

Introduction.

Il est assez surprenant de constater que depuis la découverte de la radioactivité, les recherches ont été orientées vers des but précis étroitement liés à l'utilisation de l'énergie de fission de l'uranium et du plutonium à des fins plus militaires que civiles. Il semblerait que peu de chercheurs se soient posés la question de savoir si la Nature peut, dans certaines conditions, utiliser cette énergie nucléaire latente. Il est tout à fait logique de penser que le coeur de la Terre est le siège de réactions nucléaires permanentes nécessaires au maintien de la température interne: il faut bien qu'il puise son énergie de quelque part. D'autre part; les réactions nucléaires se produisant à la surface de notre globe n'ont pas été observées (si l'on excepte le cas très particulier du réacteur nucléaire fossile d'Oklo, Gabon), de manière certaine; cela pourrait être expliqué en supposant qu'à l'échelle où ces réactions nucléaires se produisent, elles soient indécélables. Mais de toute évidence, les gisements radioactifs seraient le lieu privilégié de telles réactions; une intéressante recherche sur la genèse de certains éléments connus serait à faire.

En toute hypothèse, j'ai avancé en 1984 que les éléments ultimes de la série des éléments chimiques seraient les éléments Z-114 et Z-126. D'autre part, ces éléments, qui auraient une importance primordiale dans la Nature, ne pourraient être produits que dans des

conditions très précises, compatibles avec celles qui règnent sur Terre, car il est supposé que ces éléments ne sont pas universels, mais uniquement caractéristiques de certaines conditions planétaires. Ces hypothèses seraient les seules à pouvoir concilier un savoir scientifique avec un savoir alchimique disparu (pour peu que l'on ne soit pas psychologiquement réfractaire à la possibilité naturelle de l'alchimie), puisque ces alchimistes utilisaient deux minéraux communs à leur époque: la pechblende et la fluorite.

Les calculs qui suivent sont destinés à mettre en relief la réactivité nucléaire d'un mélange naturel de composition presque similaire à celle qu'auraient pu utiliser les alchimistes. D'autre part, ils pourraient, à un certain degré, permettre d'expliquer l'intense et croissante activité nucléaire observée au cours de deux expériences antérieures, dont l'une est toujours à l'étude. Mais l'objectif de ces calculs est surtout de connaître les paramètres de fabrication d'un cocktail nucléaire naturel, lequel devrait se caractériser expérimentalement par une réaction explosive, ou la création d'éléments transuraniens. A la différence des engins nucléaires de fission, qui contiennent du plutonium pur, le mélange de l'uranium et du fluor pourrait conduire à la création d'éléments super-lourds par fusion successives avec le fluor, ce qui est évidemment impossible avec un système nucléaire conventionnel. Par ailleurs, les réacteurs nucléaires expérimentaux aux fluorures d'uranium, ne seraient que l'innocente parodie de mélanges alchimiques, car les conditions ne peuvent en aucune manière conduire aux éléments fluorures d'éléments super-lourds.

Basiquement, le mélange naturel est composé d'uranium et de fluor. Le radium et le béryllium y figurent en quantités mineures. La composition chimique approchée serait la suivante:

$$m_T = m_1(UF_4) + m_2(KF, HF) + m_3(H_2O) + m_4(BeF_2) + m_5(RaF_2)$$

Soit V (cm^3) le volume du mélange; on déduit le nombre d'atomes par cm^3 :

$$N_X = \frac{m}{M} n \frac{A^p}{V} \quad \text{molécule } A_p X_n \quad A^p = 6.02 \cdot 10^{23}$$

Soit le mélange équimolaire:

$$m_T = UF_4 + KF, HF + H_2O + (RaF_2 + BeF_2)$$

$$V = 100 \text{ cm}^3 \quad (UF_4 \text{ occupe } 47 \text{ cm}^3, KF, HF \text{ } 33 \text{ cm}^3 \text{ et } H_2O \text{ } 18 \text{ cm}^3)$$

En réalité le mélange équimolaire aurait un volume inférieur à 100 cm^3 , ce qui diminuerait le volume critique du système.

