

Les données nucléaires à l'IN2P3

Conseil Scientifique IN2P3 – 23-24/10/2013

1. OBJECTIFS GENERAUX DES ETUDES SUR LES DONNEES NUCLEAIRES

Les données nucléaires représentent une des briques nécessaires aux études liées aux systèmes nucléaires. Elles sont issues d'observables (comme par exemple des mesures de sections efficaces, des distributions angulaires, ...) mesurées dans des expériences de physique. Ces observables sont ensuite confrontées à des modèles qui doivent permettre la description la plus fidèle possible d'un ensemble cohérent de mesures pertinentes, tout en ayant un pouvoir prédictif et assurer ainsi une description complète des données nécessaires qui sont parfois inexistantes. L'évaluation des données consiste en un travail qui, sur la base de l'analyse des expériences, permet de déterminer de manière cohérente les paramètres des modèles utilisés. Une fois ce processus terminé, les modèles permettent de constituer des bibliothèques de données évaluées (par exemple, JEFF ou ENDF). Ces données doivent ensuite être validées par des mesures intégrales, c'est-à-dire qu'il est nécessaire de vérifier que les données évaluées permettent de reproduire par le calcul les grandeurs macroscopiques pertinentes pour les applications (évolution et amélioration des réacteurs et cycles existants, conception de nouveaux réacteurs, gestion des déchets, démantèlement d'installations nucléaires). Lorsque cette validation est satisfaisante, la bibliothèque de données évaluées peut être mise à disposition des utilisateurs que sont les simulateurs de réacteurs. Dans le cas contraire, il est nécessaire de réévaluer les données, jusqu'à ce que le processus évaluation/validation converge.

Outre la réalisation des expériences avec les précisions requises, ce travail nécessite une bonne connaissance des incertitudes des données expérimentales ainsi que de leurs corrélations, afin de pouvoir les propager correctement tout au long du processus d'évaluation et de validation et ainsi garantir les marges de fonctionnement des installations nucléaires.

Un tel processus met en évidence différents besoins en modélisation, qui renvoient à différents besoins en mesures. Des études théoriques sont nécessaires pour mieux décrire les aspects fondamentaux de la physique nucléaire mise en jeu (mécanisme de fission, description des mécanismes de réactions induites par neutron, ...). Ces théories microscopiques permettent ensuite d'améliorer la description générale des modèles utilisés pour la constitution des bibliothèques de données évaluées. Il est donc nécessaire de réaliser non seulement des mesures permettant d'alimenter les modèles physiques, mais aussi des mesures permettant de réduire les incertitudes ou de compléter un jeu de données. De plus, le choix des mesures à effectuer doit résulter d'un compromis entre les besoins pour l'étude et la conception de réacteurs (par exemple sur la base de la High Priority List de la NEA) et la faisabilité des expériences.

Ces deux ensembles d'activités, à visées fondamentales et appliquées, s'articulent donc d'une part autour de travaux de base destinés à développer les compétences nécessaires

(objectifs à moyen terme) et d'autre part, de travaux ciblés sur des objectifs définis en lien plus étroit avec la communauté des réacteurs.

2. CADRE DES ETUDES A L'IN2P3

Pour mener à bien ce travail, il est essentiel de développer les collaborations entre expérimentateurs, théoriciens, physiciens des réacteurs et/ou évaluateurs. Seule une vision globale et partagée ainsi construite permet de minimiser le temps nécessaire entre la mesure et sa prise en compte dans une bibliothèque de données évaluées. Fort de son expérience dans les études fondamentales autour de la structure nucléaire et de la dynamique des réactions, l'IN2P3 a su mobiliser depuis 1991¹ les communautés potentiellement concernées et ainsi mettre à profit son savoir-faire pour développer un programme autour des « données nucléaires » en lien avec l'énergie nucléaire. En particulier, différents programmes expérimentaux de mesures différentielles sur des noyaux d'intérêt ont été mis en place par les équipes de l'IN2P3.

