliberti G., Palmiotti G., Salvatores M. et al., *Nuclear data sensitivity, uncertainty and target accuracy assessment for future nuclear systems*, Annals of Nuclear Energy, Vol. 33, Issue 8, 2006, 700-733.
- [64] Aliberti G. Palmiotti G., Salvatores M. et al., *Transmutation dedicated systems : An assessment of nuclear data uncertainty impact*, Nuclear Science and Engineering, Vol. 146, 2004, 13-50.
- [65] Journal officiel de la République Française, *Décret 88-521 du 18 avril 1988 relatif aux principes généraux de protection contre les rayonnements ionisants*, 19 avril 1988.
- [66] Sztark H., Vambenepe G., Vergnes J., Zaetta A., *Minor Actinides Recycling in an EFR Type Fast Neutron Reactor*, International Atomic Energy Agency, Vienna (Austria), IAEA-TECDOC--693, 24-30.
- [67] Sawa K., Ueta S., *Research and development on HTGR fuel in the HTTR project*, Nuclear Engineering and Design, Vol. 233, Issues 1-3, Oct. 2004, 163-172.
- [68] Kuijper, J.C. et al, 2006, *HTGR reactor physics and fuel cycle studies*, Nuclear Engineering and Design 236, 615-64.
- [69] Letourneau, A. et al, 2003, *The V4 channel: a direct access to very high neutron fluxes for transmutation studies*, ILL annual report (2002-2003), 118.
- [70] Zrodnikov A., Gulevich A., Chekounov V. et al., *Nuclear waste burner for minor actinides elimination*, Progress in Nuclear Energy, Volume 47, Issues 1-4, 2005, Pages 339-346.
- [71] Shmelev A., Apse V., Koulikov G., *On the main objectives of transmutation cycles for long-lived fission products and minor actinides*, Progress in Nuclear Energy, Vol. 37, Issues 1-4, 2000, 235-240.
- [72] ICRP Publication 72, 1996, *Age-dependent Doses to Members of the Public from intake of Radionuclides*, Elsevier Science.
- [73] Gandini, A., Palmiotti, G., Salvatores, M., *Equivalent generalized perturbation theory (EGPT)*, Annals of Nuclear Energy, Vol. 13, 109.
- [74] Palmiotti G., Salvatores M., JEFFDOC 1063, Rev. 1, 2005.
- [75] B. Firestone R., S. Shirley V. et al., *Table of isotopes, 8th edition*, John Wiley & Sons Inc., ISBN 0471-14918-7.
- [76] Reuss P., *Précis de neutronique*, Collection Génie Atomique, EDP sciences, 2003.
- [77] England T.R., *CINDER – A One-Point Depletion and Fission Product Program*, Bettis Atomic Power Laboratory report WAPD-TM-334, August 1962, Rev. June 1964.
- [78] Méplan O., *MURE : MCNP Utility for Reactor Evolution - Description of the methods, first applications and results*, Proceeding, European Nuclear Society, 2005.
- [79] CERN, ROOT, site internet officiel : <http://root.cern.ch/>
- [80] CEA/DAPNIA, MERCS, site officiel : <http://www-dapnia.cea.fr/Sphn/MNM/Modelisation/>
- [81] n-ToF collaboration, *n-ToF Technical Design Report*, CERN/INTC/2000-04, 2000.
- [82] H. Mayer-Leibnitz & B. Jacrot, *But de l'Institut Max von Laue – Paul Langevin. Organisation et structures scientifiques*, Rapport ILL, 1971.
- [83] Letourneau A., Marie F., Ridikas D., *Effect of a non-Maxwellian component of the neutron flux in the determination of minor actinide thermal cross sections*, Rapport, DAPNIA-03-243,