$$N_{U_{235}} = 4.34 \cdot 10^{19}$$

$$N_{U_{238}} = 5.97 \cdot 10^{21}$$

$$N_K = 6.02 \cdot 10^{21}$$

$$N_H = 1.81 \cdot 10^{22}$$

$$N_F = 3.89 \cdot 10^{22}$$

$$N_O = 6.19 \cdot 10^{21}$$

$$N_{Be} = 6.4 \cdot 10^{20}$$

$$N_{Ra} = 2.28 \cdot 10^{19} \quad (5 \text{ g } BeF_2 \text{ et } 1 \text{ g } RaF_2)$$

II. Les paramètres nucléaires du mélange

Le mélange contient une source permanente de neutrons: S_0 neutrons rapides/s. Ces neutrons diffusent dans le mélange, étant plus ou moins ralentis.

- Pouvoir modérateur des noyaux

$$\begin{array}{ll} \Sigma_H = 1 & \Sigma_{Be} = 0.206 \\ \Sigma_O = 0.119 & \Sigma_K = 0.050 \\ \Sigma_F = 0.101 & \Sigma_U = 0.008 \end{array}$$

Il faut noter que le fluor présente une capacité modératrice non négligeable; en conséquence, des réactions de fission par des neutrons fortement ralentis seront probables, mais plus probables seront les réactions de capture conduisant à la formation de plutonium. Le système est semblable à un réacteur à neutrons rapides.

- Section efficace macroscopique

$$\Sigma = \sum_i N_i \cdot \sigma_i \quad \text{section efficace microscopique}$$

Sections efficaces microscopiques: (barns)

A 3 MeV, (proche du centre) valeurs les plus probables

$$\begin{array}{llll} \sigma_A U = 0.55 & \sigma_A K = 0.1 & \sigma_A H = 0.03 & \sigma_A O = 0.0002 \quad \sigma_A F = 0.009 \\ \sigma_s U = 6.65 & \sigma_s K = 3.1 & \sigma_s H = 20 & \sigma_s O = 3.5 \quad \sigma_s F = 5 \end{array}$$

Au niveau d'énergie thermique

$$\begin{array}{llll} \sigma_A U = 7.68 & \sigma_A K = 2.07 & \sigma_A H = 0.332 & \sigma_A O = 0.0002 \quad \sigma_A F = 0.010 \\ \sigma_s U = 8.0 & \sigma_s K = 1.5 & \sigma_s H = 38 & \sigma_s O = 4.2 \quad \sigma_s F = 4.1 \end{array}$$

Les applications numériques qui suivront, ont été effectuées avec ces valeurs qui ne présentent qu'une idée approximative de la vérité.

- Coefficient de diffusion D

$$D = \frac{1}{3} \sum_A \lambda_A \quad \text{ou} \quad D = \frac{\lambda_r}{3} \quad \text{avec} \quad \lambda_r = \frac{1}{\sum_s \sigma_s = \frac{2}{3} \sum_i N_i \sigma_i / A_i}$$

III. Equation du flux de neutrons

Il est prévu de réaliser deux cas expérimentaux:

- Une source de neutrons rapides localisée au centre d'une sphère.
- Une source de neutrons rapides homogènement répartie dans la masse du mélange.

L'adjonction de béryllium est destinée à augmenter le rendement de production de neutrons. Les réactions productrices de neutrons sont $F(\alpha, n)$ et $Be(\alpha, n)$, ainsi que toutes les autres réactions secondaires qui seront prépondérantes au bout d'un certain temps.

Chaque élément de volume qui contient une certaine proportion de radium (second cas) est le siège d'une production permanente de neutrons, qui, par la suite, provoquent des réactions de capture et de fission de l'uranium. L'intensité de la source de neutrons rapides fixerait la limite de la production de plutonium et des réactions de fission, mais en raison des neutrons de fission, il est permis d'espérer une évolution plus ou moins rapide de l'ensemble des réactions nucléaires.

