

Cycle Thorium et Actinides Mineurs

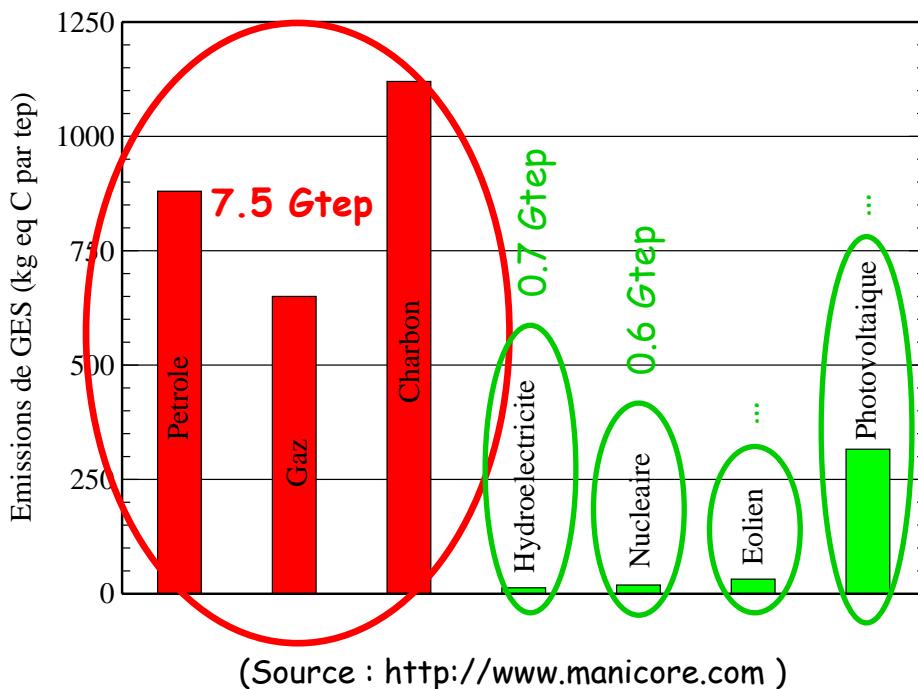
Ludovic MATHIEU

ATER

Centre d'Etudes Nucléaires de
Bordeaux Gradignan

Problématique de l'Energie

Emissions de Gaz à Effet de Serre



Hausse de consommation

2000 : 10 Gtep

2050 : 20 Gtep

(40 Gtep sans économies d'énergies)

Objectif : produire 10 Gtep sans émission de GES

L'énergie nucléaire peut jouer un rôle.

Quid des déchets nucléaires?

Plan

I- Cycle Thorium

II- Actinides Mineurs

Plan

I- Cycle Thorium
Réacteurs à Sels Fondus
Mesure du rapport α de l' ^{233}U

I- Cycle Thorium

Production d'énergie

- par fission d'un isotope fissile
- seul ^{235}U existe à l'état naturel (parmi ^{238}U)

Régénération

Production de noyaux **fissiles** à partir de noyaux **fertiles** (beaucoup plus abondants)

Cycles du Combustible



Cycle uranium



Cycle thorium

I- Cycle Thorium

Cycle Thorium

- alternative au cycle actuel
- augmentation des ressources
- objectif : produire moins de déchets très radioactifs

cycle Uranium
 cycle Thorium

^{233}U fissile $1.59 \cdot 10^5$ ans	^{234}U	^{235}U fissile $7.04 \cdot 10^8$ ans
	^{233}Pa	^{234}Pa
	27 jours	6.70 heures

^{232}Th fertile $1.40 \cdot 10^{10}$ ans	^{233}Th
	22.3 min

^{242}Cm	^{243}Cm	^{244}Cm	^{245}Cm	^{246}Cm
162.8 jours	29.1 ans	18.1 ans	8 500 ans	4 730 ans
432.2 ans				

^{238}Pu	^{239}Pu fissile 24 110 ans	^{240}Pu	^{241}Pu
87.7 ans		6 563 ans	14.35 ans
$2.14 \cdot 10^6$ ans	2.12 jours	2.36 jours	61.9 min

TransUraniens

Charte des isotopes

I- Cycle Thorium

Propriétés neutroniques du cycle thorium

Nombre de neutrons disponibles par fission

$$N_d = v$$

v : nombre de neutrons libérés

$$N_d = v - 1$$

pour maintenir la réaction en chaîne

$$N_d = v - (1+\alpha)$$

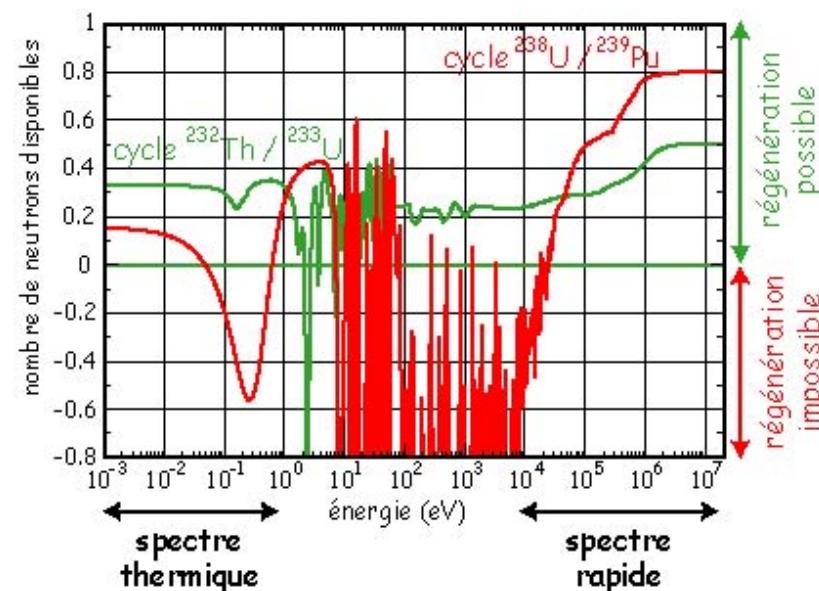
car le noyau fissile capture aussi des neutrons

avec $\alpha = \frac{\sigma(n, \gamma)}{\sigma(n, f)}$

$$N_d = v - 2(1+\alpha)$$

pour régénérer les noyaux fissiles consommés

Cycle Thorium utilisable avec tout type de spectre neutronique



Réacteurs à Sel Fondu

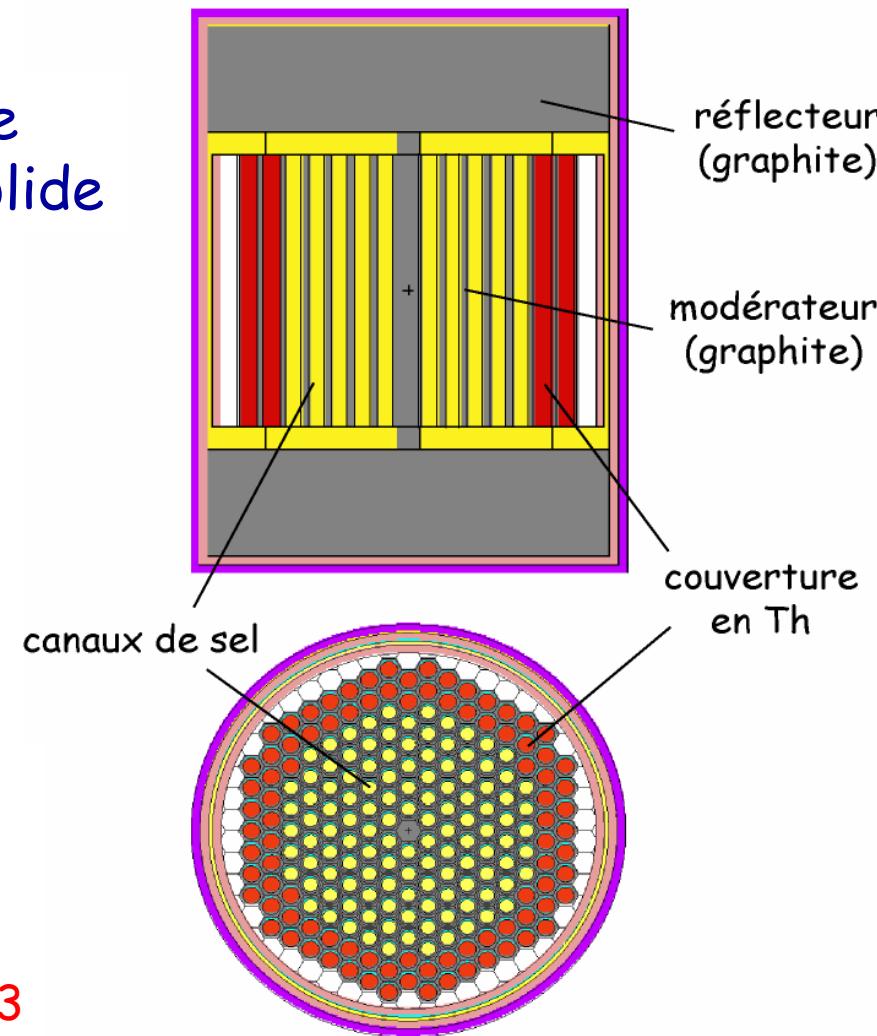
utilisation d'un combustible liquide dans un modérateur solide

Avantages :

- retraitement en ligne possible
- pas de réserve de réactivité
- pas de forte pression
- pas de fabrication du combustible
- combustible homogénéisé

Inconvénients :

- corrosion par le sel
- combustible dans les échangeurs
- 2 barrières de confinement au lieu de 3



Réacteurs à Sel Fondu

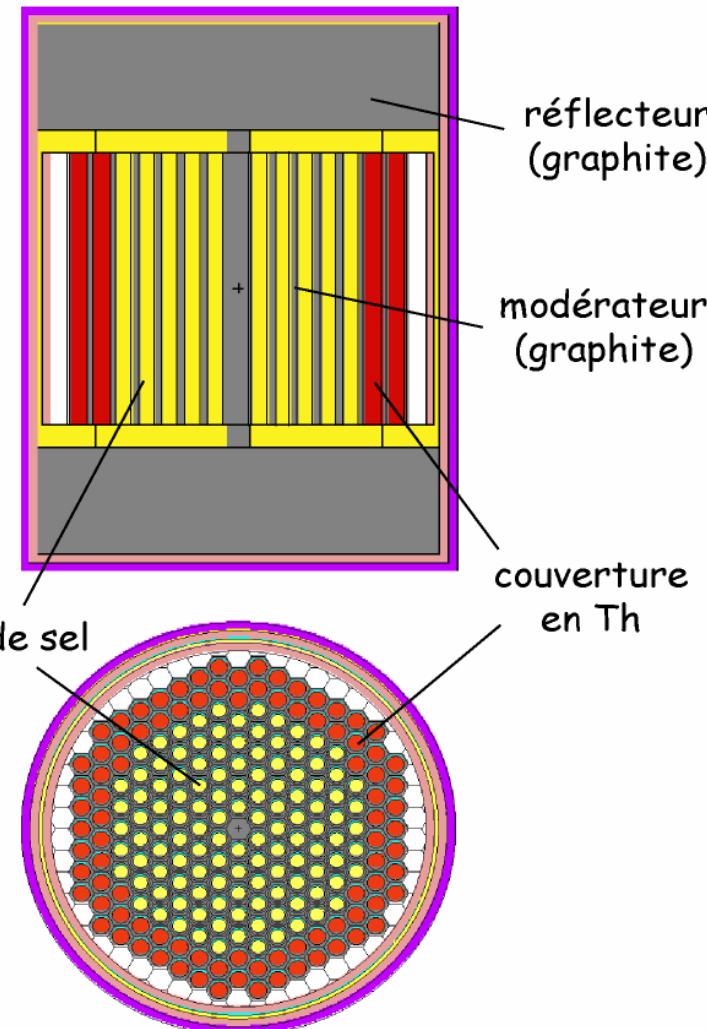
utilisation d'un combustible liquide dans un modérateur solide

Projet de référence :
le Molten Salt Breeder Reactor (MSBR)

Trois défauts majeurs du MSBR :

- coefficient de température positif
- irradiation du graphite trop importante
- retraitement du combustible trop complexe

Objectif de l'étude : trouver des configurations satisfaisantes de RSF



Études réalisées

(simulations par le couplage MCNP/REM)

- définition d'une configuration de référence
- variation de chaque paramètre
- étude de l'impact sur une série de contraintes

Étude la
plus globale
possible

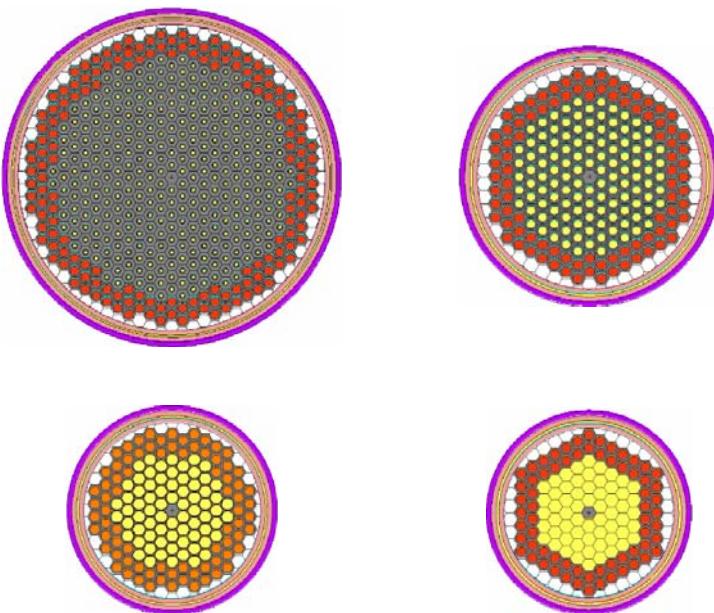
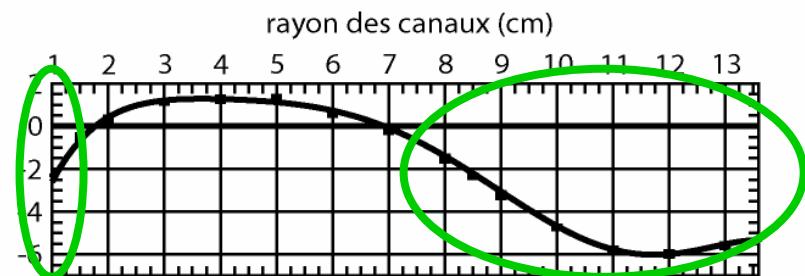
- . coefficients de température
- . taux de régénération
- . durée de vie du graphite
- . inventaire fissile initial
- . faisabilité du retraitement
-

