HAL
open science

Contribution à l'étude de la production d'U-233 en combustible MOX-ThPu en réacteur à eau sous pression. Scénarios de transition vers des concepts isogénérateurs Th/U-233 en spectre thermique. Développement du code MURE d'évolution du combustible.

Franco Michel-Sendis

To cite this version:

Franco Michel-Sendis. Contribution à l'étude de la production d'U-233 en combustible MOX-ThPu en réacteur à eau sous pression. Scénarios de transition vers des concepts isogénérateurs Th/U-233 en spectre thermique. Développement du code MURE d'évolution du combustible.. Physique Nucléaire Théorique [nucl-th]. Université Paris Sud - Paris XI, 2006. Français. NNT : . tel-00158435

HAL Id: tel-00158435

https://theses.hal.science/tel-00158435v1

Submitted on 29 Jun 2007

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

UNIVERSITE DE PARIS-SUD
U.F.R SCIENTIFIQUE D'ORSAY

THESE

présentée

pour obtenir le grade de

DOCTEUR EN SCIENCES
DE L'UNIVERSITE DE PARIS XI ORSAY

par

Franco MICHEL-SENDIS

Contribution à l'étude de la production d'^{233}U en combustible MOX-ThPu en réacteur à eau sous pression. Application aux scénarios de transition vers des concepts isogénérateurs Th/^{233}U en spectre thermique.
Développement du code MURE d'évolution du combustible.

Soutenue le 21 décembre 2006 devant la commission d'examen :

Monsieur	Bernard	BERTHIER	(Président)
Monsieur	Tanguy	COURAU	(Rapporteur)
Monsieur	Sylvain	DAVID	(Co-directeur de Thèse)
Monsieur	Hubert	DOUBRE	(Directeur de Thèse)
Monsieur	Claude	GARZENNE	
Monsieur	Jacques	MARTINO	
Monsieur	Olivier	MEPLAN	
Monsieur	Paul	REUSS	(Rapporteur)

Remerciements

Je voudrais tout d'abord remercier Madame Dominique GUILLEMAUD-MUELLER, directrice de l'IPN, pour m'avoir accueilli dans son laboratoire pendant mon doctorat.

Je remercie également Monsieur Bernard BERTHIER pour avoir présidé mon jury de thèse, Messieurs Paul REUSS et Tanguy COURAU, d'avoir accepté d'être les rapporteurs de ce document et pour les corrections pertinentes et remarques constructives qu'ils y ont apporté. Je remercie aussi Messieurs Jacques MARTINO et Claude GARZENNE, qui ont accepté de participer dans mon jury de soutenance. Bien entendu, merci à M. Hubert DOUBRE pour avoir accepté d'être mon directeur de thèse et pour avoir si patiemment relu ce document dans ses multiples versions. Ce travail de thèse à été cofinancé par le département R&D d'EdF et par le CNRS, que je remercie.

C'est naturellement que je dois ensuite dire merci à Sylvain DAVID, qui a proposé et encadré cette thèse et m'a épaulé tout le long du tortueux chemin qu'on allait découvrir ensemble. Comment ne pas dire merci à Olivier MEPLAN, dont le soutient constant a plus que largement contribué au dévelopement quotidien de notre cher MURE. Mille mercis à eux.

J'ai passé plus de trois ans au sein du groupe PACS : je voudrais dire ici toute mon amitié à Charles-Olivier BACRI, à mon cher voisin Claude STEPHAN, à Laurent TASSAN-GOT, à Jon WILSON, à Laurent AUDOUIN. Merci très spécialement à Adrien BIDAUD, pour son aide toujours disponible. Merci à Sylvie PIERRE pour sa gentillesse de tous les jours, et merci aussi à Sandra BOUNEAU. Je n'oublie pas ma co-locatrice de bureau Laure, et je pense aussi à Abdel, Carlos, Luc. Merci Perrine, Nico, Daniel, Elsa. Dans la foulée : merci à Céline, à Jocelyne et à Nicole.

