



HAL
open science

Mesures pour de nouvelles filières de réacteurs nucléaires

L. Tassan-Got

► **To cite this version:**

L. Tassan-Got. Mesures pour de nouvelles filières de réacteurs nucléaires. IPN Science, 2007, 11, pp.4-7. in2p3-00262015

HAL Id: in2p3-00262015

<https://hal.in2p3.fr/in2p3-00262015>

Submitted on 10 Mar 2008

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Mesures pour de nouvelles filières de réacteurs nucléaires

Histoire et nouvelles perspectives

Dans les réacteurs nucléaires l'interaction entre les neutrons et les matériaux présents dans le cœur joue un rôle essentiel puisque les premiers propagent et entretiennent la réaction en chaîne. Une connaissance précise de cette interaction est nécessaire non seulement pour que le réacteur fonctionne, mais aussi pour qu'il reste dans des conditions de fonctionnement sûr. En particulier si un incident survient, conduisant à une perte du fluide de refroidissement ou une augmentation locale de température, la réaction en chaîne doit se ralentir automatiquement. Or un tel comportement dépend essentiellement du détail des propriétés neutroniques des matériaux. Ces considérations avaient motivé, dans les années soixante, le développement de programmes de mesures de sections efficaces neutroniques (cf. encadré «Section efficace»), avec des retombées importantes sur la connaissance fondamentale des noyaux, comme les densités de niveau, la fission, les isomères de forme, etc...

Section efficace

La section efficace caractérise la facilité avec laquelle un neutron peut interagir avec un noyau pour le faire fissionner ou être capturé. Elle est notée généralement σ , s'exprime comme une surface, et peut être assimilée à la surface que présente le noyau au neutron incident. Ses variations rapides en fonction de l'énergie du neutron ne peuvent être interprétées que dans le cadre de la physique quantique.

Depuis une vingtaine d'années cette activité s'était réduite mais une motivation récente est apparue pour lui donner une nouvelle impulsion : la perspective de transmutation de certains déchets, et l'utilisation éventuelle de filières régénératrices basées sur le thorium pour la production d'énergie.

La transmutation vise à transformer certains déchets dangereux sur plusieurs millénaires en déchets de durée de vie plus courte ou stables. Ceci peut être réalisé en les soumettant à un bombardement neutronique qui les fait fissionner. On peut ainsi « incinérer » ces déchets tout en produisant de l'énergie. Une autre voie prometteuse pour le futur est l'utilisation de filières basées sur le thorium, qui présentent plusieurs avantages : ressources quasiment illimitées, très faible production de déchets de longue durée, quantités réduites de matière fissile en réacteur.

Si les propriétés neutroniques des isotopes majeurs de la filière actuelle (^{235}U , ^{238}U et ^{239}Pu) sont connues avec une bonne précision, il n'en est pas de même pour certains isotopes, minoritaires aujourd'hui en réacteur mais qui verraient leur concentration augmenter si on avait à les incinérer. Par exemple l'américium est produit avec de faibles concentrations dans les réacteurs actuels, il contribue fortement pourtant à la radiotoxicité des déchets, c'est-à-dire leur dangerosité à long terme. Pour l'incinérer il faut le concentrer dans de nouveaux types de réacteurs et le faire fissionner. Ses propriétés neutroniques ont alors un impact important sur le comportement du réacteur. De même si des filières basées sur le thorium devaient être démarrées il faudrait atteindre pour les isotopes concernés (^{232}Th ,

^{233}U) une précision comparable à celle de la filière actuelle.

Un autre élément est venu s'insérer dans ce tableau : la possibilité d'utiliser des réacteurs sous-critiques pilotés par accélérateur pour incinérer des déchets. Dans de tels réacteurs les énergies de neutrons dépassent allègrement les 20 MeV (cf. encadré «Unités d'énergie») qui constituent la limite fatidique des mesures anciennes, et ceci appelle donc une extension des mesures vers les hautes énergies.

