



ONLINE MEASUREMENT OF PARAMETERS RELEVANT FOR ADS MONITORING:  
EXPERIMENTAL TECHNIQUE VALIDATION IN MASURCA

A.Billebaud, J.Vollaire, R.Brissot, D.Heuer, C.Le Brun, E.Liatard, J.-M.Loiseaux, O.Méplan, E.Merle-Lucotte, F.Perdu.

Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie  
CNRS-IN2P3/UJF/INPG, 53 av. des Martyrs, F-38026 Grenoble, France.

C.Destouches, P.Chaussonnet, J.-M.Laurens

# Programmes Pluridisciplinaires

1. MUSE-4 Program OBJECTIVES:  
ADS kinetic parameter monitoring  
i.e. prompt kinetics + delayed neutron fraction
- $k_p$  measurement →  $k_{eff}$   
→  $\rho/\beta_{eff}$  measurement →  $\beta_{eff}$

## ○ Réacteurs

### 2. THE SOURCE MODULATION METHOD

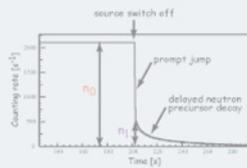
- Injection of a high intensity source in the reactor during a time long enough to make neutron and precursor populations reach an equilibrium :

$$\left(\frac{\rho - \beta_{eff}}{\Lambda}\right) n_0 + \sum_i \lambda_i C_{i0} = 0$$

with  $C_{i0}$  at equilibrium =  $\frac{\beta_i n_0}{\lambda_i \Lambda}$

- Sudden switch off of the source :

$$\left(\frac{\rho - \beta_{eff}}{\Lambda}\right) n_1 + \sum_i \lambda_i C_{i0} = 0$$



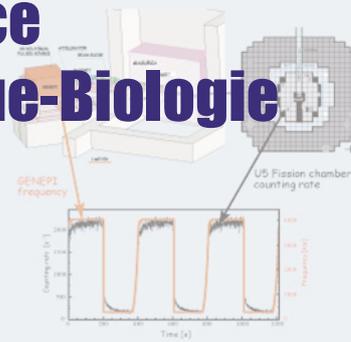
$$\frac{\rho}{\beta_{eff}} = 1 - \frac{n_0}{n_1}$$

## ○ Interface

## Physique-Biologie

### 3. THE EXPERIMENTAL MODULATION

Source intensity modulation = GENEPI frequency modulation



Cycle: 400s 4 kHz down to 300 Hz

### 4. RESULTS

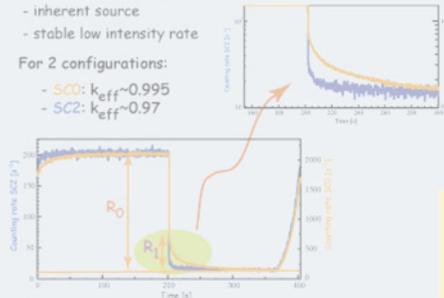
Experimental quantities  $R_0$  and  $R_1$

→  $n_0$  and  $n_1$  by subtraction of:

- inherent source
- stable low intensity rate

For 2 configurations:

- SC0:  $k_{eff} \sim 0.995$
- SC2:  $k_{eff} \sim 0.97$



Together with PNS measurements providing  $k_p$  [1] it leads to  $k_{eff}$  and  $\beta_{eff}$

| Configuration | $\beta_{eff}$ (pcm) | $k_{eff}$       | $k_{eff}$ (SM) CEA |
|---------------|---------------------|-----------------|--------------------|
| SC0           | 330 ± 30            | 0.9921 ± 0.0013 | 0.9937 ± 0.0005    |
| SC2           | 300 ± 30            | 0.9703 ± 0.0023 | 0.9716 ± 0.0030    |

→ Good agreement with CEA  $\beta_{eff}$  measurement [2] 334±6 pcm

[1] A.Billebaud, J.Vollaire, R.Brissot, D.Heuer, C.Le Brun, E.Liatard, J.-M.Loiseaux, O.Méplan, E.Merle-Lucotte, F.Perdu, C.Destouches, P.Chaussonnet, J.-M.Laurens, Global 2003 Conference Proceedings, ANS-2003, .  
[2] F.Mellier et al. Global 2003 Conference Proceedings, ANS-2003, .

### 5. CONCLUSIONS

- No mechanical insertion of an additional source
- Method well adapted to ADS
- Method free of correction factors

## Recherche sur l'électronucléaire

La demande énergétique mondiale augmente inéluctablement et sera vraisemblablement en 2050 au moins deux fois plus forte qu'aujourd'hui. La poursuite de la production d'énergie dans les conditions actuelles pose deux problèmes majeurs : à long terme, le risque de pénurie et, dans l'immédiat, le réchauffement climatique. Ainsi, pour continuer à produire de l'énergie, tout en intégrant cette contrainte environnementale, la part de production utilisant les énergies fossiles doit être réduite de façon drastique pour le siècle à venir et il est nécessaire de recourir à des modes de production ne contribuant pas à l'effet de serre, comme les énergies renouvelables et le nucléaire. Si les énergies renouvelables doivent être développées et utilisées là où cela est possible, il semble que la seule énergie économiquement compétitive et utilisable à grande échelle, soit l'énergie produite par la fission nucléaire. Les réacteurs nucléaires peuvent être utilisés comme actuellement, pour produire de l'énergie électrique ; mais ils peuvent aussi permettre la production d'hydrogène comme combustible de substitution aux carburants fossiles dans les transports. Les travaux sur l'aval du cycle électronucléaire constituent un des grands axes de recherche de l'IN2P3 au sein du programme interdisciplinaire PACE et sont menés en collaboration avec le CEA, EDF, et Framatome. Ils s'insèrent dans les trois directions de recherche définies par la loi du 30 décembre 1991 :

- la recherche de solutions permettant la séparation et la transmutation des éléments radioactifs à vie longue présents dans ces déchets ;
- l'étude des possibilités de stockage réversible ou irréversible dans les formations géologiques profondes, notamment grâce à la réalisation de laboratoires souterrains ;
- l'étude de procédés de conditionnement et d'entreposage de longue durée en surface de ces déchets.