- 2003.
- [84] Chabod S., *Développement et modélisation de chambres à fissions pour les hauts flux, mise en application au RHF (ILL) et à MEGAPIE (PSI)*, Thèse de l'université de Paris XI soutenue le 30 novembre 2006.
- [85] Mansour F., *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*, Thèse de l'Institut National Polytechnique de Grenoble (INPG) soutenue le 26 mars 2003.
- [86] Déruelle O., *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.
- [87] Chabod S., Blandin C., Chartier F. et al., *Neutron flux characterisation of MEGAPIE target*, Nuclear Instruments and Methods A, Vol. 562, Issue 2, 618-620, 2006.
- [88] Mathieu L., *Cycle Thorium et Réacteurs à Sel Fondu Exploration du champ des Paramètres et des Contraintes définissant le "Thorium Molten Salt Reactor"*, Thèse de l'Institut National Polytechnique de Grenoble (INPG) soutenue le 26 septembre 2005.
- [89] National Nuclear Data Center (NNDC), Evaluated Nuclear Data File, official site : <http://www.nndc.bnl.gov/exfor7/endlf00.htm>
- [90] National Nuclear Data Center (NNDC), Cross Section Information Storage and Retrieval System (EXFOR/CSISRS), official site : <http://www.nndc.bnl.gov/exfor7/exfor00.htm>
- [91] Bringer O., Isnard H. et al., ^{232}Th , ^{233}Pa , ^{234}U capture cross section measurements in moderated neutron flux, soumis à Nuclear Instruments and Methods A.
- [92] Eastwood T.A., Werner D., *The thermal neutron capture cross section and resonance capture integral of protactinium-233*, Canadian Journal of Phys. 38, 751, 1960.
- [93] Mughabghab S.F., *Atlas of Neutron Resonances*, Elsevier Science and Technology, 5th Rev ed.
- [94] Maidana N.L., Mesa J., Vanin V.R. et al., $^{232}\text{Th}(n,\gamma)^{233}\text{Th}$ thermal reaction cross-section measurement, Conf. on Nucl. Data for Sci. and Techn., Santa Fe, p. 1466, 2004.
- [95] Connor J.C., *Integral measurements of the protactinium-233 neutron captures cross section*, Westinghouse Atomic Power Div. (Bettis), Reports No.837, 1970.
- [96] Pomerance H., *Thermal neutron capture cross sections of uranium*, Oak Ridge National Lab. Central File Memo No.51, 12, p.151, 1951.
- [97] Lounsbury M., Durham R.W., Hanna G.C., *Measurements of alpha and of fission cross section ratios for ^{233}U , ^{235}U and ^{239}Pu at thermal energies*, Conf.: Nuclear Data for Reactors Conf., Helsinki 1970, Vol.1, p.287(2).
- [98] Cabel M.J., Wilkins M., *The thermal neutron cross section sections of ^{234}U and ^{236}U* , Report: A.E.R.E. Harwell Reports n° 6761, 1971.
- [99] G. Fioni, M. Cribier, F. Marie et al., *Incineration of ^{241}Am induced by thermal neutrons*, Nuclear Physics A, Vol. 693, Issues 3-4, 546-564, 2001.
- [100] Marie F., Letourneau A., Fioni G. et al., *Thermal neutron capture cross-section measurements of ^{243}Am and ^{242}Pu using the new mini-INCA α - and γ -spectroscopy station*, Nuclear Instruments and Methods A, Vol. 556, Issue 2, 15.
- [101] N.Shinohara, Y.Hatsukawa, K.Hata, N.Kohno, *Radiochemical determination of Neutron capture cross section of ^{241}Am* , J. of Nuclear Science and Technology, Tokyo, Vol.34, Issue.7, p.613, 1997.
- [102] N.L.Maidana, M.S.Dias, M.F.Koskinas, *Measurement of the thermal neutron capture cross*