Considérons que la source de neutrons S_0 est située au centre de la masse sphérique du mélange. Ces neutrons diffusent au sein du mélange, et l'équation du flux de neutrons, en régime permanent, est:

$$\Delta \varphi - \frac{\sum_A}{D} \varphi = 0$$

φ - Flux de neutrons/cm²/s

\sum_A - Section efficace macroscopique d'absorption du milieu. (cm⁻¹)

D - Coefficient de diffusion des neutrons (cm)

La solution est: $\varphi = \frac{S}{4\pi D.r} e^{-r/M}$ avec $D = \frac{1}{M^2} \sum_A$

φ représente le flux de neutrons en fonction de l'éloignement de la source centrale S_0 (plus exactement $\varphi - \varphi$ est l'absorption des neutrons) et du pouvoir absorbant du mélange: réactions de capture avec ou sans fission. Il est à noter que $\sum a, s$ et par conséquent D et M sont fonction de l'énergie des neutrons, donc varient au cours de la diffusion; ils seront supposés constants.

L'interaction des neutrons rapides ($\bar{E} \approx 8$ MeV) produits par S_0 avec la matière, provoque la fission des noyaux d'uranium 235 et 238, avec aussi quelques réactions $(n, 2n)$. Soit dQ le nombre de noyaux d'uranium qui fissionnent par seconde:

$$dQ = \sum_j \sigma_{fj} N_{Uj} \varphi dt \quad \sum_j = N_U \cdot \sigma_{fU}$$

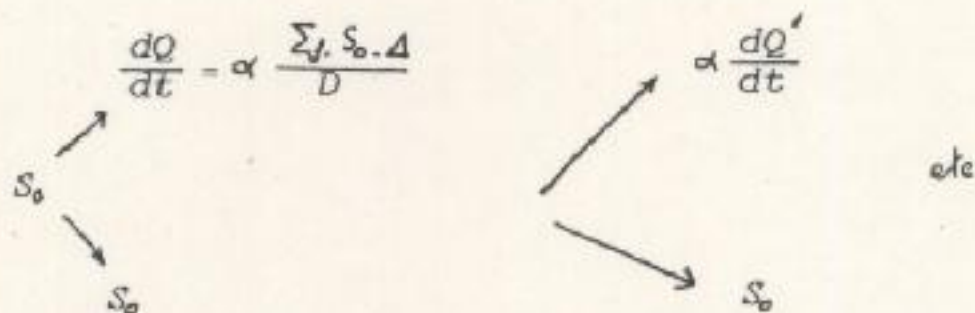
Chaque fission produit en moyenne 2,5 neutrons. (ν) qui s'intègrent immédiatement au flux de neutrons de la source S_0 . Soit α le nombre réel de neutrons qui participent à l'augmentation de la force de la source S ($0 \leq \alpha \leq \nu$):

$$S = S_0 + \frac{dQ}{dt} = \frac{\sum_j S_j}{D} \int_0^{\infty} r \cdot e^{-r/M} dr$$

$$\alpha \frac{dQ}{dt} = \frac{\alpha \cdot \sum_j S_j}{D} (M^2 - M \cdot \nu \cdot e^{-\infty/M} - M^2 \cdot e^{-\infty/M})$$

$$\text{Soit } \Delta = (M^2 - M \cdot \nu \cdot e^{-\infty/M} - M^2 \cdot e^{-\infty/M})$$

L'évolution de la production de neutrons peut se représenter par:



$$s = s_0 + \alpha \frac{dQ}{dt}$$

$$s = s_0 + \alpha \frac{dQ'}{dt}$$

$$\frac{dQ'}{dt} = \sum_j \varphi \quad \text{avec} \quad \varphi = s \left(1 + \alpha \frac{\sum_j \Delta}{D} \right) \cdot \Delta$$

$$\frac{dQ'}{dt} = \frac{\sum_j \Delta}{D} s \cdot \left(1 + \alpha \frac{\sum_j \Delta}{D} \right)$$

$$\alpha \frac{dQ'}{dt} = s \cdot \left[\frac{\alpha \sum_j \Delta}{D} + \left(\frac{\alpha \sum_j \Delta}{D} \right)^2 \right]$$

$$s = s_0 + \alpha \frac{dQ'}{dt} \quad \text{ou} \quad s = s_0 \left[1 + \frac{\alpha \sum_j \Delta}{D} + \left(\frac{\alpha \sum_j \Delta}{D} \right)^2 \right]$$