Le groupe de Grenoble est engagé dans le premier axe de recherche, plus particulièrement dans :

- l'acquisition des données nucléaires nécessaires aux études de transmutation et à la définition des nouvelles filières ;
- l'apprentissage de la maîtrise des systèmes sous-critiques (expériences MUSE à Cadarache) ;
- le développement de compétences en physique des réacteurs, notamment l'évaluation par simulation numérique de différentes filières, dont celles basées sur l'utilisation du Thorium.

## Applications médicales

Les apports de la physique à la médecine, aussi bien pour l'aide au diagnostic que dans le développement de nouveaux traitements curatifs, ont connu depuis la fin du 19<sup>ème</sup> siècle avec la découverte de la structure de la matière et des processus subatomiques un essor considérable. Cette source transversale de progrès ne s'est pas tarie depuis. Ainsi, le LPSC de Grenoble, en parallèle à ses thèmes traditionnels de recherche fondamentale, a développé au cours des deux dernières années une nouvelle activité portant sur l'imagerie nucléaire.

On peut distinguer dans ce domaine, la tomographie mono-photonique (TEMP) ou à émission de positons (TEP), pour lesquelles les performances des instruments existants ont été sensiblement améliorées par l'utilisation de nouveaux cristaux scintillants (LSO, LUAP). L'équipe Interface Physique-Biologie étudie un nouveau concept de caméras, basé sur

l'utilisation de xénon liquide, qui permettrait de gagner simultanément sur la résolution des images acquises (~1,5 mm) et sur la vitesse de leur enregistrement. Ce groupe souhaiterait participer à moyen terme à la construction d'une micro caméra destinée à l'imagerie de petits animaux tels que la souris. L'utilisation de modèles animaux transgéniques, dont le comportement modifié se rapprocherait de celui de l'être humain pour certaines fonctions biologiques ou certaines pathologies, est actuellement en plein développement de part le monde. Des médicaments nouveaux, étudiés préalablement sur des populations de souris transgéniques, pourraient ainsi voir le jour. À plus long terme, l'équipe du LPSC aimerait construire une caméra TEP destinée à la recherche en neurosciences chez l'homme. Elle souhaiterait également participer à l'étude d'un instrument de monitoring destiné à la hadronthérapie et basé sur l'imagerie du  $^{11}\text{C}$ .

# Réacteurs

*R. Brissot, A. Billebaud, D. Heuer, C. Le Brun, E. Liatard, J.-M. Loiseaux, O. Méplan, E. Merle-Lucotte, H. Nifenecker, A. Nuttin, O. Laulan, L. Mathieu, F. Perdu, N. Thiollière, J. Vollaire, M. Kerveno, L. Michelutti*

*The reactor physics group has been working over a number of years on the back-end of the fuel cycle and on the development of systems for the future of nuclear power. The areas of interest of the group cover sub-critical (so-called ADS) as well as critical systems.*

*Concerning the sub-critical studies, our group is involved in an experimental program called MUSE (MULTiplication de Source Externe) in collaboration with CEA (French atomic energy agency) and with other European institutes. In 2003 we have demonstrated the feasibility of the on-line monitoring of the sub-criticality level.*

*For the critical reactor studies, the group is involved in the exploration of the properties of the thorium fuel cycle and more specifically in thermal molten salt reactors based on the thorium-uranium cycle. The results we have obtained from simulation studies are so encouraging that we are setting up an experiment (PEREN) in order to verify our findings experimentally.*

Le groupe de physique des réacteurs du laboratoire concentre ses activités sur la recherche de solutions innovantes dans le domaine de l'énergie nucléaire. En effet, le futur de ce type de production doit être assuré en termes de pérennité tout en étant accepté par la société civile. Pour cela il est nécessaire de faire évoluer en parallèle les recherches sur l'aval du cycle électronucléaire et les recherches sur les filières du futur. Ces activités s'inscrivent dans le cadre général de la loi de 1991 sur la gestion future des déchets nucléaires, elles sont réalisées au CNRS par les programmes interdisciplinaires PACE (Programme pour l'Aval du Cycle Électronucléaire) et Énergie, par le groupement de recherche national GEDEPEON (CEA, CNRS, EDF, FRAMATOME), et par les réseaux européens MUSE, MOST et ADOPT. Un membre du groupe assure depuis janvier 2000 la direction pour le CNRS de GEDEPEON (GEstion des DÉchets et Production d'Énergie par des Options Nouvelles). Chaque année se tient à Grenoble l'atelier bilan de GEDEPEON où sont présentés les résultats obtenus dans les domaines des données nucléaires, de la physique des réacteurs, des études de scénarios et des matériaux, pour les réacteurs hybrides et pour les systèmes innovants de production d'énergie.

Sur le plan expérimental, l'année 2003 a vu arriver les premiers dividendes de l'investissement du laboratoire dans la physique des systèmes sous-critiques : nous avons acquis, au travers de l'expérience MUSE, une compréhension détaillée de la cinétique de tels systèmes qui nous permet de proposer une technique fiable de contrôle en ligne du niveau de sous-criticité de ces systèmes.

Dans le domaine des filières innovantes, nos efforts expérimentaux et nos travaux de modélisation ont porté sur l'utilisation du thorium comme matière fertile, visant à définir une filière régénératrice de matière fissile, très peu productrice d'actinides mineurs et donc avantageuse du point de vue de la radiotoxicité de l'aval du cycle. Nos efforts se portent en particulier sur une filière à neutrons thermiques utilisant le thorium en sels fondus. Pour définir les conditions de fonctionnement et évaluer les performances de cette filière, le groupe développe notamment la plateforme de recherche PEREN spécialement dédiée, dans un premier temps, aux études de physique et de chimie venant en appui aux études de simulation de la filière, de ses procédés et de l'évaluation des critères de sûreté.