- section and resonance integral of Am-241*, Journ.: Radiochimica Acta, Vol.89, p.419, 2001.
- [103] Bak M.A., Krivohatskiy A.S., Petrzhak K.A., *Cross sections and resonance integrals of capture and fission of long-lived isotopes of Americium*, Soviet Atomic Energy, Vol.23, p.1059, 1967.
- [104] Kai T., Kobayashi K., Yamamoto S. et al, *Measurements of neutron induced fission cross-section for ^{242m}Am from 0.003 eV to 10 keV using lead slowing-down spectrometer, thermal neutron facility and time-of-flight method*, Annals of Nuclear Energy, Vol. 28, 723, 2001.
- [105] Browne J.C., White R.M., Howe R.E. et al, *Fission cross sections for ^{242m}Am* , Physical Review, Part C, Nuclear Physics, Vol. 29, 2188, 1984.
- [106] Dabbs J.W.T., Bemis C.E. Jr, Raman S. et al, *Measurement of the ^{242m}Am neutron fission cross section*, Nuclear Science and Engineering, Vol. 84, 1, 1983.
- [107] Bowman C.D., Auchampaugh G.F., Fultz S.C., *Neutron-induced fission cross section of ^{242m}Am* , Physical Review, Vol. 166, 1219, 1968.
- [108] Gavrilov V.D., Goncharov V.A., *Thermal cross-section and resonance integrals of radiation capture of neutrons for Cm-244-248 isotopes and for Cf-250*, Atomnaya Energiya, Vol. 44, Issue.3, 246, 1978.
- [109] Browne J.C., Benjamin R.W., Karraker D.G., *Fission cross section for curium-245 from 0.01 to 35 eV*, Nuclear Science and Engineering, Vol. 65, 166, 1978.
- [110] Gavrilov V.D., Goncharov V.A., Ivanenko V.V. et al, *Thermal fission and capture cross-sections and resonance integrals for Am-241, Am-243, Bk-249, Cf-249*, Atomic Energy, Vol. 41, 808, 1976.
- [111] Benjamin R.W., Mac Murdo K.W., Spencer J.D., *Fission cross sections for five isotopes of curium and californium-249*, Nuclear Science and Engineering, Vol.47, 203, 1972.
- [112] Oberstedt A., Oberstedt S., *Energy degrader technique for light-charged particle spectroscopy at LOHENGRIN*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, Vol. 570, Issue 1, 51-54, 2007.
- [113] Gavrilov V.D., Goncharov V.A., Ivanenko V.V. et al., *Thermal fission and capture cross-sections and resonance integrals for Am-241, Am-243, Bk-249, Cf-249*, Atomic Energy, Vol.41, p.808, 1976.
- [114] Halperin J., Bemis C.E. Jr., Druschel R.E., Eby R.E., *The thermal cross sections and resonance integrals for neutron capture of ^{249}Cf , ^{250}Cf , and ^{251}Cf* , Prog. Rep.: Oak Ridge National Lab, Rapport 4706, p.47, 1971.
- [115] Croixmarie Y., Abonneau E., Fernández A. et al., *Fabrication of transmutation fuels and targets: the ECRIX and CAMIX-COCHIX experience*, Journal of Nuclear Materials, Vol. 320, 1-2, 2003, 11-17.
- [116] Gaillard-Groleas G., Pillon S., *Status of the CEA programme on fuels for transmutation*, Proceeding, Seventh Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation, Jeju, Korea, 2002.
- [117] C. de Saint Jean et al., *Am and Cm heterogeneous transmutation in moderated S/A in the framework of the CNE scenario studies*, Global'2001, Paris, Sept. 2001.
- [118] Astegiano J.C., *The status of Fast Reactors programme in France in 2005*, Regular Meeting of the TWG-FR, 2006, Pékin ; Chine
- [119] Energy Watch Group, *Uranium resources and nuclear energy*, EWG-Series No 1/2006, December 2006.
- [120] Penner S.S., *Steps toward the hydrogen economy*, Energy, Vol. 31, Issue 1, 2006, 33-43.

Annexe : Les incertitudes des données nucléaires

Les tableaux qui sont donnés dans cette annexe fournissent les valeurs et les erreurs utilisées dans l'étude d'impact des incertitudes des données nucléaires sur les grandeurs d'intérêt pour la transmutation de ^{241}Am et du ^{237}Np . Ces erreurs ont été calculés à partir de l'évaluation « ANL covariance matrix » [74], ainsi que celles des paramètres de décroissance extraits de la table évaluées des isotopes du « LBNL (Lawrence Berkeley National Laboratory) isotopes project » [75]. Les autres paramètres qui n'étaient pas initialement présents dans ces deux évaluations et pour lesquels une erreur de $\pm 10\%$ a été appliquée, ne sont pas présentés ici.