Par continuité du processus, on peut écrire:

$$s = s_0 \sum_{n=0}^{n=\infty} \left(\frac{\alpha \sum_j \Delta}{D} \right)^n \quad \text{ou} \quad s = s_0 \frac{1}{1 - \frac{\alpha \sum_j \Delta}{D}} \quad (\text{convergence})$$

c'est à dire que la série converge pour:

$$x = \alpha \frac{\sum_j \Delta}{D} < 1$$

Interprétation physique du calcul

Le calcul s'apparente étroitement avec ce que l'on nomme "l'expérience critique", destinée à déterminer expérimentalement, à moindre frais, la masse critique d'un système combustible-modérateur. Par analogie on pourrait écrire:

$$k_{eff} = \alpha \frac{\Sigma_f \Delta}{D}$$

Cas où $\alpha \frac{\Sigma_f \Delta}{D}$ devient supérieur à 1, l'équation de φ devient:

$$\Delta \varphi + \frac{\Sigma_A}{D} \left(\alpha \frac{\Sigma_f \Delta}{D} - 1 \right) \varphi = 0 \quad \text{dont la solution est:}$$

$$\varphi = \frac{\varphi_0}{r} \cdot \sin \frac{\pi}{\sqrt{\frac{\Sigma_A}{D} \left(\alpha \frac{\Sigma_f \Delta}{D} - 1 \right)}} \cdot r \quad \lim_{r \rightarrow r'_0} \varphi = \varphi_0$$

$$\text{avec } \varphi_0 = \frac{S_0}{4 \pi D \cdot r'_0} e^{-r'_0/M} \quad r'_0 \rightarrow \text{volume de la source}$$

Pour un milieu très absorbant, pratiquement tous les neutrons participeront à des réactions de capture avec ou sans fission. Dans le cas où les captures sans fission prédominent, celles-ci conduiront à l'accroissement de la teneur en plutonium du mélange, lequel deviendra, après un temps assez long dépendant de la force de source initiale S_0 , suffisante pour amorcer une réaction en chaîne explosive au bout d'un temps assez court.

IV. Application numérique

1). A 3 MeV

$$\begin{aligned} \Sigma_a &= 0.0048 \text{ cm}^{-1} & \Sigma_s &= 0.636 \text{ cm}^{-1} & \lambda_{tr} &= 2.58 \text{ cm} \\ D &= 0.860 \text{ cm} & M &= 13.48 \text{ cm} \end{aligned}$$

$\alpha = 2.5$

$V \text{ cm}^3$	500	1000	5000	10000	1 m^3
x	0.0826	0.1213	0.2930	0.4098	1.4685

2). Au niveau d'énergie thermique

$$\begin{aligned} \Sigma_a &= 0.065 \text{ cm}^{-1} & \Sigma_s &= 0.930 \text{ cm}^{-1} & \lambda_{tr} &= 2.15 \text{ cm} \\ D &= 0.716 \text{ cm} & M &= 3.32 \text{ cm} & \sigma_{FU} &= 4.18 \text{ b} \end{aligned}$$

$\alpha = 2.5$

$V \text{ cm}^3$	500	1000	5000	10000	1 m^3
x	0.4192	0.5351	0.7953	0.8742	0.9604

$x \text{ limite} = 0.9604$

Contrairement à ce qui se produit pour les neutrons rapides, il n'y aura jamais divergence avec un flux de neutrons thermiques, au sein de l'uranium naturel: résultat connu dans le cas de l'uranium massif naturel.

Remarque.

Les résultats précédents montrent qu'un système naturel pourrait devenir très réactif dans certaines conditions. Mais il est évident que la connaissance de valeurs plus précises des sections efficaces entre 1 et 10 MeV renforcerait les conclusions de ce calcul.

Soit l'ensemble des valeurs connues pour le comportement de l'uranium naturel face aux neutrons rapides (neutrons de fission):

$$\sigma \text{ collision} = 4.3 \text{ barns}$$

- σ diffusion élastique = 1.5 b
- σ diffusion inélastique = 2.47 b
- σ fission = 0.29 b
- σ capture sans fission = 0.04 b

la fission libère 2.55 neutrons

$$\alpha = 2.5$$

$V \text{ cm}^3$	500	1000	5000	0.1 m^3	1 m^3
x	0.0487	0.0735	0.1804	0.6784	1.0279

Les résultats montrent que les neutrons de fission contribueront efficacement à l'augmentation de la réactivité nucléaire.