## ► Programme expérimental MUSE

Depuis le couplage effectif de la source de neutrons pulsée GENEPI au réacteur MASURCA en novembre 2001, le programme expérimental MUSE-4 s'est poursuivi par différentes phases sous-critiques. L'un de nos objectifs principaux a été de mettre au point une technique expérimentale permettant de mesurer en ligne le niveau de sous-criticité du réacteur. En effet la connaissance de ce paramètre du réacteur est cruciale pour le pilotage de futurs ADS car il gouverne la sûreté du réacteur. Le coefficient de multiplication effectif  $k_{\text{eff}}$  d'un réacteur peut être obtenu à partir de deux paramètres qui en caractérisent la cinétique : le facteur de multiplication prompt  $k_p$  rend compte de la multiplication immédiate due à la réaction en chaîne, tandis que la fraction de neutrons retardés  $\beta_{\text{eff}}$  rend compte de l'émission retardée de neutrons due à la décroissance des produits de fission (précurseurs). Ces grandeurs sont liées entre elles par la relation  $k_p = k_{\text{eff}} (1 - \beta_{\text{eff}})$ .

Une première méthode a été mise au point afin de déterminer la grandeur  $k_p$  à partir de spectres temporels consécutifs à l'injection d'impulsions brèves et cycliques de neutrons dans le massif sous-critique. Cette méthode repose sur un modèle qui décrit l'évolution de la population neutronique à partir de la distribution  $P(\tau)$  des temps  $\tau$  entre les générations successives de fission, qui est elle-même obtenue par une simulation Monte-Carlo rendant compte assez précisément (grâce entre autres à la description de la géométrie et de la composition) de la neutronique et en particulier du rôle du réflecteur et des captures résonnantes dans le combustible (thèse F. Perdu). Les populations neutroniques après une impulsion de neutrons peuvent être calculées pour différents niveaux de sous-criticité en effectuant des convolutions de  $P(\tau)$ . Les dérivées logarithmiques de ces populations peuvent être calculées. La mesure de  $k_p$  consiste à comparer les dérivées logarithmiques de taux de comptage en fonction du temps, obtenus à l'aide de chambres à fission, aux dérivées calculées pour différentes valeurs de  $k_p$ . Celle s'ajustant le mieux aux données expérimentales donne le  $k_p$  recherché.

Une deuxième méthode a ensuite été utilisée afin de déterminer la fraction de neutrons retardés  $\beta_{\text{eff}}$ . Elle repose sur une variation de l'intensité de la source externe. Le massif sous-critique est soumis à une source d'intensité élevée, permettant ainsi aux populations de neutrons et de précurseurs d'atteindre un certain équilibre, puis cette source est diminuée d'un ordre de grandeur en quelques nanosecondes. À la suite de cette variation de source les neutrons « prompts » vont disparaître très rapidement (quelques dizaines de microsecondes) puis la population de précurseurs va se mettre à décroître avec des temps caractéristiques beaucoup plus lents (quelques dizaines de secondes).

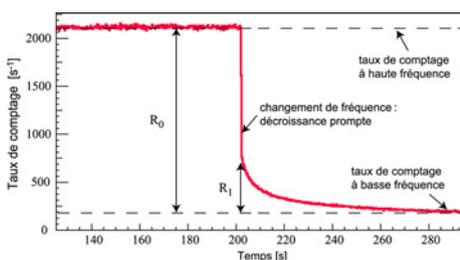


Figure 1 : Variation du taux de comptage d'une chambre à fission dans le réacteur MASURCA lors d'une transition rapide dans l'intensité (en pratique la fréquence) de la source GENEPI pilotant la puissance du réacteur.

La mesure de la population de neutrons avant ( $R_0$ ) et juste après ( $R_1$ ) la brusque variation d'intensité permet d'obtenir le rapport entre la réactivité  $\rho$  et la fraction de neutrons retardés  $\beta_{\text{eff}}$  par la simple relation  $\rho/\beta_{\text{eff}} = 1 - R_0/R_1$ . Expérimentalement, cette méthode est appliquée en variant la fréquence de la source pulsée de neutrons au lieu de son intensité, et ceci sur une séquence de cycles de 400 s (200 s à une fréquence élevée, suivies de 200 s à une fréquence beaucoup plus basse), ce qui revient à piloter la puissance du réacteur à l'aide de l'accélérateur (par exemple ici entre 26 et 2 Watts à  $k_{\text{eff}} = 0,994$ ). Ces cycles de comptage sont ensuite cumulés afin d'obtenir une bonne statistique sur les grandeurs  $R_0$  et  $R_1$  (Figure 1) dont est déduit  $\rho/\beta_{\text{eff}}$ .

Au cours de l'année 2003, ces méthodes ont été appliquées à plusieurs niveaux de sous-criticité correspondant aux différentes phases du programme expérimental MUSE-4 (de  $k_{\text{eff}} = 0,95$  à  $0,994$ ). Elles ont permis d'obtenir des valeurs de  $\beta_{\text{eff}}$  (de l'ordre de  $3 \cdot 10^{-3}$ ) et de  $k_{\text{eff}}$  en excellent accord avec des mesures réalisées avec des méthodes de référence s'appuyant sur des techniques plus classiques mais avec l'avantage décisif sur ces dernières de ne pas nécessiter une calibration sur un niveau de fonctionnement critique du réacteur. Ceci a démontré que des outils parfaitement adaptés au monitoring de la réactivité des ADS pouvaient être mis en œuvre.

## ► Études du concept de Réacteur à Sels Fondus

Abordé à l'origine pour l'incinération des transuraniens issus du cycle REP actuel, le concept de Réacteur à Sels Fondus (RSF) est actuellement étudié au sein du groupe de Physique des Réacteurs comme un candidat prometteur à la production future d'énergie nucléaire. Compte tenu de l'augmentation inévitable de la demande mondiale d'énergie et des limites tant économiques qu'écologiques des énergies fossiles, un déploiement significatif de la production d'énergie de fission est fort probable au cours des prochaines décennies. Le forum international Generation IV regroupe ainsi des projets de systèmes innovants (plus sobres, plus propres et plus sûrs que les REP), susceptibles de se déployer dès 2030 de façon durable. En vue d'une utilisation optimale des minerais fertiles d'uranium et de thorium, tous visent la régénération. Celle-ci n'est possible qu'en spectre rapide avec l'uranium, alors que le cycle thorium, moyennant l'utilisation d'un combustible liquide (sels fondus) en RSF pour faciliter l'extraction des poisons neutroniques, peut être régénérateur en spectre thermique. L'intérêt est de minimiser dans ce cas l'inventaire fissile nécessaire au démarrage (moins de 2 tonnes d' $^{233}\text{U}$  par réacteur de 1 GWe, contre 12 tonnes de plutonium dans le cycle uranium), ce qui permet d'accroître considérablement le potentiel de déploiement de la filière.