Simulation EFR

actinide	section efficace	valeur initiale (barns)	erreur associée (barns)	actinide	section efficace	valeur initiale (barns)	erreur associée (barns)
Th-232	$\sigma(n,\gamma)$	1.090970	0.436388	Pu-241	$\sigma(n,\gamma)$	0.446240	0.066203
Th-232	$\sigma(n,f)$	0.071278	0.028511	Pu-241	$\sigma(n,f)$	2.534010	0.260669
Th-232	$\sigma(n,2n)$	0.001209	0.001209	Pu-241	$\sigma(n,2n)$	0.004990	0.004990
U-233	$\sigma(n,\gamma)$	0.275502	0.038089	Pu-242	$\sigma(n,\gamma)$	0.450244	0.051770
U-233	$\sigma(n,f)$	2.760070	0.284574	Pu-242	$\sigma(n,f)$	0.274003	0.030014
U-233	$\sigma(n,2n)$	0.001014	0.001014	Pu-242	$\sigma(n,2n)$	0.001372	0.001372
U-234	$\sigma(n,\gamma)$	0.616856	0.118503	Am-241	$\sigma(n,\gamma)$	1.730680	0.173068
U-234	$\sigma(n,f)$	0.345783	0.069157	Am-241	$\sigma(n,f)$	0.287791	0.029433
U-234	$\sigma(n,2n)$	0.000484	0.000484	Am-241	$\sigma(n,2n)$	0.000196	0.000196
U-235	$\sigma(n,\gamma)$	0.569455	0.053519	Am-242m	$\sigma(n,\gamma)$	0.416244	0.166498
U-235	$\sigma(n,f)$	1.938810	0.081760	Am-242m	$\sigma(n,f)$	4.091730	0.626747
U-235	$\sigma(n,2n)$	0.002281	0.001141	Am-242m	$\sigma(n,2n)$	0.002286	0.002286
U-236	$\sigma(n,\gamma)$	0.444986	0.069074	Am-243	$\sigma(n,\gamma)$	1.540190	0.159177
U-236	$\sigma(n,f)$	0.109072	0.021814	Am-243	$\sigma(n,f)$	0.212331	0.021258
U-236	$\sigma(n,2n)$	0.002116	0.002116	Am-243	$\sigma(n,2n)$	0.000794	0.000794
U-238	$\sigma(n,\gamma)$	0.341362	0.011445	Cm-242	$\sigma(n,\gamma)$	0.343478	0.137391
U-238	$\sigma(n,f)$	0.046207	0.002324	Cm-242	$\sigma(n,f)$	0.177411	0.070965
U-238	$\sigma(n,2n)$	0.002749	0.000825	Cm-242	$\sigma(n,2n)$	0.000054	0.000054
Np-237	$\sigma(n,\gamma)$	1.597620	0.159762	Cm-243	$\sigma(n,\gamma)$	0.553549	0.221419
Np-237	$\sigma(n,f)$	0.336539	0.041653	Cm-243	$\sigma(n,f)$	2.924720	1.169888
Np-237	$\sigma(n,2n)$	0.000767	0.000767	Cm-243	$\sigma(n,2n)$	0.000634	0.000634
Pu-238	$\sigma(n,\gamma)$	0.754236	0.120035	Cm-244	$\sigma(n,\gamma)$	0.857392	0.342956
Pu-238	$\sigma(n,f)$	1.141250	0.194613	Cm-244	$\sigma(n,f)$	0.441373	0.176551
Pu-238	$\sigma(n,2n)$	0.001438	0.001438	Cm-244	$\sigma(n,2n)$	0.001023	0.001023
Pu-239	$\sigma(n,\gamma)$	0.517284	0.043585	Cm-245	$\sigma(n,\gamma)$	0.536660	0.214663
Pu-239	$\sigma(n,f)$	1.827650	0.086950	Cm-245	$\sigma(n,f)$	2.756820	1.102731
Pu-239	$\sigma(n,2n)$	0.001078	0.000539	Cm-245	$\sigma(n,2n)$	0.001099	0.001099
Pu-240	$\sigma(n,\gamma)$	0.532891	0.072760				
Pu-240	$\sigma(n,f)$	0.395246	0.023816				
Pu-240	$\sigma(n,2n)$	0.000643	0.000643				