Unités d'énergie

L'unité usuelle d'énergie en physique atomique ou nucléaire est l'électronvolt (eV) et ses multiples keV (10^3 eV), MeV (10^6 eV) et GeV (10^9 eV). A titre d'exemple la fission d'un noyau dégage environ 200 MeV, alors que la combustion d'une molécule d'hydrogène produit 4.5 eV.

nTOF au CERN

C'est dans ce contexte que Carlo Rubbia, promoteur des réacteurs au thorium pilotés par accélérateur, a proposé et démarré la création d'une source de neutrons produits lors de la spallation induite par les protons de 20 GeV accélérés par le synchrotron à protons (PS) du CERN. Par un juste retour des choses la spallation servait d'instrument de mesure pour définir les conditions de sa mise en œuvre dans des réacteurs basés sur elle. Certes il ne s'agissait pas de la première source de neutrons de spallation, mais ses

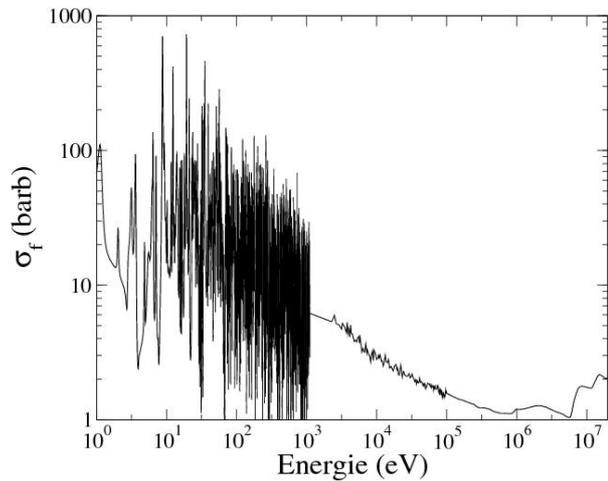


Fig1 : Section efficace de fission de ^{235}U en fonction de l'énergie du neutron qui le bombarde, montrant l'allure résonante à basse énergie.

caractéristiques allaient en faire une installation unique.

Pour comprendre les avantages d'une telle source il faut faire un petit rappel du comportement des sections efficaces neutroniques sur les actinides, c'est à dire les éléments plus lourds que l'actinium, comme le

thorium, l'uranium ou le plutonium. Au-dessous de 1 MeV seules 3 possibilités ont une probabilité significative : la diffusion élastique, la capture radiative et la fission. Jusqu'à quelques keV la section efficace est résonante sur les états quasi-liés du noyau composé, elle varie donc très rapidement avec l'énergie. Seule une source de neutrons à spectre continu en énergie permet de décrire correctement cette région. Au-delà de 1 MeV d'autres voies s'ouvrent mais elles conduisent souvent à de la fission après émission de 1 ou plusieurs neutrons. La figure 1 donne un exemple de la variation en énergie de la section efficace de fission de ^{235}U . Enfin au-delà de 100 MeV on entre dans le domaine de la spallation où de

