

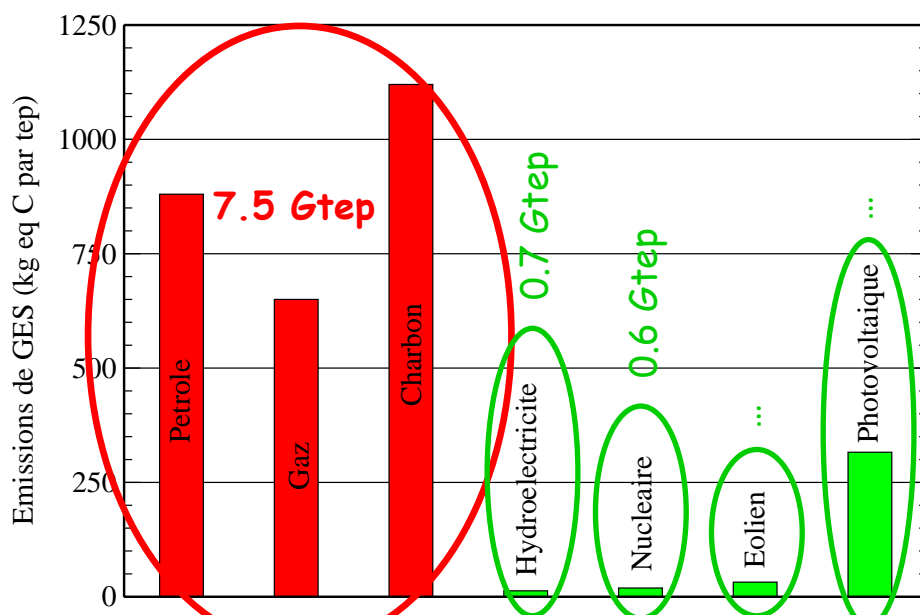
Cycle Thorium et Actinides Mineurs

Ludovic MATHIEU
ATER

Centre d'Etudes Nucléaires de
Bordeaux Gradignan

Problématique de l'Energie

Emissions de Gaz à Effet de Serre



(Source : <http://www.manicore.com>)

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

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

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 10 ⁵ ans	^{234}U 2.46 10 ⁵ ans	^{235}U fissile 7.04 10 ⁸ ans	^{236}U 2.34 10 ⁷ ans	^{237}U 6.75 jours	^{238}U fertile 4.47 10 ⁹ ans	^{239}U 23.4 min
	^{233}Pa 27 jours	^{234}Pa 6.70 heures				
	^{232}Th fertile 1.40 10 ¹⁰ ans	^{233}Th 22.3 min				

^{238}Pu 87.7 ans	^{239}Pu fissile 24 110 ans	^{240}Pu 6 563 ans	^{241}Pu 14.35 ans
^{237}Np 2.14 10 ⁶ ans	^{238}Np 2.12 jours	^{239}Np 2.36 jours	^{240}Np 61.9 min

^{242}Cm 162.8 jours	^{243}Cm 29.1 ans	^{244}Cm 18.1 ans	^{245}Cm 8 500 ans	^{246}Cm 4 730 ans
^{241}Am 432.2 ans	^{242}Am 16.02 heures	^{243}Am 7 370 ans	^{244}Am 10.1 heures	

Charte des isotopes

TransUranien

Propriétés neutroniques du cycle thorium

Nombre de neutrons disponibles par fission

$$N_d = \nu \quad \nu : \text{nombre de neutrons libérés}$$

$$N_d = \nu - 1 \quad \text{pour maintenir la réaction en chaîne}$$

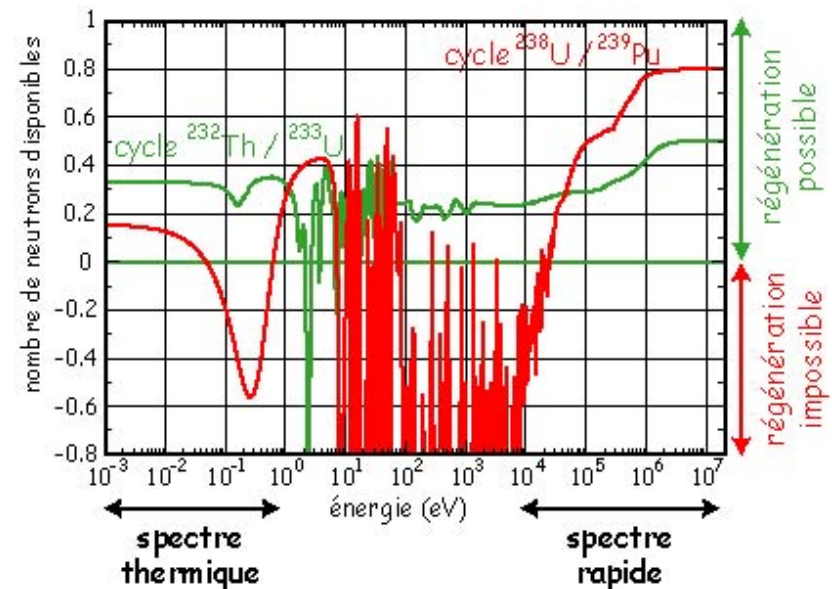
$$N_d = \nu - (1 + \alpha) \quad \text{car le noyau fissile capture aussi des neutrons}$$

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

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

pour régénérer les noyaux
fissiles consommés

Cycle Thorium utilisable avec
tout type de spectre neutronique



Réacteurs à Sel Fondu

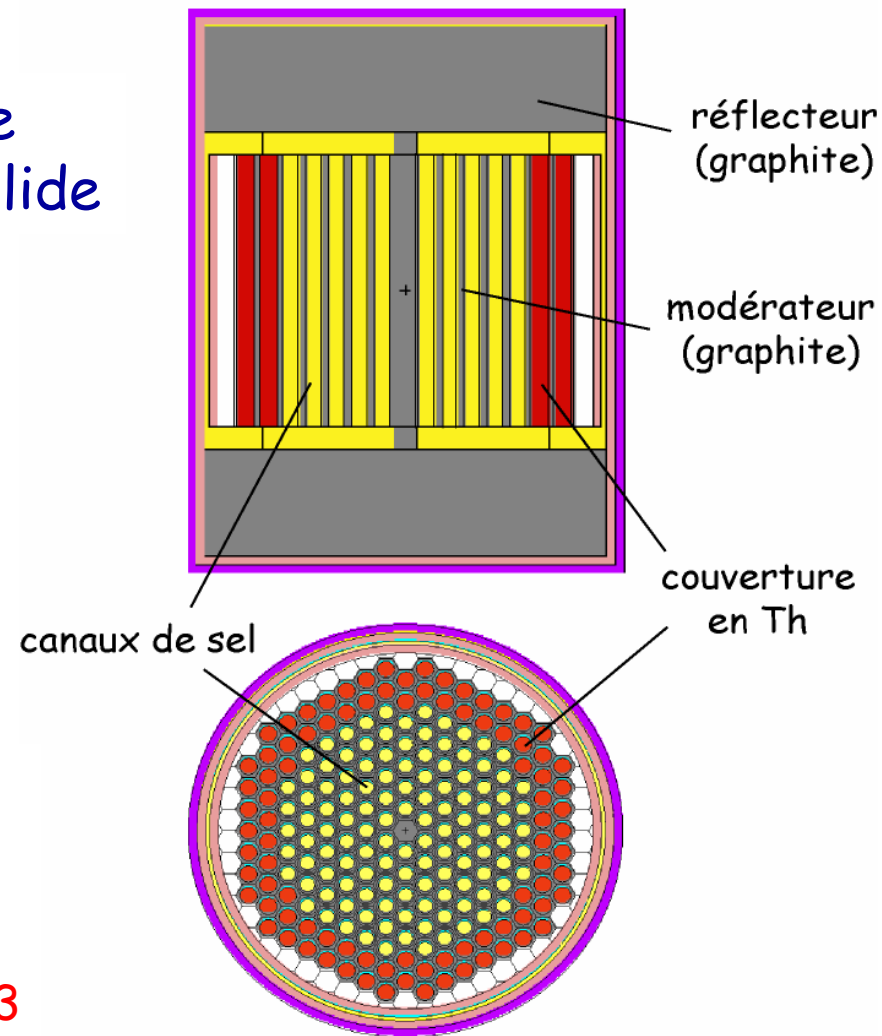
utilisation d'un combustible
liquide dans un modérateur solide

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

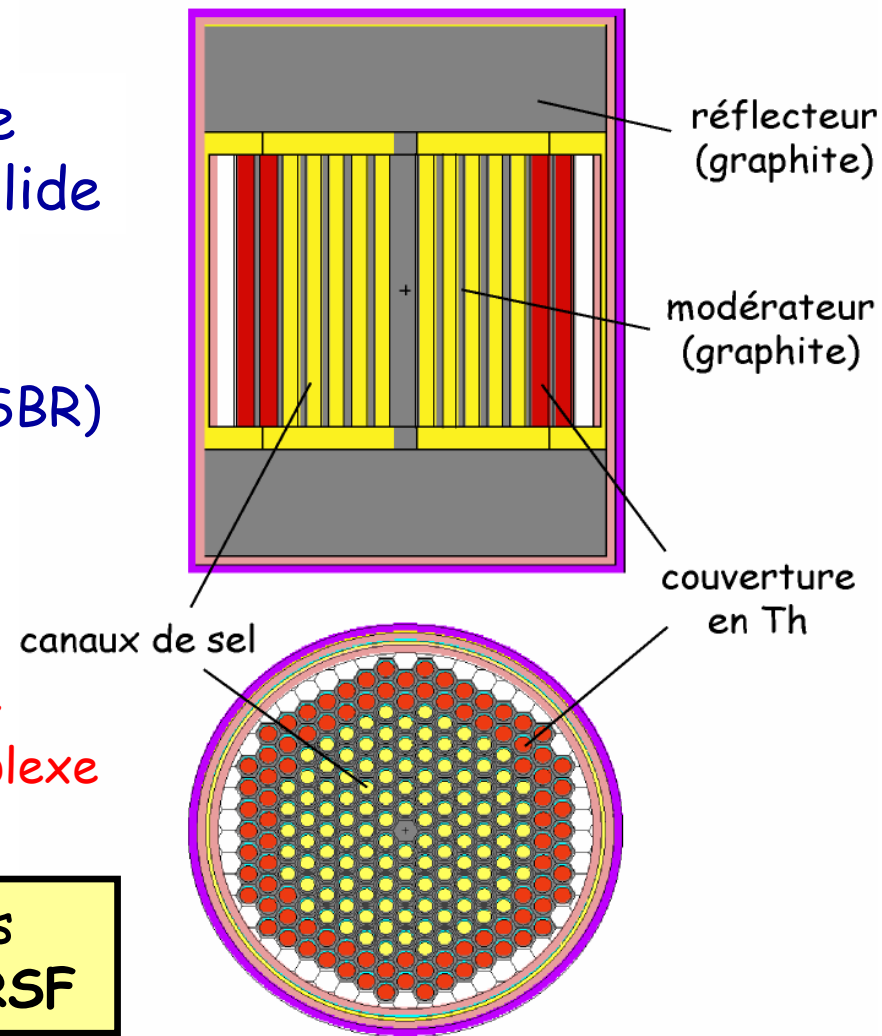
utilisation d'un combustible
liquide dans un modérateur solide

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**

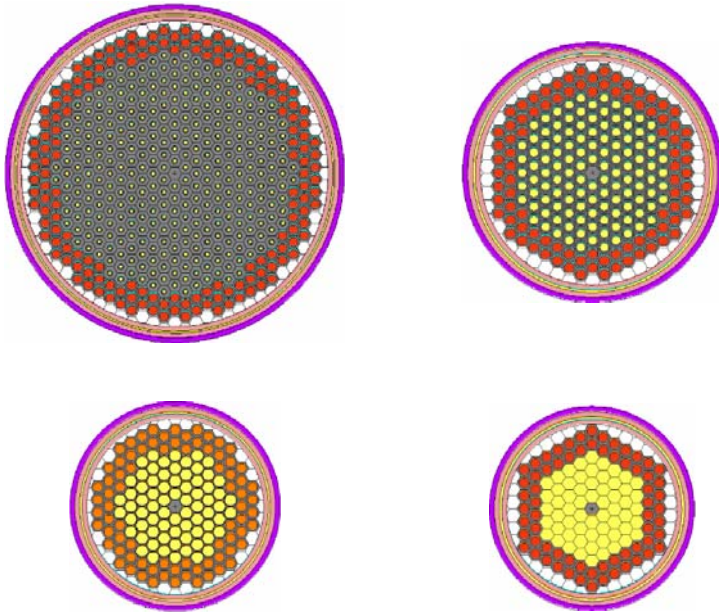
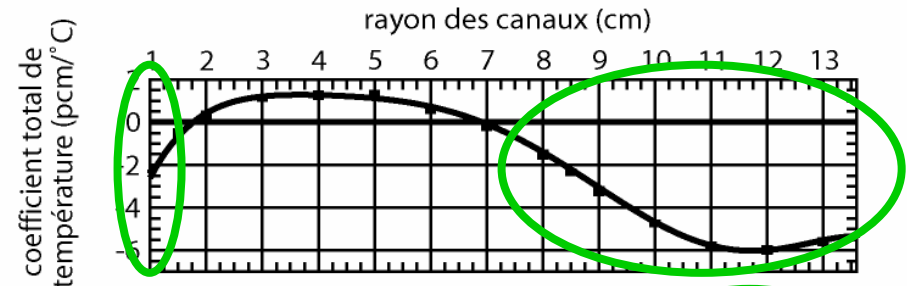
**Étude la
plus globale
possible**