Attention : oubli d'une contrainte → risque d'impasse

Études du rapport de modération

Spectre neutronique:
de très thermique à
quasi-rapide

coefficients total de température ($\text{pcm}/^{\circ}\text{C}$)



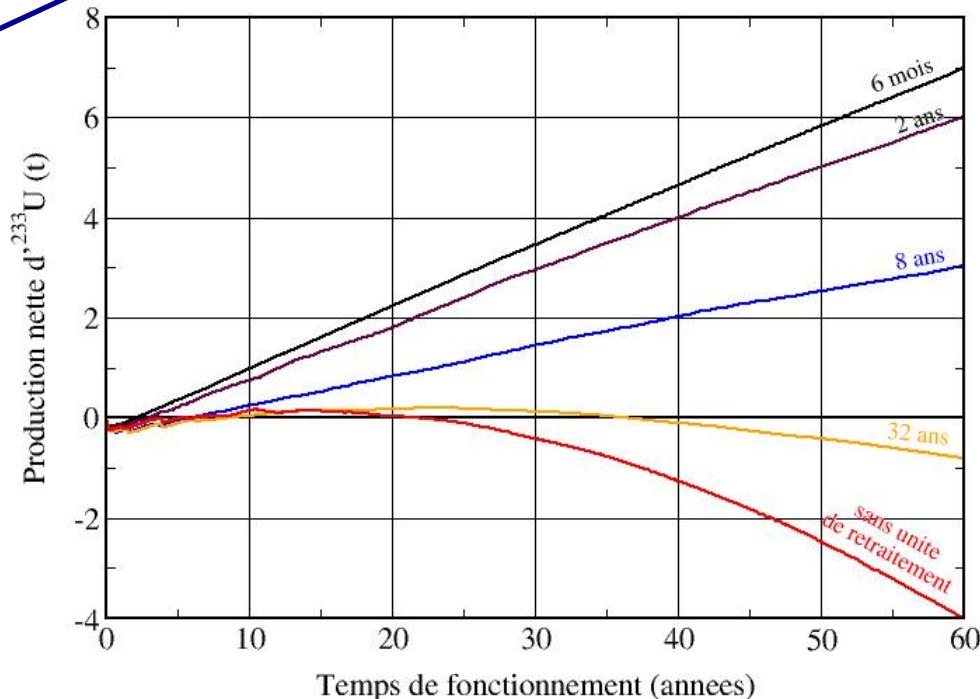
TMSR non-modéré (spectre rapide)

Propriétés :

- très bonne sûreté
- très bonne régénération
- pas de problème d'irradiation du graphite
- géométrie très simple
- inventaire initial élevé
- retraitement délicat

Ces bonnes propriétés donnent une grande marge de manœuvre

Simplification possible du retraitement



TMSR non-modéré (spectre rapide)

Propriétés :

- très bonne sûreté
- régénération suffisante
- pas de problème d'irradiation du graphite
- géométrie très simple
- inventaire initial élevé
- retraitement gérable

+

ressources
inexistantes d' ^{233}U

Etudes sur le
démarrage de
TMSR Rapides

Cycle U/Pu

Cycle Th/ ^{233}U

REP
actuels

Pu et
AM

TMSR
démarrés au
Pu et AM

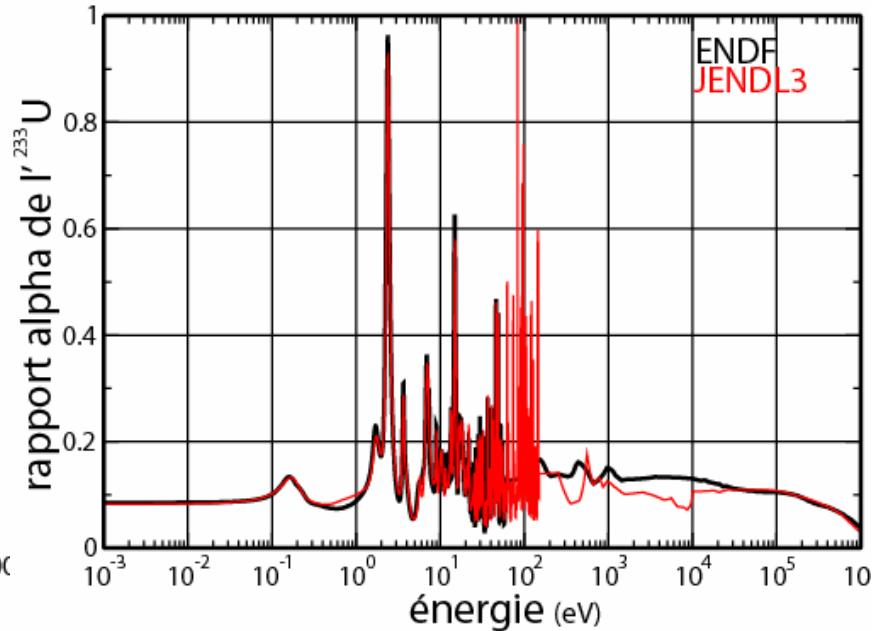
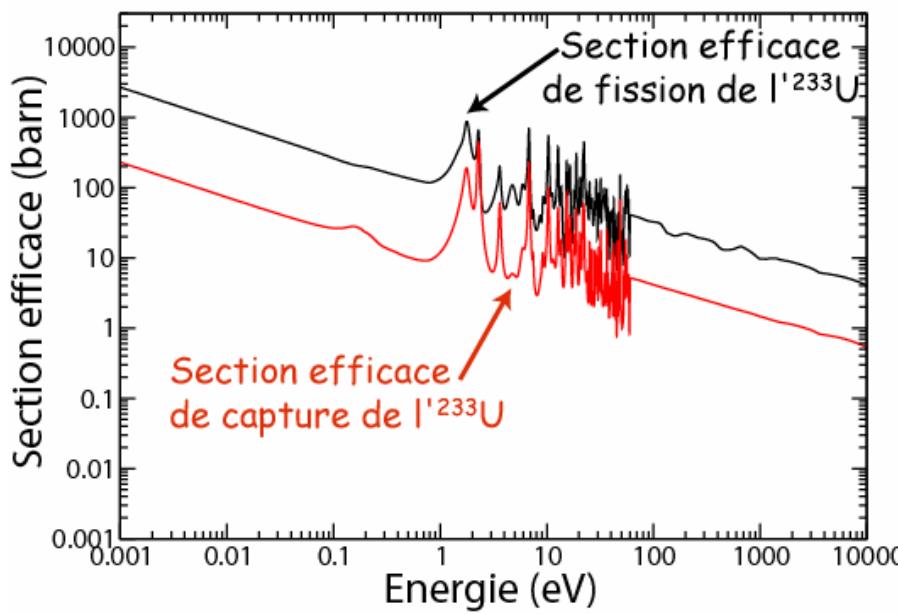
^{233}U

TMSR
démarrés
à l' ^{233}U

Rapport alpha

$$\alpha = \frac{\sigma(n, \gamma)}{\sigma(n, f)}$$

Intervient sur la régénération :
 $N_d = v - 2(1+\alpha)$



Rapport alpha

Evaluation ENDF ne repose que sur 4 mesures expérimentales :

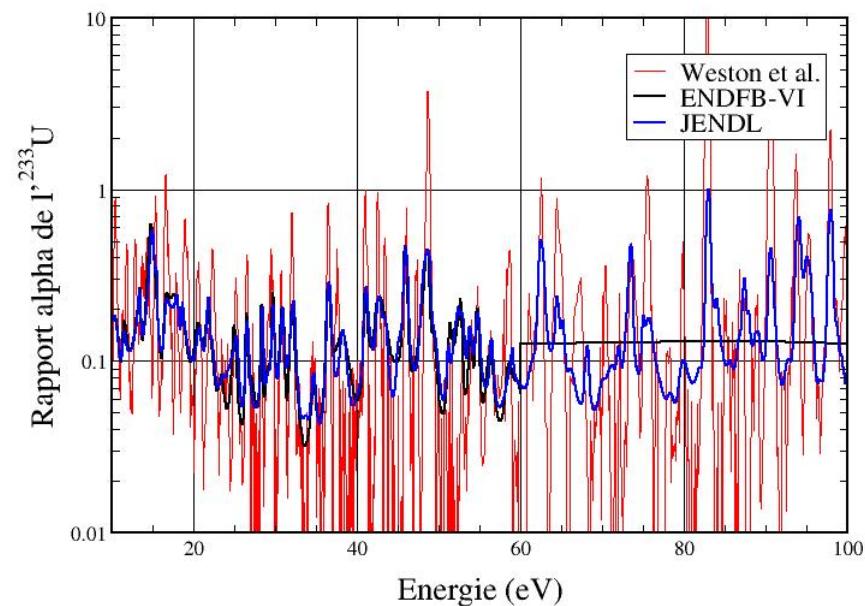
- Brooks et al. (1966) : [35 meV - 11 eV]
- Weston et al. (1968) : [0.4 eV - 2 keV]
- Hopkins et al. (1962) : [30 keV - 1 MeV]
- Cabell et al. (1965) : mesure intégrale (spectre thermique)

Peu de renseignements :

- sur les incertitudes
- sur les domaines d'énergie des mesures intégrales

Nécessité d'expériences complémentaires :

- pour valider les données existantes
- pour contraindre les modèles



Mesure différentielle à Bordeaux

Mesure directe : ^{233}U dans un flux de neutrons

Mesure simultanée de $\sigma(n,f)$ et $\sigma(n,\gamma)$:

suppression de l'incertitude sur ϕ_n dans le rapport α

Difficulté de la mesure :

réaction (n,f)
 σ grand + multiplicité $\gamma \sim 8$

VS

réaction (n,γ)
 σ faible + multiplicité $\gamma \sim 4$

identification des γ
de capture difficile

éviter au maximum les
erreurs d'interprétation
fission/capture

détection de la fission
(anti-coïncidence) avec une
très bonne efficacité

Principe de l'expérience

Contraintes :

- géométrie compacte (bonne localisation des réactions)
- utilisation du maximum de matière fissile (taux de comptage faible)
- limitation de l'épaisseur des cibles (sortie des fragments de fission)

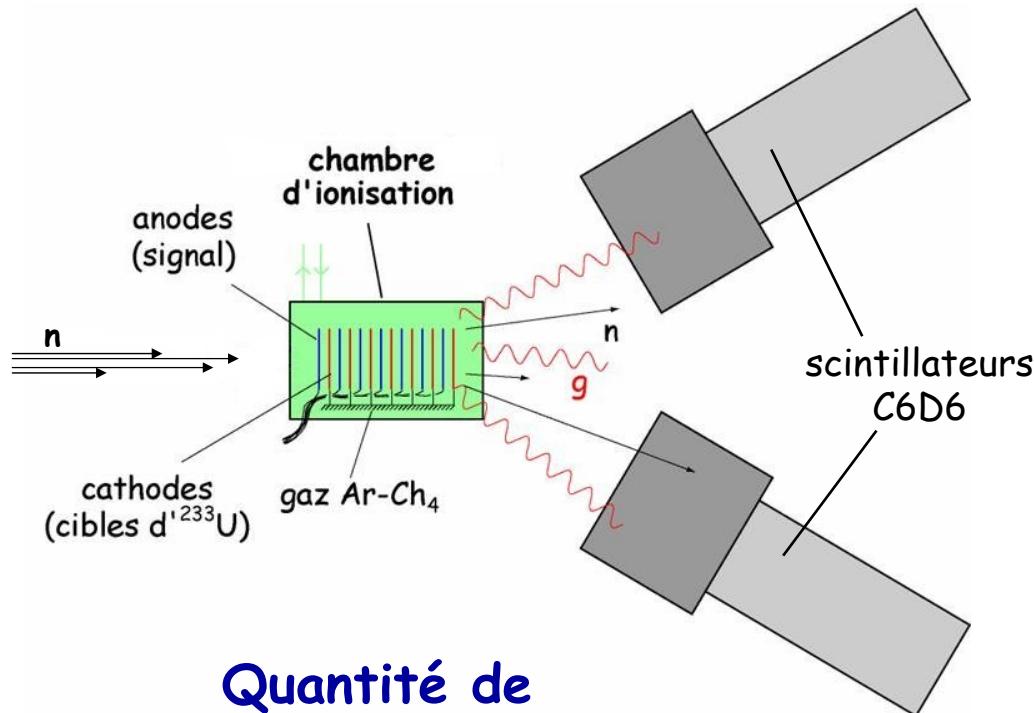
Détection des fragments : chambre d'ionisation multi-plaques

Détection des γ : plusieurs détecteurs à scintillation C6D6

Identification des γ de capture : anti-coïncidence avec la détection des fragments

Mesure de l'énergie des neutrons :
par temps de vol entre source et cibles, $E_n \in [10\text{eV};100\text{eV}]$

Dispositif expérimental



Quantité de matière fissile :
au final entre 5 et 10 mg d' ^{233}U (2 à 4 MBq)