Ces travaux s'articulent autour de collaborations nationales et internationales.

Sur le plan national, outre les collaborations avec le CEA/DSM qui existent de longue date, plusieurs études sont maintenant menées conjointement avec le CEA/DEN et le CEA/DAM. Ces départements du CEA (DAM et DEN) possèdent en effet une expertise reconnue en matière de modélisation et d'évaluation de données, et peu présente à l'IN2P3. Même si ces études restent encore un peu marginales par rapport à l'ensemble des travaux menés par l'IN2P3, elles contribuent néanmoins à la construction d'une vision d'ensemble du processus qui mène des données différentielles aux bases de données évaluées, voire à leur utilisation en physique des réacteurs. Ces collaborations ont pu se construire notamment grâce à la mise en place des programmes nationaux PACE (Programme sur l'Aval du Cycle Electronucléaire), puis PACEN (Programme sur l'Aval du Cycle et l'Energie Nucléaire)². Ces programmes se poursuivent aujourd'hui avec le défi NEEDS (Nucléaire: Energie, Environnement, Déchets, Société), en partenariat avec le CEA, AREVA, EDF, l'Andra, l'IRSN et le BRGM. Cependant, la structure de ce défi qui pilote plutôt la recherche par les besoins pose la question des rôles respectifs de NEEDS et de l'IN2P3. Une part de recherche de base et plus académique est en effet nécessaire pour la réussite des programmes menés. C'est en partie pour cela qu'une structure d'échange et de concertation a été créée entre l'IN2P3 et le CEA/DSM-DEN-DAM afin d'une part d'être une force de proposition scientifique et technique vis-à-vis des programmes scientifiques, mais aussi afin de préparer des réponses concertées aux différents appels à projets ou actions de collaboration (projets européens, NEEDS, OCDE, ..), le tout en cohérence avec les positionnements, les priorités et les orientations décidées par chaque organisation.

Sur le plan international, de nombreuses expériences sont réalisées sur des installations à l'étranger (par exemple nTOF au CERN, GELINA à l'IRMM/Geel, cyclotron d'Oslo, GSI en Allemagne, Jyväskylä en Finlande). Les équipes de l'IN2P3 participent aussi de manière active dans différents programmes européens : EFNUDAT, ERINDA, ANDES pour ne citer que les plus récents. Un nouveau programme CHANDA (new CHallenges for NUclear Data) va démarrer en Décembre prochain. Son but principal est de préparer une proposition d'organisation en charge de la coordination des recherches et des infrastructures sur les

¹ L'ensemble de ce travail est en lien étroit avec les lois de 1991 et de 2006 relatives à la recherche sur la gestion des déchets nucléaires.

² La partie « données nucléaires » de ces programmes était gérée par les GNR GEDEON puis GEDEPEON.

données nucléaires au niveau européen, et en particulier dans le cadre d'Horizon 2020. Outre une participation à la coordination du programme et à la réalisation d'expériences, l'IN2P3 est investi (en tant que responsable d'un WP) sur la création d'un réseau de laboratoires de fabrication et de caractérisation cibles radioactives d'intérêt pour les études sur le cycle électronucléaire.

En parallèle à ces collaborations, les équipes de l'IN2P3 participent régulièrement aux travaux de la NEA (Nuclear Energy Agency) par le biais d'ateliers de travail, notamment en lien avec l'évaluation des données nucléaires.

L'ensemble de ces dispositifs doit servir non seulement à mieux développer nos compétences dans le domaine, mais aussi à mieux structurer notre communauté afin d'une part d'optimiser nos forces, de mieux répondre aux besoins de la communauté des réacteurs et ainsi de consolider notre rôle dans le domaine des données nucléaires.