- . 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



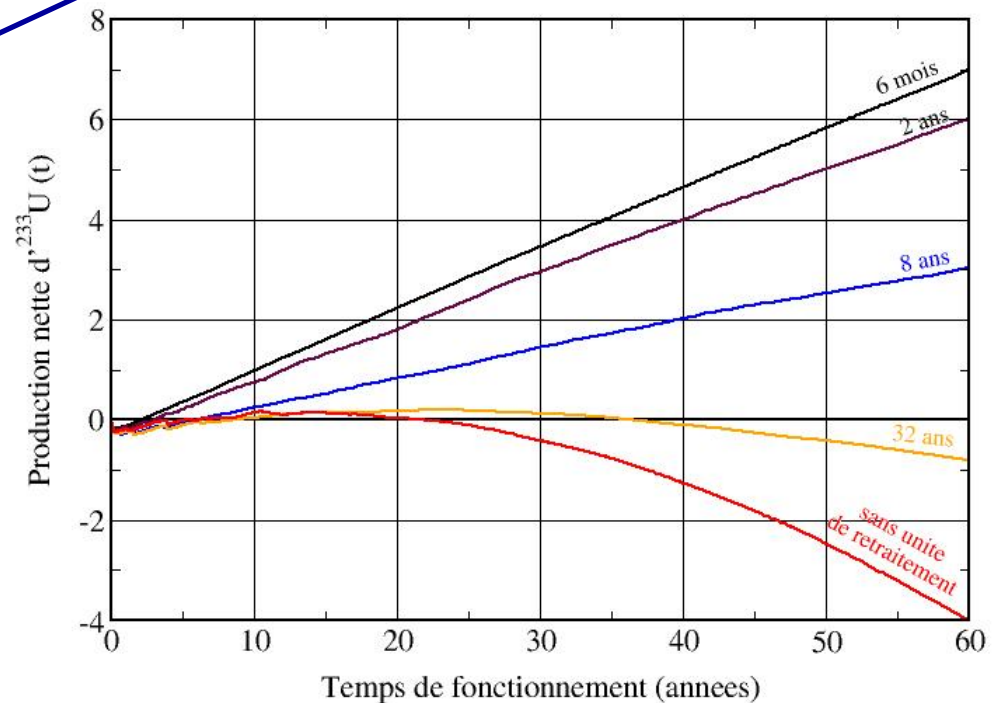
TMSR non-modéré (spectre rapide)

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

Cycle U/Pu

Cycle Th/ ^{233}U

Etudes sur le
démarrage de
TMSR Rapides

REP
actuels

Pu et
AM

TMSR
démarrés au
Pu et AM

^{233}U

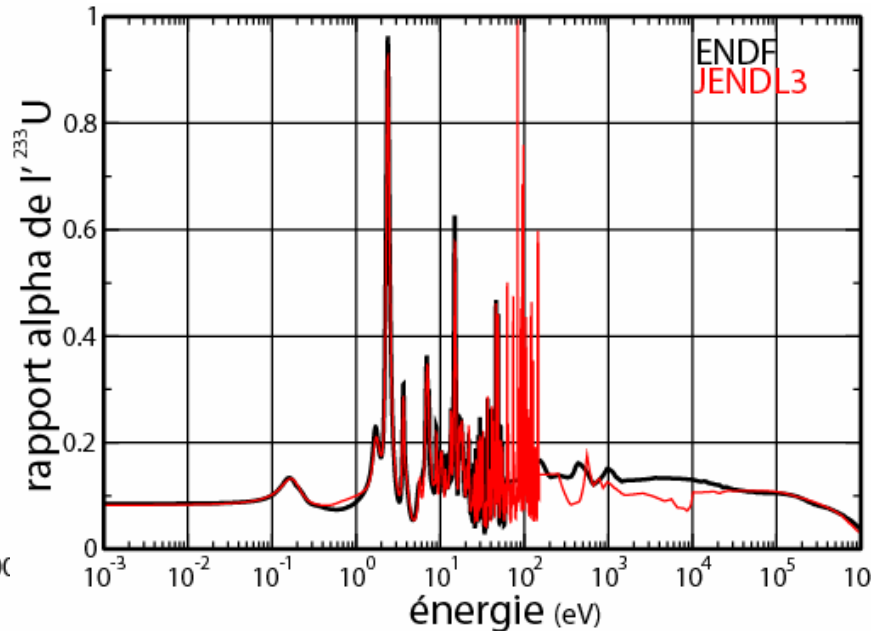
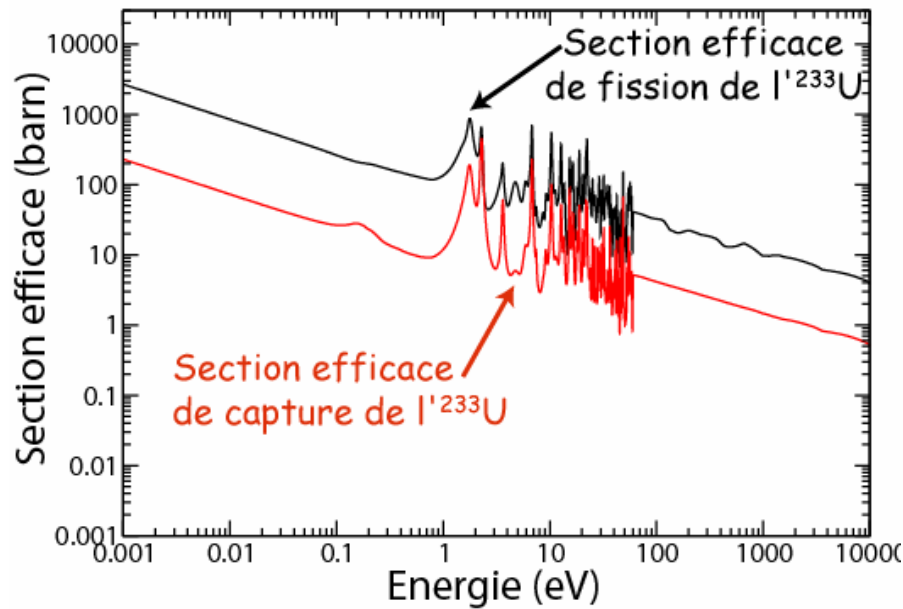
TMSR
démarrés
à l' ^{233}U

Rapport alpha

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

Intervient sur la régénération :

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



Rapport alpha

Evaluation ENDF ne repose que sur 4 mesures expérimentales :

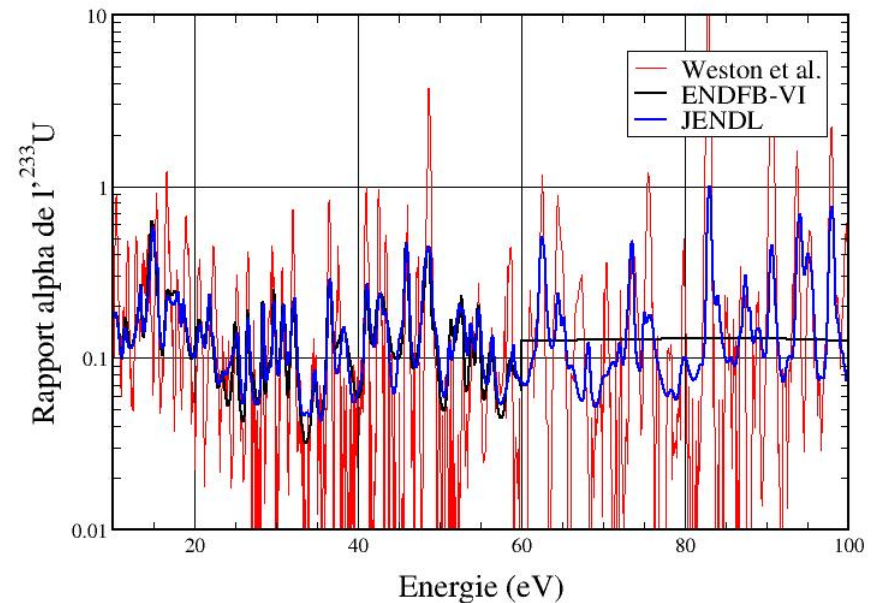
- Brooks et al. (1966) : [35 meV - 11 eV]
- Weston et al. (1968) : [0.4 eV - 2 keV]
- Hopkins et al. (1962) : [30 keV - 1 MeV]
- Cabell et al. (1965) : mesure intégrale (spectre thermique)

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 $\sigma(n,\gamma)$:

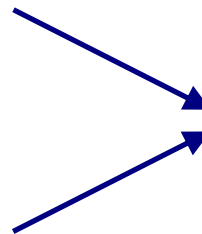
suppression de l'incertitude sur ϕ_n dans le rapport α

Difficulté de la mesure :

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

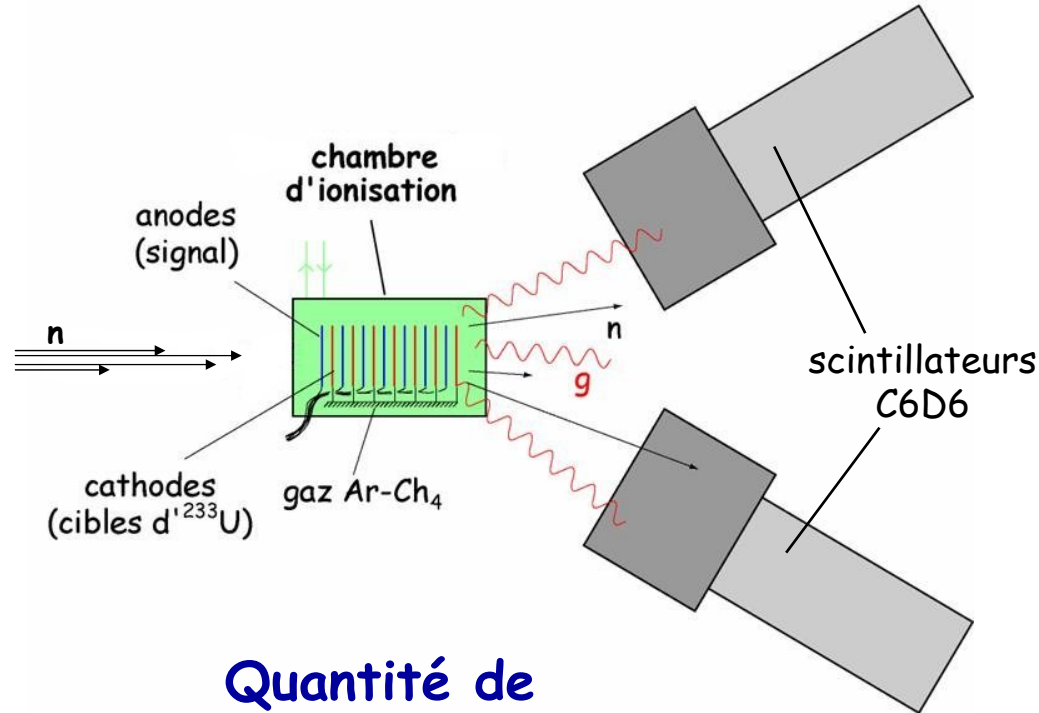
Détection des γ : plusieurs détecteurs à scintillation C_6D_6

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

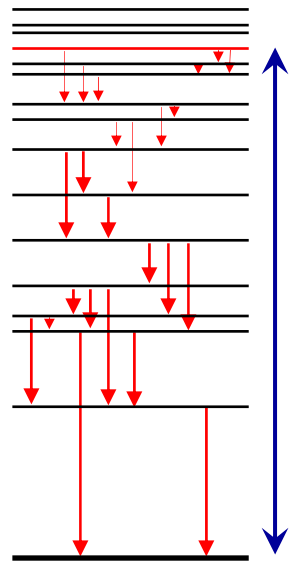
Nombre d'électrodes :
entre 10 et 20 plaques