Nombre de C_6D_6 :
une dizaine

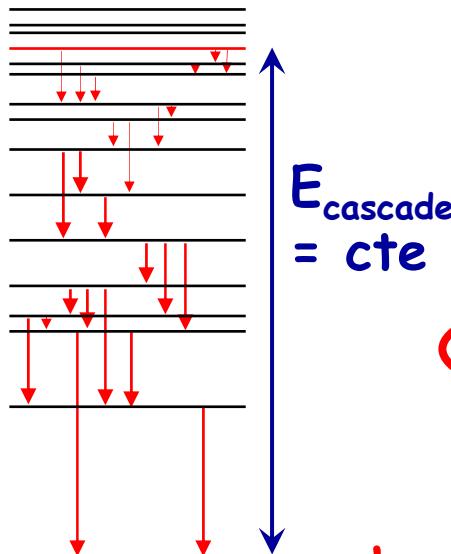
Nombre d'électrodes :
entre 10 et 20 plaques



Détection des cascades γ

Pas de lien direct spectre γ détecté / nombre d'événements

Différents chemins de désexcitation : différentes efficacités $\varepsilon_{\text{cascade}}$



probabilité de détection d'un γ incident: ε_i

probabilité de détection d'une cascade γ
(détection d'un des γ):

$$\varepsilon_{\text{cascade}} = \sum_i^m \varepsilon_i \text{ car } \varepsilon_i \ll 1$$

hypothèse : $\varepsilon_i = k \cdot E_i$

ce qui donne : $\varepsilon_{\text{cascade}} = k \sum_i^m E_i$

$\boxed{\varepsilon_{\text{cascade}} = k \cdot E_{\text{cascade}}}$

hypothèse
non vérifiée

→ Introduction des fonctions poids

$\varepsilon_{\text{cascade}}$ indépendante
du chemin de
désexcitation

Principe des fonctions poids

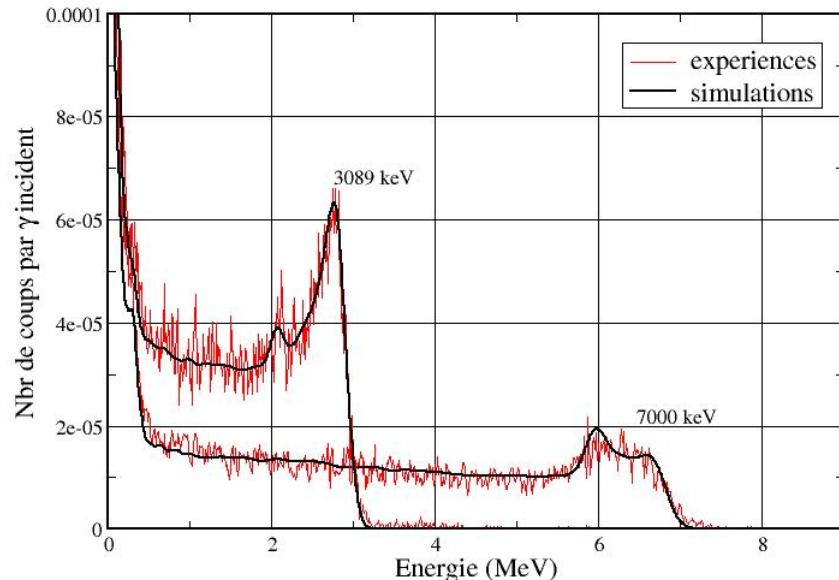
(Thèse S. Boyer)

**fonction de réponse
pour un γ d'énergie E_i :**

$$R(E_d) \text{ avec } \sum_{E_d=0}^{E_i} R(E_d) = \varepsilon_{E_i}$$

**Nécessité d'expériences étalons
pour valider les simulations à
différents E_i :**

- source γ ($^{137}\text{Cs}, ^{60}\text{Co}...$)
- réaction $(\text{p},\alpha)(^3\text{He},\text{p})...$



Exemple pour deux γ incidents
avec $E_i = 3089$ et 7000 keV

Très bon accord
expériences/simulations

Principe des fonctions poids

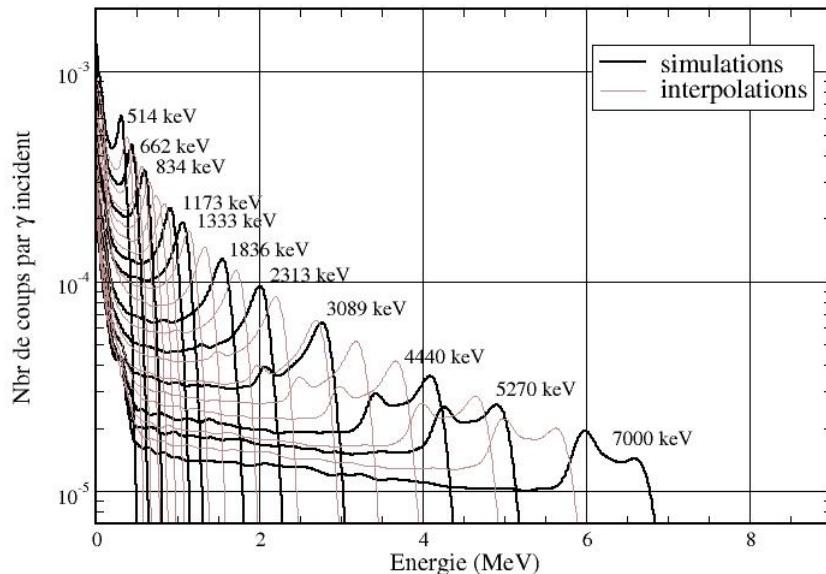
fonction de réponse
pour un γ d'énergie E_i :

$$R(E_d) \text{ avec } \sum_{E_d=0}^{E_i} R(E_d) = \varepsilon_{E_i}$$

fonction de réponse pour plusieurs énergies de γ :

$$\text{matrice } R(E_d, E_i)$$

Interpolation calculée pour construire la matrice continue



Exemple de simulations pour plusieurs γ incidents

Principe des fonctions poids

fonction de réponse
pour un γ d'énergie E_i :

$$R(E_d) \text{ avec } \sum_{E_d=0}^{E_i} R(E_d) = \varepsilon_{E_i}$$

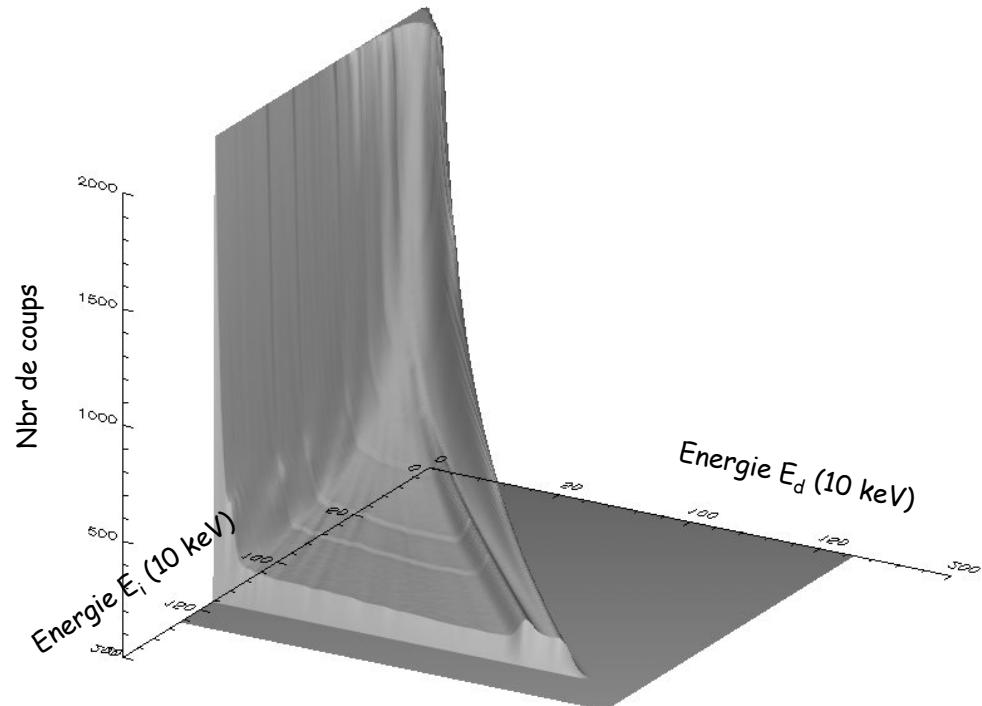
fonction de réponse pour plusieurs énergies de γ :

matrice $R(E_d, E_i)$

Interpolation calculée pour construire la matrice continue

avec
toujours

$$\sum_{E_d=0}^{E_i} R(E_d, E_i) = \varepsilon_{E_i}$$



Matrice continue

Principe des fonctions poids

fonction de réponse pour plusieurs énergies de γ :

matrice $R(E_d, E_i)$

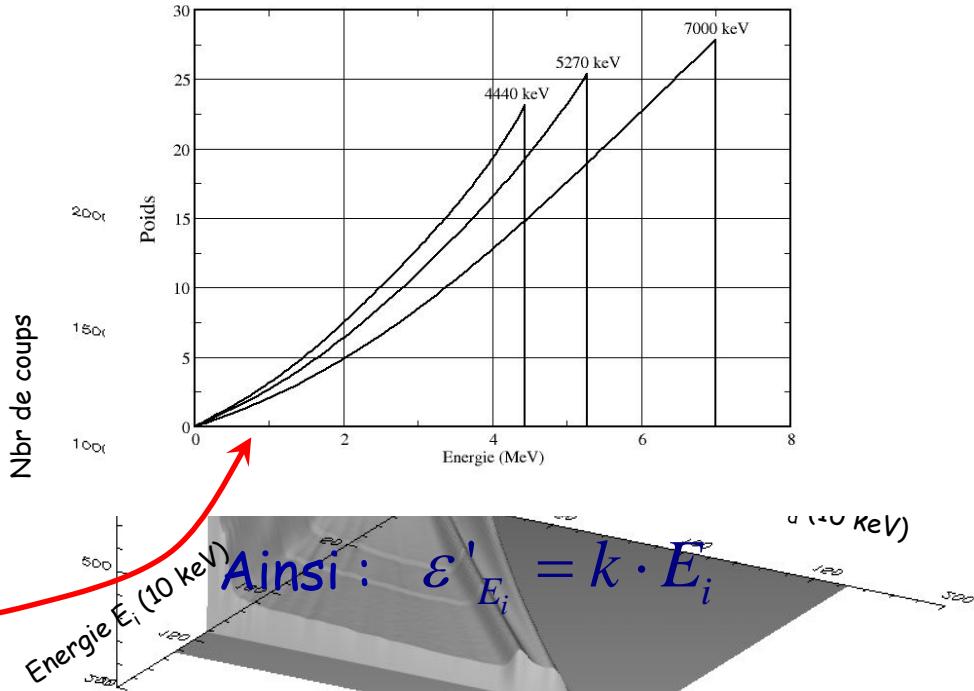
avec toujours

$$\sum_{E_d=0}^{E_i} R(E_d, E_i) = \varepsilon_{E_i}$$

Pour un E_{cascade} donné, il existe une fonction poids : $W(E_d)$

tel que :

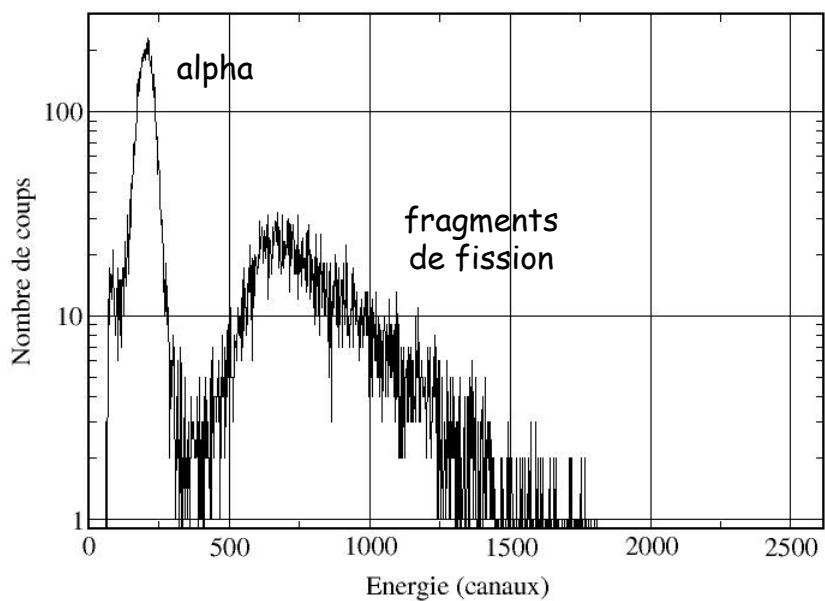
$$\sum_{E_d=0}^{E_i} (W(E_d) \cdot R(E_d, E_i)) = k_{E_c} \cdot E_i$$



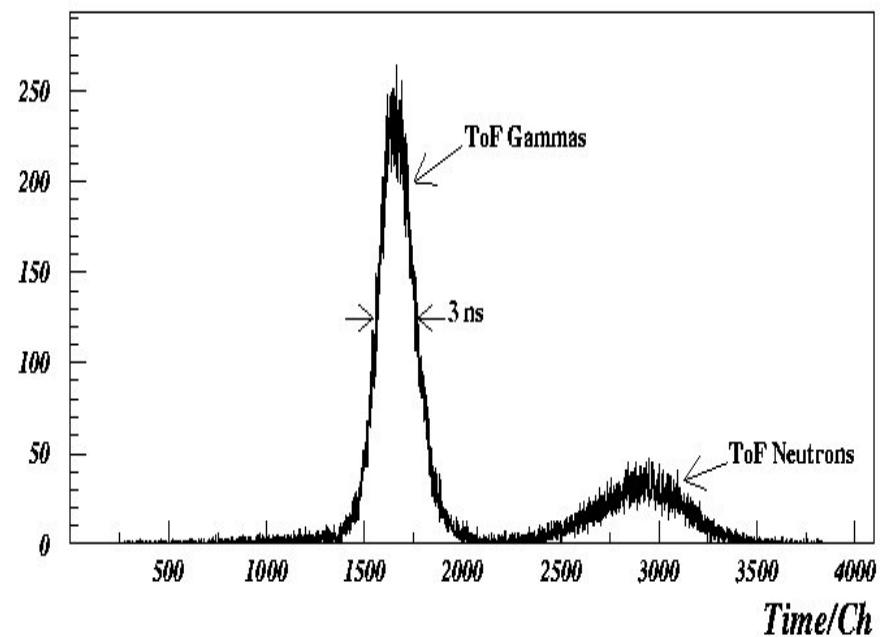
E_{cascade} indépendante du chemin de désexcitation et donc connue