Σa et Σs du mélange dépendent de la composition chimique du mélange et de l'énergie des neutrons. Aussi sera-t-il possible de rechercher la composition chimique optimum favorable à l'avancement de la réaction nucléaire.

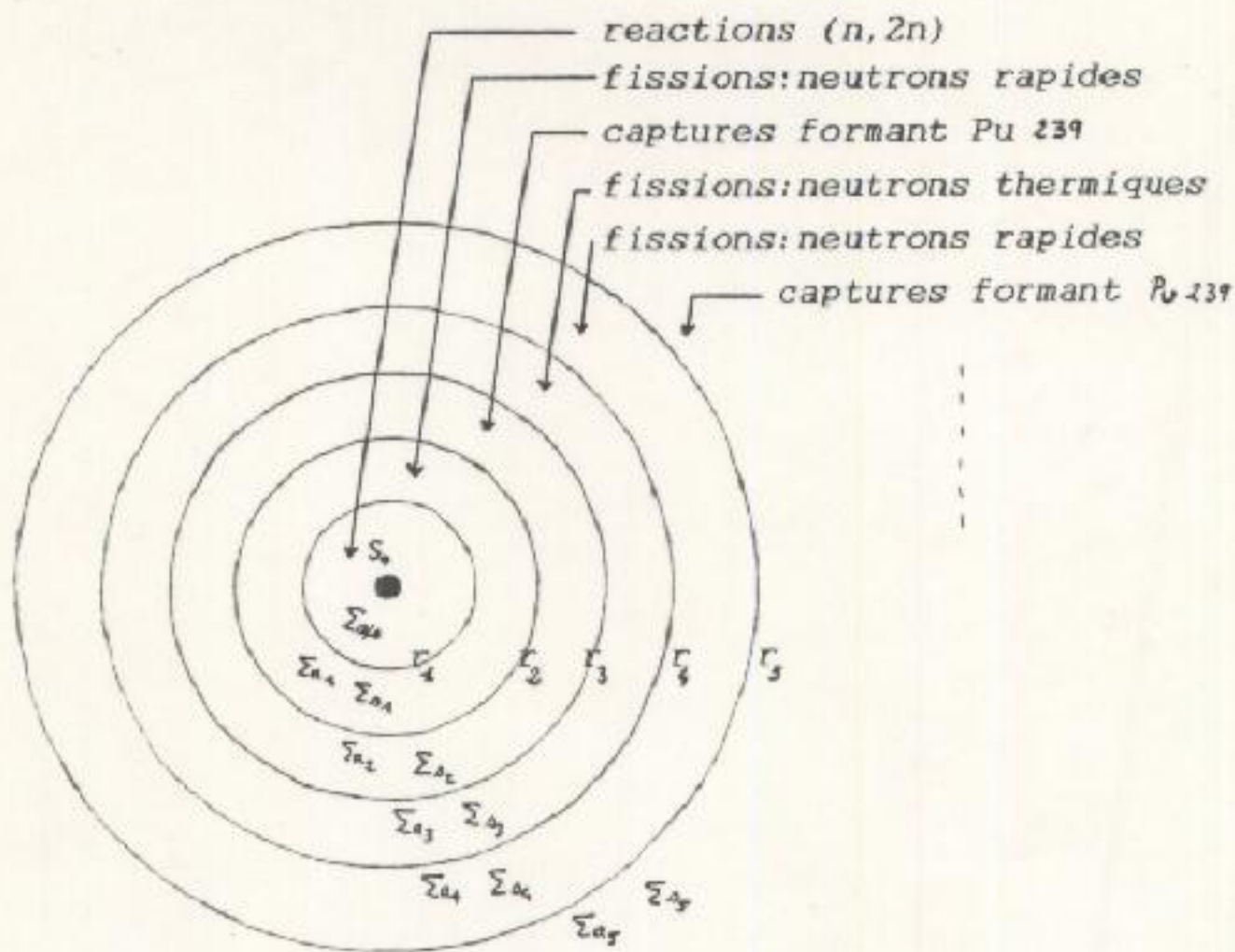
Les fuites de neutrons sont une réalité pour un système expérimental donné; c'est à dire que la dimension du système et l'utilisation d'un réflecteur de neutrons permettrait de minimiser ces pertes. D'autre part, dans

le cas d'une source centrale, les résultats expérimentaux devraient, à priori, être meilleurs.