Détection des cascades γ

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

Différents chemins de désexcitation : **différentes efficacités** $\mathcal{E}_{\text{cascade}}$



probabilité de détection d'un γ incident: ε_i

probabilité de détection d'une cascade γ

(détection d'un des γ) : $\mathcal{E}_{\text{cascade}} = \sum_i \varepsilon_i$ car $\varepsilon_i \ll 1$

hypothèse : $\varepsilon_i = k \cdot E_i$

ce qui donne : $\mathcal{E}_{\text{cascade}} = k \sum_i E_i$

$$\mathcal{E}_{\text{cascade}} = k \cdot E_{\text{cascade}}$$

**hypothèse
non vérifiée**

$\mathcal{E}_{\text{cascade}}$ indépendante
du chemin de
désexcitation

➡ Introduction des fonctions poids

Principe des fonctions poids (Thèse S. Boyer)

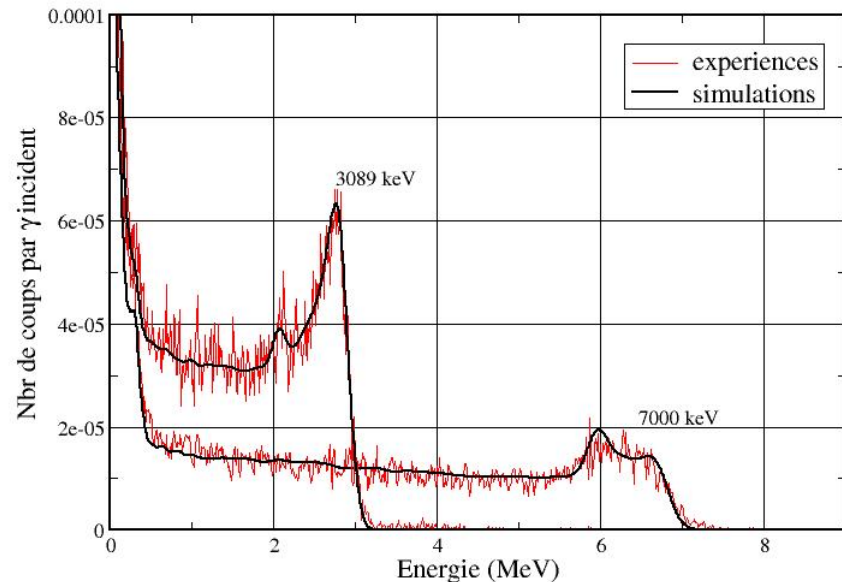
fonction de réponse
pour un γ d'énergie E_i :

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

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

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

Très bon accord
expériences/simulations



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

Principe des fonctions poids

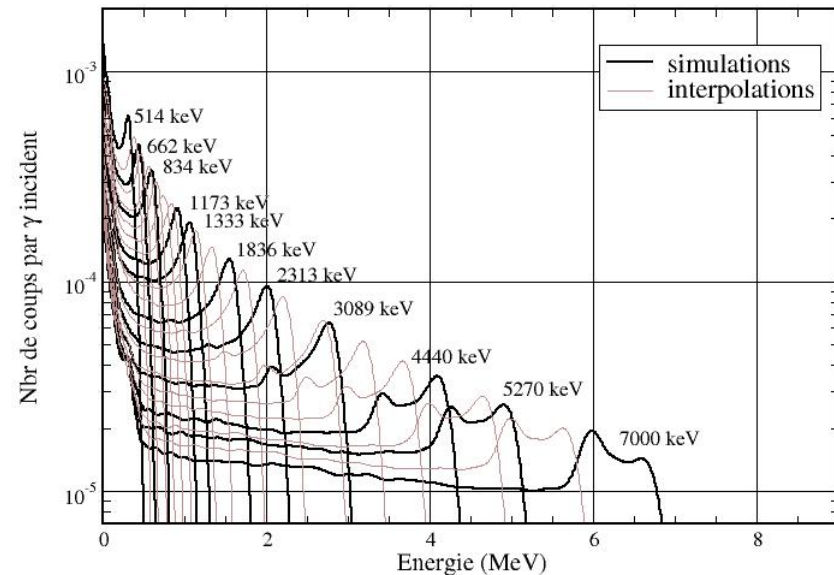
fonction de réponse
pour un γ d'énergie E_i :

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

fonction de réponse pour
plusieurs énergies de γ :

matrice $R(E_d, E_i)$

Interpolation calculée pour
construire la **matrice continue**



Exemple de simulations pour
plusieurs γ incidents

Principe des fonctions poids

fonction de réponse
pour un γ d'énergie E_i :

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

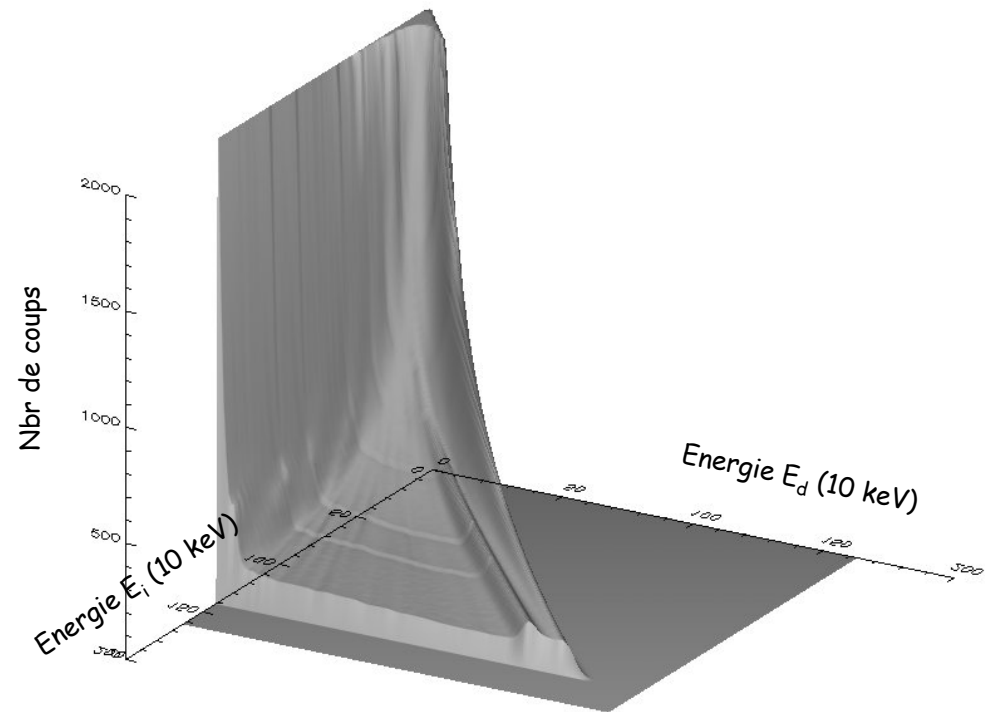
fonction de réponse pour
plusieurs énergies de γ :

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 $R(E_d, E_i)$

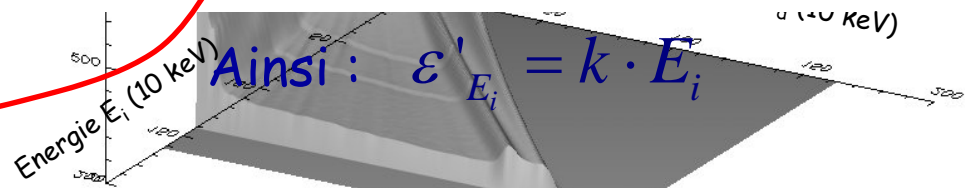
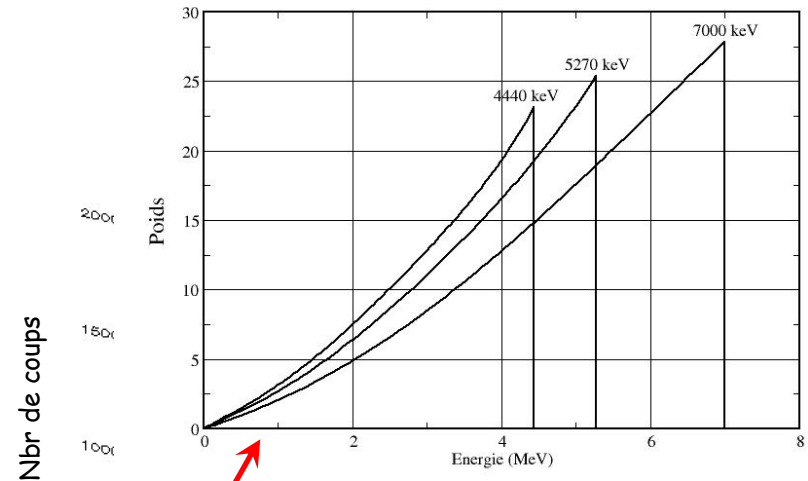
avec toujours

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

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

tel que :

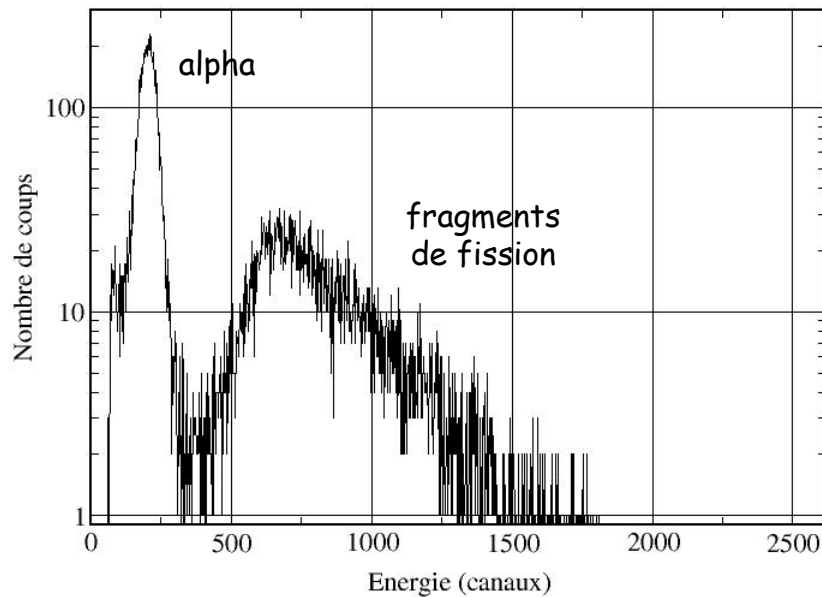
$$\sum_{E_d=0}^{E_i} (W(E_d) \cdot R(E_d, E_i)) = k_{E_c} \cdot E_i$$



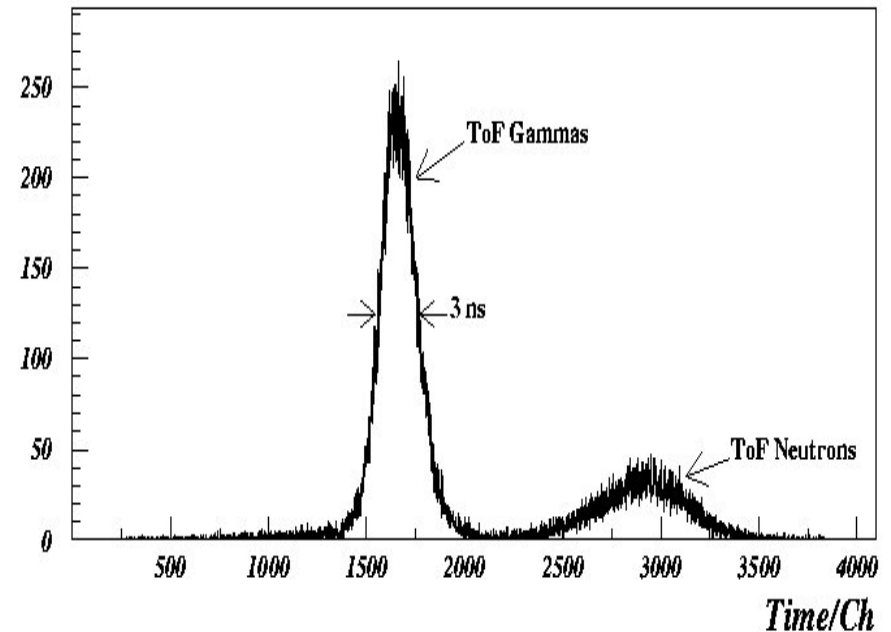
$\varepsilon_{\text{cascade}}$ indépendante du chemin de désexcitation et donc connue

Résultats des expériences préliminaires (AIFIRA)

Séparation en énergie alpha-fragments



Résolution temporelle et séparation γ -neutrons



Efficacité de détection de la chambre d'ionisation : $(96 \pm 0.5)\%$

Mesure semi-intégrale à Grenoble

(Thèse en cours
M.-A. Cognet)