Résultats des expériences préliminaires (AIFIRA)

Séparation en énergie alpha-fragnents



Résolution temporelle et séparation γ -neutrons



Efficacité de détection de la chambre d'ionisation : **(96±0.5)%**

Mesure semi-intégrale à Grenoble

(Thèse en cours
M.-A. Cognet)

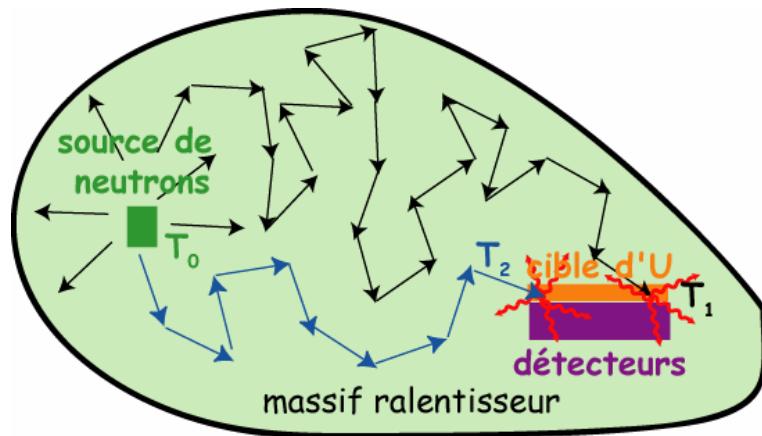
Mesure directe : ^{233}U dans un flux de neutrons (GENEPI)

Mesure simultanée de $\sigma(n,f)$ et $\sigma(n,\gamma)$:

suppression de l'incertitude sur ϕ_n dans le rapport α

Mêmes difficultés de mesures (discrimination des γ de capture...)

Dispositif utilisé : spectromètre à temps de ralentissement



Relation entre
Energie et Temps

Faible résolution en énergie

→ Mesure semi-intégrale

Plan

I- Cycle Thorium

II- Actinides Mineurs

Plan

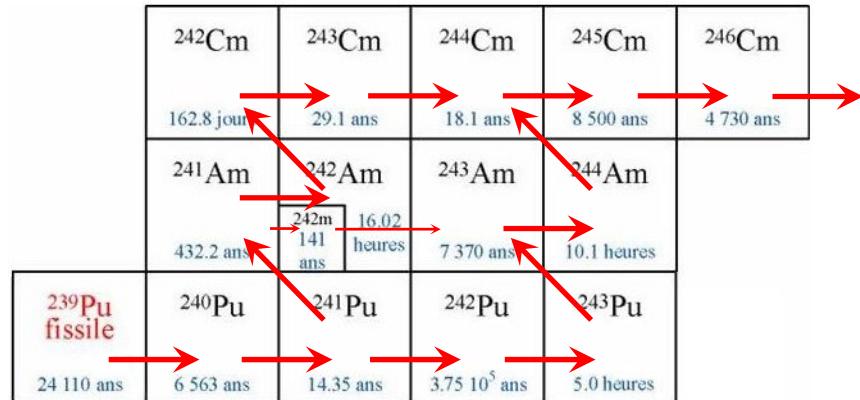
II- Actinides Mineurs

Mesures par méthode directe

Mesures par méthode indirecte

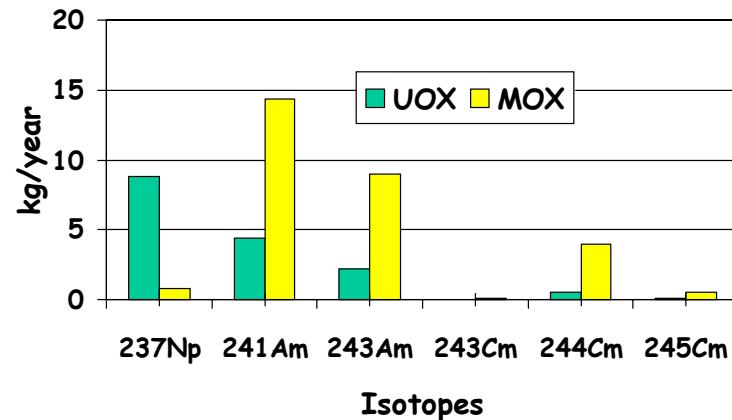
II- Actinides Mineurs

Problématique des Actinides Mineurs



Charte des isotopes

Actinides mineurs dans le combustible usé
(REP 900 MWe après 4 ans)



Noyaux Très Radiotoxiques

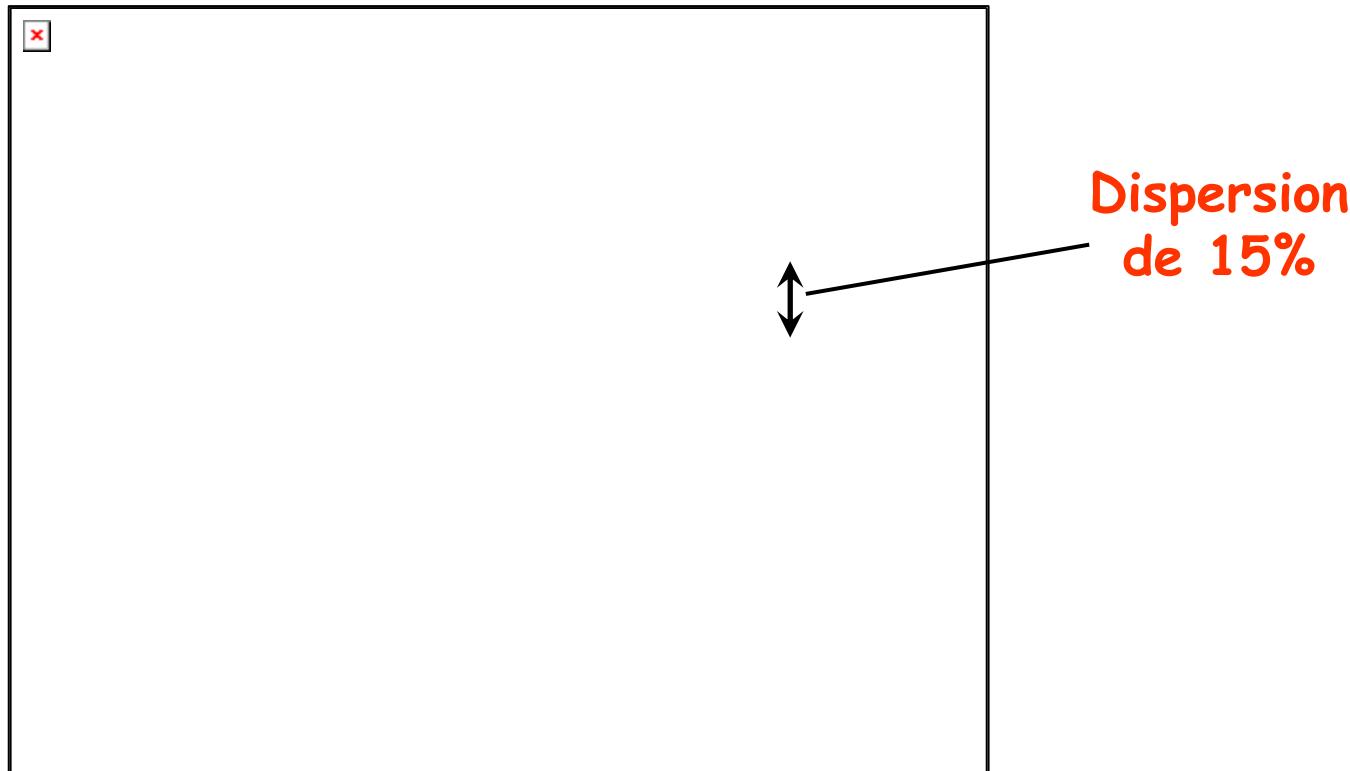
Gestion difficile en combustible ou en stockage

- 1- Diminution de la production (cycle thorium)
- 2- Incinération en réacteur

Mesure par méthode directe de $\sigma(n,f)$ de l' ^{243}Am

Pourquoi ces mesures?

(Thèse en cours G. Kessedjian)



Section efficace $\sigma(n,f)$ de l' ^{243}Am

Mesure par méthode directe de $\sigma(n,f)$ de l' ^{243}Am

Mesure directe : ^{243}Am dans un flux de neutrons

Mesure de $\sigma(n,f)$ seule : difficulté de mesure de ϕ_n

Habituellement : utilisation d'une réaction de référence
 $^{238}\text{U}(n,f)$ ou $^{235}\text{U}(n,f)$ (5% de dispersion des données)

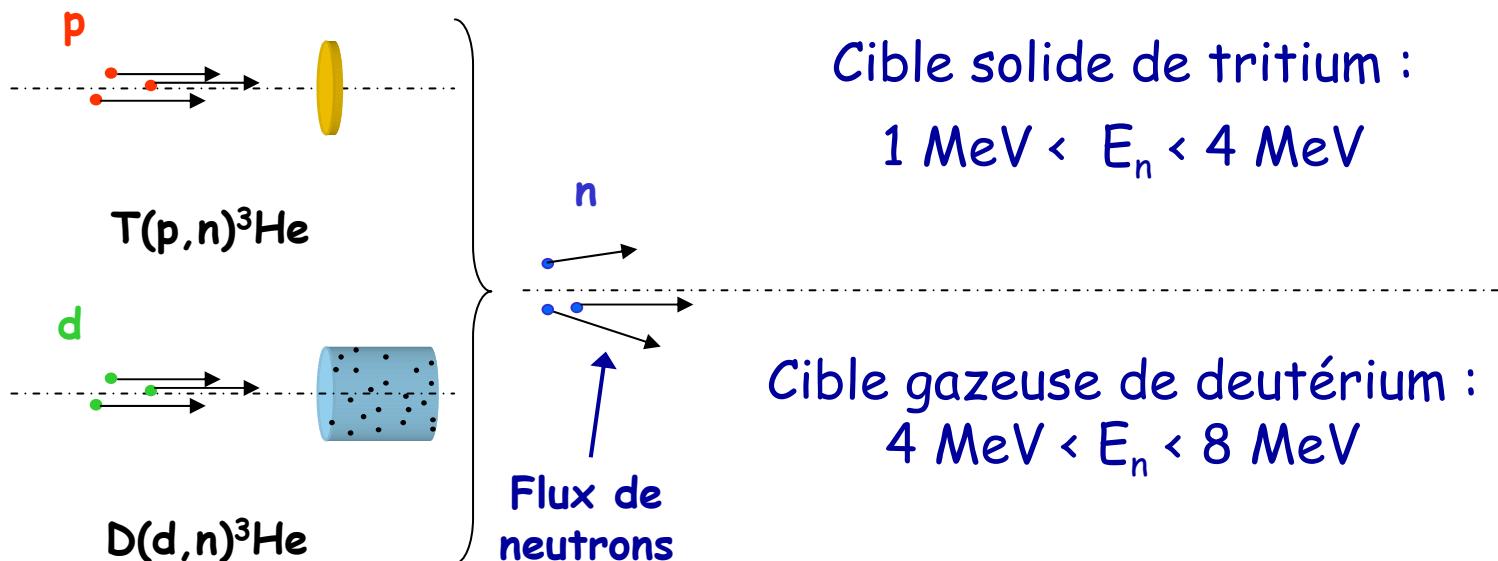
Pour cette expérience : référence par réaction (n,p)
(0.5% d'incertitude à ces énergies)

→ utilisation d'un matériau riche en Hydrogène pour obtenir un flux de proton de recul

