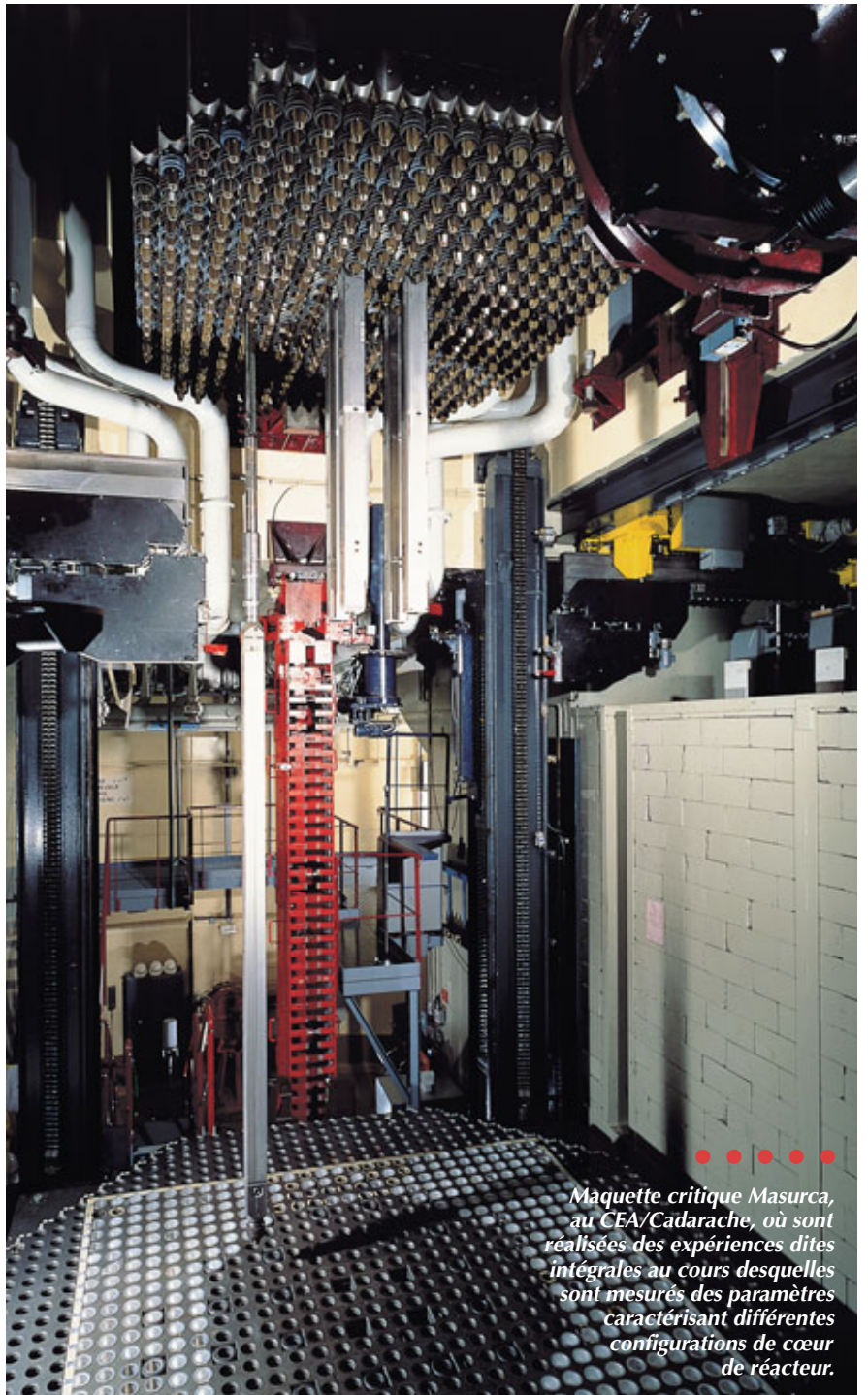


AMÉLIORER ET COMPLÉTER LES DONNÉES NUCLÉAIRES INDISPENSABLES AUX NEUTRONICIENS

Parmi les données de base nécessaires au calcul des caractéristiques physiques des réacteurs nucléaires, les sections efficaces jouent un rôle essentiel. En effet, ces paramètres interviennent dans l'équation régissant le transport des neutrons dans la matière. Leurs variations en fonction de l'énergie ne peuvent toutefois pas être décrites à l'aide d'une théorie globale suffisamment prédictive. Pour établir les sections efficaces indispensables aux calculs de neutronique, il est nécessaire de mettre en œuvre des procédures basées à la fois sur l'expérience et sur la théorie, auxquelles il faut associer des incertitudes. Améliorer et compléter les connaissances sur ces données nucléaires, réduire les marges d'incertitude dont l'impact est lié à l'économie et à la sûreté, sont les objectifs majeurs visés.



Maquette critique Masurca, au CEA/Cadarache, où sont réalisées des expériences dites intégrales au cours desquelles sont mesurés des paramètres caractérisant différentes configurations de cœur de réacteur.