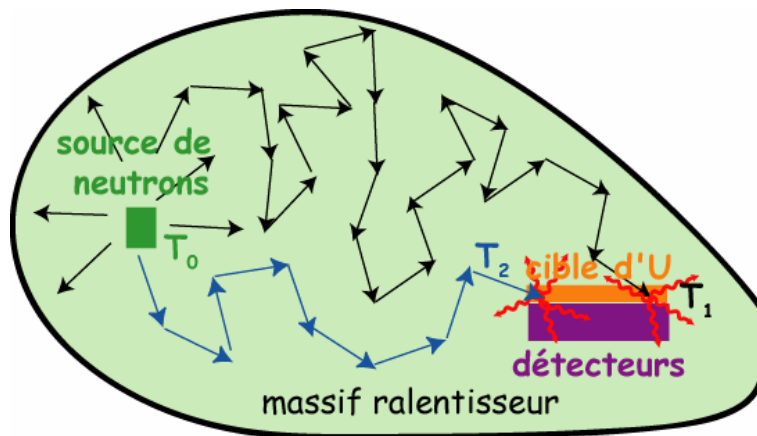
Mesure directe : ^{233}U dans un flux de neutrons (GENEPI)

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

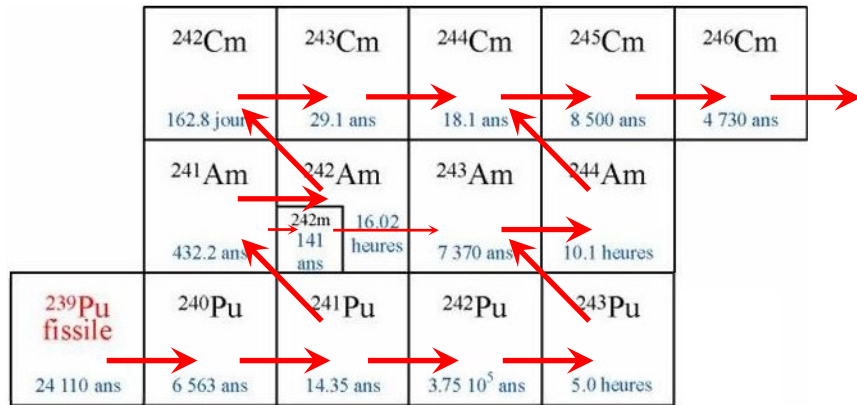
Plan

II- Actinides Mineurs

Mesures par méthode directe

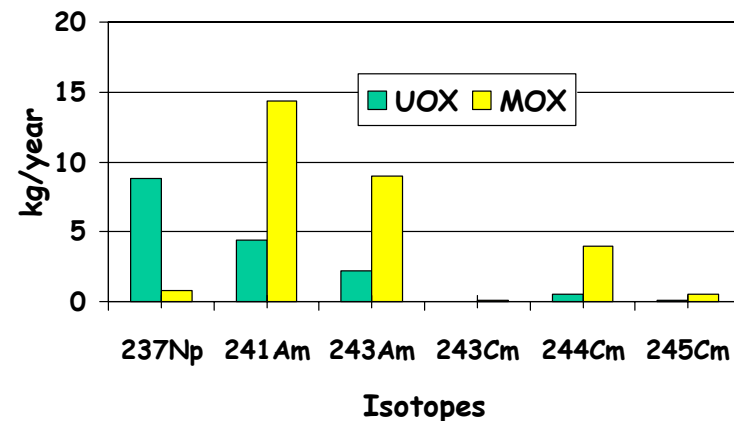
Mesures par méthode indirecte

Problématique des Actinides Mineurs



Charte des isotopes

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



Noyaux Très Radiotoxiques

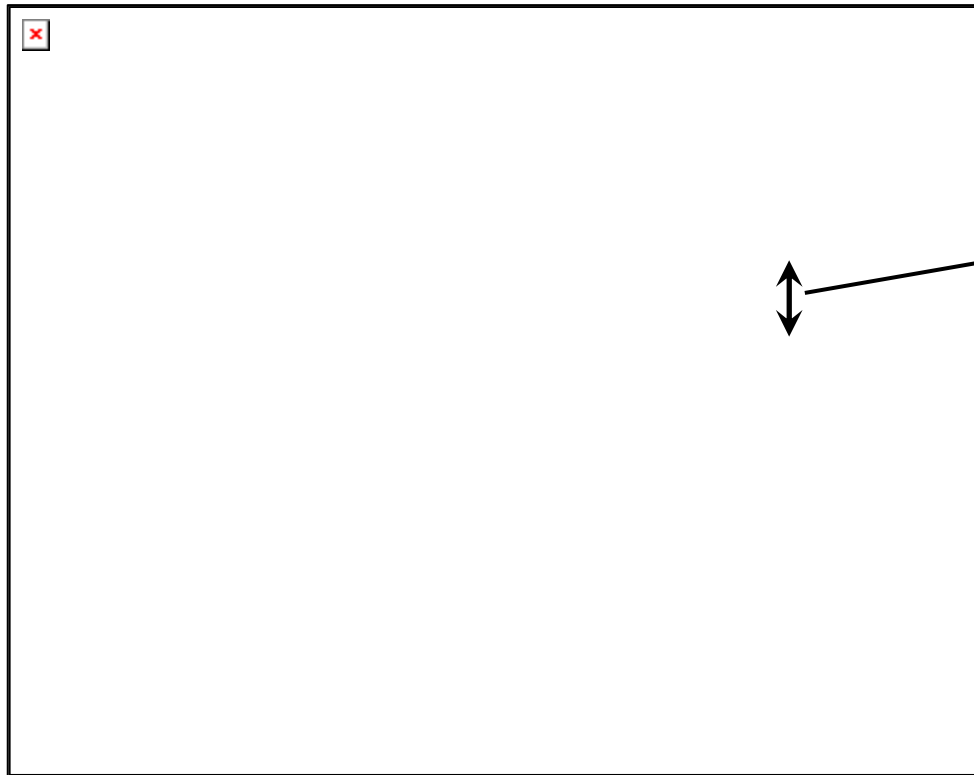
Gestion difficile en combustible ou en stockage

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

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

(Thèse en cours G. Kessedjian)

Pourquoi ces mesures?



Dispersion
de 15%



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

Mesure par méthode directe de $\sigma(n,f)$ de ^{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)

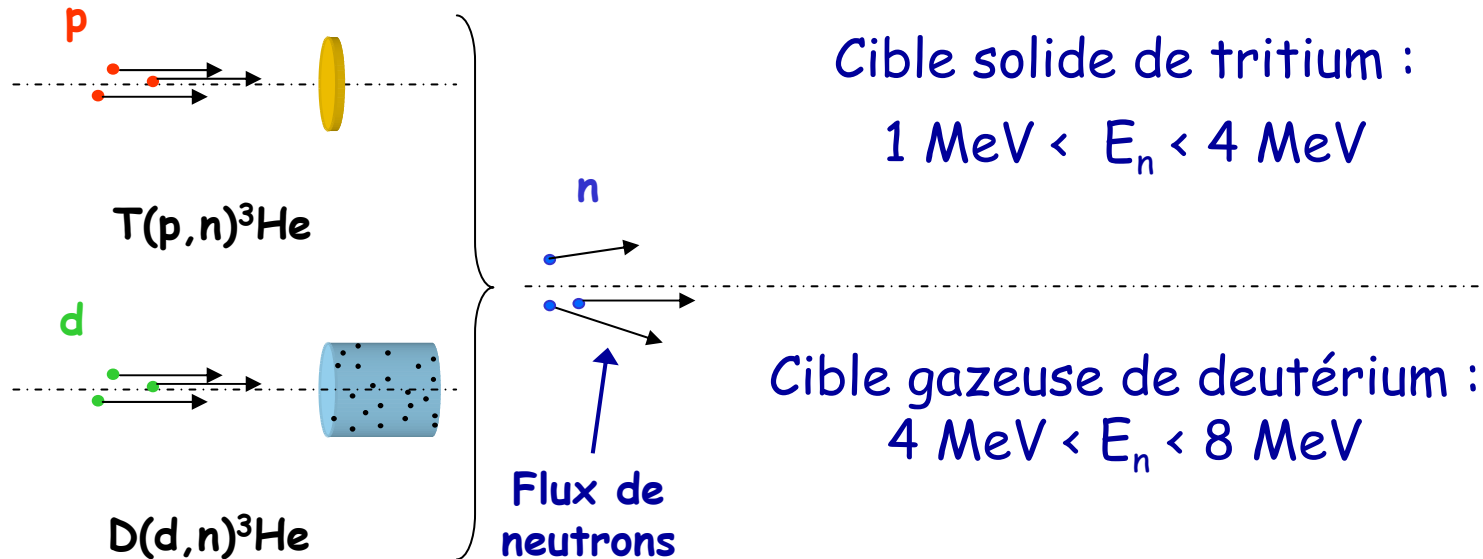
Pour cette expérience : référence par réaction (n,p)
(0.5% d'incertitude à ces énergies)

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

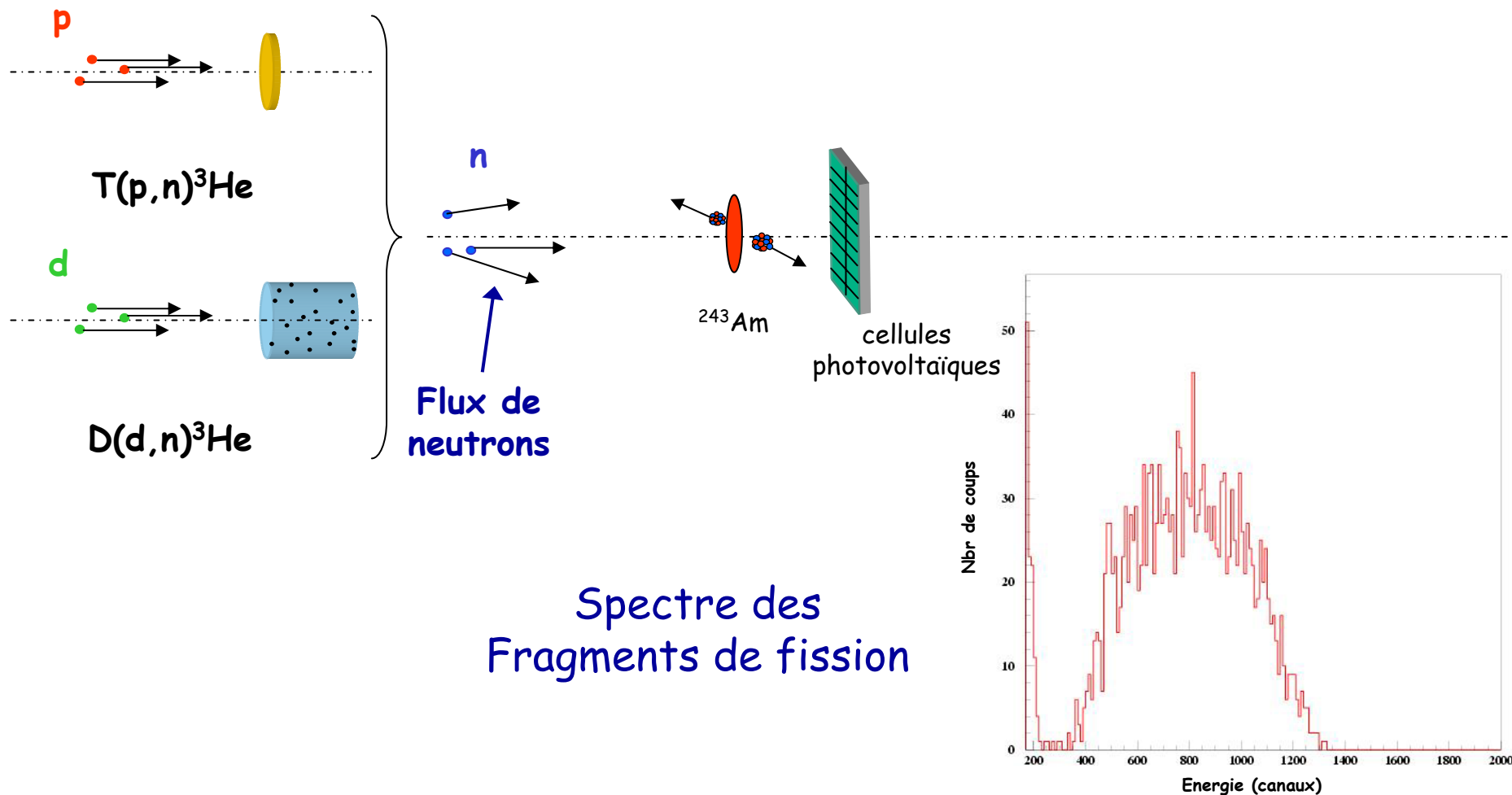
Production de neutrons :