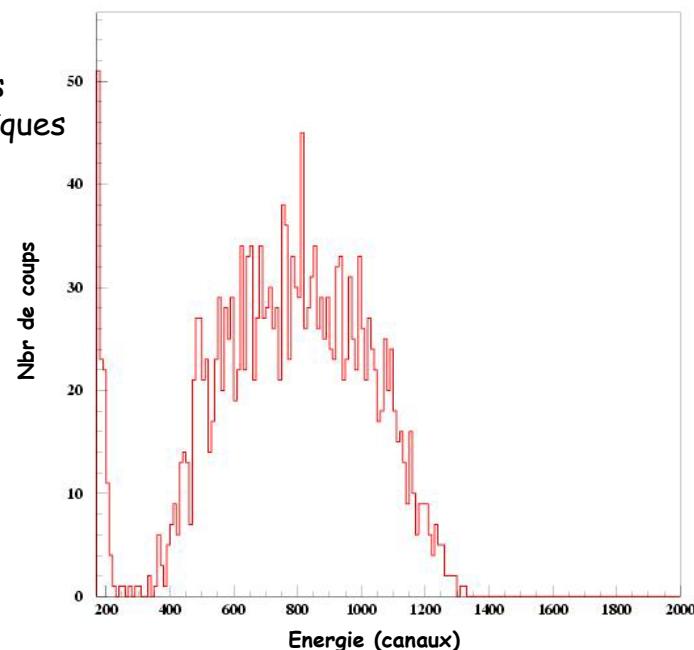
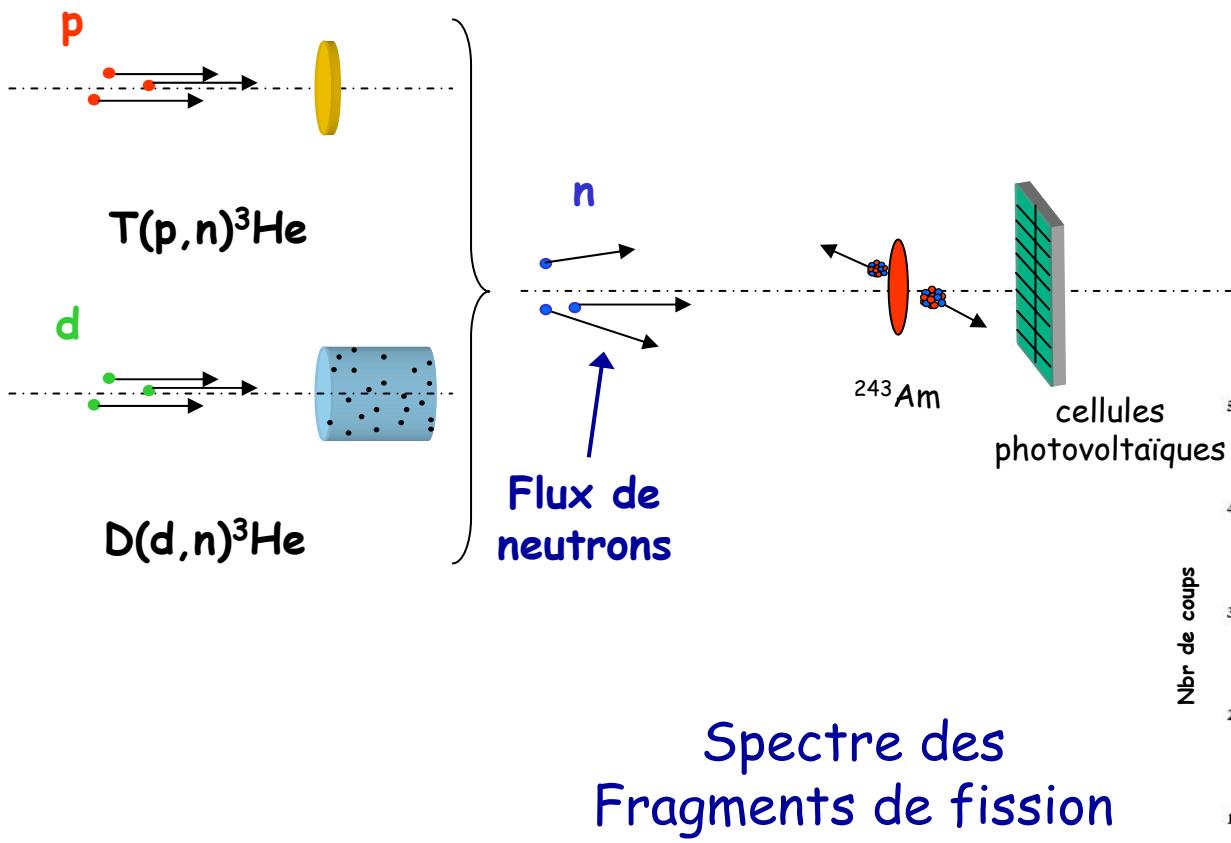
Production de neutrons :

- faisceau de protons sur cible Tritium
- faisceau de deutons sur cible Deutérium

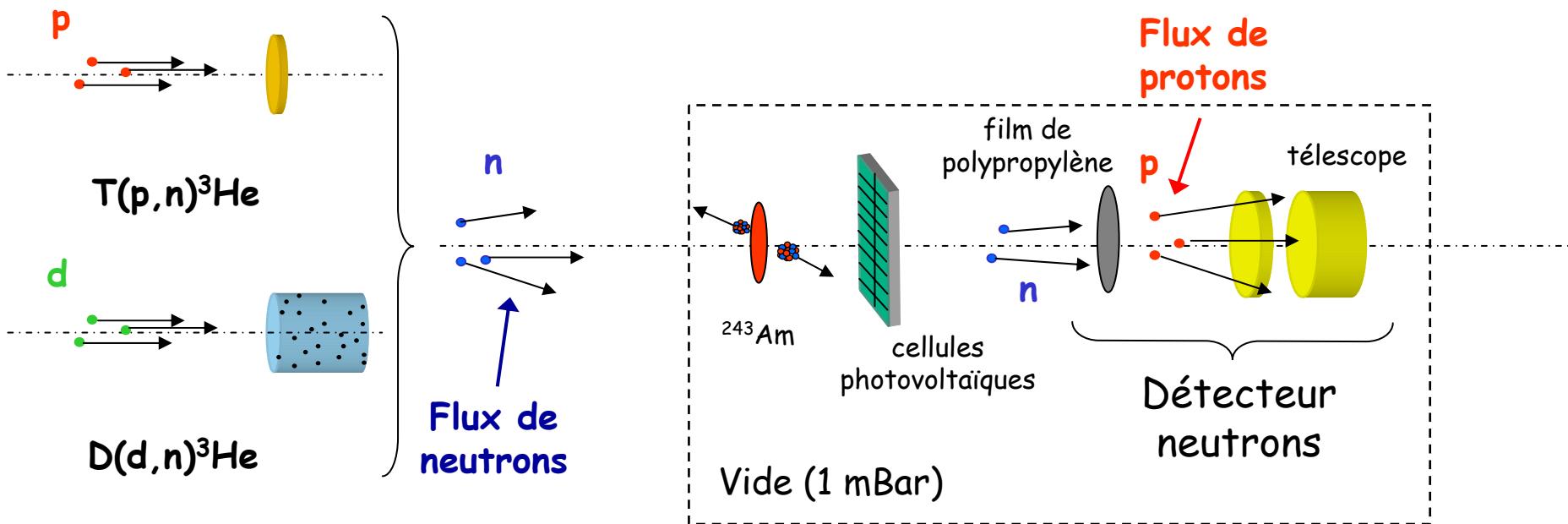
Dispositif expérimental à l'IRMM (Geel)



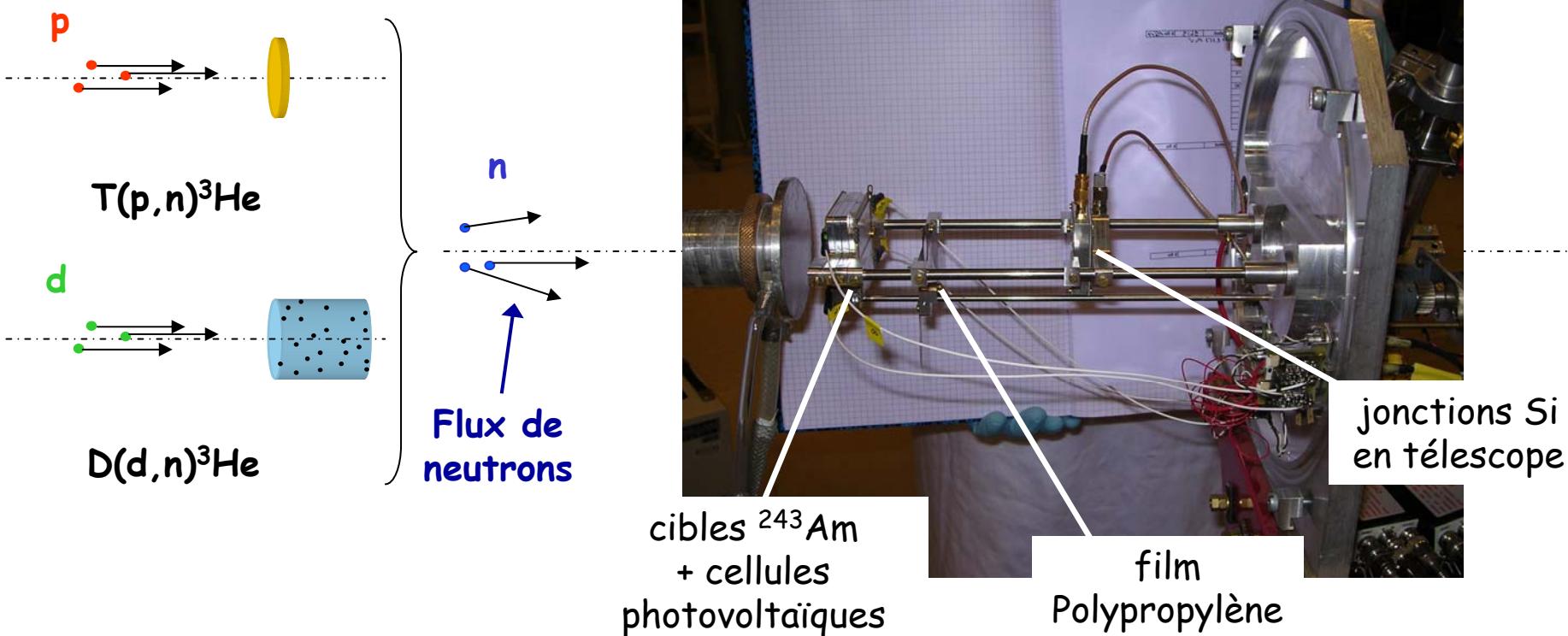
Dispositif expérimental à l'IRMM (Geel)



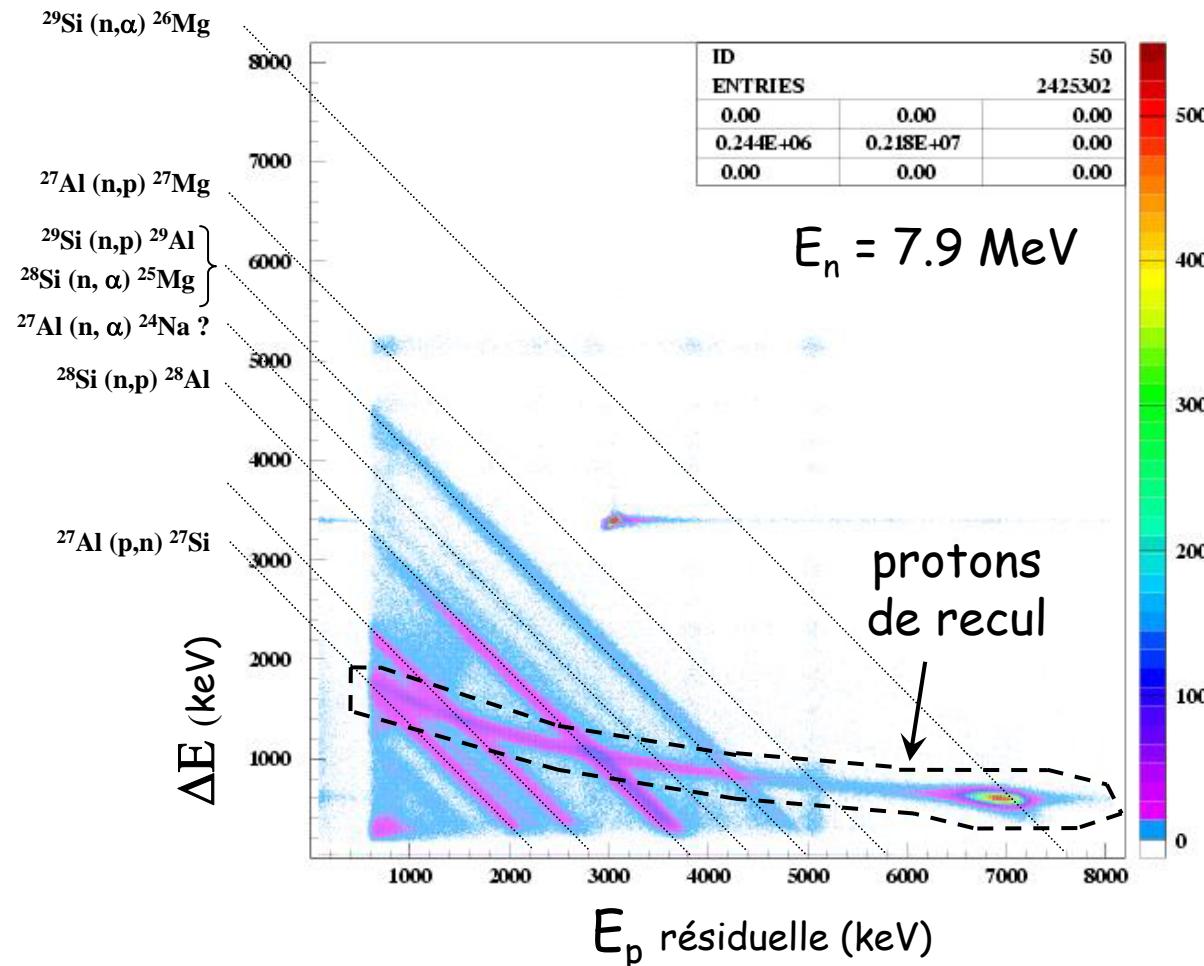
Dispositif expérimental à l'IRMM (Geel)



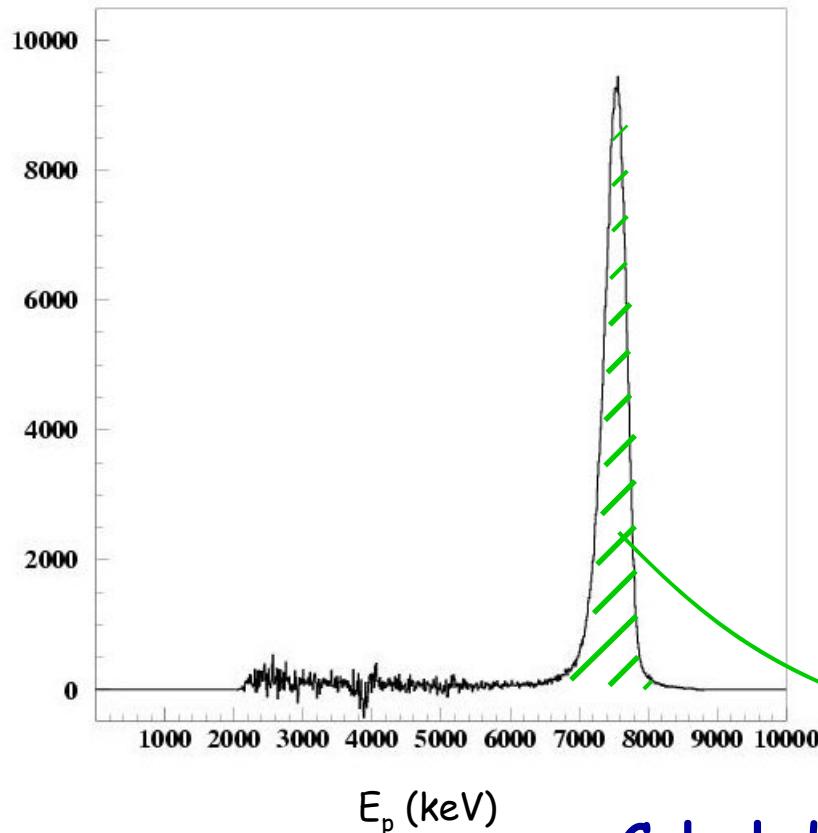
Dispositif expérimental à l'IRMM (Geel)