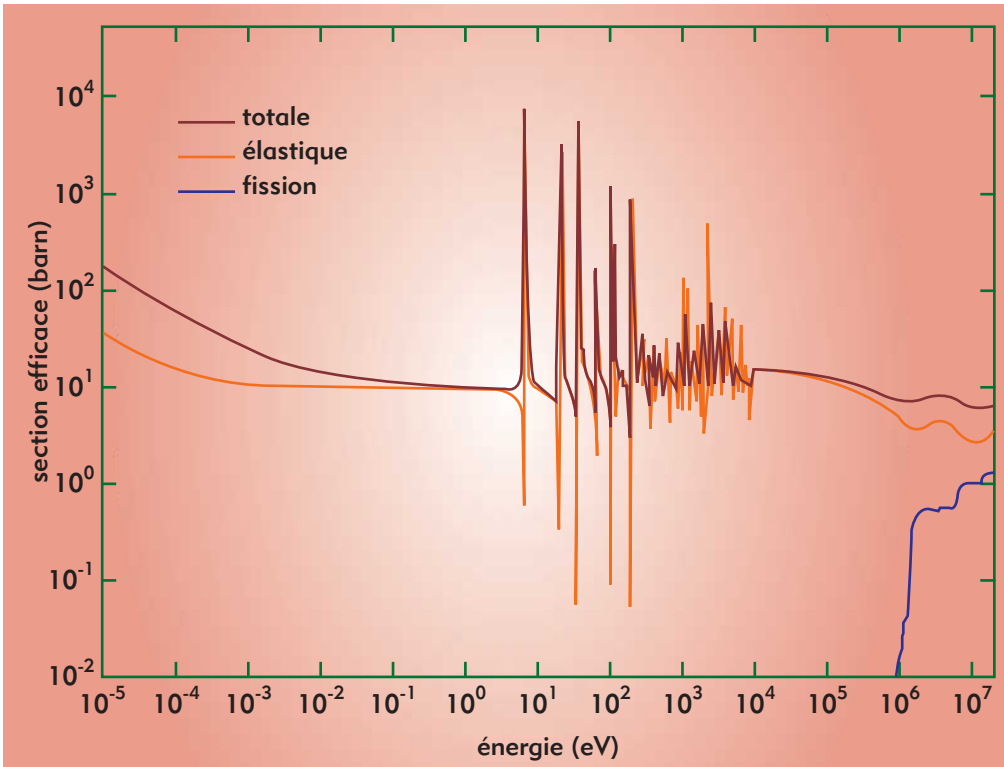


Figure 1. Représentation ponctuelle des sections efficaces totale, élastique et de fission pour l'uranium 238.



Les mesures : un rôle irremplaçable

Les variations des **sections efficaces** en fonction de l'énergie sont importantes et différentes selon le type de **réaction** (figure 1) et les **noyaux** impliqués (encadré B, *Les différents types d'interaction entre un neutron et un noyau*). Faute de formulations analytiques obtenues à partir d'une théorie assez générale pour décrire ces variations, les mesures des sections efficaces sont encore aujourd'hui indispensables. En effet, le calcul basé sur la théorie et les modèles de physique nucléaire ne permet pas de prédire les sections efficaces d'un noyau avec la précision souhaitée par les utilisateurs, malgré des progrès remarquables comme ceux, par exemple, réalisés au Commissariat à l'énergie atomique (CEA) par une équipe de la Direction des applications militaires (DAM-Île-de-France). Ceux-ci ont défini un modèle optique microscopique du noyau aux capacités suffisamment prédictives sur une large gamme d'énergie (figure 2). En particulier, la structure fine en énergie, dans la zone dite des **résonances résolues** (figure 1), ne peut pas être prédite à partir de la théorie du noyau. La mesure des sections efficaces, avec une **résolution** en énergie appropriée, joue donc un rôle irremplaçable.