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

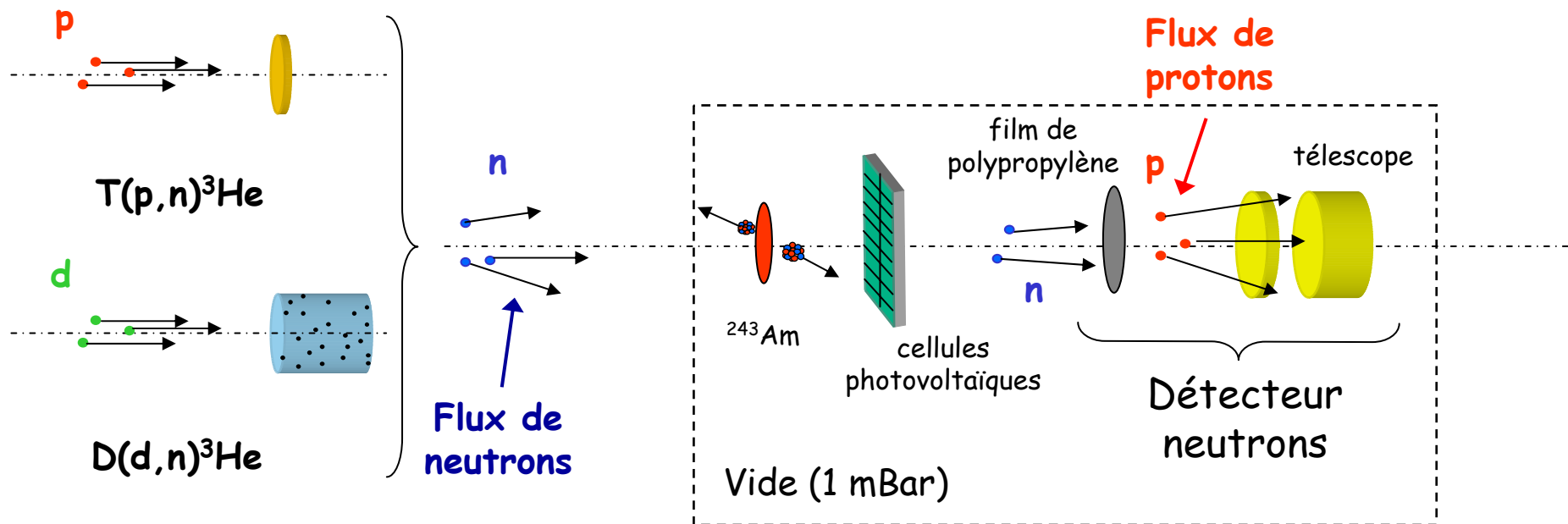
Dispositif expérimental à l'IRMM (Geel)



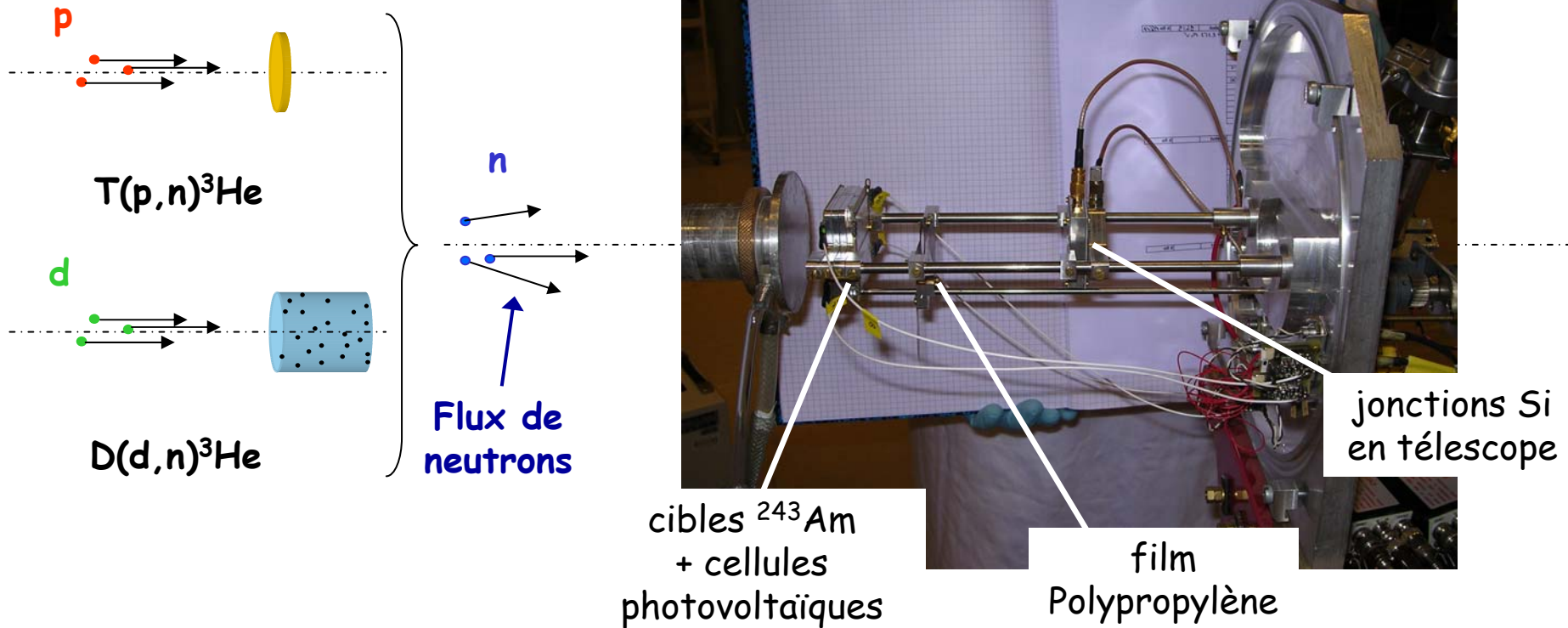
Dispositif expérimental à l'IRMM (Geel)



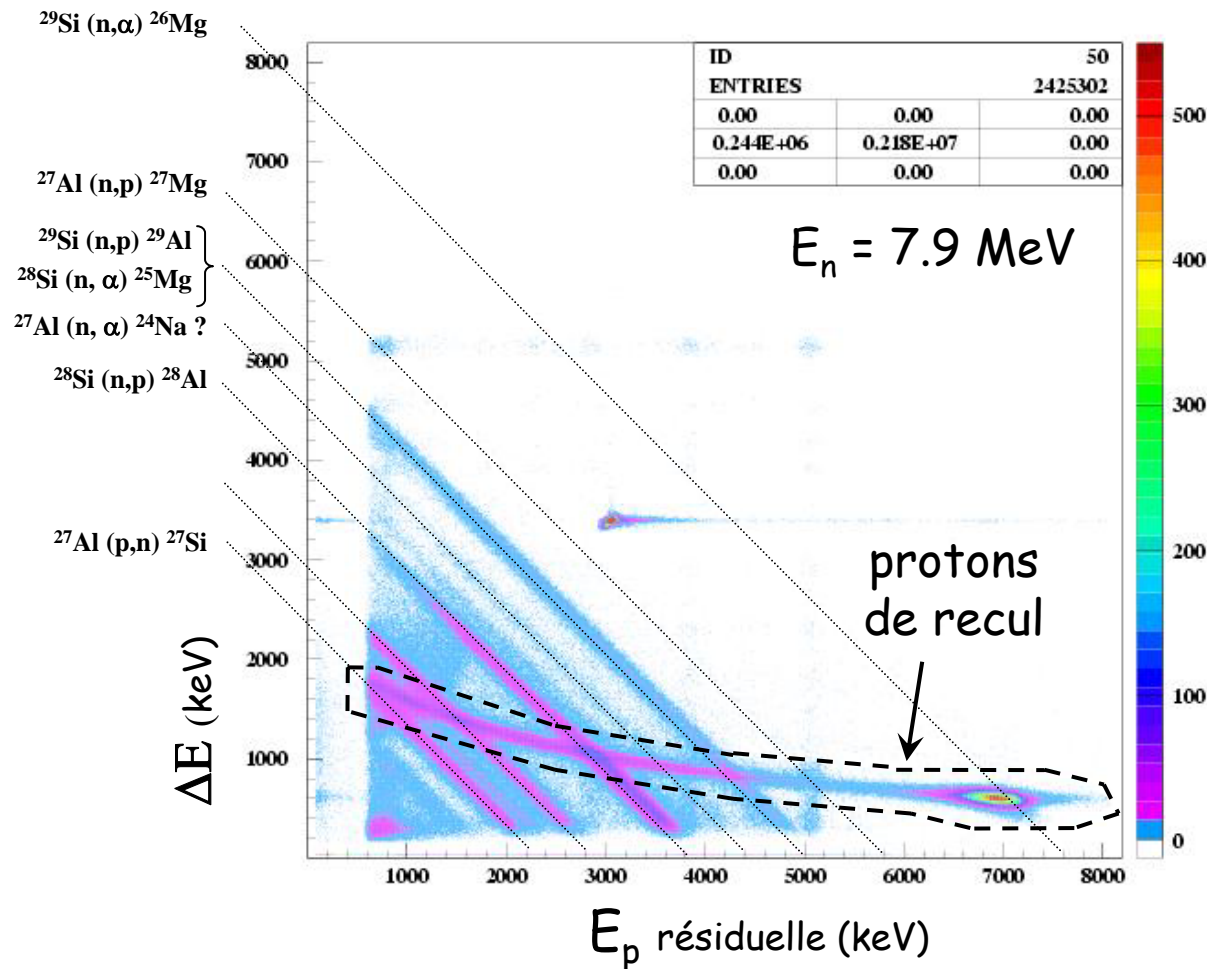
Dispositif expérimental à l'IRMM (Geel)



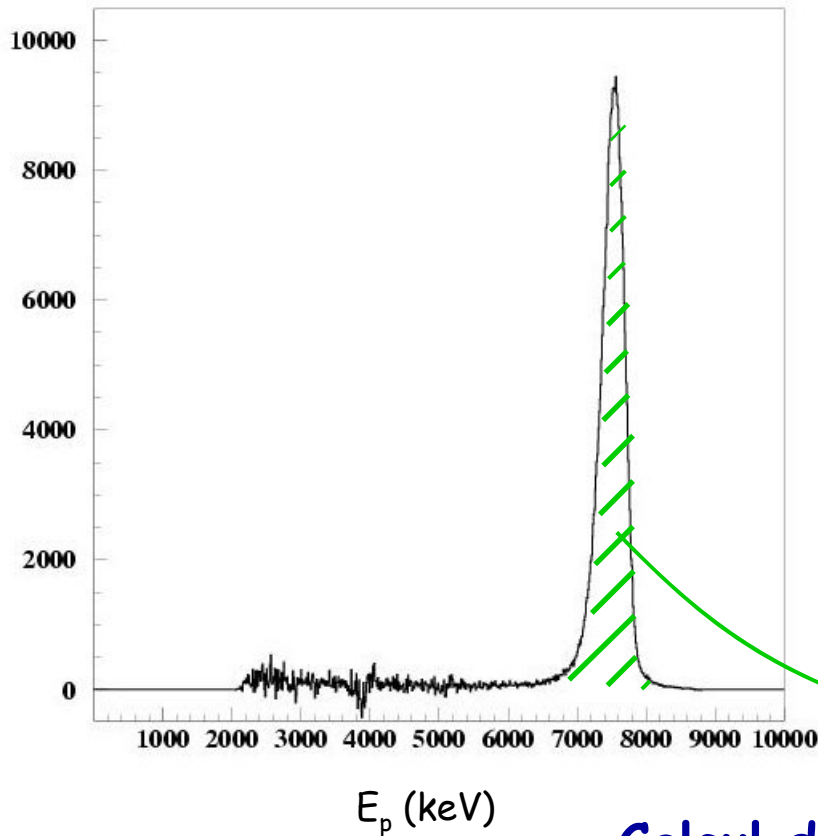
Dispositif expérimental à l'IRMM (Geel)