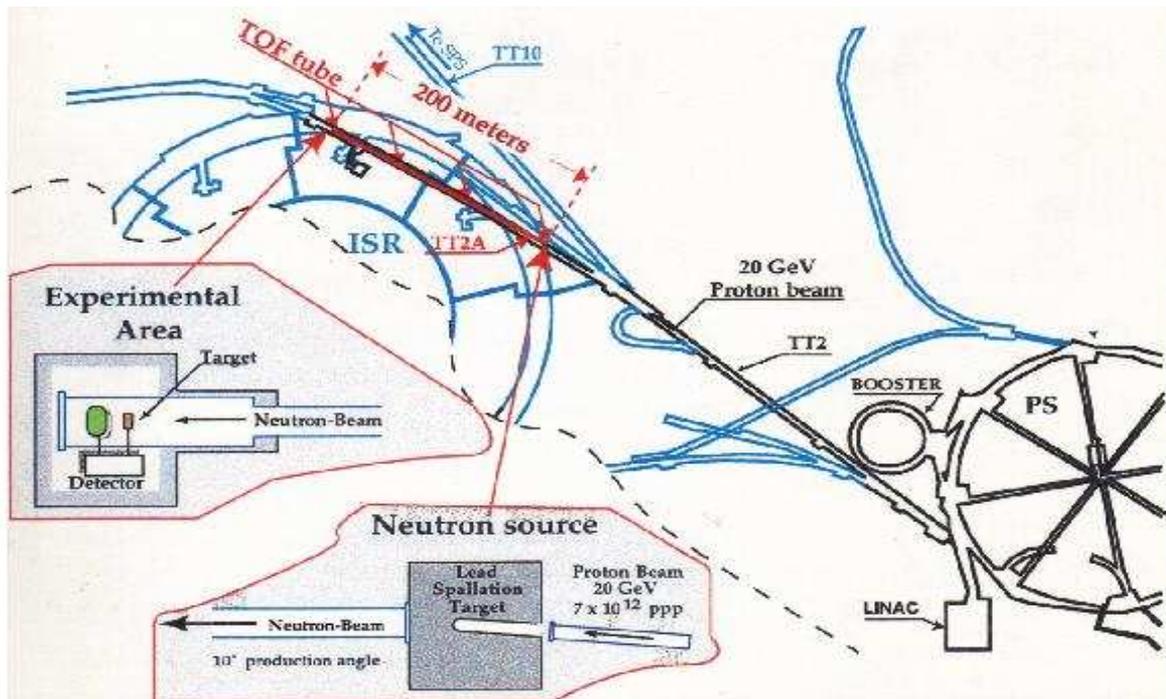


Fig2 : Installation nTOF au CERN. On distingue la cible de spallation où sont produits les neutrons par bombardement de protons accélérés à 20 GeV, et l'aire expérimentale où on étudie l'interaction de ces neutrons avec les actinides.

nombreux noyaux résiduels sont formés et où l'isotope à étudier et les détecteurs associés. La la fission est encore dominante. Il faut remarquer que même les noyaux dits « non fissiles » comme l' ^{234}U fissionnent dans la zone des résonances, bien que ce soit avec une probabilité nettement plus faible que les noyaux dits « fissiles » tels que l' ^{235}U .

gamme en énergie des neutrons produits est un record puisqu'elle va de 0,025eV (énergie moyenne correspondant au mouvement thermique) jusqu'à plusieurs GeV, l'énergie du neutron induisant une réaction étant obtenue par mesure de son temps de vol (cf. encadré « Temps de vol »).

La nécessité de couvrir un large spectre en énergie des neutrons, et de manière continue, a été l'une des motivations principales de la construction de nTOF. Les protons de 20 GeV viennent frapper un bloc de plomb (figure 2) dans lequel chaque proton produit des centaines de neutrons dans toutes les directions. Ces derniers sont partiellement ralentis par chocs successifs dans le massif de plomb et dans une lame d'eau, et certains entrent dans le long tuyau (185m) qui les conduit à la station de mesure où se trouvent

Ce qui fait de nTOF une installation unique, c'est sa large gamme en énergie, sa grande précision sur l'énergie à cause de la longue base de temps de vol, et son énorme flux instantané. Chaque paquet de faisceau de protons fournit pour la mesure un nombre de neutrons 200 fois plus grand que sur des installations similaires. Il est vrai que le flux moyen reste comparable à cause du temps important entre les paquets, mais le haut flux instantané est un atout majeur pour la mesure

Temps de vol

Contrairement aux particules chargées les neutrons n'interagissent pas avec les électrons d'un milieu, ils ne sont donc détectables que lorsqu'ils produisent une réaction nucléaire... dans laquelle souvent ils disparaissent ou qui change fortement leurs caractéristiques. Pourtant si la source produit des neutrons dans une large gamme en énergie, comme c'est le cas pour la spallation, il faut connaître l'énergie de celui qui a produit ensuite la réaction à laquelle on s'intéresse, par exemple la fission ou la capture. Ceci est obtenu par temps de vol. Le premier top est donné par l'instant très court (10ns à nTOF) pendant lequel le faisceau de protons est déversé pour produire les réactions de spallation qui génèrent les neutrons. Le deuxième top est donné par la détection des produits (photon γ , fragment de fission) de la réaction induite par un neutron après qu'il ait parcouru une distance importante L . Si T est le temps entre ces 2 tops, l'énergie est obtenue par la formule classique $E = \frac{1}{2} m \left(\frac{L}{T} \right)^2$ ou son équivalent relativiste.

des isotopes radioactifs en minimisant le bruit de fond provenant de la radioactivité.