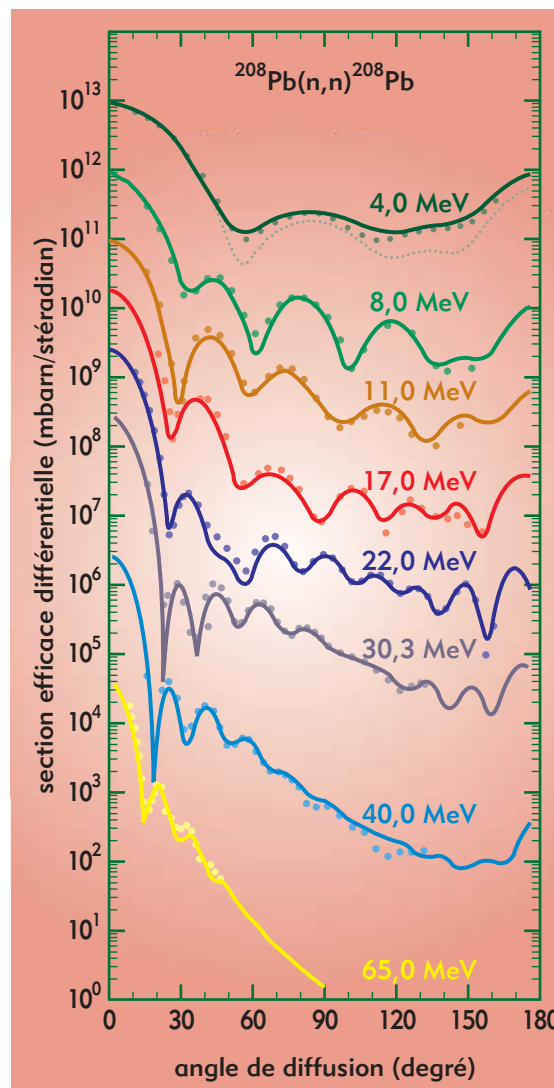


Figure 2. Section efficace différentielle de diffusion élastique pour le plomb 208 en fonction de l'angle de diffusion (dans le système du centre de masse où le projectile et la cible vont à la rencontre l'un de l'autre). La comparaison entre l'expérience (points) et le calcul avec le modèle optique microscopique développé au CEA (courbe continue) démontre les performances de ce modèle.





Ces mesures microscopiques sont effectuées à l'aide d'installations expérimentales mettant en œuvre des accélérateurs de particules, comme les Van de Graaff ou les accélérateurs linéaires, pour créer des flux intenses de **neutrons** dont l'énergie peut être déterminée avec une grande précision. Les résultats expérimentaux sont stockés dans des banques de données gérées par des organismes internationaux. Les résultats expérimentaux comportent des incertitudes liées aux techniques expérimentales adaptées à la nature de l'**isotope**, au type de réaction impliquée en prenant en compte les caractéristiques des **particules secondaires émises**. Les ordres de grandeur des incertitudes varient donc de façon importante, par exemple entre $\pm 0,4 - 0,5 \%$ sur une mesure de nombre de **neutrons prompts** de **fission** à $\pm 10 - 20 \%$ sur une mesure de section efficace de **diffusion inélastique**.



Accélérateur linéaire d'électrons Gelina du Laboratoire de Geel en Belgique, qui fournit des flux intenses de neutrons indispensables aux mesures de sections efficaces. Ici, ajustement des bobines de positionnement du faisceau d'électrons.



IRMM-Geel

L'évaluation des données nucléaires

Toutefois, les mesures elles-mêmes ne permettent pas de couvrir de façon exhaustive l'ensemble des besoins (isotopes, réactions, domaine d'énergie). Les modèles nucléaires sont alors employés pour combler certaines lacunes et interpoler ou extrapoler les mesures existantes, mais aussi pour les interpréter en vue d'une connaissance plus précise des mécanismes d'interaction nucléaire, avec comme objectif une amélioration des modèles. Le rôle joué par les modèles nucléaires est donc encore important bien que ceux-ci ne puissent pas répondre aux besoins d'exhaustivité évoqués plus haut.

Pour obtenir des valeurs réalistes et utilisables, une nouvelle discipline de physique nucléaire appliquée a été développée : l'*évaluation des données nucléaires*, dont la méthodologie consiste à rechercher la cohérence maximale entre les informations provenant des expériences et celles issues des modèles. Le travail d'évaluation a été mené au cours des cinquante dernières années par des équipes de divers laboratoires du monde entier. Coordinné souvent à un niveau régional (Europe, Japon, États-Unis, Chine, Russie), il a pris la forme de banques de données évaluées, comportant des données pour l'ensemble des réactions d'un

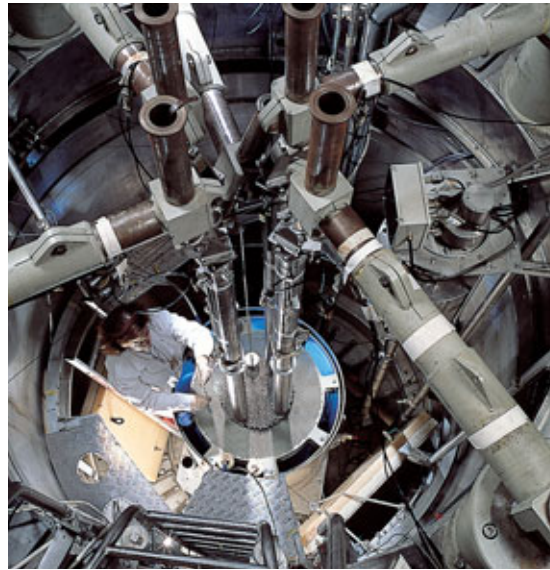
grand nombre d'isotopes (plusieurs centaines), dans un domaine d'énergie qui va de la fraction d'**électronvolt** à 20 millions d'électronvolts (MeV). Il existe d'importantes bibliothèques internationales : JEF (*Joint Evaluated File*, Europe), banque de données de l'Agence pour l'énergie nucléaire de l'OCDE (Organisation pour la coopération et le développement économique), ENDF (*Evaluated Nuclear Data File*, États-Unis), JENDL (*Japanese Evaluated Nuclear Data Library*, Japon) et BROND (*Biblioteka Rekomendovannykh Otsenjonnykh Neutronnykh Dannyykh*, Russie) remises à jour périodiquement.