3. LES THEMATIQUES DE PHYSIQUE MENEES

Les questions majeures qu'il reste à approfondir peuvent être réparties en 5 grandes thématiques. La participation de l'IN2P3 dans chacune d'elles dépend à la fois des compétences de la communauté concernée, des forces potentielles disponibles et du rôle des différents autres acteurs, notamment celui du CEA.

3.1 Production d'actinides majeurs et mineurs

La nature et les quantités d'actinides produits dans le cycle sont des paramètres importants pour mieux prédire l'évolution du combustible et optimiser la gestion du réacteur (criticité, régénération, puissance résiduelle) et des matières dans les installations nucléaires. Ces paramètres sont obtenus grâce aux mesures de sections différentielles qui mènent à la production ou à la disparition de ces actinides. Ces mesures sont typiquement réalisées dans des installations comme celles de l'IRMM Geel (IPHC-Strasbourg, CENBG-Bordeaux, LPSC-Grenoble) ou du CERN nTOF (IPNO-Orsay), à l'aide de faisceaux de neutrons incidents et de lignes instrumentées. La future installation NFS de SPIRAL2 permettra aussi de réaliser de telles études (LPCC-Caen, IPNO-Orsay, IPHC-Strasbourg). Ces mesures nécessitent la préparation préalable de cibles des matériaux étudiés. Lorsque les noyaux à étudier ont une durée de vie trop courte pour permettre la fabrication d'une cible, une approche complémentaire, la méthode de substitution, a été développée au CENBG-Bordeaux. Elle a déjà été utilisée avec succès pour la fission (CENBG-Bordeaux, IPNO-Orsay). Cependant, elle donne un accès direct aux probabilités de fission et d'émission gamma et nécessite un fort support théorique pour l'extraction finale des sections efficaces neutroniques du processus qui conduit à la formation du noyau composé qui fissionne. Dans ce domaine, les principales forces se trouvent au CEA, et l'on peut regretter que les équipes théoriciennes de l'IN2P3 n'y soient pas plus investies. En particulier, les modèles sont absolument nécessaires pour extraire les sections efficaces totales (n, xn) à partir des expériences ($n, xn\gamma$). Ils ne permettent pas aujourd'hui de décrire correctement les données expérimentales et une collaboration a été mise en place par l'IPHC-Strasbourg avec le CEA/DAM pour mener à bien un travail d'amélioration de ces modèles.

3.2 Réactivité du cœur et performances de régénération

Une bonne connaissance de la production des poisons neutroniques et des émetteurs de neutrons retardés est essentielle pour les études de physique des réacteurs concernant la réactivité des cœurs et les performances de régénération, notamment pour les combustibles innovants comme les combustibles utilisant le thorium ou très chargés en actinides mineurs. L'étude des rendements de fission permet de contribuer à cette meilleure connaissance. Si un grand nombre de mesures sur les fragments de fission ont été réalisées ces dernières décennies, elles concernent essentiellement la filière thermique actuelle et les actinides majeurs (^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu) de cette filière. Les jeux de données sont cependant incomplets, notamment dans la région des fragments de fission lourds, ou obtenus avec des résolutions insuffisantes, et ne permettent pas une évaluation satisfaisante des rendements isotopiques de fission. En ce qui concerne les rendements des actinides mineurs, de certains isotopes du plutonium, et des actinides majeurs du cycle thorium (^{232}Th et ^{233}U), les mesures sont encore plus éparses et incomplètes. De nouvelles mesures et évaluations sont donc nécessaires tant dans le domaine thermique, que dans le domaine rapide pour lequel les données expérimentales sont quasi inexistantes. La bonne connaissance des rendements de fission est également essentielle pour prédire la puissance résiduelle de divers combustibles innovants (voir 3.3). A l'IN2P3, ces études sont principalement menées par le LPSC en collaboration avec le CEA/DSM et le CEA/DEN, et par le CENBG-Bordeaux.