Le concept de RSF à spectre thermique date du début des années 50, mais a surtout été étudié dans les années 60 et 70 aux Etats-Unis (Oak Ridge National Laboratory). Le cœur se compose d'une matrice de graphite dans laquelle circule un sel combustible de fluorures fondus, faisant également office de caloporteur. Le réacteur expérimental MSRE (Molten Salt Reactor Experiment) a ainsi fonctionné sans thorium dans le sel de 1965 à 1969, pour déboucher sur le projet MSBR (Molten Salt Breeder Reactor) d'un surgénérateur de 1 GWe en cycle thorium. Partant de ce projet de référence, nous avons finalement relevé ses faiblesses, liées en partie à une complexité excessive. Par ailleurs, la simulation exhaustive du MSRE, couplant neutronique, hydraulique et thermique, nous a permis de mieux comprendre les spécificités de ce type de réacteur. Le travail se poursuivant actuellement consiste à définir un réacteur de 4<sup>e</sup> génération, plus conforme que le MSBR aux critères actuels.

## ► Étude du démarrage des RSF « thorium thermique »

Dans le rapport précédent, nous illustrons l'intérêt du cycle thorium par les résultats d'une ré-évaluation du MSBR (thèse A. Nuttin). Les performances vérifiées en termes de surgénération et de minimisation des déchets de ce réacteur nous ont alors conduits à aborder la question de son démarrage sans disposer du stock d' $^{233}\text{U}$  nécessaire. À partir d'un inventaire fissile initial de 4 tonnes de plutonium extrait du combustible utilisé d'un REP après son refroidissement, le sel combustible atteint une composition proche de l'équilibre  $\text{Th}/^{233}\text{U}$  en une dizaine d'années. Cette transition «  $\text{Th}/\text{Pu} \rightarrow ^{233}\text{U}$  » est donc relativement rapide, même si les actinides mineurs produits à partir du plutonium initial ne sont définitivement incinérés qu'après une vingtaine d'années. Il convient cependant de prendre en compte les stocks de plutonium disponibles pour assurer une telle transition.

Ce faisant, nous avons vérifié que la qualité fissile de l'essentiel du plutonium, dégradée par un temps de refroidissement trop long ou son recyclage en combustible MOX, impose des inventaires élevés (Figure 2).

Le recours au plutonium pour démarrer est donc le plus souvent délicat en pratique, rendant le sel instable chimiquement et le réacteur sous-générateur du fait de la quantité importante de transuraniens présents dans le cœur. En tentant malgré tout d'évaluer la

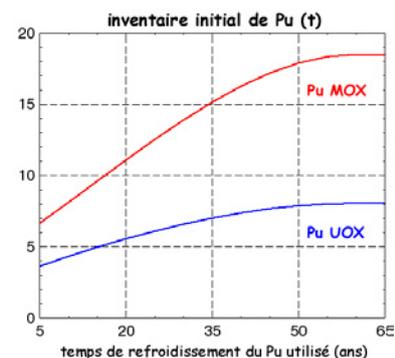


Figure 2 : Influence de l'origine du plutonium sur son inventaire initial nécessaire à la transition  $\text{Th}/\text{Pu} \rightarrow ^{233}\text{U}$

vitesse de déploiement maximale d'un parc de MSBR démarré à partir du plutonium français, nous avons constaté qu'il était bien plus efficace d'utiliser ce plutonium, par exemple en Réacteur à Neutrons Rapides (RNR), pour produire de  $^{233}\text{U}$ . Les RSF peuvent ainsi être démarrés directement à  $^{233}\text{U}$ . Le potentiel de déploiement étant amélioré, la surgénération n'est plus indispensable et des contraintes peuvent être relâchées sur les RSF. Un travail de thèse portant sur la simulation des RNR a démarré fin 2003 dans le groupe pour notamment étudier en détail leur complémentarité possible avec les RSF thorium en termes de scénarios.

## Simulation complète de l'expérience MSRE

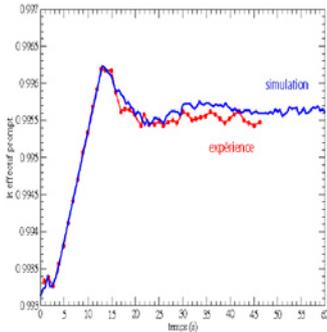


Figure 3 : Evolution simulée du coefficient de multiplication prompt du MSRE lors du transitoire de démarrage de pompe, confrontée à la mesure expérimentale.

Un travail approfondi de simulation a été réalisé sur le réacteur expérimental MSRE à l'occasion d'une thèse (F. Perdu) sur la sûreté des systèmes innovants, éclairant à une autre échelle des notions également abordées dans la conception du RSF thorium de puissance. Les calculs MCNP de neutronique s'appuient sur une modélisation géométrique fine de l'ensemble du réacteur. Cette description fidèle est couplée à TRIO-U, un code de thermohydraulique développé au CEA. Une recherche bibliographique a pu être menée, dans le cadre du programme européen MOST (MOlten Salt Technology review), afin de retrouver l'ensemble des paramètres d'origine du MSRE. Une part essentielle de ce travail de simulation a d'abord consisté à mettre au point le couplage entre neutronique et hydraulique, en se confrontant à des mesures effectuées sur le MSRE à puissance nulle. Dans ce cas, il n'y a aucun échange de chaleur, et il est possible de se concentrer sur le seul problème du transport des précurseurs de neutrons retardés dans le circuit de sel combustible. La fraction de neutrons retardés perdus pour le pilotage lors de la mise en circulation du sel a pu ainsi être évaluée à un

tiers, en accord avec les autres valeurs du benchmark MOST réalisé sur ce sujet. Une autre simulation a pu reproduire la variation de la réactivité correspondant au mouvement vertical de la barre de pilotage imposé lors du transitoire de démarrage de pompe (Figure 3).