La quête des isotopes

Certains des isotopes dont on veut mesurer les sections efficaces sont des déchets qu'on voudrait incinérer. Ils sont donc radioactifs et produits en quantité notable dans les réacteurs actuels. On pourrait donc penser naïvement

qu'il est facile de s'en procurer de très petites quantités (quelques dizaines de mg) pour en faire des cibles de mesure. Il n'en est rien car les mesures réclament des échantillons de grande pureté chimique et isotopique. Si par exemple du ^{237}Np contient 0.1% de ^{239}Pu , c'est la fission de ce dernier qui dominera la section efficace aux basses énergies. Cette accessibilité aux isotopes de grande pureté est une difficulté essentielle des mesures surtout quand elle concerne les actinides très radioactifs comme le plutonium, l'américium et le curium. Cette tendance a été accentuée par l'abandon progressif des installations de

purification chimique ou isotopique sous la pression des normes qui devenaient plus restrictives. Aujourd'hui il n'y a pratiquement plus de production d'isotopes séparés et chacun en est réduit à puiser dans

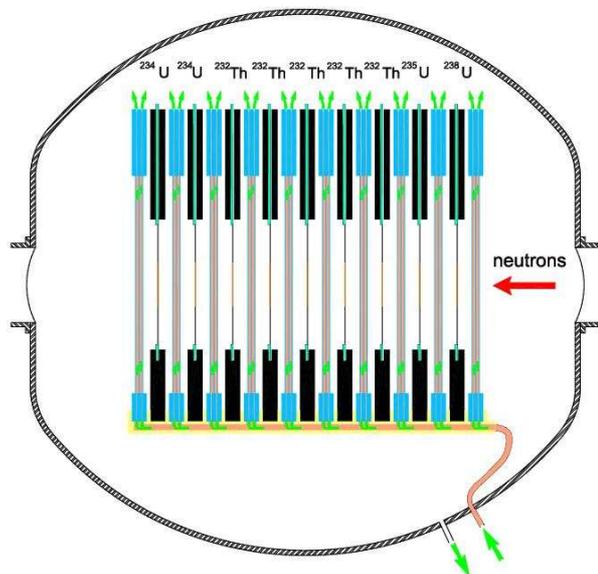


Fig3 : Ensemble de détection constitué d'une alternance de 9 cibles et 10 détecteurs. Le faisceau de neutrons traverse l'ensemble, et les fragments de fission émis par une cible sont détectés dans les 2 détecteurs qui l'entourent.

l'existant... quand il existe. Les isotopes que nous avons pu nous procurer avec la pureté suffisante sont ^{233}U , ^{234}U , ^{235}U , ^{237}Np , ^{232}Th . Nous avons également obtenu de l' ^{238}U ultra-pur par séparation magnétique de l'uranium naturel au CSNSM (Centre de Spectrométrie Nucléaire et de Spectrométrie de Masse d'Orsay).

Posséder un échantillon d'isotope séparé ne suffit pas pour avoir une cible. Notre objectif étant de mesurer la fission il faut que la cible

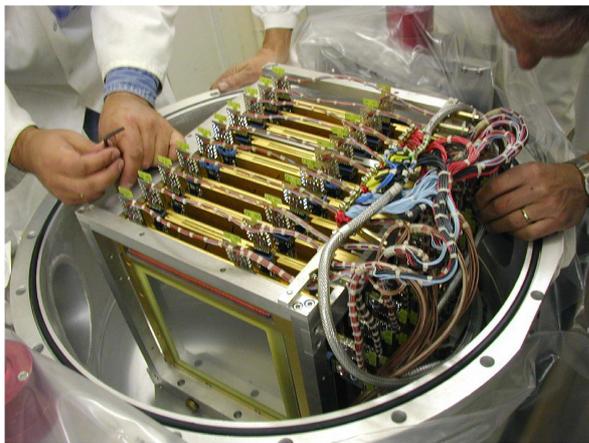


Fig4 : Photo de l'ensemble expérimental montrant les détecteurs et les espaces dans lesquels les cibles sont ultérieurement insérées.

soit suffisamment mince pour que les fragments de fission en sortent : de l'ordre de $0.1\mu\text{m}$. Il faut d'autre part que sa taille soit grande (disque de 8cm de diamètre) pour couvrir au mieux le faisceau de neutrons et produire le maximum de fissions. Avec de telles tailles il faut que le matériau cible soit déposé sur une feuille support qui doit être la plus mince possible ($2\mu\text{m}$ d'aluminium) pour laisser également passer les fragments de fission. Réaliser des cibles aussi fragiles avec des isotopes radioactifs ayant des activités de plusieurs millions de becquerels en α , et

émanatrices de radon, n'a pu être possible que grâce aux compétences et au travail des radiochimistes de l'IPN.