Détecteur Télescope



Analyse des données



Calcul du flux :

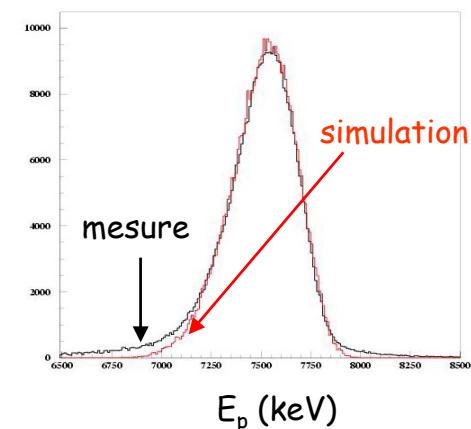
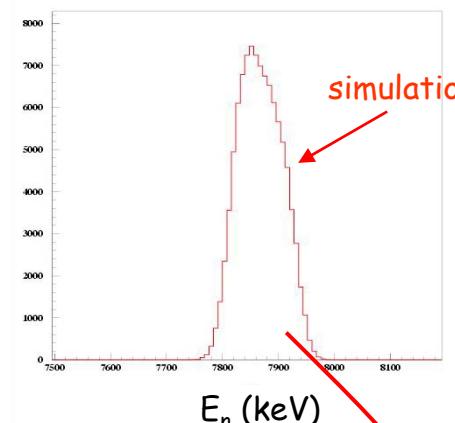
$$\phi_n(E_n) = \frac{N_p}{\sigma_{n,p}(E_n) \cdot \epsilon_{telescope} \cdot N_H \cdot \Delta t}$$

Simulations :

deutons/protons

↳ neutrons

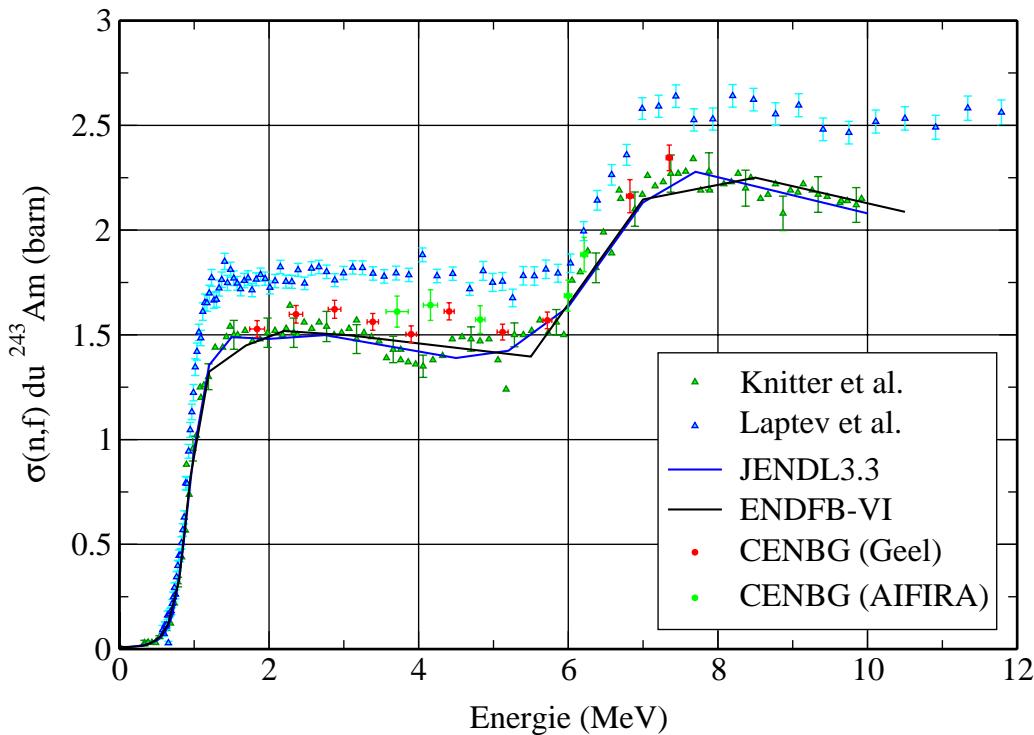
↳ protons de recul



+ tables
 $\sigma(n,p)$

N_p

Résultats



*Résultats
préliminaires*

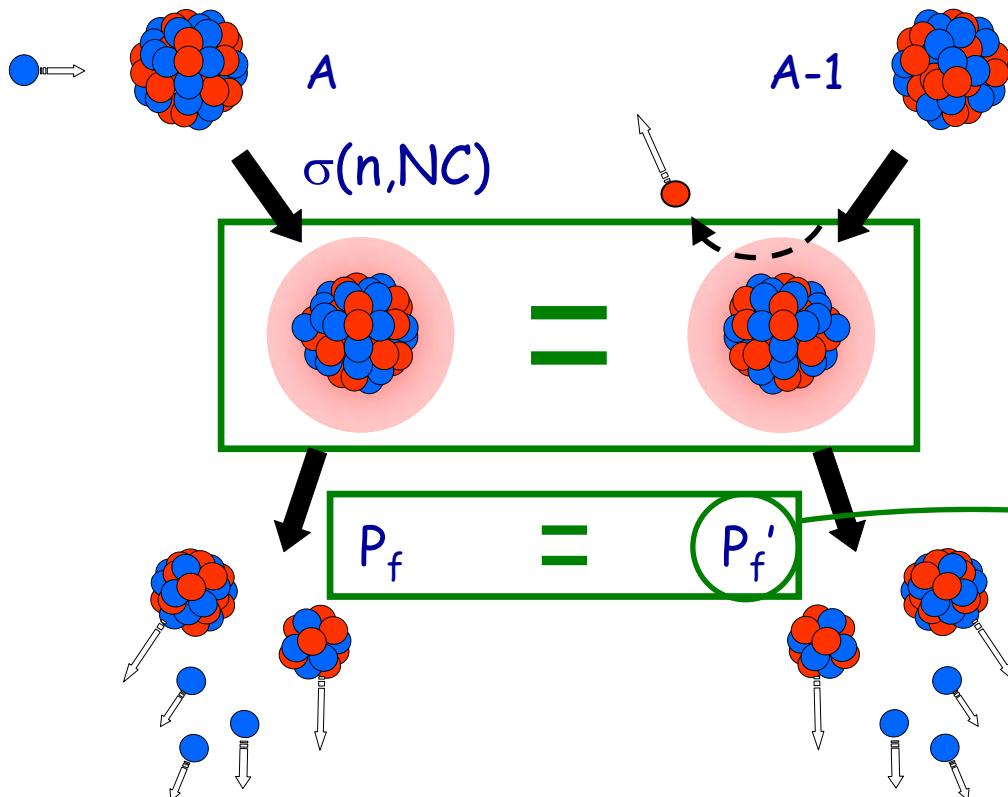
Bon accord avec
les résultats de
Knitter et les
évaluations

Expérience
supplémentaire récente
pour compléter les
énergies manquantes

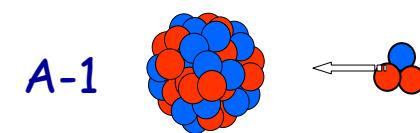
Mesure par méthode indirecte

(Thèse en cours G. Kessedjian)

Méthode directe par neutron



Méthode de transfert



Section efficace de fission par neutron

(hypothèse Noyaux Composé) :

$$\sigma(n,f) = \sigma(n,NC) \cdot P_f$$

Diagram illustrating the calculation of the effective fission cross-section $\sigma(n,f)$ using the composite nucleus hypothesis. The equation $\sigma(n,f) = \sigma(n,NC) \cdot P_f$ is shown, where $\sigma(n,NC)$ is a calculable theoretical value and P_f is a difficult experimental determination.

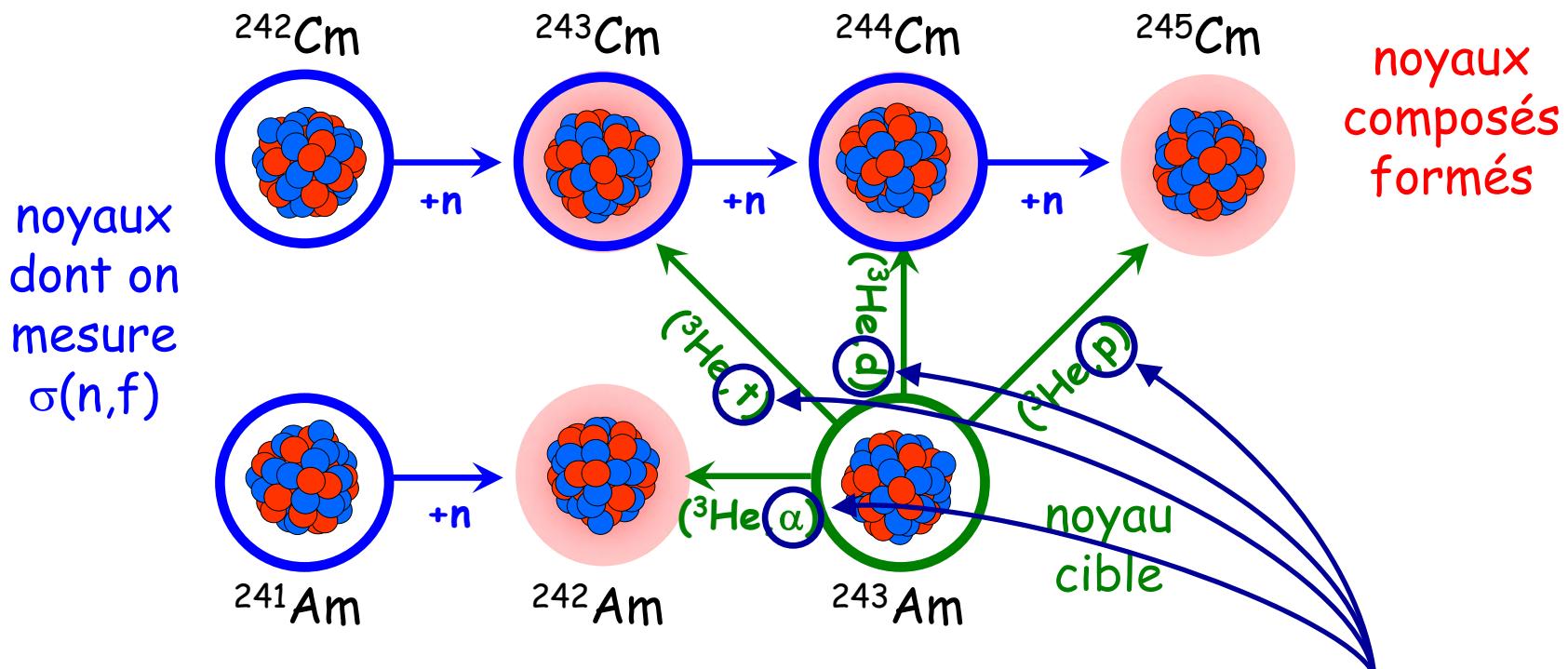
calcul théorique faisable

calcul théorique difficile

détermination expérimentale

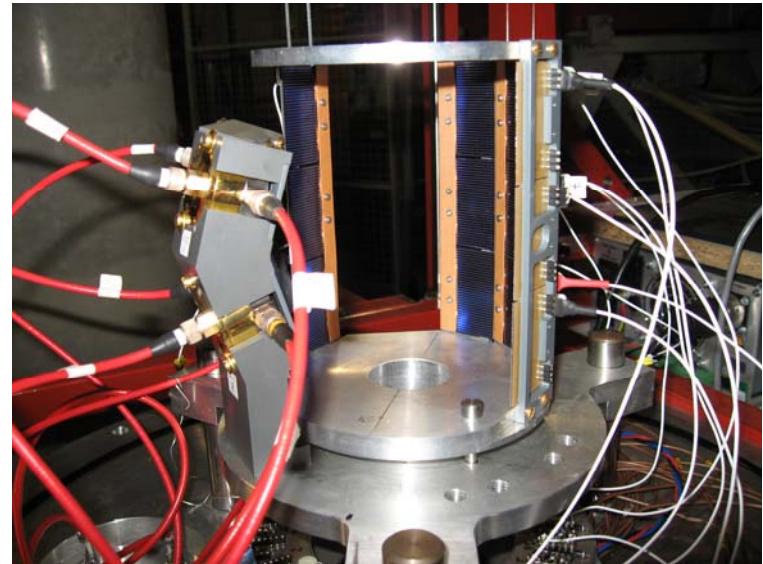
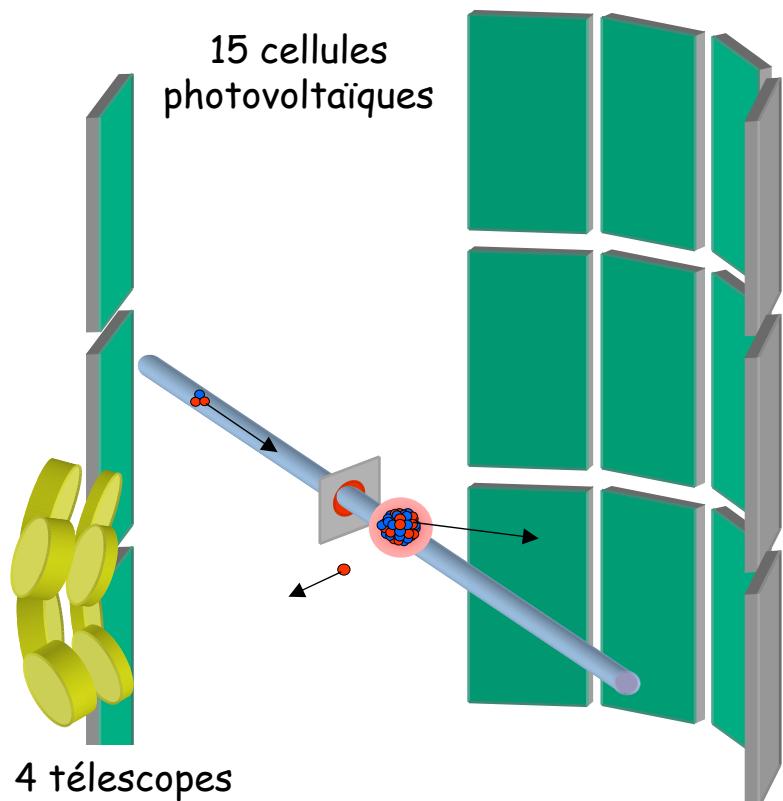
Mesures simultanées