Une fois ce couplage à puissance nulle validé, il est complété sur le plan de la thermique afin de simuler le MSRE en puissance. Même si la simulation du transport de la chaleur reste à finaliser, elle a déjà permis d'obtenir la répartition du dépôt d'énergie dans chaque zone du réacteur, ainsi que le profil radial de la température. L'effet d'une augmentation de la température sur la réactivité est indiqué par deux coefficients de température : un pour le sel et un pour le graphite. Les valeurs expérimentales sont vérifiées (respectivement -8,3 et -4,7 pcm/°C environ), et expliquent la stabilité du réacteur. En analysant les différentes contributions à ces coefficients, on constate que c'est la forte probabilité de fuite des neutrons hors du cœur (environ 30 %) qui contribue le plus à cette stabilité du MSRE.

## Conception d'un RSF thorium pour la 4<sup>e</sup> génération

La ré-évaluation du MSBR nous a montré l'intérêt mais aussi les limites de ce concept, peu ou mal considérées à ses origines. Pour le rendre vraiment compétitif pour une 4<sup>e</sup> génération de réacteurs, il faut d'une part simplifier l'unité intégrée de retraitement du sel combustible, d'autre part améliorer les coefficients de température insuffisants. La simplification drastique du schéma de retraitement, représenté sur la figure 4, est autorisée par le nouveau contexte de déploiement privi-

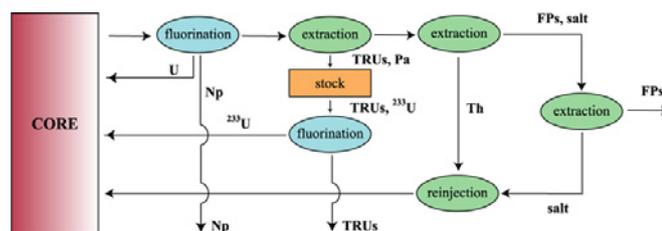


Figure 4 : Schéma de principe du retraitement ralenti, avec précipitation du thorium préalable à l'extraction des lanthanides.

légé pour ce réacteur, démarré en mode simplement régénérateur à partir d' $^{233}\text{U}$  produit en amont. L'extraction des produits de fission gazeux et des métaux nobles est toujours réalisée par un bullage d'hélium. La durée d'un cycle de retraitement peut être allongée de 10 jours à 6 mois. Les quantités prélevées et retraitées par jour (300 kg au lieu de 6 tonnes dans le cas du MSBR) deviennent alors assez faibles pour modifier le principe d'extraction des produits de fission solubles (lanthanides). La séparation directe thorium/lanthanides envisagée dans le MSBR peut avantageusement être remplacée par une précipitation du thorium par oxydation, suivie de l'extraction des lanthanides. La première étape de fluoruration peut permettre de minimiser la production de transuraniens par extraction du neptunium, et l'étape intermédiaire de stockage du protactinium est facultative.

Concernant les coefficients de température, plusieurs solutions sont possibles pour améliorer les valeurs insuffisantes du MSBR (-1,3 pcm/°C pour le sel et +1,7 pcm/°C pour le graphite, soit un total de +0,4 pcm/°C). Mais la plupart d'entre elles, basées sur l'utilisation de poisons consommables, détériorent l'économie de neutrons et empêchent la régénération. Une autre solution permettant d'obtenir un coefficient total négatif (environ -2 pcm/°C) consiste à durcir le spectre en augmentant la taille des canaux (environ 40 % de sel en volume dans le cœur). Ce faisant, les neutrons sont plus rapides et leur probabilité de fuite augmente. La régénération peut cependant être conservée en remplaçant le réflecteur radial en graphite par une couverture en thorium, par exemple sous la forme d'un circuit de sel. Sa faisabilité et sa sûreté ainsi renforcées, le concept de RSF thorium devient éligible pour Generation IV.

## ► La plateforme expérimentale PEREN

La démonstration de l'intérêt de la filière à sels fondus nous a conduits à proposer la création au LPSC d'une plateforme expérimentale dédiée à l'acquisition des données nucléaires et chimiques de base, nécessaires au développement et à la définition de cette filière. Ce projet se fait en collaboration avec le CENBG, l'IPNO, les laboratoires LTPCM et LEPMI de l'ENSEEG et EDF.

### Mesures neutroniques

La réalisation de la plateforme expérimentale PEREN (Plateforme d'Étude et de Recherche sur l'Énergie Nucléaire) est achevée. La phase de production de données débutera en janvier 2004. La production de neutrons est assurée par le générateur de neutrons pulsés GENEPI II, semblable à celui déjà construit pour les expériences MUSE au CEA Cadarache et utilisé pour de précédentes mesures de données nucléaires. Un système de détection directe des particules chargées de recul permet un monitoring absolu du nombre moyen de neutrons par impulsion, dont la dispersion temporelle est de l'ordre de 250 ns. Le générateur de neutrons peut être couplé à différents massifs ralentisseurs :

- un massif en graphite, percé de canaux pouvant contenir les matériaux à étudier, représentatif d'un cœur de réacteur à sels fondus (Figure 5) ;
- un massif en téflon ( $\text{CF}_2$ ) ;
- un massif en plomb déjà utilisé pour de précédentes études avec le générateur GENEPI I.

Le massif en graphite est, dans un premier temps, utilisé pour étudier la section efficace de diffusion élastique  $\sigma_s(\text{C})$  sur le graphite qui est une donnée fondamentale pour les réacteurs à sels fondus et dont les bases de données nucléaires ne fournissent pas une évaluation suffisamment fiable pour pouvoir effectuer des simulations prédictives précises.

Le principe de ces mesures est fondé sur la corrélation énergie-temps induite par le ralentissement progressif des neutrons par chocs élastiques sur les atomes du milieu diffuseur. Des études par simulation ont montré que la forme de cette corrélation permet de mesurer la variation de la section efficace de diffusion élastique des neutrons en fonction de leur

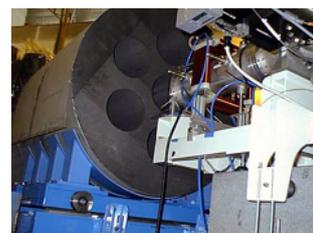


Figure 5 : Vue de la ligne de faisceau arrivant dans le canal central du massif de graphite.

énergie avec une sensibilité voisine de 5 %. Une première mesure du taux de capture des neutrons en fonction du temps, dans une cible en or placée dans le canal de mesure central du massif de graphite est représentée Figure 6. Ces données sont en cours d'analyse.