Les mesures

La possibilité d'atteindre à nTOF des énergies jusqu'au GeV, c'est-à-dire le domaine de la spallation par neutron, nous a amenés à choisir une méthode de détection en coïncidence des fragments de fission, pour les trier parmi les autres voies ouvertes à ces énergies, d'où des contraintes très sévères sur l'épaisseur des composants de cible et les électrodes des détecteurs. Nous avons opté pour des compteurs à avalanche à plaques parallèles qui ont l'avantage d'être très minces, d'avoir un temps de réponse très rapide, et de localiser le passage des fragments.

La figure 3 donne une représentation schématique du système expérimental montrant qu'il est constitué de 10 détecteurs entrelacés avec les 9 cibles. A chaque déclenchement de fission, les 2 fragments sont vus par les 2 détecteurs situés de part et d'autre de la cible concernée. Le faisceau de neutrons traverse l'ensemble des cibles et détecteurs sans souffrir une altération notable en raison de la finesse des cibles, des supports et des électrodes de détection. La figure 4 donne une vue réelle de la pile des détecteurs avant insertion des cibles dans les espacements libres. L'étude de la chambre à réaction, des détecteurs, de l'électronique a entièrement été effectuée à l'IPN par le Service Détecteurs et par le Service d'Electronique Physique.

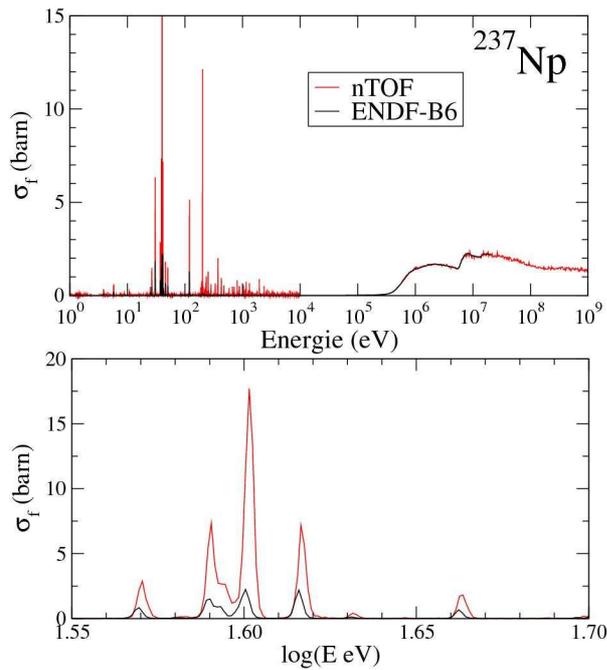


Fig5 :

Haut : Section efficace de fission du ^{237}Np mesurée à nTOF et comparée à la base de données américaine, la mesure couvrant 9 décades sur l'énergie du neutron.

Bas : Agrandissement de la partie autour de 40 eV où on constate que la valeur donnée dans la base de données sous-estimait largement la section efficace de fission.

Les résultats

La section efficace de fission a été mesurée pour les isotopes : ^{233}U , ^{234}U , ^{237}Np et ^{232}Th , le flux de neutrons étant étalonné à partir des sections efficaces bien connues de ^{235}U et ^{238}U . A titre d'exemple, la figure 5 montre la section efficace obtenue pour le ^{237}Np pour des énergies de neutrons couvrant le domaine de 1 eV à 1 GeV, soit 8 ordres de grandeur en énergie. Sur le même diagramme on voit également la section efficace « recommandée », basée essentiellement sur une mesure datant de 1973. La partie basse de la figure montre de manière plus détaillée une portion dans la zone des résonances. La grande surprise de la nouvelle mesure est qu'elle indique que la section efficace de fission était largement sous-estimée dans cette région d'énergie. Ceci pourrait avoir un effet non négligeable si on devait par exemple incinérer du neptunium.

Le futur

Le faisceau de neutrons nTOF a des caractéristiques très prometteuses. Pour les mesures de capture il est particulièrement adapté aux échantillons très radioactifs, et pour la fission il atteint et couvre le domaine de la spallation par neutrons où des phénomènes intéressants apparaissent graduellement quand l'énergie de bombardement augmente : dissolution des effets de couche et de la force d'appariement, entrée en action du temps de retard à la fission, transfert de moment cinétique dans la spallation. Comme par le passé, les mesures motivées par de possibles applications apporteront sans doute des informations importantes sur les noyaux et sur les réactions. L'avenir de l'installation nTOF reste cependant suspendu aux règles extrêmement restrictives et onéreuses en matière de radioprotection.