Bien sûr, merci à Alexis NUTTIN, qui devînt très tôt un compagnon nocturne de choix pour faire face au surréalisme perpignanais : son style littéraire fut pour moi source d'inspiration créatrice dans ce document. Merci aussi à Eric BONNET pour avoir partagé des longs moments de désarroi de fin de thèse : sans lui les couloirs rose pâle du bâtiment 102 auraient été bien plus sombres le soir.

A Danièle KAMINER, je voudrais dire merci tellement, pour toutes ces années de gentillesse...

Enfin, je souhaite simplement laisser ici quelques traces écrites d'une évidence que je suis forcé de constater jour après jour, depuis que je suis de ce monde : je n'ai jamais été seul. Même de loin, surtout de loin, leur présence a toujours été là, implicite et sans faille : à mes parents, à mon frère Christian, merci. Pour finir (ou pour enfin commencer ?), j'aime l'idée qu'ici soit notée une pensée pour mes grands-parents paternels, parce que l'agenda de la vie a voulu qu'ils restent pour moi une inspiration suspendue, hors du temps. *Gracias totales.*

Orsay, décembre 2006.

Table des matières

1 Le nucléaire de fission durable, contexte énergétique mondial et français 3

1.1 Une double contrainte au cœur de la problématique de l'énergie mondiale 4

1.1.1 Une démographie mondiale croissante 4

1.1.2 Une consommation d'énergie par habitant à la hausse 5

1.1.3 L'équilibre de l'écosystème terrestre menacé par les rejets de gaz à effet de serre anthropiques 6

1.1.4 Le problème des ressources 8

1.2 Le nucléaire actuel n'est pas une source d'énergie durable 9

1.2.1 L'utilisation du minerai uranium en *spectre de neutrons thermiques* 10

1.2.2 Les ressources en uranium utilisables dépendent du prix d'extraction de l'uranium naturel 11

1.3 Le nucléaire en France 12

1.3.1 Une situation unique au monde 12

1.3.2 Le combustible UOX usé 12

1.3.3 Le traitement des déchets 13

1.3.4 La gestion du plutonium en France 13

1.3.4.1 L'utilisation de combustibles MOX à base de plutonium 14

1.4 Principes de fonctionnement d'un réacteur nucléaire 14

1.5 Les deux cycles du combustible 16

1.6 La régénération de la matière fissile en réacteur 17

1.6.1 La régénération dépend fortement du spectre en énergie des neutrons . . . 18

1.6.2 Isogénération et concentration initiale théorique de fissile nécessaire 20

1.7 Généralités du cycle thorium : avantages et inconvénients 21

1.7.1 Bref historique des réalisations expérimentales utilisant le thorium 21

1.7.2 Le projet régénérateur de Shippingport 22

1.7.3 Avantages des combustibles au thorium 27

1.7.4 Inconvénients des combustibles au thorium 28
1.8 Conclusion 29

2 Le Code d'évolution MURE 31
2.1 Au cœur de MURE : MCNP 32
2.1.1 Le principe des calculs de transport par les méthodes de Monte Carlo . . 32
2.1.2 Le flux de neutrons intégré dans une cellule 37
2.1.3 Les sections efficaces moyennes des noyaux dans une cellule 38
2.2 La structure du code MURE 39
2.2.1 La définition de la géométrie à simuler 39
2.2.2 La définition des matériaux 40
2.2.3 La construction d'une base de données à différentes températures 41
2.2.3.1 Le code ENDF2ACE 41
2.3 Le traitement de l'évolution dans MURE 42
2.3.1 Les équations de Bateman et la matrice d'évolution 42
2.3.2 L'arbre des noyaux 43
2.3.2.1 Simplification de l'arbre des noyaux 44
2.3.3 L'intégration du système couplé : simulation de l'évolution 47
2.3.3.1 La simulation d'une évolution à puissance constante 47
2.3.3.2 L'évolution extrapolée des sections efficaces moyennes entre deux pas de temps 49
2.3.4 Le processus itératif d'évolution 50
2.4 L'évolution d'un système critique et le maintien du facteur de multiplication . . . 51
2.5 Valeurs par défaut prises pour ϵ_i, l'énergie déposée par fission pour les différents noyau lourds 56
2.6 MureGui : l'interface de visualisation des résultats 57