Plusieurs voies de réaction étudiées



Identification de la voie de réaction par la particule émise

Dispositif expérimental au Tandem (IPN Orsay)

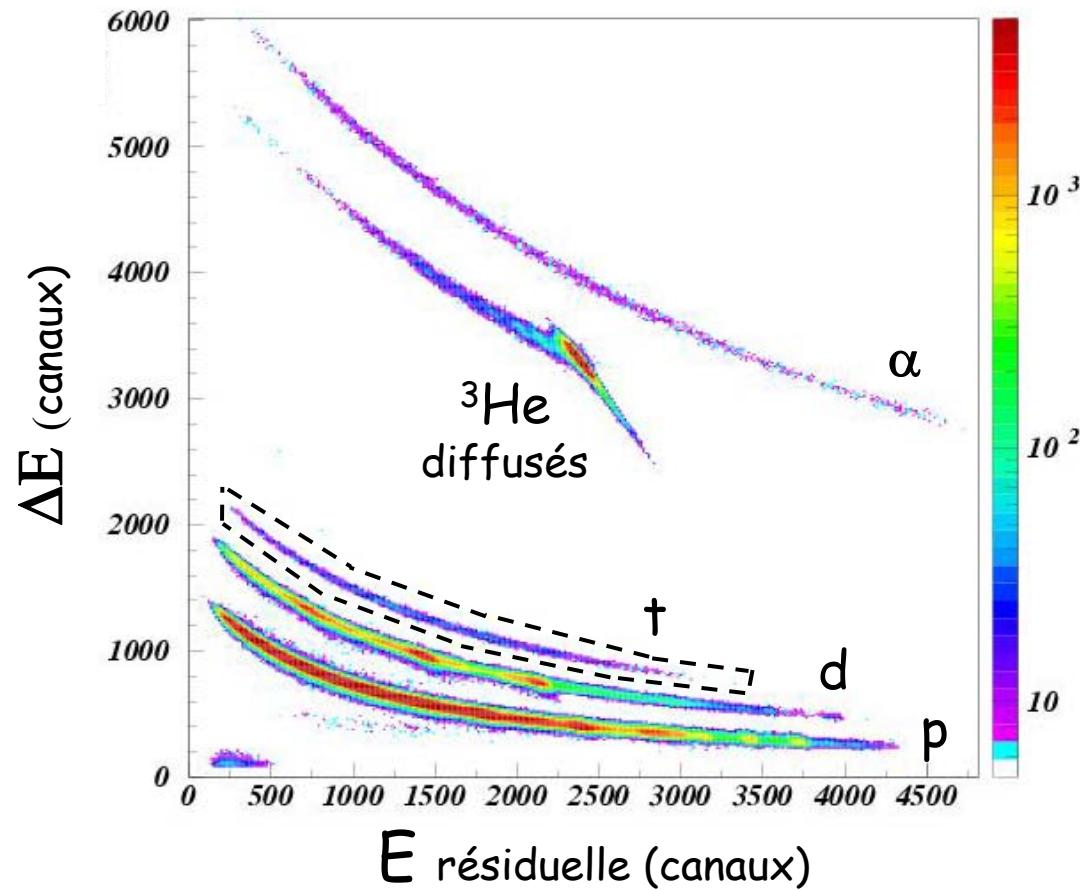


Coïncidences :

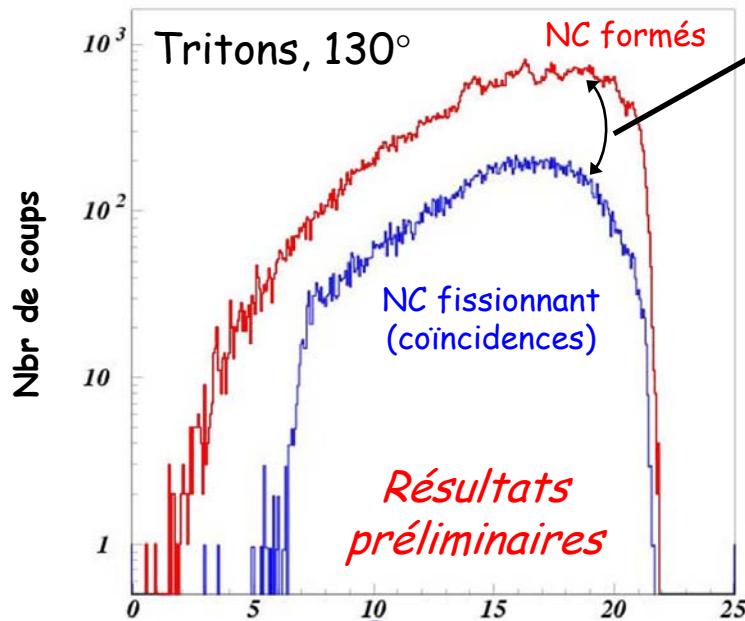
- Cellules / Télescopes : étude des éjectiles des noyaux composés fissionnant
- Cellules arrières / Cellules avant : étude de la distribution en masse des fragments

Expérience de juin 2004 :
problème d'origine inconnue
sur la voie proton

Détecteur Télescope



Analyse des données

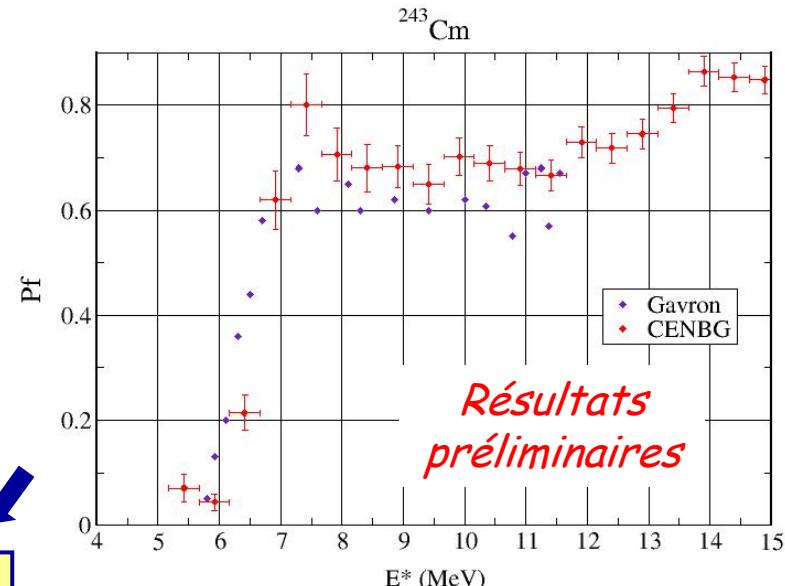


Energie d'excitation du noyau composé

$\sigma(n,f)$ en fonction de E_n

$$P_f = \frac{N_{\text{NC fissionnant}}}{N_{\text{NC formés}} \cdot \mathcal{E}_{\text{det coïnc}}}$$

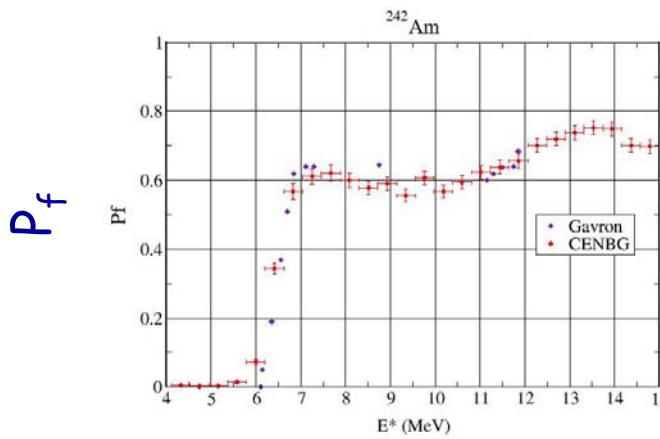
P_f en fonction de E^*



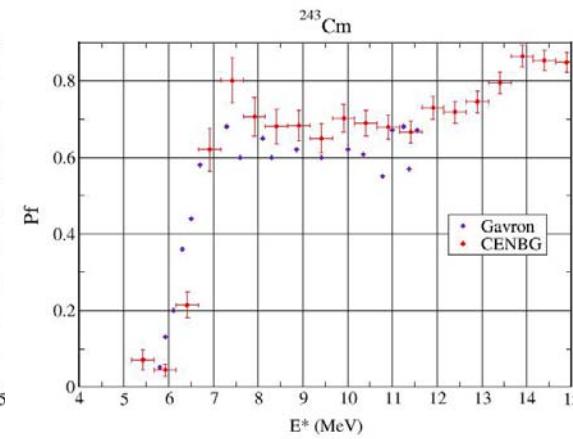
Résultats

Résultats préliminaires

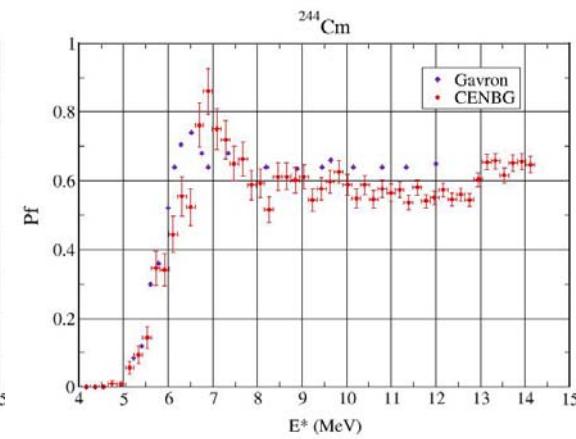
Voie alpha



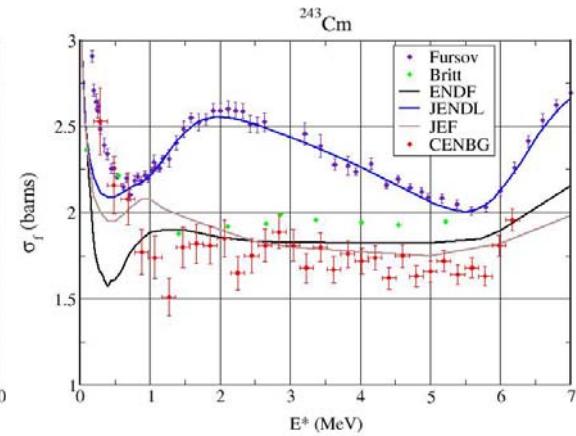
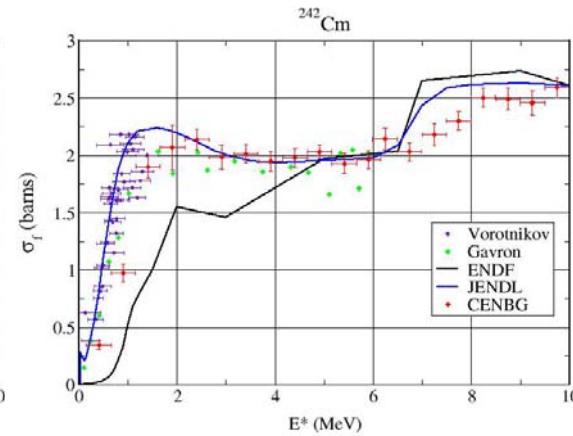
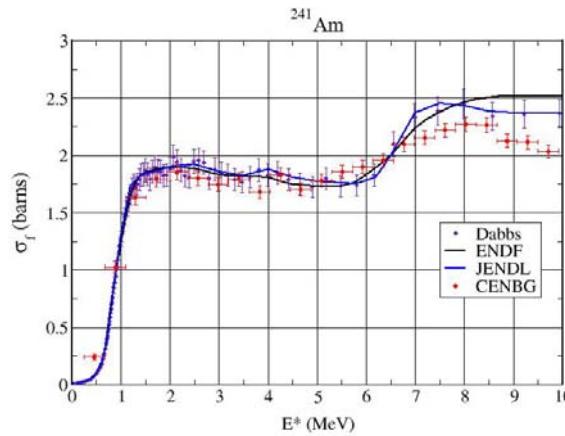
Voie triton



Voie deuton



$\sigma_{(n,f)}$



Conclusions

Cycle Thorium :

RSF :

- réorientation majeure des études vers les configurations de réacteur **non-modérées (spectres rapides)**
- **simplification drastique** du concept (géométrie, retraitement...)
- études de la transition vers le cycle Th

Rapport α :