Le massif en téflon permettra ensuite, à partir de la connaissance de  $\sigma_s(C)$ , de déterminer  $\sigma_s(F)$ . Puis les canaux du massif de graphite pourront être remplis par des matériaux diffuseurs à tester ( $^7LiF...$ ) entrant dans la composition des sels fondus. Le massif de plomb pourra quant à lui être utilisé en tant que spectromètre à temps de ralentissement pour la validation des bases de données concernant soit des matériaux de structure, soit des combustibles, par irradiation de cibles minces.

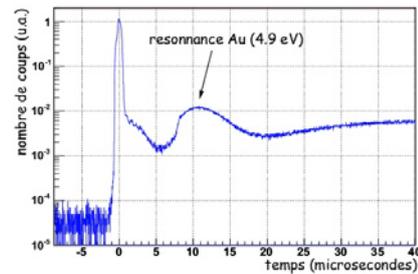


Figure 6 : Taux de capture des neutrons en fonction du temps, dans une cible en or placée dans le canal de mesure central du massif de graphite. Le pic à  $t=0$  correspond à l'arrivée du burst de deutons sur la cible de production.

## Physico-chimie des sels fondus

Les données de l'expérience MSRE ne suffisent pas à expliquer dans le détail les phénomènes observés alors. Nous avons décidé de développer l'aspect physico-chimique du projet au sein du LPSC, d'une part en installant un laboratoire de chimie permettant de travailler sur les fluorures, et d'autre part en initiant une expérience d'extraction gazeuse.

Le laboratoire, implanté dans l'ancien bâtiment de radiochimie, a pour but aussi bien la préparation des sels pour des mesures de neutronique que l'étude à haute température de la thermodynamique des équilibres chimiques entre sels fondus et métal liquide. Les sels envisagés sont des fluorures, très toxiques et hygroscopiques. En contact avec l'eau, ils produisent des oxydes et de l'acide fluorhydrique gazeux. La présence d'éléments tels que le thorium implique de travailler en atmosphère confinée. Le système expérimental se compose donc de boîtes à gants reliées entre elles qui protégeront les sels de l'eau et les métaux oxydables de l'eau et de l'oxygène.

L'expérience d'extraction gazeuse a pour but l'étude du bullage d'hélium destiné à extraire les produits de fission gazeux et les métaux nobles du sel d'un RSF. Le principe du bullage est étudié en injectant du molybdène, figurant un produit de fission, à l'état atomique dans le sel et en suivant son extraction par le gaz. Pour ce faire, nous utilisons la méthode d'implantation ionique développée au laboratoire par J. Menet et G. Callois. L'implantation se fait sur une poudre de sel, à l'aide d'un magnétron creux sous atmosphère d'Argon. Pour éviter toute formation massive d'agrégat, il est nécessaire de limiter l'implantation à une couche monoatomique, vérifiée par analyse chimique et microscopique. Le principal problème que nous rencontrons est une mauvaise implantation où subsistent, au milieu d'une dilution de molybdène atomique, des agrégats de taille microscopique.

## Étude de scénarios de déploiement de l'électronucléaire

Nous avons étudié les possibilités de déploiement au niveau mondial des trois filières de réacteurs les plus significatives. Les Réacteurs à Eau Pressurisée (REP) qui consomment de  $^{235}U$  et produisent du plutonium, et éventuellement de  $^{233}U$  grâce à du combustible MOX thorié, ont un rôle initiateur de toute filière régénératrice. Les réacteurs à neutrons rapides (RNR) à caloporteur gaz ou métal liquide utilisent le Pu des REP et sont susceptibles de produire de  $^{233}U$  grâce à une couverture thorium. Enfin, les RSF sont considérés comme régénérateurs et fonctionnent en thorium. Chaque scénario est piloté par une demande énergétique au cours du temps, fixée à l'avance. L'évolution des réserves d'uranium et de thorium naturels ainsi que celle des stocks et inventaire de matières produites dans le cycle sont suivies au cours du déploiement. Lorsque qu'un réacteur est démarré, on s'assure que le combustible nécessaire sera disponible tout au long de sa vie. Le cas

échéant, des unités d'enrichissement ou de retraitement sont mises en place.

Basée sur le scénario d'évolution de la demande énergétique mondiale proposé par P.-R. Bauquis (TotalFinaElf), notre étude montre la complémentarité des différents parcs de réacteurs. Dans ces scénarios, nous supposons une contribution constante du nucléaire de 2000 à 2015, puis une augmentation jusqu'en 2050 pour atteindre 2600 GWe, soit un facteur 7,5 par rapport à la puissance installée actuelle. Pour vérifier la pérennité de nos scénarios, nous poursuivons avec une augmentation modérée jusqu'en 2130. Trois grands types de scénarios sont envisagés mettant en œuvre les trois filières de réacteurs :

1. le scénario « REP seuls » suppose une continuation de la filière à eau pressurisée, intégrant l'EPR. Elle conduit à un épuisement de l' $^{235}\text{U}$  avant la fin du siècle, ce qui provoque un fléchissement de la production au plus tard en 2080. De plus, il y a accumulation de plutonium et d'Actinides Mineurs (AM) même dans le cas d'un multi-recyclage du combustible,
2. le scénario « REP + RNR » s'articule autour d'une production importante de Pu pour alimenter des RNR gaz ou à métal liquide supposés démarrables à partir de 2025. La montée en puissance est difficile et demande le démarrage de presque autant de REP que de RNR. Ceux-ci sont faiblement surgénérateurs avec un temps de doublement de 40 ans ce qui est suffisant pour permettre de suivre la demande après 2050. Par contre, le démarrage d'un très grand nombre de REP conduit à la consommation de 80 % des réserves d' $^{235}\text{U}$  à terme,
3. enfin, dans le scénario « REP + RNR + RSF » (Figure 7), les REP et RNR produisent l' $^{233}\text{U}$  nécessaire au démarrage des RSF. Lorsque tout le plutonium produit par les REP a été transformé en  $^{233}\text{U}$  dans des RNR sous générateurs en Pu et surgénérateurs en  $^{233}\text{U}$ , les RSF peuvent constituer un parc unique. Les RSF peuvent être sur/iso/sous-générateurs, ce qui permet de régler les stocks d' $^{233}\text{U}$  suivant que l'on souhaite une croissance, une stabilisation, ou un arrêt de la filière RSF. Cette solution est durable et souple, elle minimise les stocks de matière fissile, elle ne laisse pas d'inventaire résiduel en cas d'arrêt de la filière, qui peut être redémarrée grâce aux réserves d'uranium.