Aux compilations de valeurs nominales des sections efficaces, représentant parfois plusieurs milliers de valeurs d'une section efficace particulière, telle que la section efficace totale, d'un isotope donné entre une fraction d'électronvolt et 20 MeV, les physiciens nucléaires ont commencé, il y a une quinzaine d'années, à ajouter des évaluations des incertitudes. Ces incertitudes sont calculées à l'aide de techniques statistiques parfaitement maîtrisées qui tiennent compte des incertitudes de mesure.

Par ailleurs, rappelons que, pour l'utilisation des données nucléaires dans les calculs des réacteurs, des valeurs ponctuelles contenues dans les tabulations des bibliothèques il faut passer à des valeurs moyennées sur des domaines d'énergie préétablis pour les calculs dits "multigroupe" et sur des régions spatiales caractérisant un "motif" dans un réseau d'assemblages. Les moyennes à effectuer sont en effet des moyennes *efficaces* qui utilisent des fonctions de pondération permettant de respecter certains critères de conservation du **bilan neutronique**. Des logiciels sophistiqués ont été développés pour réaliser ces opérations comme, par exemple, le logiciel NJOY très employé dans le monde occidental. L'ensemble des approximations et des incertitudes, dont les limites irréductibles sont fixées par les techniques expérimentales, font des sections efficaces le "maillon faible" du calcul de neutronique. Pour améliorer ces données nucléaires, des mesures de l'impact de leurs incertitudes et des analyses d'incertitude sont indispensables.

Des analyses d'incertitude riches d'enseignement

L'impact des incertitudes sur les données nucléaires se mesure en termes d'incertitudes induites sur les paramètres importants qui caractérisent le cœur du réacteur (**masse critique**, **coefficients de réactivité**, éventuel gain de **surgénération** s'il s'agit d'un cœur de **réacteur à neutrons rapides RNR...**), les dispositifs de protection des structures (**activation** des structures, dommages sur la cuve...) ou le cycle du combustible (**puissance résiduelle** du cœur une fois la **réaction en chaîne** stoppée...). Par exemple, si le physicien veut connaître l'impact de l'incertitude d'une section efficace d'un certain isotope dans un domaine d'énergie donné sur la valeur du **facteur de multiplication** k d'un réacteur (paramètre intégral), il faut disposer d'une théorie qui rende possible la détermination, à partir de la connaissance des grandeurs physiques caractérisant le réacteur (comme le flux neutronique), de *coefficients de sensibilité* reliant la variation de la section efficace à celle du facteur de multiplication. Une branche nouvelle de la physique des réacteurs a été développée pour permettre le calcul des coefficients de sensibilité d'un paramètre intégral (facteur de multiplication, **taux de réaction**, coefficients de réactivité...) aux données nucléaires.



Installation critique Éole, au CEA/Cadarache, où sont menées des expériences de validation intégrale avec pour objectif de réduire les marges d'incertitude sur les données nucléaires de base.



CEA/Gonin

À l'aide de ces coefficients sont effectuées des analyses d'incertitude, dont les résultats peuvent être utilisés pour identifier les données et les domaines d'énergie les plus importants en termes d'impact sur les grandeurs intégrales caractérisant le cœur du réacteur. Ces analyses conduisent à identifier les causes d'incertitudes sur des paramètres aussi variés que le **coefficient de vide** (**coefficient de réactivité dû à la disparition de l'eau**) dans un **réacteur à eau sous pression** (REP) chargé en **MOX**, la puissance résiduelle dans un REP à combustible d'oxyde d'uranium standard **UOX**, la masse critique d'un RNR ou la radiotoxicité après plusieurs dizaines de milliers d'années dans un stockage géologique.

Les analyses d'incertitude permettent aussi de quantifier les besoins en précision sur les données nucléaires. Ce problème, qui est l'inverse du précédent, peut être résolu de façon rigoureuse moyennant certaines conditions. Il s'agit de répondre à la question suivante : étant fixées *a priori* les précisions souhaitées sur un ensemble de paramètres du réacteur et connaissant d'une part les incertitudes initiales sur les données nucléaires puis d'autre part les coefficients de sensibilité associés, quelle est la précision - en d'autres termes quelle est la réduction d'incertitude - qu'il faut viser sur les différentes données nucléaires concernées ? Un exemple relatif à un cœur de RNR est présenté dans le tableau 1. Ces résultats donnent en principe les moyens d'orienter des programmes de recherche sur les données nucléaires et, en particulier, de définir des priorités dans d'éventuels programmes de mesure.