Les captures radiatives participent aussi aux performances de régénération d'un cœur de réacteur. Lorsque ces captures se produisent sur des noyaux fissiles (contribuant ainsi à la disparition des « noyaux combustibles »), elles sont particulièrement délicate à étudier en raison du mélange possible entre les gammas issus de la capture radiative et ceux émis par le processus de fission (10 à 15 fois plus nombreux). Les mesures existantes montrent des désaccords significatifs. C'est pourquoi la nouvelle approche expérimentale développée par le CENBG-Bordeaux en collaboration avec le LPSC-Grenoble pour des mesures sur l' ^{233}U , noyaux fissile du cycle du thorium est particulièrement prometteuse.

Pour le développement des modèles à fort contenu de physique, les instruments existants ne permettent pas d'obtenir les rendements en fonction de l'énergie d'excitation ou de déterminer certaines propriétés microscopiques de la fission telles que les distributions de spin des fragments de fission, ou les effets de couches en N et Z. Le développement de nouveaux outils est un enjeu majeur pour réaliser les mesures de fission nécessaires (voir section 4).

3.3 Emission γ , chaleur résiduelle et radiotoxicité

Les propriétés de décroissance des noyaux radioactifs (temps de vie, transitions et type de particules émises...) jouent un rôle fondamental pour le dimensionnement et le pilotage des installations nucléaires ainsi que pour la gestion des déchets radioactifs. Les décroissances radioactives sont en particulier responsables de la radiotoxicité des déchets nucléaires et de l'échauffement des colis lors du stockage.

A cause de leur libre parcours moyen environ dix fois plus important que celui des neutrons, les γ jouent un rôle particulier dans les réacteurs, notamment vis-à-vis des paramètres de sûreté. En effet, les γ sont capables de transporter et de déposer leur énergie dans les

matériaux de structure plutôt que dans les barreaux de combustible. Leur énergie représente environ 10 % de l'énergie totale libérée par la fission. Le spectre γ en cœur se compose de 4 parties : les γ prompts issus de la fission ($\sim 40\%$), les γ retardés issus des décroissances radioactives des fragments de fission ($\sim 30\%$) et les γ issus des réactions inélastiques et de capture induite par les neutrons.

A l'IN2P3, une étude des γ prompts de fission a récemment été entreprise auprès de l'installation LICORNE à Orsay (voir section 4) par une collaboration entre l'IPNO-Orsay et SUBATECH-Nantes. L'étude des propriétés de désintégration β de certains produits de fission permettra aussi d'améliorer notre connaissance de la puissance résiduelle dans les cycles actuels et innovants. Ces mesures devraient se poursuivre à plus long terme auprès de SPIRAL2 (DESIR).

Les émissions de gammas retardés deviennent la principale source de puissance résiduelle du réacteur après son arrêt et jouent un rôle important dans la manutention du combustible irradié ou dans sa radiotoxicité. Les données existantes et de référence souffrent cependant de « l'effet pandémonium » qui provient de l'absence de prise en compte des transitions β vers des états très excités, avec pour conséquence une sous-estimation des émissions gamma totales. Une équipe de SUBATECH –Nantes réalise des expériences à Jyväskylä (Finlande) avec la méthode TAGS (Total Absorption Gamma-ray Spectroscopy) afin de s'affranchir de cet effet et ainsi corriger les données de décroissance γ .

Enfin, les taux de production des différents produits de fission restent souvent mal connus. Des distributions en masse ou en charge existent pour un nombre limité d'actinides, mais les simulations détaillées devraient s'appuyer sur les distributions isotopiques, pour lesquelles pratiquement aucune donnée n'existe. De nouvelles techniques expérimentales s'appuyant sur la cinématique inverse (développée à GSI dans une collaboration entre le CEA/DAM, l'IPNO-Orsay et le CENBG-Bordeaux) ouvrent aujourd'hui la possibilité de combler cette lacune des bases de données, non seulement pour certains actinides majeurs mais aussi pour un grand nombre de noyaux du cycle du thorium. Une approche complémentaire a été développée par le GANIL pour accéder aux rendements isotopiques des actinides mineurs à partir de réactions de transfert de plusieurs nucléons en cinématique inverse.