Détecteur Télescope

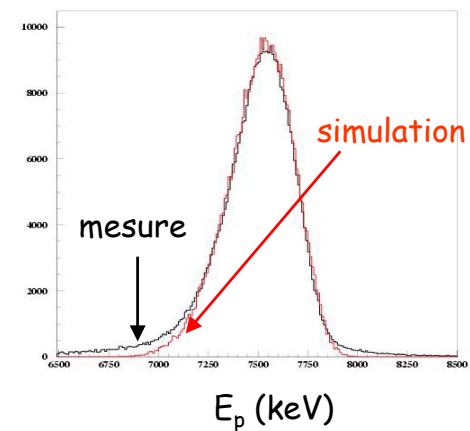
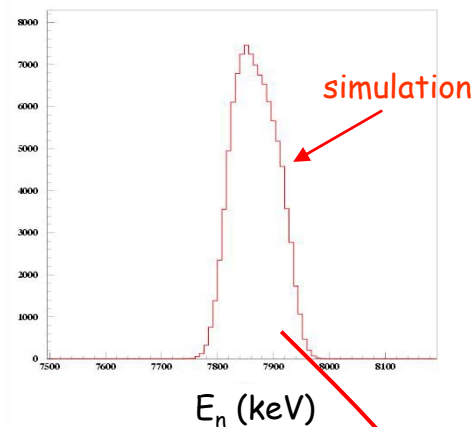


Analyse des données



Simulations :

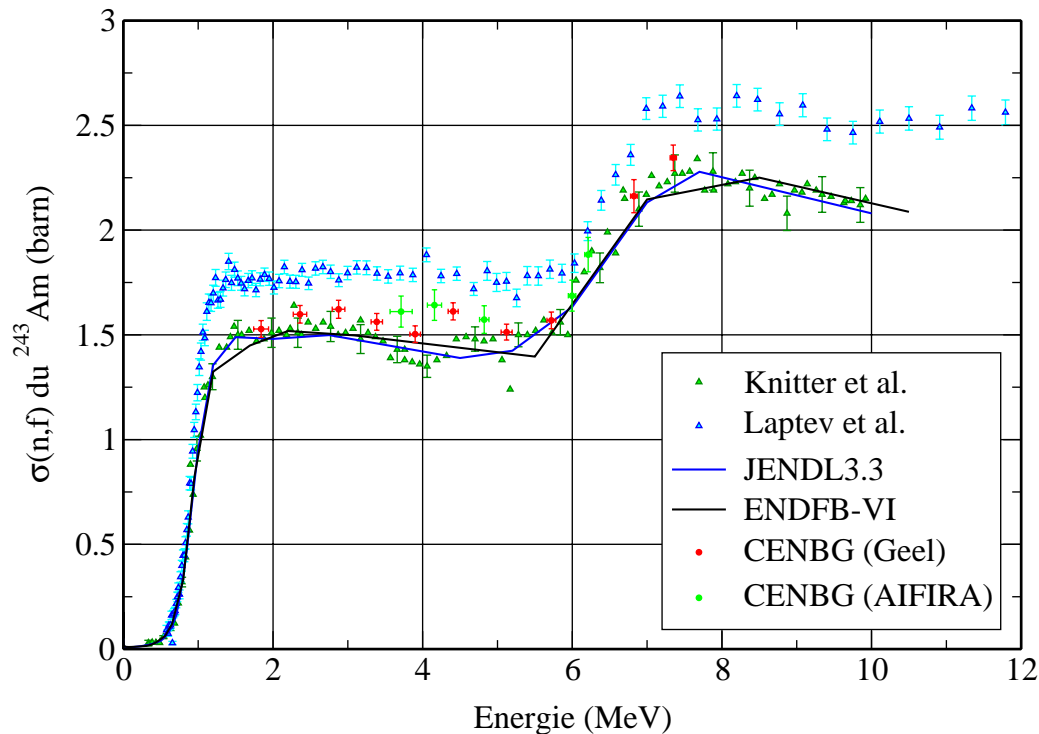
deutons/protons
 ↳ neutrons
 ↳ protons de recul



+ tables
 $\sigma(n,p)$

Calcul du flux :
$$\phi_n(E_n) = \frac{N_p}{\sigma_{n,p}(E_n) \cdot \mathcal{E}_{\text{telescope}} \cdot N_H \cdot \Delta t}$$

Résultats



Bon accord avec
les résultats de
Knitter et les
évaluations

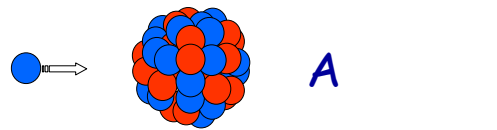
Expérience
supplémentaire récente
pour compléter les
énergies manquantes

*Résultats
préliminaires*

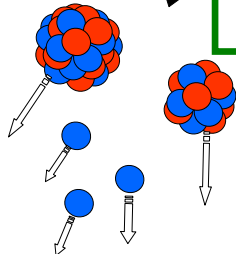
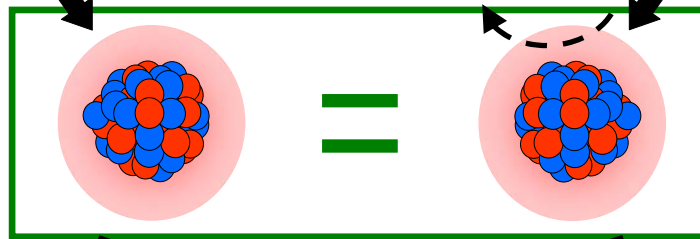
Mesure par méthode indirecte

(Thèse en cours G. Kessedjian)

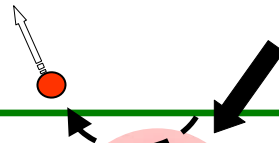
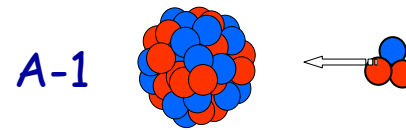
Méthode directe
par neutron



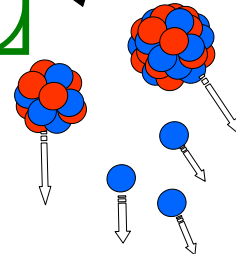
$\sigma(n, NC)$



Méthode de
transfert



$P_f = P'_f$



Section efficace de
fission par neutron

(hypothèse Noyaux Composés) :

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

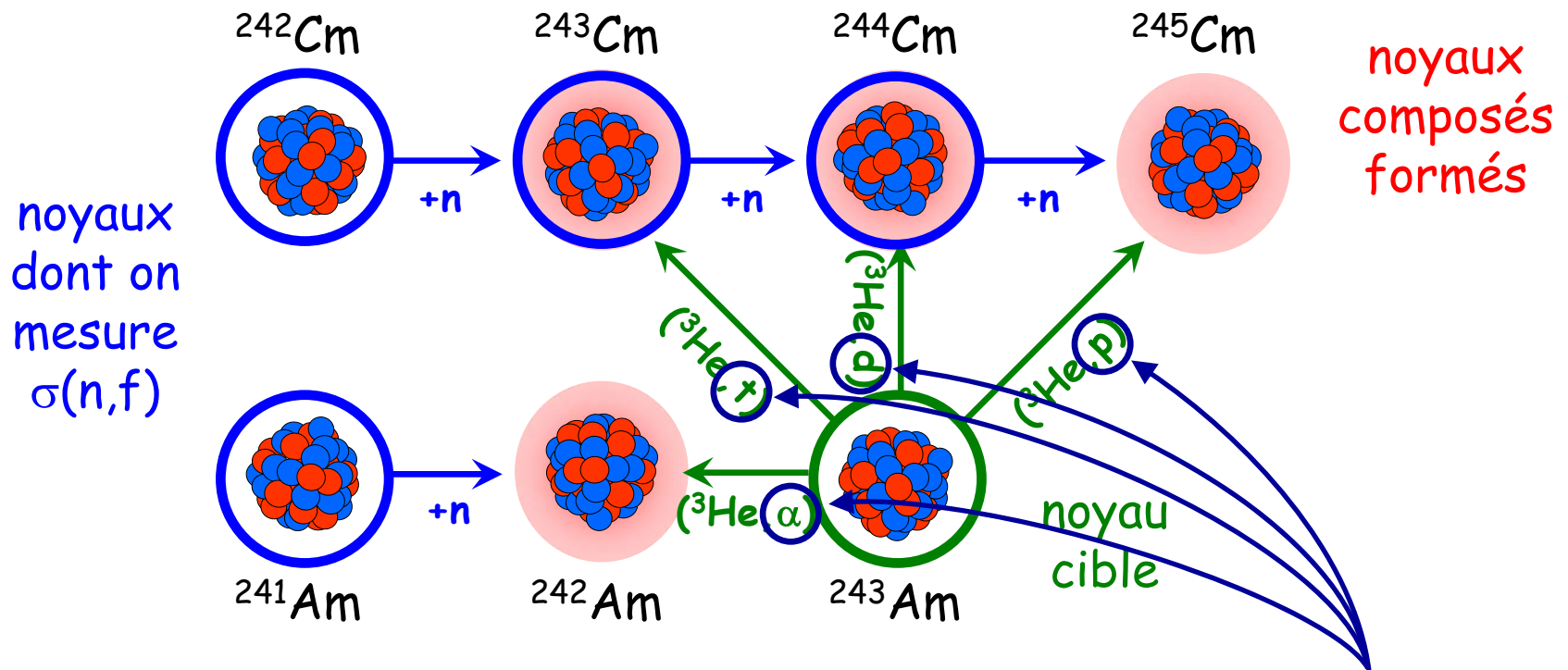
calcul
théorique
faisable

calcul
théorique
difficile

détermination
expérimentale

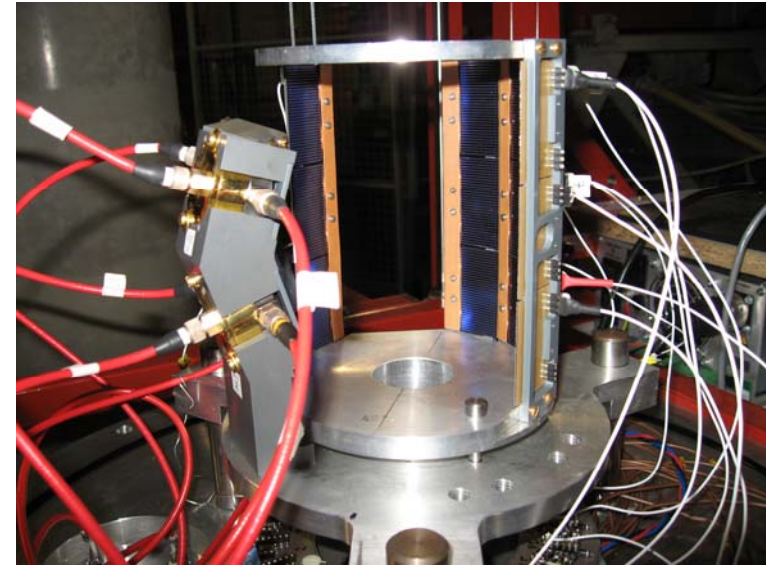
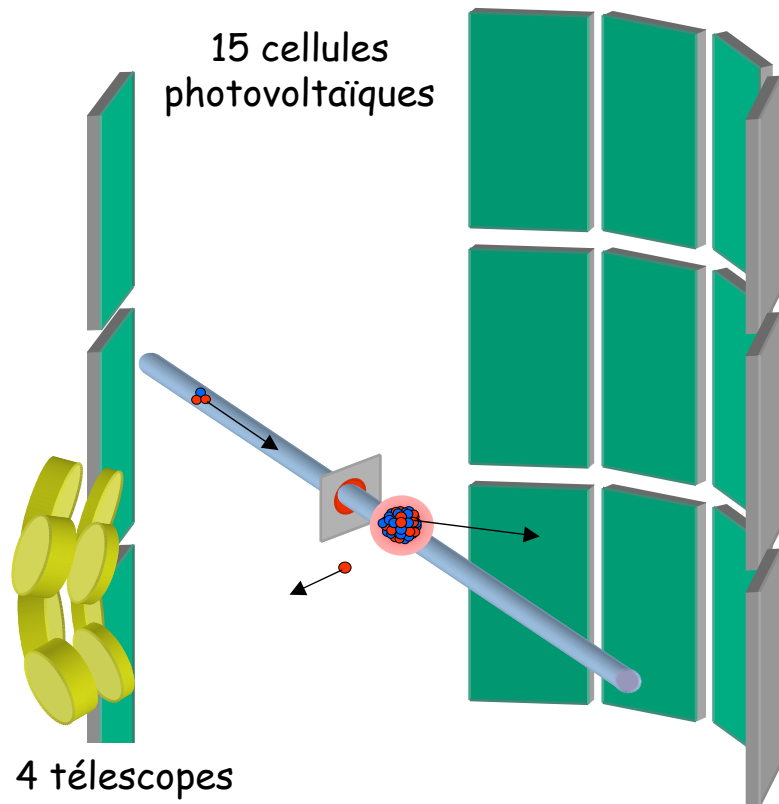
Mesures simultanées

Plusieurs voies de réaction étudiées



Identification de la voie de réaction par la particule émise

Dispositif expérimental au Tandem (IPN Orsay)