Enfin, les incertitudes sur les données nucléaires jouent un rôle essentiel dans le processus d'amélioration de ces données pour les applications faisant appel aux **mesures de paramètres intégraux** dans des réacteurs expérimentaux de faible puissance (maquettes critiques). L'idée de base est très simple. Dans des maquettes critiques sont réalisées des configurations ("assemblages" d'éléments combustibles ou de matériaux de structure) qui simulent le cœur d'un réacteur de référence, par exemple en termes de bilan neutronique ou de distribution

isotope	type de section efficace	précision demandée (%)
uranium 238	capture radiative	3
	fission	3,5
	$\bar{\nu}$	1
	transport diffusion inélastique	5 5
plutonium 239	capture radiative	7
	fission	2
	$\bar{\nu}$ diffusion inélastique	0,5 15
fer	capture radiative	15
	transport	10
	diffusion élastique	10
	diffusion inélastique	6
oxygène	transport	7
	diffusion élastique	7

Tableau 1. Précisions demandées dans les sections efficaces pour obtenir une précision "cible" de 1 % sur le **facteur de multiplication effectif** k_{eff} d'un RNR de grande taille. $\bar{\nu}$ correspond à la valeur moyenne du nombre de neutrons prompts par fission.

de flux. Le physicien mesure les paramètres qui caractérisent le bilan critique, les distributions de puissance ou même directement les coefficients de réactivité.

À partir de ces valeurs expérimentales et des valeurs calculées associées, l'écart observé peut être imputé à un défaut de qualité des données nucléaires de base, en se fondant sur l'hypothèse raisonnable que les modèles de la neutronique sont aujourd'hui suffisamment précis pour être dépourvus de biais significatifs. À l'aide des coefficients de sensibilité mentionnés plus haut, des incertitudes des données nucléaires et des incertitudes expérimentales associées aux mesures des paramètres intégraux en maquette critique, une méthode de minimisation est appliquée permettant de trouver des modifications des sections efficaces qui réduisent l'ensemble des écarts observés entre le calcul et l'expérience, et d'attribuer de nouvelles incertitudes aux données nucléaires "ajustées". Ces procédures d'ajustement ou de "recherche de tendance" (figure 3) ont connu un succès remarquable, dont l'exemple le plus spectaculaire est l'ajustement des données nucléaires de la bibliothèque européenne JEF-2 effectué au Département d'étude des réacteurs du CEA en utilisant 486 valeurs expérimentales intégrales, pour la plupart mesurées en France.

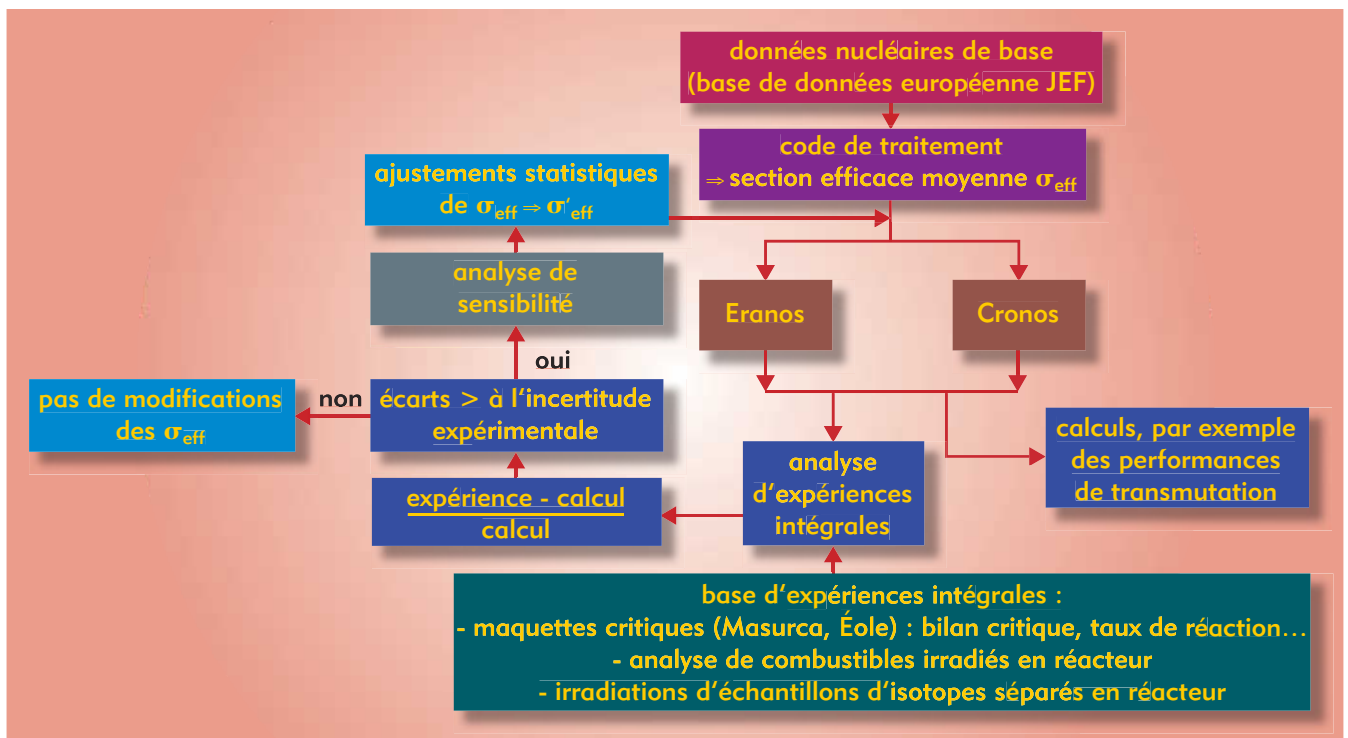
La validité, en termes de physique, des ajustements obtenus a pu être démontrée indirectement par le fait que ces modifications se sont avérées cohérentes pour plusieurs noyaux avec des résultats de nouvelles **mesures différentielles** trouvés de façon indépendante ou avec des évaluations prenant en compte ces nouvelles données (figure 4).