3 Validation et optimisation du calcul d'évolution MURE 59
3.1 Introduction 59
3.2 La géométrie cellule 60
3.2.1 Benchmark avec le code Apollo 61
3.2.1.1 Résultats du calcul UOX 61
3.2.1.2 Résultats du calcul ThPu 67
3.3 Estimation de l'erreur statistique induite sur les inventaires 75
3.4 La modélisation de l'hétérogénéité du crayon combustible est-elle nécessaire ? . . 80
3.5 La géométrie Assemblage 95

3.5.1 Ecarts observés sur différentes bases de données choisies 99

4 Etude du combustible Mixte Oxyde Thorium Plutonium 101

4.1 Introduction 101

4.1.1 La problématique du plutonium en réacteur à eau légère 101

4.2 Le modèle Assemblage 103

4.3 Comparaison des fuites neutroniques en combustible ThPu et combustible UOX . 104

4.3.1 Estimation des absorptions neutroniques dans la cuve 106

4.3.2 Fuites neutroniques vs perte de réactivité 107

4.3.3 Limites du calcul assemblage 107

4.4 Les différents types de plutonium considérés. 108

4.4.1 Détermination d'une valeur de C_{b_0} 113

4.5 Les Coefficients de Réactivité 117

5 Evolution du combustible Mixte Oxyde Thorium Plutonium 129

5.1 Gestion d'un cœur REP par fractionnement *en batch* 129

5.1.1 Estimation du taux de combustion par la simulation de l'évolution sans bore130

5.1.2 Estimation du taux de combustion par la simulation d'une évolution à réactivité constante 133

5.1.2.1 Limites de cette méthode appliquée au calcul assemblage 134

5.1.2.2 Intérêt de la méthode 135

5.1.3 Bilans de matière à la décharge 136

5.1.4 Production d'^{233}U 136

5.1.5 Incinération du plutonium 139

6 Scénarios de transition vers des systèmes isogénérateurs Th/^{233}U en spectre de neutrons thermiques 149

6.1 Introduction 149

6.1.1 Le concept de Réacteur à Sels Fondus : un candidat possible de réacteur isogénérateur en combustible Th/^{233}U 150

6.1.2 Bilans de matière utilisés 150

6.1.3 Hypothèses de base des scénarios ici considérés 151

6.2 Méthodologie 153

6.3 Les scénarios de transition à puissance constante 157

6.4 Scénario A : Introduction du concept RSF en 2035 158

6.5 Scénario B : Introduction du concept RSF en 2080 165

6.6 Scénario C : Introduction des RSF en 2050 et doublement de puissance en 2100 . 167
6.7 Conclusion sur ces scénarios 167

Bibliographie **195**

Introduction

Même si l'industrie nucléaire a très vite choisi la filière uranium, l'interêt porté sur le cycle du thorium a toujours existé. L'ancêtre des réacteurs à eau sous pression (REP) d'aujourd'hui, le réacteur de Shippingport, fût adapté, avant d'être demantelé dans les années 1980, pour démontrer les potentialités d'un combustible de type Th/^{233}U.

Le développement du nucléaire civil tel qu'il est majoritairement fait aujourd'hui, c'est-à-dire basé sur l'utilisation du cycle uranium/plutonium en réacteur à neutrons thermiques, posera le problème de l'approvisionnement en ^{235}U s'il est fait massivement à l'échelle mondiale. En effet, les technologies actuelles des réacteurs à eau légère n'emploient qu'environ 0.5 % du potentiel énergétique de l'élément uranium : pour faire fissionner 1 tonne d'uranium, on doit traiter environ 200 tonnes d'uranium naturel, l'essentiel de cette quantité est alors de l'uranium *appauvri* en ^{235}U, qui aujourd'hui n'est pas utilisé.