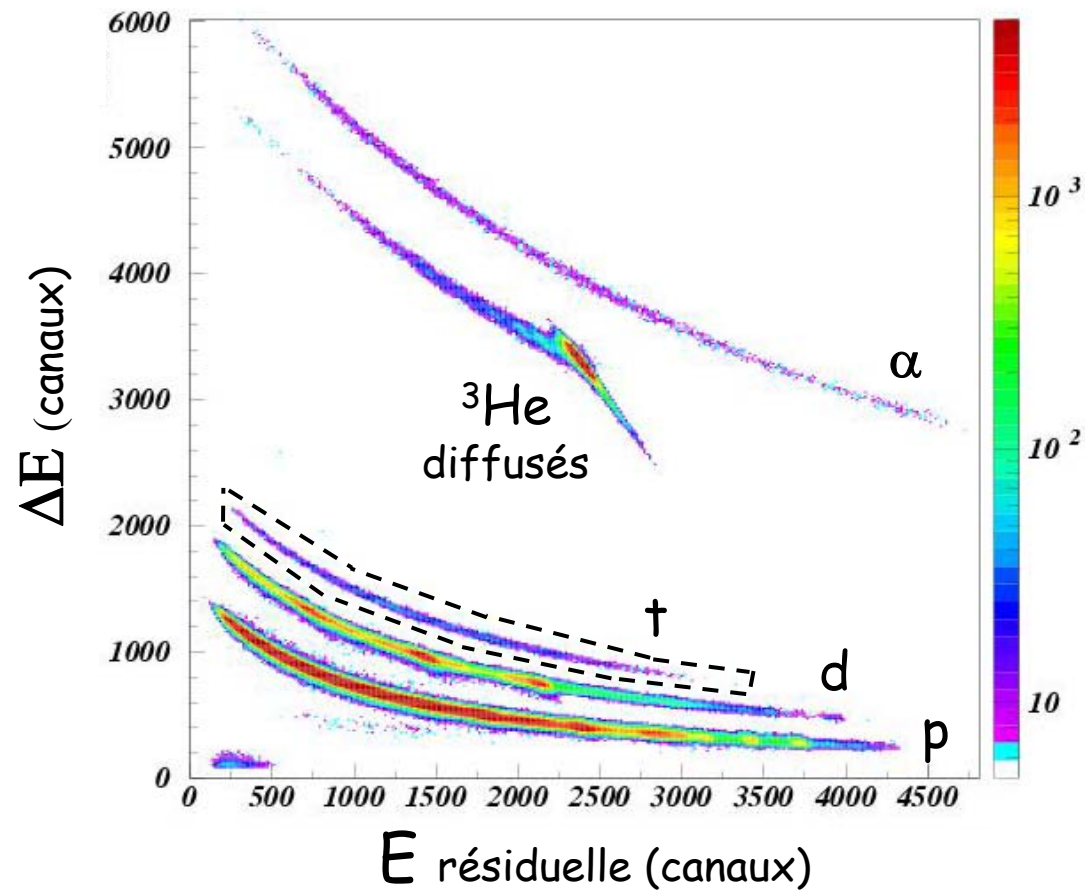


Coïncidences :

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

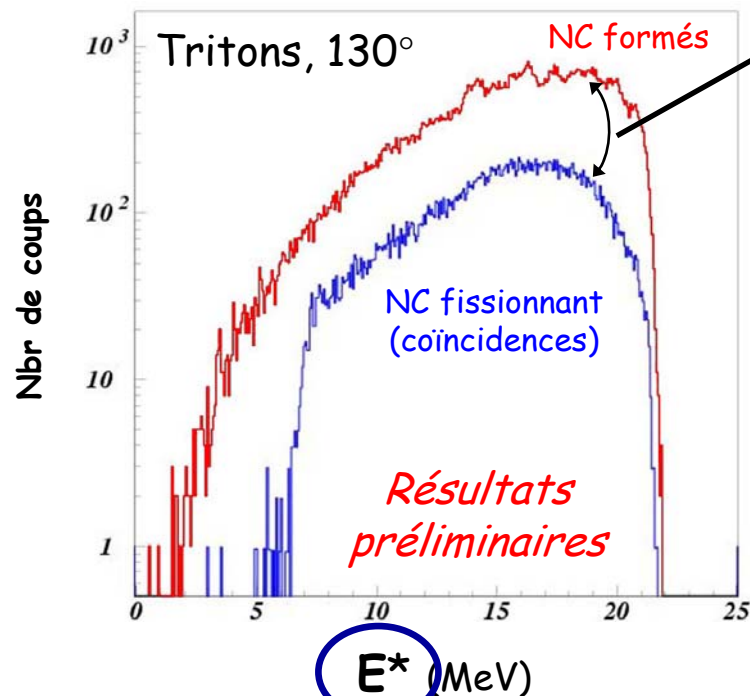
Expérience de juin 2004 :
problème d'origine inconnue
sur la voie proton

Détecteur Télescope



Analyse des données

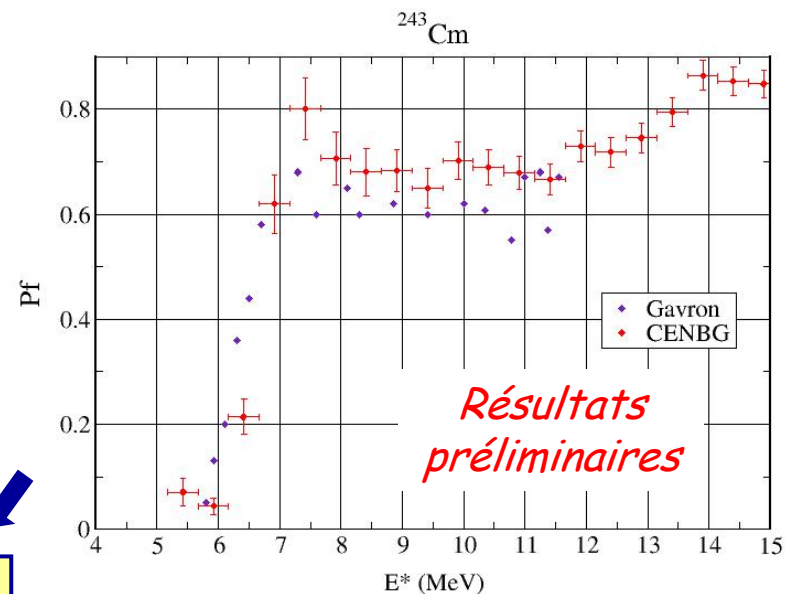
$$P_f = \frac{N_{\text{NC fissionnant}}}{N_{\text{NC formés}} \cdot \epsilon_{\text{det coïnc}}}$$



Energie d'excitation du noyau composé

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

P_f en fonction de E^*



Résultats

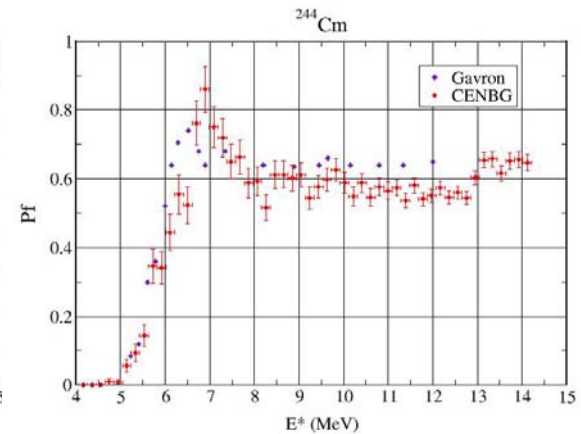
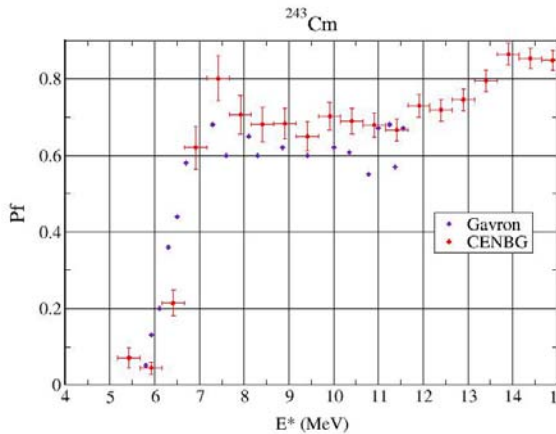
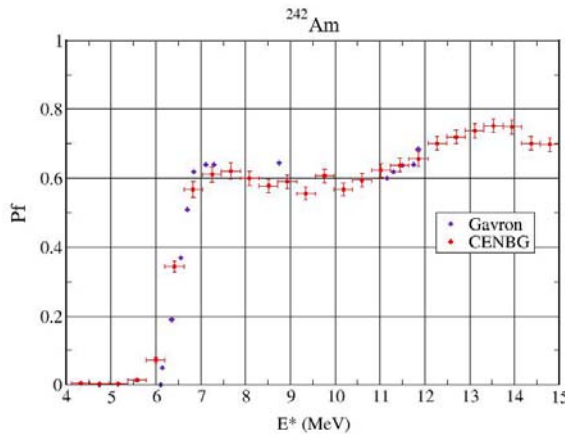
Résultats préliminaires

Voie alpha

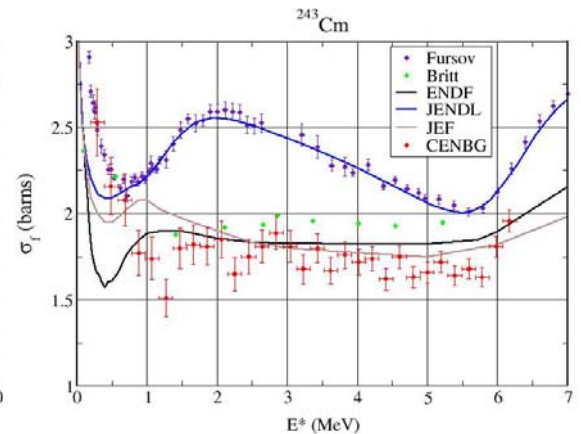
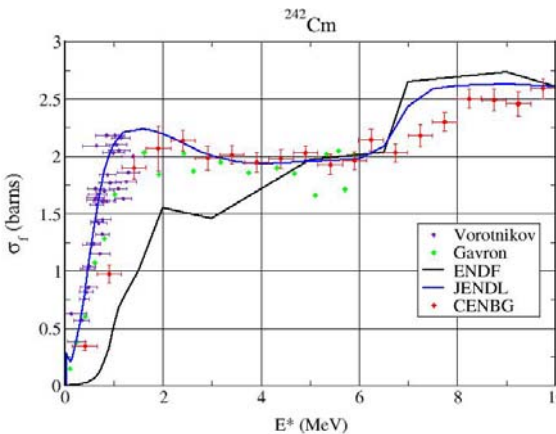
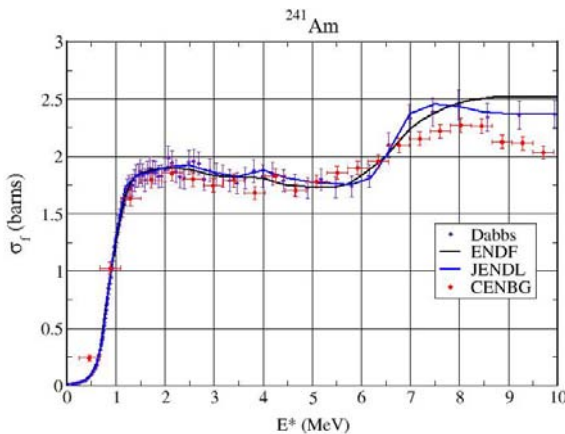
Voie triton

Voie deuteron

P_f



$\sigma(n,f)$



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 :

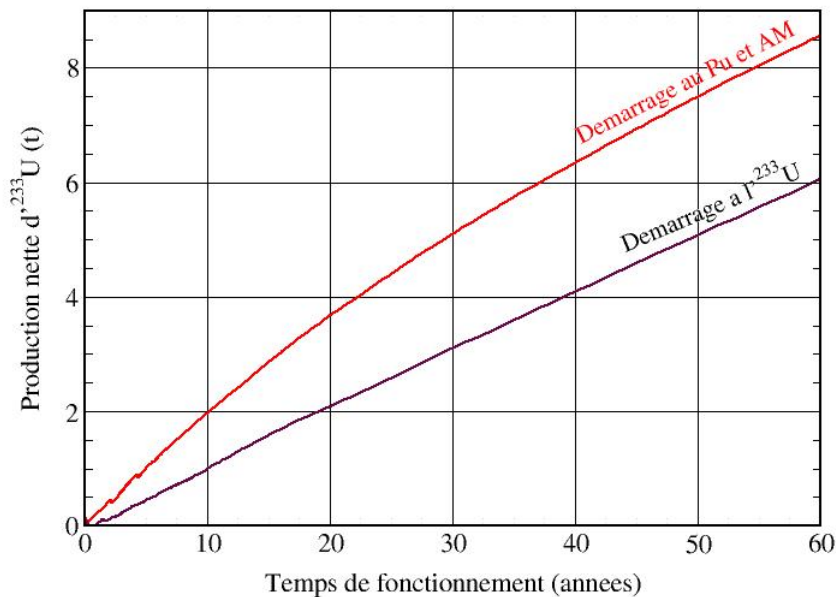
- confirmation des données de Knitter et des évaluations (ENDFB-VI et JENDL3.3)
- expérience récente sur AIFIRA pour compléter les résultats