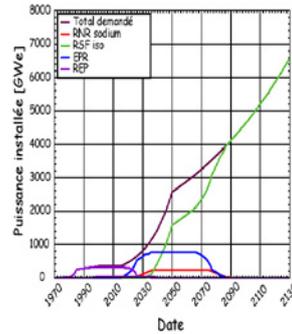


Figure 7 : Déploiement du parc électronucléaire composé de réacteurs à eau ordinaire, de réacteurs à neutrons rapides refroidis au métal liquide, et de réacteurs à sels fondus.

Ces scénarios globaux permettent de montrer les contraintes d'un déploiement électronucléaire au niveau mondial, tout en mettant en avant la complémentarité des différentes filières de réacteurs.

# Interface Physique-Biologie

*J. Collot, M.-L. Gallin-Martel, S. Jan, P. Martin, F. Mayet*

*Positron Emission Tomography (PET) is one of the leading techniques of nuclear medicine. Although the image resolution is slightly worse than the one obtained with MRI, PET allows to have access to metabolic and functional information. PET is used for various medical and biological applications, such as oncology, cardiology as well as pharmacology.*

*Tremendous experimental efforts on a host of techniques have been made in the field of PET imaging, in particular towards the development of new generation PET cameras, including depth of interaction measurements. Moreover, the development of a dedicated Monte Carlo simulation toolkit is also one of the main goals of the nuclear medicine community.*

*These two subjects are developed at LPSC, with the R&D program on a liquid Xenon  $\mu$ PET, dedicated to small animal imaging, and the Monte Carlo simulation activities. The experimental effort comprises both the development of the  $\mu$ PET itself (cryogeny, detection of VUV at low) and the study of dedicated electronics. Simulation efforts have been made, first with the development of a Geant4 based Monte Carlo program (GePEToS), mainly dedicated to PET, and then with the participation to the OpenGATE international collaboration, aiming at providing an open source toolkit for nuclear imaging (PET, SPECT), also based on Geant4.*

La tomographie par émission de positons (TEP) constitue l'une des méthodes d'imagerie *in vivo* métabolique utilisée en médecine. Actuellement, les enjeux dans ce domaine portent notamment sur le développement de caméras innovantes, incluant par exemple une mesure de la profondeur d'interaction, et également sur la simulation Monte Carlo pour l'imagerie nucléaire.

Ces deux thèmes sont traités par l'équipe du LPSC, par le développement d'un microTEP ( $\mu$ TEP) à Xénon Liquide ainsi que l'électronique dédiée, et l'implication dans la collaboration OpenGATE pour l'aspect simulation.

## ► MicroTEP au Xénon liquide

L'imagerie nucléaire (TEP, gamma-caméra) repose sur l'utilisation de noyaux radioactifs, émetteurs  $\beta^+$  ou  $\gamma$ , injectés au patient dans le but de produire une image avec une excellente résolution. Le noyau radioactif est inséré dans une molécule, par exemple du glucose.

Une fois injectées, les molécules marquées par un élément émetteur  $\beta^+$  ( $^{18}\text{F}$  ou  $^{15}\text{O}$ ) se fixent sur les zones cibles, permettant d'en imager le métabolisme en glucose ou le débit sanguin. Le glucose peut par exemple être utilisé pour imager des tumeurs cancéreuses, qui présentent un métabolisme en glucose extrêmement important.

Dans le cas de la TEP, la désintégration du noyau radioactif produit un positon ( $e^+$ ) qui s'annihile ensuite avec un électron. Il y a émission de deux photons  $\gamma$  à  $180^\circ$  qui sont ensuite détectés en coïncidence par un ensemble de détection constitué d'un milieu scintillant (liquide ou solide) couplé à des photomultiplicateurs. L'obtention de l'image se fait *in fine* par reconstruction à partir des données brutes (rétroprojection filtrée par exemple).

Cette technique est utilisée dans de nombreuses disciplines de la médecine et de la biologie (oncologie, cardiologie, pharmacologie, neurosciences, etc.) chez l'homme, les animaux et les petits animaux (rat, souris).

Le LPSC s'est engagé dans l'étude d'un prototype de microTomographe à Emission de Positons ( $\mu$ TEP) au xénon liquide, dont les propriétés de scintillation sont remarquables

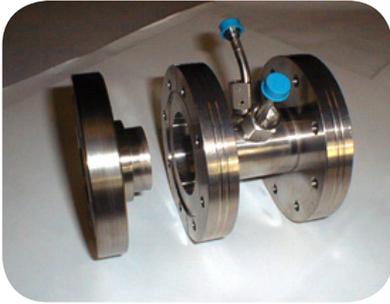


Figure 1 : Vue de la cellule prototype.

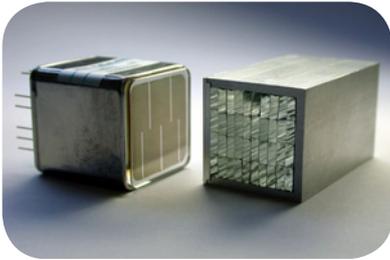


Figure 2 : Photomultiplicateur Hamamatsu à localisation et matrice de guides de lumière  $L = 50 \text{ mm}$ , section =  $2 \times 5 \text{ mm}^2$ .