Grâce au très haut flux de neutrons thermique de l'ILL couplé à l'un des spectromètres de fragments de fission le plus puissant du monde, des mesures sur des actinides mineurs tels que ^{241}Am ont pu être réalisées par double capture de neutrons par l'équipe du LPSC-Grenoble.

3.4 Expériences intégrales et/ou benchmarks – validation des données

Des mesures intégrales ou semi-intégrales sont nécessaires pour valider les données évaluées. Elles sont réalisées typiquement dans des réacteurs expérimentaux (par ex, MASURCA ou MINERVE au CEA, VENUS au SCK/CEN) à l'aide de différents dispositifs et instruments de mesure. Elles fournissent une information complémentaire aux mesures différentielles, avec une très bonne précision relative. L'interprétation de ces mesures intégrales donne des tendances sur les données évaluées et les domaines où des améliorations sont souhaitables. Cette information peut même être introduite comme contrainte dans le processus d'évaluation lui-même, plutôt que comme élément de validation a posteriori.

L'IN2P3 est relativement peu investi dans ce type de mesures, pour lequel le CEA reste le principal acteur en France. Ces mesures nécessitent en effet l'accès à des réacteurs de recherche qui font plutôt partie du cœur de métier de nos collègues du CEA.

Cependant, les expériences MUSE-4 dans MASURCA et GUINEVERE dans VENUS, dans lesquelles les équipes de l'IN2P3 (LPSC-Grenoble et le LPCC-Caen) se sont fortement impliquées, ont montré l'apport de cette information intégrale. Cet aspect du travail sur les données nucléaires est abordé dans l'exposé de A.Billebaud qui traite des ADS et des expériences Guinevere.

3.5 Besoins transverses : maîtrise des incertitudes, modélisation, et évaluation

L'ensemble des mesures décrites plus haut ont en commun le nécessaire développement de méthodes expérimentales précises et de besoin en modélisation.

L'évaluation des données nucléaires est une étape indispensable avant la mise à disposition des données, sous forme de bibliothèques internationales. Ce travail passe d'abord par une bonne connaissance et une étude précise des données expérimentales et de leurs incertitudes accompagnée de leurs corrélations afin de pouvoir prendre en compte tous les biais potentiels. Des collaborations entre les évaluateurs et les expérimentateurs sont nécessaires pour réaliser ce travail. A cet égard, les équipes qui travaillent sur les modélisations pour les évaluations peuvent aussi servir de guide aux expérimentateurs pour que l'analyse des résultats obtenus soit la plus pertinente possible vis-à-vis des besoins pour les évaluations.

Ce domaine est principalement développé en France au CEA qui a une longue tradition sur l'évaluation de données. Un travail important reste à faire pour réaliser de manière systématique une analyse précise des incertitudes et de leurs corrélations, afin de permettre l'évaluation des données acquises. Il est cependant à noter que la mise en place de méthodologies définissant les corrélations d'incertitudes expérimentales a été développée à l'IN2P3 (CENBG-Bordeaux et LPSC-Grenoble) et constitue une activité aujourd'hui en progression.

Le choix des mesures à effectuer doit résulter d'un compromis entre les besoins pour l'étude et la conception de réacteurs (incertitudes minimales) et la faisabilité des expériences. Il est donc essentiel d'évaluer l'intérêt des mesures par des études de sensibilité, c'est-à-dire par l'étude de l'impact d'une mesure et de ses incertitudes sur les paramètres pertinents pour les études de réacteurs. Depuis quelques années, l'IN2P3 a commencé à s'investir dans ce domaine, notamment à l'IPNO-Orsay et au LPSC-Grenoble. L'exposé de X.Doligez traitera de ce point.