Mesure indirecte :

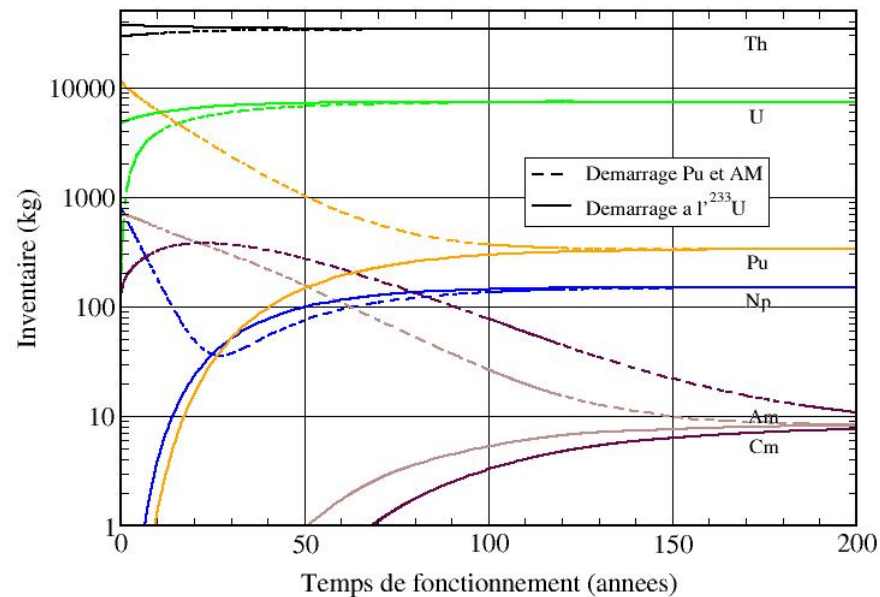
- mesure des propriétés de noyaux à courte durée de vie
- premiers résultats intéressants
- analyses en cours

TMSR Rapide démarré au Pu et AM

Meilleures capacités
de régénération

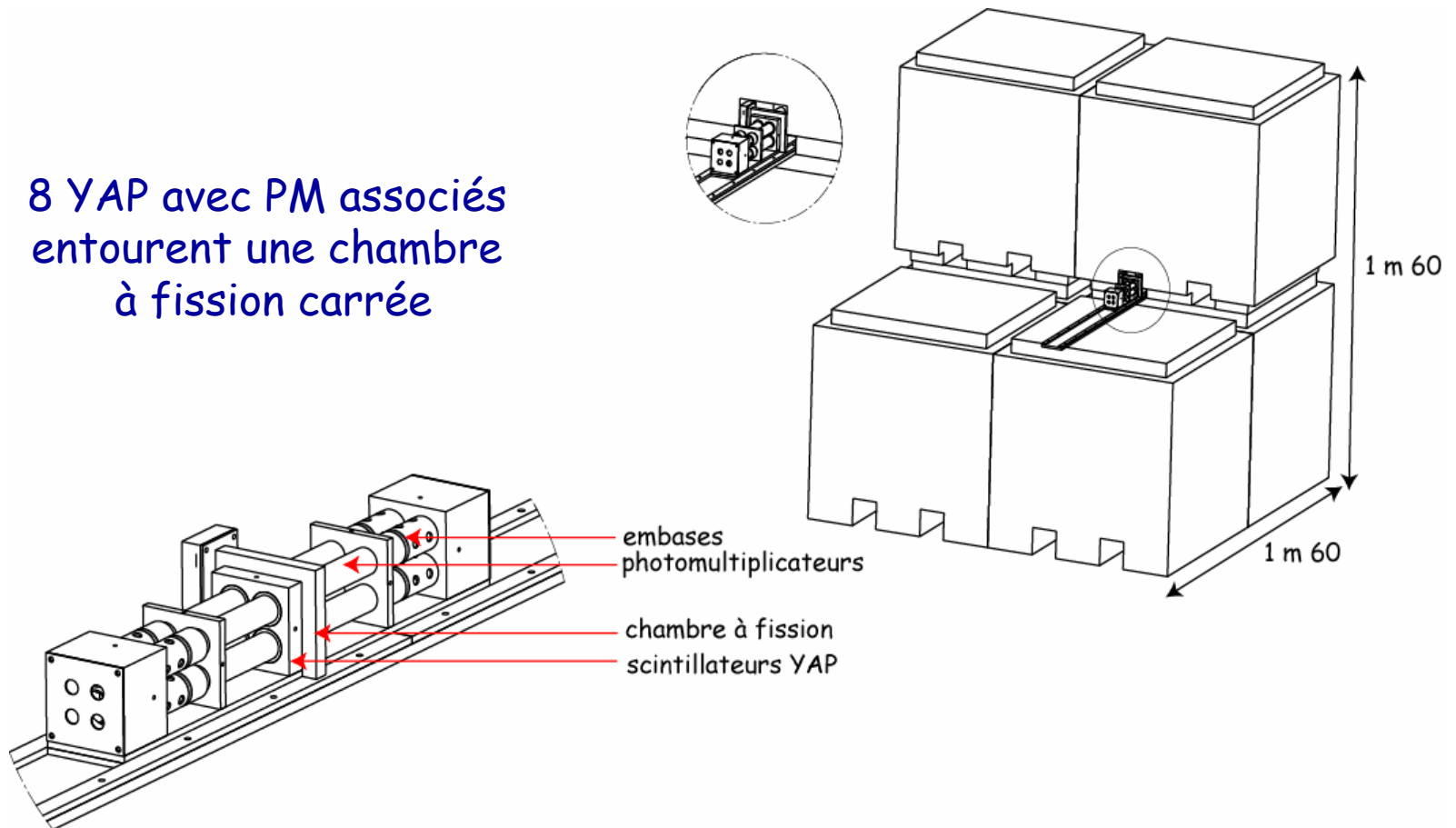


Incinération des AM

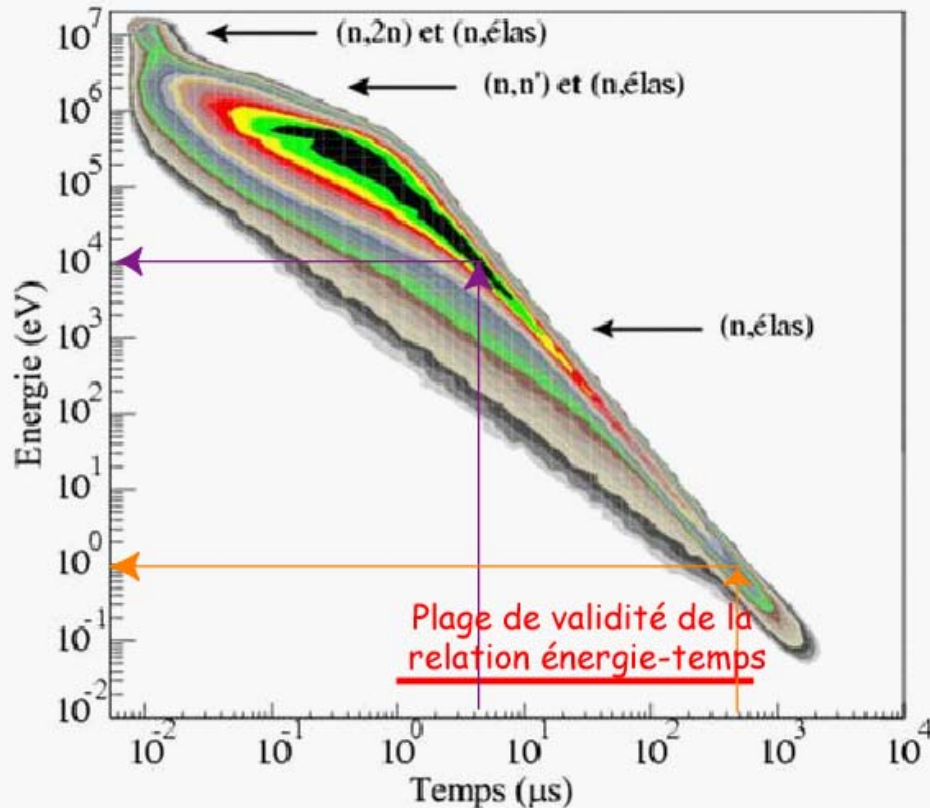


Dispositif expérimental

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

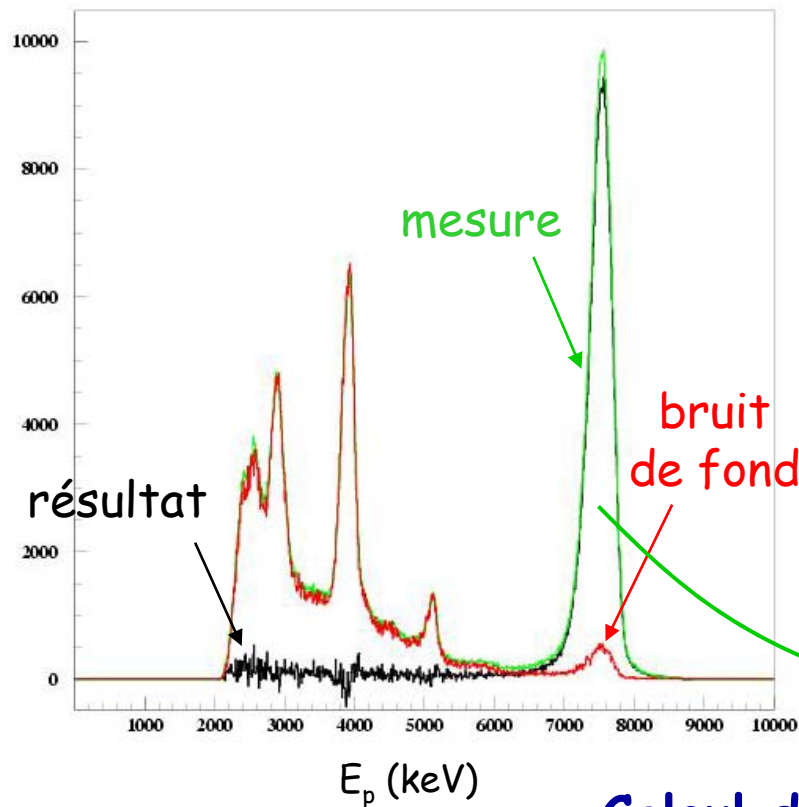
$[3.5 \mu\text{s} ; 400 \mu\text{s}]$

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

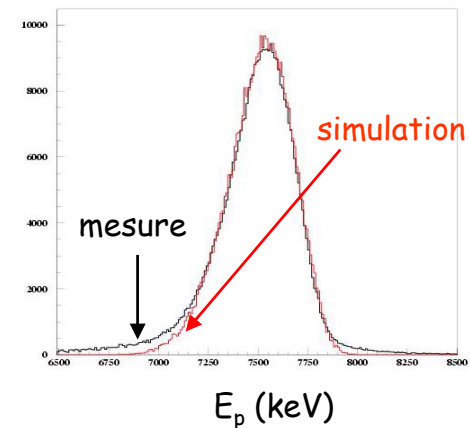
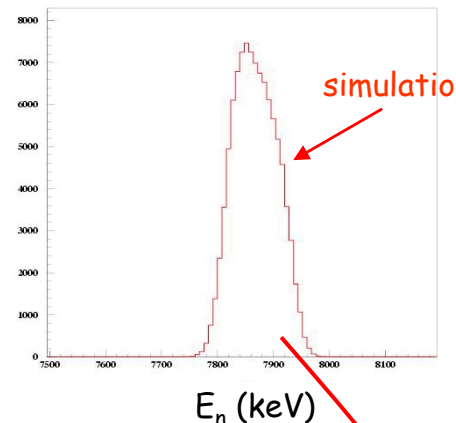
Plage de mesure des énergies

Analyse des données

protons de recul



Simulation :
neutrons \rightarrow protons de recul



+ tables
 $\sigma(n,p)$

Calcul du flux :
$$\phi_n(E_n) = \frac{N_p}{\sigma_{n,p}(E_n) \cdot \varepsilon_{\text{telescope}} \cdot N_H \cdot \Delta t}$$