Simulation GT-MHR

actinide	section efficace	valeur initiale (barns)	erreur associée (barns)	actinide	section efficace	valeur initiale (barns)	erreur associée (barns)
Th-232	$\sigma(n,\gamma)$	4.173650	0.324283	Pu-241	$\sigma(n,\gamma)$	64.12240	2.190710
Th-232	$\sigma(n,f)$	0.007351	0.000368	Pu-241	$\sigma(n,f)$	183.7930	5.390557
Th-232	$\sigma(n,2n)$	0.001456	0.001456	Pu-241	$\sigma(n,2n)$	0.001526	0.001526
U-233	$\sigma(n,\gamma)$	11.26060	0.501206	Pu-242	$\sigma(n,\gamma)$	53.38760	2.790404
U-233	$\sigma(n,f)$	92.49740	3.449173	Pu-242	$\sigma(n,f)$	0.174835	0.019648
U-233	$\sigma(n,2n)$	0.000403	0.000403	Pu-242	$\sigma(n,2n)$	0.000594	0.000594
U-234	$\sigma(n,\gamma)$	38.83390	3.580152	Am-241	$\sigma(n,\gamma)$	185.8090	18.58090
U-234	$\sigma(n,f)$	0.268094	0.053619	Am-241	$\sigma(n,f)$	1.258480	0.237670
U-234	$\sigma(n,2n)$	0.000182	0.000182	Am-241	$\sigma(n,2n)$	0.000090	0.000090
U-235	$\sigma(n,\gamma)$	16.87960	0.393092	Am-242m	$\sigma(n,\gamma)$	224.7060	89.88217
U-235	$\sigma(n,f)$	75.40610	0.976132	Am-242m	$\sigma(n,f)$	1113.720	56.66741
U-235	$\sigma(n,2n)$	0.000878	0.000439	Am-242m	$\sigma(n,2n)$	0.000439	0.000439
U-236	$\sigma(n,\gamma)$	11.97150	0.955500	Am-243	$\sigma(n,\gamma)$	79.63900	15.77577
U-236	$\sigma(n,f)$	0.225922	0.045184	Am-243	$\sigma(n,f)$	0.234701	0.047540
U-236	$\sigma(n,2n)$	0.000771	0.000771	Am-243	$\sigma(n,2n)$	0.000349	0.000349
U-238	$\sigma(n,\gamma)$	9.573270	0.280935	Cm-242	$\sigma(n,\gamma)$	6.814580	2.725839
U-238	$\sigma(n,f)$	0.031033	0.001569	Cm-242	$\sigma(n,f)$	0.475562	0.190224
U-238	$\sigma(n,2n)$	0.001214	0.000364	Cm-242	$\sigma(n,2n)$	0.000018	0.000018
Np-237	$\sigma(n,\gamma)$	56.05530	3.648572	Cm-243	$\sigma(n,\gamma)$	22.45480	8.981920
Np-237	$\sigma(n,f)$	0.207344	0.033730	Cm-243	$\sigma(n,f)$	134.7500	53.90013
Np-237	$\sigma(n,2n)$	0.000311	0.000311	Cm-243	$\sigma(n,2n)$	0.000252	0.000252
Pu-238	$\sigma(n,\gamma)$	59.36870	6.242559	Cm-244	$\sigma(n,\gamma)$	15.18330	6.073320
Pu-238	$\sigma(n,f)$	2.953860	0.674201	Cm-244	$\sigma(n,f)$	0.596156	0.238462
Pu-238	$\sigma(n,2n)$	0.000581	0.000581	Cm-244	$\sigma(n,2n)$	0.000398	0.000398
Pu-239	$\sigma(n,\gamma)$	96.03220	2.759860	Cm-245	$\sigma(n,\gamma)$	35.51520	14.20604
Pu-239	$\sigma(n,f)$	175.8160	3.018919	Cm-245	$\sigma(n,f)$	229.5150	91.80600
Pu-239	$\sigma(n,2n)$	0.000465	0.000233	Cm-245	$\sigma(n,2n)$	0.000393	0.000393
Pu-240	$\sigma(n,\gamma)$	357.0960	23.42953				
Pu-240	$\sigma(n,f)$	0.322823	0.029995				
Pu-240	$\sigma(n,2n)$	0.000262	0.000262				