Des travaux de modélisation du processus de fission sont menés par le CENBG-Bordeaux qui développe le code GEF. Il s'agit d'un code semi-empirique dont les résultats feront partie de la prochaine édition de la base de données évaluées européenne JEFF.

4. LES OUTILS NECESSAIRES

L'ensemble du programme sur les données nucléaires ne peut être réalisé sans infrastructures de recherche expérimentales : des faisceaux de neutrons, de particules chargées, de cibles d'actinides ainsi que de toute l'instrumentation qui s'y rapporte et qui permet de concevoir et réaliser les expériences.

Les principales sources de neutrons disponibles en Europe permettent de réaliser aujourd'hui l'essentiel des mesures. Notons le développement récent de la source LICORNE (Lithium Inverse Cinématiques ORsay NEutron source) auprès du Tandem d'Orsay. Sa caractéristique principale est de produire des neutrons « mono-énergétiques » entre 0.5 MeV et 4 MeV focalisés vers l'avant, permettant ainsi de réaliser des mesures de γ de fission à bas bruit de fond.

Par ailleurs, il conviendra de poursuivre et soutenir les efforts déjà entrepris pour pouvoir disposer des cibles radioactives nécessaires pour la réalisation des expériences décrites ci-dessus. L'installation CACAO (Chimie des Actinides et Cibles radioActives à Orsay) a été inaugurée en Juillet 2013 et est entrée dans sa phase d'exploitation. Une importante R&D doit maintenant être poursuivie et développée afin d'optimiser les techniques de fabrication et de caractérisation de ces cibles, dont la mauvaise connaissance est l'une des principales sources d'incertitudes sur les mesures.

5. CONCLUSIONS/PERSPECTIVES

L'IN2P3 a su depuis de nombreuses années mobiliser et fédérer ses forces pour contribuer aux besoins en données nucléaires en lien avec l'énergie nucléaire. La forte synergie entre la physique fondamentale (ou plutôt académique) et les applications a permis aux équipes de s'y investir plus facilement, mais aussi d'apporter un regard parfois original à cette thématique. En effet, les accélérateurs et dispositifs de nouvelle génération utilisés pour les mesures de données nucléaires sont souvent développés par et pour les besoins de la physique fondamentale. Il en est de même pour certains des modèles utilisés. Il est donc primordial de maintenir un lien fort avec cette communauté, afin de disposer de l'ensemble des moyens nécessaires pour développer le programme sur les données nucléaires.

De même, il est important de souligner que les travaux sur les données nucléaires, et en particulier ceux menés sur la fission, ont un impact scientifique qui va au-delà de la communauté qui travaille sur le cycle électronucléaire. En effet, très peu d'études sur la compréhension du mécanisme de fission sont encore menées dans la communauté de structure nucléaire, alors même que ce phénomène reste encore mal compris.

Les programmes PACE, PACEN ainsi que des collaborations fortes tant au niveau national qu'au niveau international ont fortement contribué à faire émerger la communauté « données nucléaires » à l'IN2P3 : elle est reconnue comme étant un des acteurs majeurs dans ce domaine. Fort de cette légitimité, il semble maintenant important que cette communauté puisse mieux se structurer autour d'enjeux clairement identifiés. Tout en conservant une activité notable dans des mesures fondamentales d'intérêt, une réflexion collective devrait être menée afin d'optimiser nos forces pour mieux répondre aux besoins de la physique des réacteurs. A cet égard, un travail important devrait être réalisé pour être en mesure de mettre à disposition des évaluateurs les données de qualité obtenues assorties d'une étude précise des incertitudes et de leurs corrélations.

Le nouveau cadre du défi NEEDS pourrait par exemple être utilisé pour développer cette deuxième phase du programme de l'IN2P3 sur les données nucléaires.