V. L'hétérogénéité du mélange.

- Cas d'une source S_0 localisée au centre d'une sphère.

Initialement la composition chimique du mélange est homogène, mais par suite de la réactivité nucléaire, cette homogénéité tendra à disparaître. L'on pourrait décrire l'ensemble des phénomènes par le schéma suivant:



La mise en équation de la réactivité devient alors plus complexe, quoique l'expression du flux restera très similaire:

$$D = f(r) \quad M = g(r)$$

$$\varphi = \frac{S_0}{4\pi r} \int \frac{r}{D(r)} e^{-r/M(r)} dr$$

$$D_1(r) = \text{cst entre } r_1 < r < r_2 \quad \sum a_i, \sum s_i \text{ constants}$$

$$D_2(r) = \text{cst entre } r_2 < r < r_3 \quad \sum a_i, \sum s_i \text{ constants}$$

Il est à noter que la diminution de l'énergie des neutrons est favorable aux réactions de capture, donc à la formation de plutonium, mais l'absorption par les produits de fission ne sera pas négligeable.

D'autre part, il est supposé que le mélange est figé, ce qui est faux: la composition choisie permettrait de produire un mixage permanent, ce qui aurait une nette influence sur la réactivité, le mélange étant bien plus homogène.

- Cas du mélange homogène

Chaque élément de volume contient une source dS qui initie quelques réactions nucléaires dans son rayon d'action. Le système se comporterait comme le système précédent, avec une exception aux frontières, où les fuites ne seraient pas négligeables.

VI. Antécédents scientifiques

L'histoire des balbutiements de la physique nucléaire reflète la profonde influence de la méthodologie utilisée par les scientifiques. A partir de la pechblende, il a été procédé à la séparation du polonium et du radium; puis plus tard des composants des familles radioactives. Ces procédés étaient fort longs et coûteux, aussi les éléments séparés étaient-ils très précieux.

La fabrication de sources de neutrons: Po-Be et Ra-Be marque le début de l'étude de l'action des neutrons sur les systèmes chimiques (Fermi). Par la suite, s'est répandu l'usage de cyclotrons qui offrent l'avantage de pouvoir fournir des flux de neutrons plus intenses.

Ces remarques étant faites, on peut observer que la méthodologie scientifique est restée constante, c'est à dire qu'à aucun moment il a été suggéré de créer un mélange naturel caractérisé par un excès de descendants radioactifs. Ce mélange serait alors caractérisé par un flux de neutrons allant de l'intérieur du système vers l'extérieur, et non de l'extérieur vers l'intérieur. D'autre part, il semblerait que la composition isotopique de l'uranium serait le produit d'une activité nucléaire très ancienne: l'isotope 238 étant supposé le plus stable, les isotopes 235 et 234 seraient-ils le résultat de la désintégration du plutonium, puisque celui-ci s'y trouve en traces ($\text{Pu}/\text{U} = 10^{-12}$).

Pour ce qui se rapporte au mélange utilisé, il est à signaler que les fluorures d'uranium ont été utilisés pour réaliser de petits réacteurs nucléaires. Comme le fluor possède une section efficace de diffusion assez élevée (5 barns) pour les neutrons thermiques, il résulte que les réacteurs étudiés sont thermiques, utilisant un combustible nucléaire enrichi.

UF_4 a été étudié plus largement, car plus stable. En effet, UO_2F_2 est oxydant et U_2F_8 sont thermiquement instables et oxydants. UF_4 possède un point de fusion de $1850^\circ C$, mais l'adjonction de diluants salins permet de l'abaisser.