par sa rapidité (environ 30 ns) et par son intensité, meilleure que celle de l'INa, ce qui le rend très compétitif dans ce domaine d'application. Les cristaux habituellement utilisés tels que le LSO, disposés radialement, sont remplacés ici par des cellules de xénon liquide disposées axialement [1]. Chaque cellule a une longueur de 50 mm et une section de  $2 \times 5 \text{ mm}^2$ . La difficulté réside dans le fait que la température est de 165 K et que la scintillation a lieu à 178 nm. La lumière est collectée aux extrémités par des photomultiplicateurs à localisation (PSPMT), qui délivrent directement la localisation dans le plan radial (x et y) alors que la comparaison des signaux de ces deux PSPMT permet d'accéder à la troisième coordonnée z. Les simulations montrent que ce concept permettrait une nette amélioration de la résolution par rapport aux  $\mu\text{TEP}$  existants, basés sur des cristaux solides. Un module prototype (Figure 1) de section  $20 \times 20 \text{ mm}^2$  a été construit, contenant 10 puis 40 cellules. Les photons VUV sont collectés dans 2 PSPMT (prototypes Hamamatsu). Les tests ont été effectués avec une source alpha placée à une extrémité, puis avec une source de  $^{22}\text{Na}$  ( $\beta^+ \rightarrow 2 \times 511 \text{ keV}$ ). Les gammas sont alors détectés dans le xénon en coïncidence avec un détecteur BaF2 placé à l'extérieur du cryostat. Les premiers résultats sont très encourageants. La localisation de ces gammas dans un plan transverse ne sera pas un problème, comme on le voit sur la figure 3. Les tests actuels portent essentiellement sur l'amélioration de la localisation dans la direction axiale.

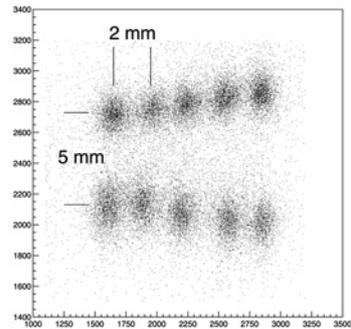


Figure 3 : Résultat récent : les 10 guides de lumière vue par le Photomultiplicateur, avec la cellule prototype (source  $^{22}\text{Na}$ ).

## Électronique dédiée

Les caractéristiques principales visées pour l'électronique de lecture sont la rapidité (le xénon possède un temps de fluorescence court), la compacité et la faible consommation. On projette en effet de placer la majeure partie de l'électronique de traitement du signal dans le cryostat à température du xénon liquide puis de transmettre les signaux à un système d'acquisition, placé à température ambiante, pour la reconstruction ultérieure d'image. Mécaniquement cela signifie la présence de passages « chaud-froid » dans lesquels vont transiter les câbles. Ce nombre doit être réduit au minimum ce qui implique un multiplexage des signaux avant leur sortie du cryostat.

Deux chaînes de mesure sont à envisager, l'une en temps et l'autre en énergie. En ce qui concerne la première, les signaux de dynode de chacun des deux PSPMT qui équipent un module seront sommés et injectés à l'entrée d'un DFC (Discriminateur à Fraction Constante). La sortie de ce dernier sera envoyée sur un convertisseur temps numérique (CTN) qui fournira les données de marquage en temps de l'événement. Les signaux provenant des 16 DFC seront également envoyés à l'entrée d'un « module de coïncidence ». La sortie de ce module est validée si au moins deux cellules, situées dans deux secteurs opposés, ont été touchées. La chaîne de mesure en énergie comprendra un convertisseur charge tension (CCT) auto déclenché associé à un convertisseur analogique numérique. L'étude d'un DFC, d'un CTN ainsi que celle d'un CCT a débuté durant le dernier trimestre 2003. Ces circuits seront réalisés en utilisant la technologie CMOS  $0,35 \mu$  de la société AMS (Austria Mikro Systeme). Durant l'année 2003 des tests réalisés ont permis de vérifier le bon fonctionnement des circuits CMOS à la température de 165 K. La carte de test contenait un CCT, un ADC ainsi qu'un circuit programmable de type EPLD.

## ► Simulation Monte Carlo pour l'imagerie nucléaire

Il existe une forte demande de la communauté médicale pour le développement d'un simulateur Monte Carlo dédié aux applications médicales, présentant à la fois une simplicité d'utilisation et également une pérennité et une stabilité dans le temps, indispensable à la comparaison des futurs projets de caméras. L'apport de la communauté Physique des Particules réside dans son expertise en simulation Monte Carlo (par exemple Geant4), appliquée ici aux basses énergies.

Dans ce contexte, le LPSC a joué un rôle pionnier en développant un package de simulation Monte Carlo (GePEToS) basé sur Geant4 et dédié à la TEP. Ce code a été validé sur des données expérimentales d'une camera TEP (ECAT EXACT HR+ de Siemens), puis rendu publique [2]. À la suite de ce développement, l'équipe du LPSC a intégré la collaboration internationale OpenGATE qui comporte 18 laboratoires et une cinquantaine de membres. L'objectif à moyen terme est le développement d'une plate-forme de simulation Monte Carlo basée sur Geant4 pour l'imagerie nucléaire (PET, SPECT...), dont la distribution sera publique sous licence GNU. Dans ce cadre, le LPSC est impliqué à la fois sur des aspects de validation (comparaison avec GePEToS), et sur des aspects de développement orientés vers les nouvelles générations de détecteurs TEP. De plus, le laboratoire a pris la responsabilité du working group en charge de la documentation liée à la distribution publique. La prochaine étape importante de la collaboration OpenGATE est la distribution publique de la première version du code de simulation GATE. Celle-ci est prévue pour avril 2004 et sera accompagnée d'un article de référence dans *Phys. In Medicine and Biology* [3].

Dans un avenir proche, le travail abordé sur cette thématique portera sur le développement de la seconde version de GATE, et notamment son application à des thématiques proches de l'imagerie TEP (hadronthérapie, curiethérapie). GATE a en effet pour objectif d'être un outil pour le développement de nouvelles méthodes de reconstruction tomographique, pour l'optimisation de la quantification et de l'analyse de cinétique sur image (application directe à la cancérologie) et enfin, GATE doit permettre l'optimisation de protocoles d'imagerie sur les modèles animaux (primates, rongeurs), thématiques particulièrement étudiées dans la communauté Biologie-Médecine.

[1] S. Jan et al., *Conception of a Liquid Xenon  $\mu$ PET for small animal imaging*, soumis à NIMA

[2] S. Jan et al., *GePEToS : a Geant4 Monte Carlo simulation package for Positron Emission Tomography*, physics/0312019, soumis à IEEE Transactions on Nuclear Science

[3] S. Jan et al. (OpenGATE Collaboration), *GATE - Geant4 Application for Tomographic Emission : a simulation toolkit for PET and SPECT*, en preparation pour Phys. in Medicine and Biology.