Simulation HI-HWR

actinide	section efficace	valeur initiale (barns)	erreur associée (barns)	actinide	section efficace	valeur initiale (barns)	erreur associée (barns)
Th-232	$\sigma(n,\gamma)$	6.480600	0.168358	Pu-241	$\sigma(n,\gamma)$	265.0240	8.039265
Th-232	$\sigma(n,f)$	0.000876	0.000044	Pu-241	$\sigma(n,f)$	763.9100	15.91950
Th-232	$\sigma(n,2n)$	0.000291	0.000291	Pu-241	$\sigma(n,2n)$	0.000337	0.000337
U-233	$\sigma(n,\gamma)$	35.25600	1.120665	Pu-242	$\sigma(n,\gamma)$	35.96800	1.564892
U-233	$\sigma(n,f)$	379.8560	8.218109	Pu-242	$\sigma(n,f)$	0.016119	0.002585
U-233	$\sigma(n,2n)$	0.000092	0.000092	Pu-242	$\sigma(n,2n)$	0.000119	0.000119
U-234	$\sigma(n,\gamma)$	80.68510	4.768304	Am-241	$\sigma(n,\gamma)$	480.6960	48.06960
U-234	$\sigma(n,f)$	0.341556	0.068312	Am-241	$\sigma(n,f)$	2.543490	0.507276
U-234	$\sigma(n,2n)$	0.000030	0.000030	Am-241	$\sigma(n,2n)$	0.000013	0.000013
U-235	$\sigma(n,\gamma)$	69.90980	0.777670	Am-242m	$\sigma(n,\gamma)$	1061.550	424.6200
U-235	$\sigma(n,f)$	400.2010	4.082330	Am-242m	$\sigma(n,f)$	5210.450	260.8409
U-235	$\sigma(n,2n)$	0.000196	0.000098	Am-242m	$\sigma(n,2n)$	0.000204	0.000204
U-236	$\sigma(n,\gamma)$	8.916910	0.566350	Am-243	$\sigma(n,\gamma)$	85.19870	17.00983
U-236	$\sigma(n,f)$	0.107909	0.021582	Am-243	$\sigma(n,f)$	0.100109	0.035270
U-236	$\sigma(n,2n)$	0.000155	0.000155	Am-243	$\sigma(n,2n)$	0.000056	0.000056
U-238	$\sigma(n,\gamma)$	6.110860	0.143510	Cm-242	$\sigma(n,\gamma)$	13.17490	5.269973
U-238	$\sigma(n,f)$	0.003562	0.000184	Cm-242	$\sigma(n,f)$	2.102180	0.840870
U-238	$\sigma(n,2n)$	0.000260	0.000078	Cm-242	$\sigma(n,2n)$	0.000004	0.000004
Np-237	$\sigma(n,\gamma)$	139.9170	6.194573	Cm-243	$\sigma(n,\gamma)$	92.32060	36.92824
Np-237	$\sigma(n,f)$	0.030624	0.005303	Cm-243	$\sigma(n,f)$	456.8660	182.7464
Np-237	$\sigma(n,2n)$	0.000058	0.000058	Cm-243	$\sigma(n,2n)$	0.000056	0.000056
Pu-238	$\sigma(n,\gamma)$	370.6880	37.15443	Cm-244	$\sigma(n,\gamma)$	16.49330	6.597304
Pu-238	$\sigma(n,f)$	11.46780	2.323961	Cm-244	$\sigma(n,f)$	0.600030	0.240012
Pu-238	$\sigma(n,2n)$	0.000086	0.000086	Cm-244	$\sigma(n,2n)$	0.000073	0.000073
Pu-239	$\sigma(n,\gamma)$	243.8920	5.469156	Cm-245	$\sigma(n,\gamma)$	231.6310	92.65240
Pu-239	$\sigma(n,f)$	587.6370	6.822407	Cm-245	$\sigma(n,f)$	1403.030	561.2120
Pu-239	$\sigma(n,2n)$	0.000107	0.000054	Cm-245	$\sigma(n,2n)$	0.000089	0.000089
Pu-240	$\sigma(n,\gamma)$	359.1550	15.04403				
Pu-240	$\sigma(n,f)$	0.103175	0.023418				
Pu-240	$\sigma(n,2n)$	0.000045	0.000045				