Faut-il encore améliorer les connaissances ?

L'état actuel des connaissances après cinquante ans de recherches, d'expérimentation et d'évaluation dans le domaine des données nucléaires rend légitime de se poser la question de la nécessité de poursuivre ces programmes, au niveau national ou international. Les besoins en données nucléaires et les éventuelles priorités en matière de nouvelles mesures différentielles ou de validation intégrale ont fait l'objet d'études et de débats. Dans le domaine de la recherche appliquée, les besoins sont formulés sur des bases scientifiques et l'utilisateur des résultats des recherches, qui a une vision globale de l'application, a un rôle essentiel pour exprimer des besoins et donc justifier des demandes de nouveaux programmes. À ce propos, il convient de mentionner que ces besoins sont spécifiques des différents types de réacteurs et évoluent avec



Figure 3. Principe de la validation expérimentale des schémas et systèmes de logiciels.



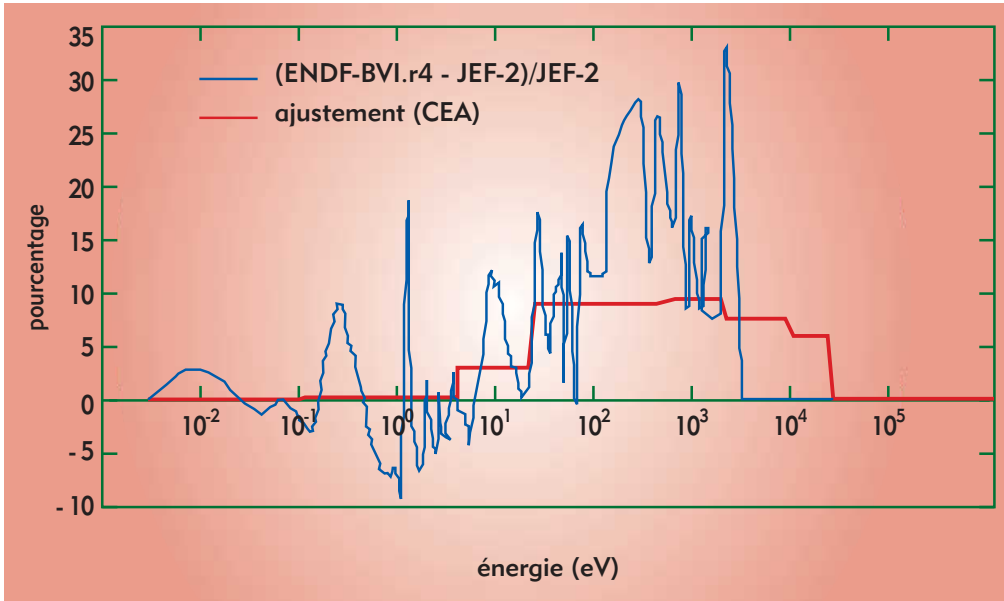


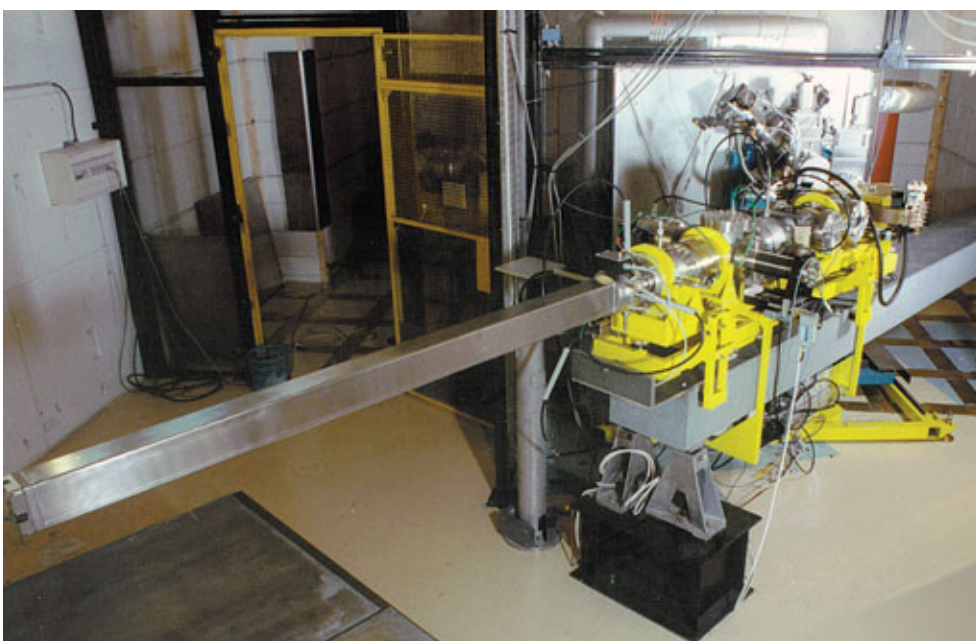
Figure 4. Pour cette section efficace de capture radiative de l'uranium 235, importante pour les REP, les prédictions (multigroupe) de l'ajustement, en termes de modifications en pourcentage par rapport à l'évaluation JEF-2, (courbe rouge) sont comparées à la nouvelle évaluation ENDF-BVI.r4, présentée en termes de modifications en pourcentage par rapport à l'évaluation JEF-2 (courbe bleue).