Deux facteurs, à eux seuls suffisants pour justifier une relance du nucléaire, laissent penser aujourd'hui qu'un développement significatif de l'énergie de fission peut effectivement avoir lieu dans un contexte mondial. Ces deux facteurs sont, d'une part, la pénurie de ressources énergétiques qui se profile avec la fin annoncée des combustibles fossiles, d'autre part, la prise de conscience par la societé de la nécessité de réduire au maximum nos emissions de gaz à effet de serre (GES). Cette conjoncture renforce aujourd'hui favorablement la perception de l'énergie nucléaire comme seule source massive d'énergie sans rejets de GES susceptible de répondre à une hausse de la demande mondiale en énergie. Ceci est un atout majeur de l'énergie nucléaire, qui est mis en valeur pour contrebalancer les inconvénients liés aux déchets nucléaires.

L'industrie nucléaire doit cependant préparer la transition vers des technologies surgénératrices, qui optimisent l'utilisation de la matière fissile en rendant les ressources en minerai fertile pratiquement inépuisables à l'échelle humaine. Plusieurs concepts surgénérateurs, dits de quatrième génération, existent. L'étude de réacteurs innovants est depuis plusieurs années un sujet à nouveau d'actualité dans le domaine académique comme industriel.

Dans le cadre de la recherche de nouveaux cycles du combustible et de réacteurs innovants, l'étude des combustibles à base de thorium a toujours eu sa place et nombre d'études et réali-

sations pilote on démontré les potentialités du thorium comme combustible nucléaire. L'emploi du thorium est intéressant car le noyau fissile produit par capture radiative sur ^{232}Th, l'^{233}U, présente d'excellentes qualités neutroniques. De telles qualités rendent possible la surgénération de matière fissile en réacteur à spectre thermique pour le cycle du thorium, ce qui n'est pas le cas du cycle uranium/plutonium avec ce type de spectre. L'inconvénient est qu'il faut fabriquer au préalable l'inventaire initial en ^{233}U nécesaire au démarrage d'un réacteur surgénérateur fonctionnant à l'^{233}U. Si cette production *en amont* est assurée pendant la transition vers des systèmes Th/^{233}U, le cycle thorium peut permettre une indépendance plus grande, voire totale à long terme, des demandes en uranium naturel ou en matière fissile.

Cette thèse présente le travail effectué dans le développement d'un code de simulation adapté à l'étude neutronique des réacteurs nucléaires en général et à l'évolution de leur combustible suivant l'irradiation par neutrons. Ce code, que nous avons baptisé MURE (l'acronyme anglais de *MCNP Utility for Reactor Evolution*), est un ensemble d'outils créés en langage C++ suivant la programmation orientée objet. Il utilise le très répandu et validé code de transport Monte Carlo MCNP[1] pour calculer les quantités physiques (facteur de multiplication, flux intégré, sections efficaces moyennes de chaque noyau, taux de réactions...) qui interviennent dans les équations de Bateman qui décrivent l'évolution isotopique du combustible nucléaire. MURE résoud ce système d'équations par intégration numérique et gère de façon conviviale l'exploitation des résultats.

Dans ce travail nous présentons une première application du code MURE à l'étude des combustibles de type mixte oxyde thorium-plutonium en réacteur à eau préssurisée de type REP. Nous avons considéré, dans les combustibles $ThPuO_2$ étudiés, diverses teneurs en plutonium et divers vecteurs isotopiques du plutonium pour différentier le plutonium issu d'un combustible UO_2 conventionnel usé d'un plutonium issu d'un combustible MOX irradié. Une telle approche permet d'avoir des bilans matière calculés sur un réacteur REP du type actuel non-modifié. Une étude de scénarios français de transition vers un concept iso-génerateur de type réacteur à sels fondus est ensuite présentée.

Chapitre 1

Le nucléaire de fission durable, contexte énergétique mondial et français

Ce travail de thèse s'inscrit dans le cadre des recherches menées au CNRS sur les cycles nucléaires innovants pour la production future d'énergie de fission *durable*. Le CNRS est à l'origine du groupement de recherches GEDEPEON[1] où interagissent les principaux acteurs scientifiques du nucléaire en France (CEA, EDF et Framatome), dont l'une des missions est d'examiner de nouveaux cycles du combustible et d'étudier les futurs réacteurs durables dits *de quatrième génération*.