Constantes de décroissance

isotope	valeur (s ⁻¹)	incertitude (s ⁻¹)	isotope	valeur (s ⁻¹)	incertitude (s ⁻¹)
Th-226	3.77901636e-04	1.23618461e-06	Pu-244	2.74556359e-16	3.08875904e-18
Th-227	4.29471992e-07	2.06919054e-09	Pu-245	1.83372270e-05	1.74640257e-07
Th-228	1.14877138e-08	1.20164370e-11	Pu-246	7.40086422e-07	1.36547310e-09
Th-229	2.99243988e-12	6.52302971e-14	Am-237	1.58252781e-04	2.16784631e-06
Th-230	2.91383772e-13	1.15965948e-15	Am-238	1.17882174e-04	2.40575864e-06
Th-231	7.54470547e-06	2.95638929e-09	Am-239	1.61799062e-05	1.35965598e-07
Th-232	1.56331023e-18	6.67605792e-21	Am-240	3.79017487e-06	2.23829225e-08
Th-233	5.18047220e-04	2.32308170e-06	Am-241	5.08202423e-11	8.23095086e-14
Th-234	3.32885345e-07	4.14380097e-10	Am-242g	1.20187817e-05	1.50047213e-08
Th-235	1.62710606e-03	4.58339735e-05	Am-242m	1.55776658e-10	2.20959798e-12
Pa-228	8.75185834e-06	3.97811743e-07	Am-243	2.98025899e-12	6.06565601e-15
Pa-229	5.34835787e-06	1.78278596e-07	Am-244g	1.90634538e-05	1.88747067e-07
Pa-230	4.61065334e-07	1.32490039e-08	Am-244m	4.44325116e-04	4.44325116e-04
Pa-231	6.70467299e-13	2.25126383e-15	Am-245	9.39223822e-05	4.58157962e-07
Pa-232	6.12407390e-06	9.34973115e-08	Am-246g	2.96216744e-04	2.27859034e-05
Pa-233	2.97406369e-07	1.43328371e-10	Am-246m	4.62098120e-04	3.69678496e-06
Pa-234g	2.85245753e-05	2.11293151e-07	Am-247	5.02280566e-04	2.83897711e-05
Pa-234m	9.87389146e-03	2.53176704e-04	Cm-238	8.02253681e-05	3.34272367e-06
Pa-235	4.79354897e-04	3.97804893e-06	Cm-239	6.63934081e-05	6.63934081e-05
U-229	1.99180224e-04	1.03024254e-05	Cm-240	2.97130993e-07	1.10048516e-08
U-230	3.85698885e-07	3.89407528e-08	Cm-241	2.44589537e-07	1.49139962e-09
U-231	1.91012781e-06	4.54792336e-08	Cm-242	4.92361410e-08	1.81304066e-11
U-232	3.18788225e-10	1.85072990e-12	Cm-243	7.54794114e-10	7.78138262e-12
U-233	1.37968020e-13	1.73326658e-16	Cm-244	1.21350877e-09	6.70446834e-12
U-234	8.93956399e-14	1.09152185e-16	Cm-245	2.58405985e-12	3.04007041e-14
U-235	3.12084523e-17	2.21713927e-20	Cm-246	4.61439259e-12	3.87764083e-14
U-236	9.38012843e-16	1.56228651e-18	Cm-247	1.40798133e-15	4.51276067e-17
U-237	1.18852397e-06	1.76077626e-09	Cm-248	6.31164044e-14	1.08821387e-15
U-238	4.91595988e-18	3.30077879e-21	Cm-249	1.80085004e-04	8.42174610e-08
U-239	4.92641919e-04	4.20163684e-07	Bk-243	4.27868630e-05	1.90163836e-06
U-240	1.36553818e-05	9.68466795e-08	Bk-244	4.42622721e-05	1.52628524e-06
Np-233	3.19128536e-04	8.81570542e-07	Bk-245	1.62399531e-06	9.86231967e-09
Np-234	1.82330382e-06	4.14387232e-08	Bk-246	4.45696490e-06	4.95218322e-08
Np-235	2.02487047e-08	6.13287372e-11	Bk-247	1.59163107e-11	2.88338961e-12
Np-236g	1.42626680e-13	5.55688364e-15	Bk-248g	2.13934315e-05	2.13934315e-05
Np-236m	8.55737260e-06	1.52131068e-07	Bk-248m	8.12408791e-06	6.85577039e-08
Np-237	1.02446403e-14	3.34479859e-17	Bk-249	2.50704275e-08	4.70070516e-10
Np-238	3.78957809e-06	3.58013990e-09	Bk-250	5.99442352e-05	9.33129440e-08
Np-239	3.40515145e-06	4.33593139e-09	Bk-251	2.07777932e-04	4.11071448e-06
Np-240g	1.86630905e-04	6.03007770e-07	Cf-245	2.56721178e-04	8.55737260e-06
Np-240m	1.60006274e-03	4.43230677e-06	Cf-246	5.39330206e-06	7.55364434e-08
Np-241	8.31111727e-04	1.19584421e-05	Cf-247	6.19102519e-05	5.97205002e-07
Pu-235	4.56618696e-04	9.02408490e-06	Cf-248	2.40555826e-08	2.01965911e-10
Pu-236	7.70414196e-09	2.16180763e-11	Cf-249	6.25769479e-11	3.56563806e-13
Pu-237	1.77489752e-07	3.92676444e-10	Cf-250	1.67924379e-09	1.15544297e-11
Pu-238	2.50450499e-10	2.85576395e-13	Cf-251	2.44593638e-11	1.19845435e-12
Pu-239	9.11012390e-13	1.13356996e-15	Cf-252	8.30416209e-09	2.51165583e-11
Pu-240	3.34620791e-12	5.60760009e-15	Cf-253	4.50451253e-07	2.02336329e-09
Pu-241	1.53062779e-09	1.06663957e-11	Cf-254	1.32603914e-07	4.38360047e-10
Pu-242	5.88072523e-14	1.73194050e-16	Cf-255	1.35911212e-04	2.87811978e-05
Pu-243	3.88500572e-05	2.35169838e-08			