- expériences préliminaires sur AIFIRA (Bordeaux) **satisfaisantes**
- **expérience prévue** sur Gélina (Geel) en Juillet 2007

Conclusions

Actinides Mineurs :

Mesure directe :

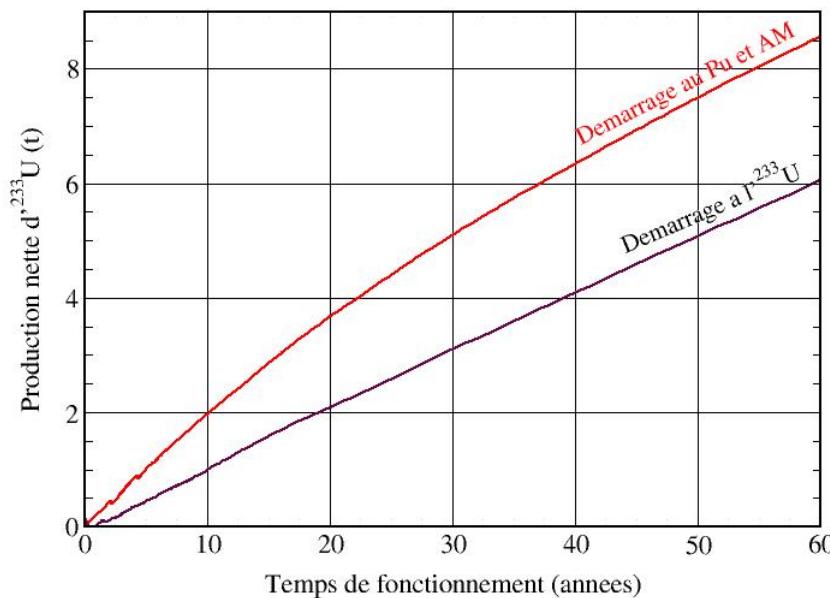
- confirmation des données de Knitter et des évaluations (ENDFB-VI et JENDL3.3)
- expérience récente sur AIFIRA pour compléter les résultats

Mesure indirecte :

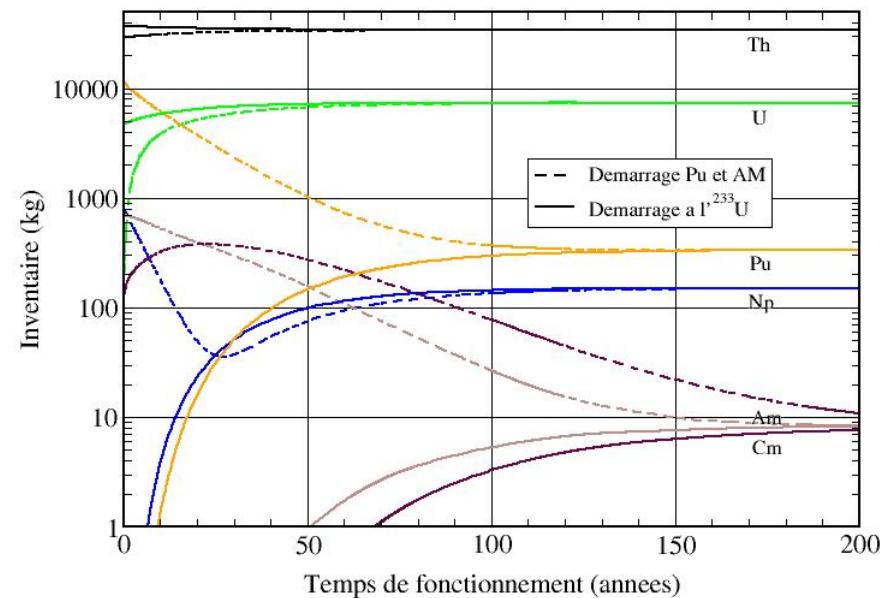
- mesure des propriétés de noyaux à courte durée de vie
- premiers résultats intéressants
- analyses en cours

TMSR Rapide démarré au Pu et AM

Meilleures capacités de régénération

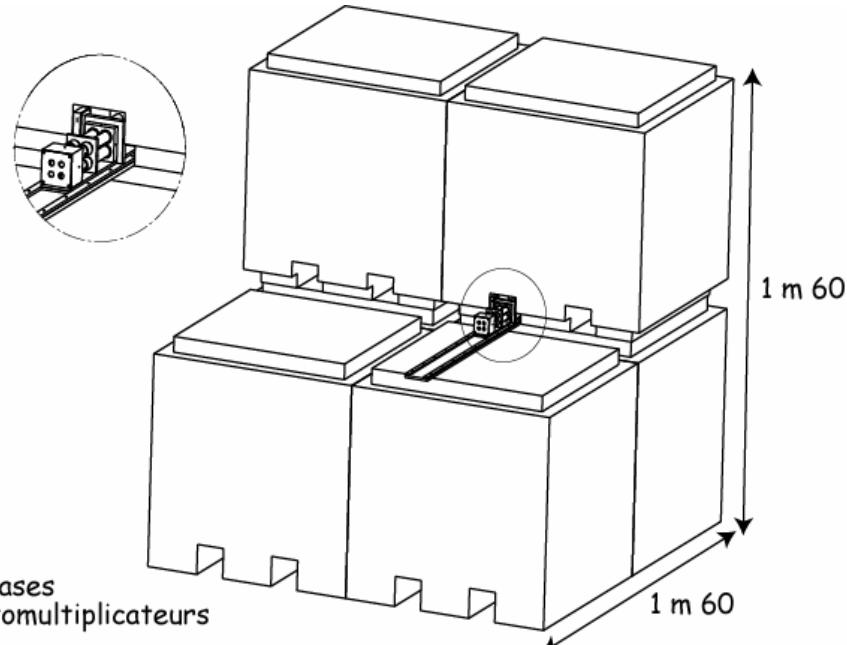
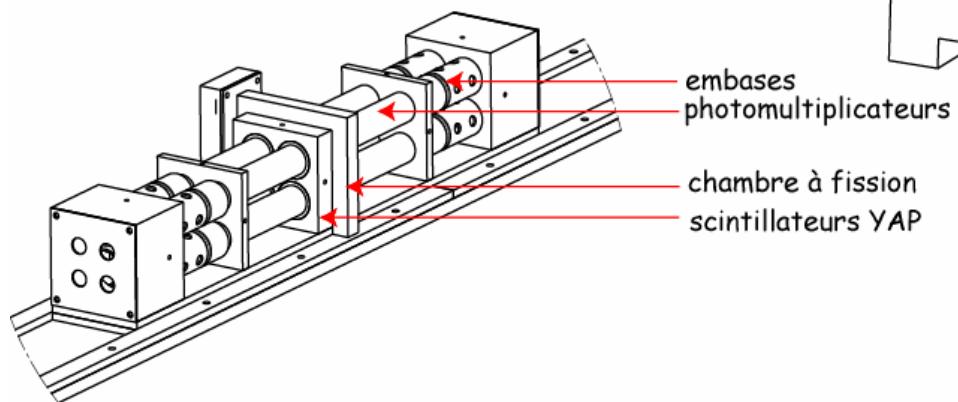


Incinération des AM

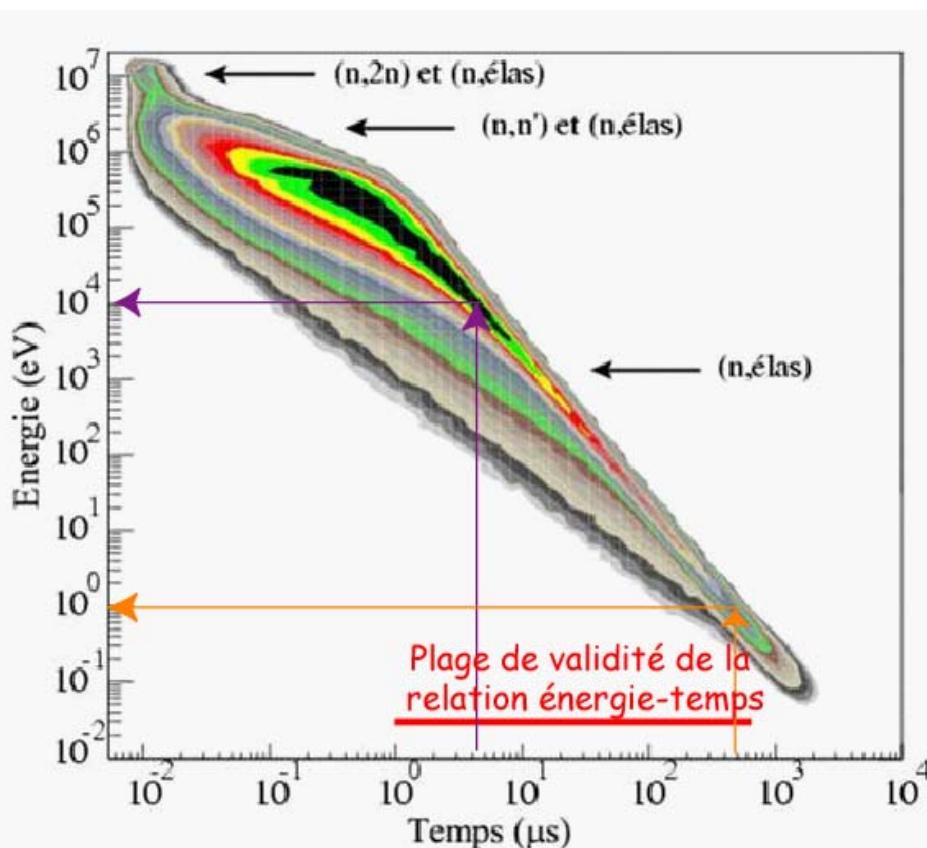


Dispositif expérimental

8 YAP avec PM associés
entourent une chambre
à fission carrée



Relation Energie-Temps



$$\text{Loi : } E_n = \frac{K}{(t + t_0)^2}$$

$$K = 168 \text{ keV} \cdot \mu\text{s}^2$$

$$t_0 = 0.53 \mu\text{s}$$

paramètres caractéristiques
du milieu ralentisseur

Plage de mesure des temps

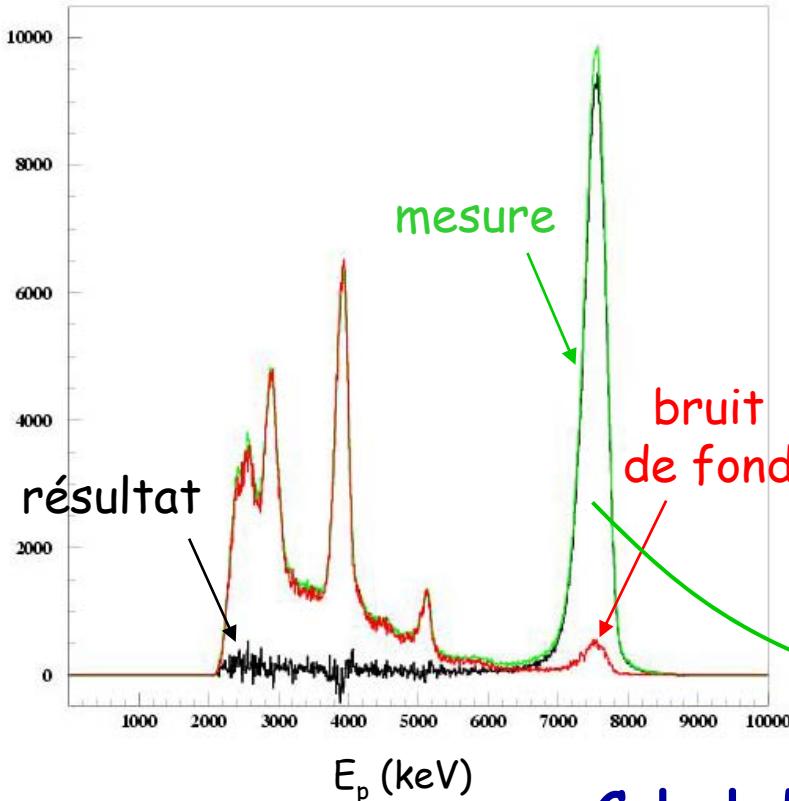
$$[3.5 \mu\text{s} ; 400 \mu\text{s}]$$

$$[1 \text{ eV} ; 10 \text{ keV}]$$

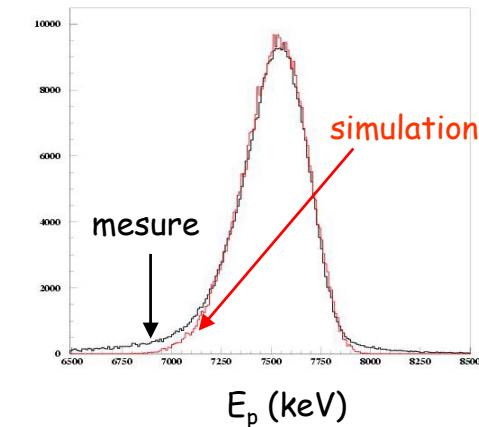
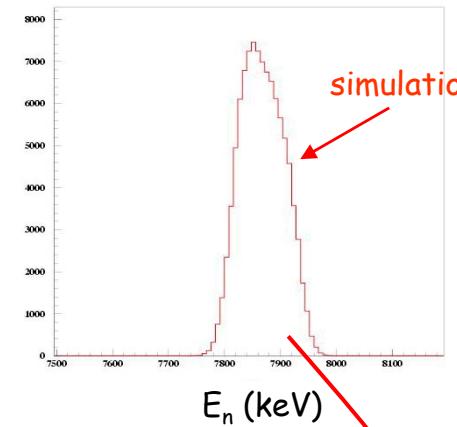
Plage de mesure des énergies

Analyse des données

protons de recul



Simulation :
neutrons → protons de recul



Calcul du flux :

$$\phi_n(E_n) = \frac{N_p}{\sigma_{n,p}(E_n) \cdot \epsilon_{telescope} \cdot N_H \cdot \Delta t}$$