eux. Toutefois, il paraît évident que la justification des besoins ne doit pas se limiter en termes d'application "immédiate", sachant que l'activité sur les données nucléaires exige une compétence et une technicité qui ne s'acquièrent qu'avec le temps. Ceci a bien été compris en Europe où les industriels français (EDF, Framatome, Cogema) et la *British Nuclear Fuels Limited* BNFL montrent un vif intérêt pour le maintien des compétences dans le domaine des données nucléaires.

D'un point de vue plus quantitatif, certains chiffrent à des centaines de millions de dollars, pour un parc nucléaire d'une capacité de 400 GWe, les économies potentiellement réalisées à partir

d'améliorations relativement modestes des données nucléaires, en particulier en termes de réduction des marges d'incertitude. Ils estiment que de meilleures données nucléaires de base pourraient conduire à des économies sur les coûts de la fabrication du combustible, de l'exploitation des **réacteurs à eau légère** et de la fin du cycle. Plus récemment, toujours dans le cadre des besoins dans le domaine du cycle du combustible, les experts de Cogema ont dressé une liste de données essentielles pour le cycle et des précisions visées (tableau 2). Les domaines où les besoins en données nucléaires seront encore importants dans les années à venir sont nombreux (encadré).



Accélérateur de deutons de haute intensité Genepi, ici dans le hall expérimental de l'Institut des sciences nucléaires à Grenoble où il a été construit. Il est utilisé dans l'expérience Muse-4, réalisée dans la maquette critique Masurca au CEA/Cadarache, dans le cadre des études sur les systèmes hybrides.

	domaine	grandeurs physiques calculées	incertitude (objectif)
exploitation	bilan matière	masses et activités	en cours d'évaluation
	contrôle nucléaire du procédé	masse fissile activités dégagement de chaleur	incertitude actuelle (liée à la mesure)
risques	impact sur l'environnement	dose d'inhalation sous le panache dose d'exposition externe dose d'ingestion	30 % 40 % 40 %
	radioprotection	débit d'équivalent de dose gamma débit d'équivalent de dose neutronique débit d'équivalent de dose bêta	30 % 40 % 50 %
	criticité	laplacien matière, k_{eff} , k_{∞}	1-2 %
	radiolyse	débit d'hydrogène	30 %
	thermique	puissance thermique émise	30 %

Tableau 2. Incertitudes visées par domaine d'utilisation, selon Cogema (Compagnie générale des matières nucléaires).

Réduire les marges d'incertitude

De nouvelles évaluations et mesures peuvent s'avérer nécessaires et la disponibilité d'installations expérimentales à cet effet est essentielle. En ce qui concerne les mesures microscopiques, une initiative a été récemment lancée au Cern de Genève. Il s'agit de l'installation N-TOF qui donnera les moyens d'effectuer des mesures de

sections efficaces, notamment d'isotopes radioactifs tels que les **actinides mineurs**, sur un domaine d'énergie s'étendant de quelques électronvolts à 100 ou 200 MeV, avec une très bonne résolution en énergie. Par ailleurs, le futur en France des maquettes critiques Masurca, Éole et Minerve devrait être assuré pour permettre l'indispensable synergie entre expériences microscopiques et expériences intégrales.

• • • • •
 Vue de la ligne N-TOF (Neutron-Time Of Flight) et des personnes impliquées dans la conception et la construction de l'installation. Des mesures de sections efficaces d'isotopes radioactifs pourront être effectuées dans cette installation, qui a délivré son premier faisceau de neutrons durant l'année 2000.



Laurent Guiraud/Cern

Améliorer les données existantes et en établir de nouvelles

Les besoins en données nucléaires couvrent des domaines très variés.

L'extension des taux de combustion dans les réacteurs actuels. Ces besoins sont liés à l'accumulation plus importante d'**actinides mineurs** et à l'évaluation de la **puissance résiduelle**. La réduction des incertitudes actuelles est la priorité dans ce domaine.