Probabilités des modes de décroissance

isotope	mode de décroissance	valeur	incertitude
Th-230	alpha (α)	9.95000000e-01	5.00000000e-03
Pa-228	béta plus (β^+)	9.80000000e-01	2.00000000e-03
Pa-229	béta plus (β^+)	9.95200000e-01	5.00000000e-04
Pa-230	béta plus (β^+)	9.15984000e-01	1.30005000e-02
Pa-232	béta moins (β^-)	9.99970000e-01	1.00000000e-05
Pa-234m	béta moins (β^-)	9.98400000e-01	4.00000000e-04
U-229	béta plus (β^+)	8.00000000e-01	2.00000000e-01
U-238	alpha (α)	9.99999450e-01	5.50000000e-07
Np-235	béta plus (β^+)	9.99974000e-01	1.30000000e-06
Np-236g	béta plus (β^+)	8.73000000e-01	1.27000000e-01
Np-236m	béta plus (β^+)	5.20000000e-01	1.00000000e-02
Np-240m	béta moins (β^-)	9.98800000e-01	1.00000000e-04
Pu-235	béta plus (β^+)	9.99972000e-01	7.00000000e-06
Pu-237	béta plus (β^+)	9.99958000e-01	4.00000000e-06
Pu-240	alpha (α)	9.99999943e-01	5.70000000e-08
Pu-241	béta moins (β^-)	9.99975500e-01	2.00000000e-07
Pu-242	alpha (α)	9.99994500e-01	5.50000000e-06
Pu-244	alpha (α)	9.98790000e-01	4.00000000e-05
Am-237	béta plus (β^+)	9.99750000e-01	3.00000000e-05
Am-238	béta plus (β^+)	9.99999000e-01	4.00000000e-07
Am-239	béta plus (β^+)	9.99900000e-01	1.00000000e-05
Am-240	béta plus (β^+)	9.99998100e-01	7.00000000e-07
Am-242g	béta moins (β^-)	8.27000000e-01	3.00000000e-03
Am-242m	transition interne (IT)	9.95500000e-01	2.00000000e-04
Am-244m	béta moins (β^-)	9.99639000e-01	1.30000000e-05
Am-246m	béta moins (β^-)	9.99800000e-01	2.00000000e-04
Cm-238	béta plus (β^+)	9.00000000e-01	1.00000000e-01
Cm-239	béta plus (β^+)	9.99000000e-01	1.00000000e-03
Cm-240	alpha (α)	9.94999961e-01	5.00003900e-03
Cm-241	béta plus (β^+)	9.90000000e-01	1.00000000e-03
Cm-242	alpha (α)	9.99999938e-01	6.20000000e-08
Cm-243	alpha (α)	9.97100000e-01	3.00000000e-04
Cm-244	alpha (α)	9.99998700e-01	1.30000000e-06
Cm-246	alpha (α)	9.99700000e-01	3.00000000e-04
Cm-248	alpha (α)	9.16100000e-01	1.60000000e-03
Bk-243	béta plus (β^+)	9.98500000e-01	1.50000000e-03
Bk-244	béta plus (β^+)	9.99940000e-01	3.00000000e-05
Bk-245	béta plus (β^+)	9.98800000e-01	1.00000000e-04
Bk-246	béta plus (β^+)	9.98000000e-01	2.00000000e-03
Bk-248m	béta moins (β^-)	7.00000000e-01	5.00000000e-02
Bk-249	béta moins (β^-)	9.99985500e-01	8.00000000e-07
Bk-251	béta moins (β^-)	9.99999900e-01	1.00000000e-07
Cf-245	béta plus (β^+)	6.40000000e-01	3.00000000e-02
Cf-246	alpha (α)	9.99957500e-01	4.25000000e-05
Cf-247	béta plus (β^+)	9.99650000e-01	5.00000000e-05
Cf-248	alpha (α)	9.99971000e-01	3.00000000e-06
Cf-250	alpha (α)	9.99230000e-01	3.00000000e-05
Cf-252	alpha (α)	9.69080000e-01	8.00000000e-05
Cf-253	béta moins (β^-)	9.96900000e-01	4.00000000e-04
Cf-254	fission spontanée (SF)	9.96900000e-01	2.00000000e-04

Mesures des sections efficaces de capture et potentiels d'incinération des actinides mineurs dans les hauts flux de neutrons : Impact sur la transmutation des déchets

Résumé

Cette thèse s'inscrit dans le cadre des études portant sur la transmutation nucléaire des actinides mineurs. Nous avons tout d'abord cherché à évaluer l'impact des incertitudes associées aux paramètres nucléaires des actinides mineurs dans le cas de l'incinération de l' ^{241}Am et du ^{237}Np dans trois spectres de réacteurs différents : EFR (rapide), GT-MHR (épithermique) et HI-HWR (thermique). Les paramètres nucléaires amenant le plus d'incertitude sur les grandeurs d'intérêt ont pu ainsi être mis en lumière. Ensuite, nous avons cherché à réduire les incertitudes pour une partie d'entre eux, dans le domaine thermique, grâce à des campagnes expérimentales dans les flux de neutrons intenses hautement modérés du réacteur de l'ILL (Grenoble). Les campagnes ont notamment portées sur l'étude de l'incinération et la transmutation de l'américium-241, du curium-244 et du californium-249. Au final, 12 valeurs de sections efficaces et le rapport d'embranchement isomérique de l'américium-241 ont ainsi pu être mesurés avec précision au point d'énergie thermique.

Mots clefs : transmutation, incinération, actinides mineurs, incertitudes, données nucléaires, flux intenses de neutrons thermiques, sections efficaces.

Measurements of the neutron capture cross sections and incineration potentials of minor-actinides in high thermal neutron fluxes: Impact on the transmutation of nuclear wastes

Summary

This thesis comes within the framework of minor-actinide nuclear transmutation studies. First of all, we have evaluated the impact of minor actinide nuclear data uncertainties within the cases of ^{241}Am and ^{237}Np incineration in three different reactor spectra: EFR (fast), GT-MHR (epithermal) and HI-HWR (thermal). The nuclear parameters which give the highest uncertainties were thus highlighted. As a result of fact, we have tried to reduce data uncertainties, in the thermal energy region, for one part of them through experimental campaigns in the moderated high intensity neutron fluxes of ILL reactor (Grenoble). These measurements were focused onto the incineration and transmutation of the americium-241, the curium-244 and the californium-249 isotopes. Finally, the values of 12 different cross sections and the ^{241}Am isomeric branching ratio were precisely measured at thermal energy point.

Key words: transmutation, incineration, minor actinides, uncertainties, nuclear data, intensive thermal neutron flux, cross sections.