De nombreux systèmes ont fait l'objet d'études:

- binaires: $UF_4 - LiF$
- ternaires: $UF_4 - LiF - KF$; $UF_4 - LiF - RbF$;
 $UF_4 - ZrF_4 - NaF$; $UF_4 - BeF_2 - LiF$;
- quaternaires: $UF_4 - LiF - NaF - KF$; $UF_4 - LiF - NaF - RbF$;

Que ce soit dans le cas d'un réacteur à neutrons thermiques ou rapides, le combustible nucléaire est très artificiel, de plus les mélanges de sels se caractérisent par l'absence totale d'eau.

Par comparaison avec le mélange utilisé pour le calcul; il faut remarquer la propriété des dérivés connus depuis longtemps: KF ; KF, HF ; $KF, 2HF$; $KF, 3HF$; sels cristallisés dont le point de fusion varie de 830 à $50^\circ C$. D'autre part, il a été observé que UF_4 est soluble dans de tels systèmes (Pour Pu des données devraient exister) et curieusement $Am(III)$ l'est aussi. Aussi le mélange dit naturel pourrait-il offrir un avantage certain pour le bricolage d'un cocktail nucléaire à un coût dérisoire, car l'objectif n'est point de fabriquer un réacteur nucléaire classique, ni une bombe nucléaire de fission, si ce n'est la réalisation du système le plus simple que possible capable de dégénérer lentement vers un état sur-critique.

VII. Vérification expérimentale préliminaire. Application

L'exactitude des calculs précédents pourrait être fort contestable. Mais il faut noter que la vérification expérimentale ne pose pas de problèmes insurmontables, même pour le pays le plus sous-développé de la planète. L'important est de disposer des matériaux nécessaires, c'est à dire d'un petit gisement uranifère; le traitement du minerai ne présente aucune difficulté, étant fort connu, le radium doit aussi être récupéré.

Une expérience préliminaire effectuée en Juin 1986, a permis de vérifier qu'un petit morceau de pechblende de 100 g, traité judicieusement produit un mélange, siège d'une intense activité nucléaire caractérisée par de fortes bouffées périodiques de neutrons.

Le mélange naturel contenant un excès de radium par rapport au contenu de l'uranium naturel, ce qui est très plausible dans la Nature, est placé dans une sphère creuse de fer ou d'acier, revêtue intérieurement d'une couche de graphite. Le dispositif de remplissage est à bascule. La source de neutrons rapides peut être centrale ou homogènement répartie dans la masse. Le diamètre de la sphère est variable, selon le but recherché. D'autre part, le renforcement de la résistance de la sphère par une épaisse couche de béton est envisageable: le point de rupture du système devrait coïncider avec l'énorme augmentation du flux de neutrons, évidemment limitée par le combustible: l'énergie de fission ne pourra être évacuée que par explosion du système ou par la production d'un ensemble de réactions nucléaires endoénergétiques.

Conclusion

Un calcul simplifié montre qu'un système naturel composé d'uranium, de fluor et de radium pourrait évoluer vers un état critique si le volume du système est de l'ordre d'un mètre cube. La vérification de ces résultats ne nécessite qu'un petit gisement uranifère, ce qui aurait l'avantage d'offrir à tout pays sous-développé un moyen de développer une recherche nucléaire, à peu de frais.

L'évolution de la ^uractivité nucléaire de ce système naturel serait, selon les calculs, explosive sous certaines conditions; mais il serait possible qu'en raison de la pression énorme qui règnerait à l'intérieur du système, celui-ci évoluerait vers une cristallogénèse nucléaire de nouveaux éléments, en raison de sa composition chimique. Aussi il serait possible expérimentalement, de mettre en évidence une nouvelle propriété des éléments radioactifs naturels, qui, en toute hypothèse, occuperait une place non négligeable dans la Nature.

L'intérêt de cette recherche est non seulement d'ordre scientifique, mais aussi politique, car elle permettrait de développer dans le Tiers Monde une recherche nucléaire personnalisée, adaptée au contexte socio-culturel, laquelle procurerait enfin un travail aux scientifiques sans emploi du monde occidental, et favoriserait à court terme un nouvel équilibre économique mondial basé sur l'idée bien connue de la dissuasion.