La gestion du plutonium par des concepts innovants, avec diminution du support uranium ou par modification du **rapport de modération**, comme le concept APA. L'assemblage APA (Assemblage plutonium avancé) conduit à une meilleure utilisation du Pu en augmentant la modération des **neutrons** par rapport au recyclage du **MOX** dans les **REP**. Le plutonium et l'uranium **enrichi** sont contenus dans des crayons séparés, aboutissant à un rapport de modération élevé pour le Pu, ce qui est favorable aux paramètres physiques limitant la production d'actinides mineurs. Pour plusieurs de ces concepts, l'évaluation des **coefficients de réactivité** nécessite une réduction des incertitudes, du fait que les coefficients de réactivité résultent de la compensation d'effets partiels de signes opposés (variation des fuites, du ralentissement des neutrons, de l'**absorption**). En effet, la combinaison d'incertitudes, même limitées, sur les différentes composantes, peut avoir comme résultat une incertitude très significative sur le coefficient de réactivité, exprimé comme somme algébrique des différentes composantes.

Les concepts de réacteurs innovants, faisant appel à de nouveaux combustibles solides (par exemple sans support uranium, alors remplacé par une matrice de type yttrium, zirconium ou magnésie MgO) ou à des combustibles à particules (pour **RNR** refroidis au gaz, particules pour lesquelles des enrobages autres que le graphite doivent être conçus, tel le nitrure de titane TiN). Dans ce cas, aux problèmes de représentation correcte du bilan critique s'ajoute la nécessité d'établir des **sections efficaces** pour des matériaux moins utilisés jusqu'ici. Dans le domaine des concepts innovants, un retour d'intérêt pour les RNR à combustible "sels fondus" sur un support fluor exigerait, entre autres, une validation détaillée des propriétés de ralentissement élastique et inélastique du fluor !

Le concept de réacteurs (critiques ou sous-critiques) dédiés à la transmutation des déchets à vie longue. Des premières estimations indiquent que les incertitudes sur les données nucléaires des actinides mineurs, aujourd'hui acceptables pour des phases de "dégrossissage" des concepts, le seraient moins, même dans une phase de démonstration à l'échelle d'un assemblage à irradier dans un réacteur d'irradiation. De plus, dans le cas de ces réacteurs, les données concernant la puissance résiduelle et la fraction effective des **neutrons retardés** nécessiteraient un programme d'amélioration significatif.

Le cycle thorium (Th) souvent évoqué dans le contexte de la réduction de la radiotoxicité "à la source" ou comme support potentiel pour un combustible au Pu, dans l'objectif de diminuer de façon significative la quantité de Pu. Par exemple, un cœur de RNR avec du Th et du ^{233}U a un coefficient de réactivité, due à la vidange du caloporteur, **négatif**, contrairement à un cœur chargé avec de l'U et du Pu. Des données nucléaires avec des incertitudes plus faibles, c'est-à-dire avec des précisions comparables à celles utilisées pour le cycle uranium, seraient indispensables pour les **isotopes** principaux (^{233}U , ^{232}Th , ^{234}U ...).

Le développement des systèmes hybrides. Il nécessite déjà, pour la phase actuelle de validation expérimentale de composantes séparées, comme par exemple la source de **spallation**, la mise en place et la validation de données nucléaires dans différents domaines essentiels pour en établir la faisabilité. Ces domaines concernent la production de :

- produits de spallation, sources potentielles d'**activation** dans la cible et les structures, et produits de corrosion ;
- gaz (hydrogène et hélium) dans les structures d'énergie supérieure à 20 MeV suite à des réactions du type **(n,p)** ou **(n, α)**, cette production ayant des conséquences possibles sur le gonflement des matériaux sous irradiation ;
- neutrons de haute énergie, supérieure à 100 MeV, en vue de leur influence sur la conception des protections.

Évidemment, la collaboration internationale joue et doit continuer à jouer un rôle essentiel pour la satisfaction des besoins et le maintien des compétences. En effet, le domaine des données nucléaires reste indispensable à la poursuite du développement de l'énergie nucléaire. Dans les calculs de neutronique qui se rapportent aux performances du cœur et à la sûreté ou au cycle du combustible, les progrès signi-

ficatifs des moyens de calcul, et en particulier la possibilité d'effectuer des calculs à trois dimensions, ne font que mettre en évidence que le potentiel de réduction des incertitudes sur les données nucléaires constitue l'élément clé. Il faut se rappeler que la réduction des incertitudes est liée aux performances des techniques expérimentales microscopiques et nécessite la mise en œuvre de programmes de validation intégrale,

dont les résultats sont affectés par des incertitudes faibles, comparables aux précisions visées pour les paramètres de projet établies sur la base de considérations d'économie et de sûreté. ●

Massimo Salvatores et Éric Fort⁽¹⁾
(1) Département d'étude des réacteurs

Direction de l'énergie nucléaire
CEA/Cadarache