Dans ce contexte, nous avons entrepris le développement d'un code d'évolution du combustible, adapté à la simulation des réacteurs nucléaires par les méthodes de Monte Carlo. Nous nous sommes ensuite intéressés à l'étude du combustible de type oxyde mixte thorium-plutonium $ThPuO_2$ (MOX-ThPu) en Réacteur à Eau Pressurisée (REP), dans la perspective de déterminer les capacités des réacteurs à eau légère d'aujourd'hui à produire de l'uranium 233 *en amont* d'une filière utilisant un combustible $Th/^{233}U$.

Nous introduirons à la fin de ce chapitre, le concept de *cycle du combustible* ainsi que celui de la *régénération* de la matière fissile, qui est un critère essentiel, comme on le verra, à un nucléaire durable. Le concept de *durabilité* ne saurait cependant se passer préalablement d'une discussion, même sommaire, du contexte actuel de l'énergie, de la problématique des ressources énergétiques et de la gestion de leurs déchets dans le monde actuel et *à venir*.

[1] GEDEPEON(Gestion des Déchets et Production d'Energie par des Options Nouvelles) est un des cinq groupements de recherche du programme interdisciplinaire PACE (Programme de l'Aval du Cycle Electronucléaire) du CNRS.

1.1 Une double contrainte au cœur de la problématique de l'énergie mondiale

La consommation mondiale en énergie primaire[2] a connu pendant les dernières cinquante années, divers régimes de croissance. Elle fut très forte dans les années 1960, croissant en moyenne de 5% par an jusqu'en 1973, date du premier choc pétrolier où elle décroît brutalement. De 1973 à 1990 on peut retenir une croissance moyenne beaucoup plus modérée, de 2%. Depuis 1990 la demande mondiale en énergie progresse en moyenne de 1,4% par an et a atteint 10,2 Gtep en 2001[2].

Il est intéressant de voir que les *taux d'indépendance énergétique* (rapport de la production d'énergie primaire à la consommation totale, cf tableau 1.1) varient grandement par pays et selon l'époque. Ceci permet de mieux comprendre les décisions prises aujourd'hui dans le contexte mondial. Les gisements de pétrole et de gaz sont repartis très inégalement sur la surface terrestre et induisent de la part des consommateurs une forte dépendance vis-à-vis des pays qui les possèdent. Le nucléaire est une façon de réduire la dépendance énergétique d'un pays ne possédant pas de réserves fossiles. Le prix du minerai d'uranium est aujourd'hui négligeable dans le prix de revient du kWh nucléaire : la forte valeur ajoutée est apportée par l'infrastructure industrielle, scientifique et technique qui rend possible la production d'énergie nucléaire. Ainsi la France a augmenté nettement son indépendance énergétique bien qu'elle importe de l'uranium. A l'heure où certains pays renoncent à l'énergie de fission nucléaire, d'autres relancent leur programme nucléaire (USA, Chine, Finlande, Amérique du Sud, ...).

Pays/Région	France	Allemagne	Canada	Etats-Unis	Japon	Europe(15)	Moyen Orient
1973	20 %	51 %	123 %	84 %	9 %	38 %	76 %
2001	50 %	38 %	153 %	75 %	20 %	51 %	76 %

TAB. 1.1 – *Taux d'indépendance énergétique (rapport de la production sur la consommation totale d'énergie primaire), par pays ou région et par année[2].*

1.1.1 Une démographie mondiale croissante

Les scénarios de projection de la croissance démographique mondiale sont variés et peuvent conduire à différentes estimations de la population mondiale d'ici un siècle. Ces scénarios ne

[2]L'énergie primaire est la forme d'énergie disponible dans la nature avant toute transformation. Elle n'est pas toujours utilisable directement et doit être transformée pour être stockée ou transportée (sous forme d'électricité, par exemple).

considèrent que des variations douces de la fonction population mondiale avec le temps : aucun ne prévoit une diminution à court ou moyen terme du nombre d'habitants sur terre. Une estimation modérée (figure 1.1) prévoit qu'en 2050, au taux de croissance actuel, la planète comptera environ 9 milliards d'habitants.

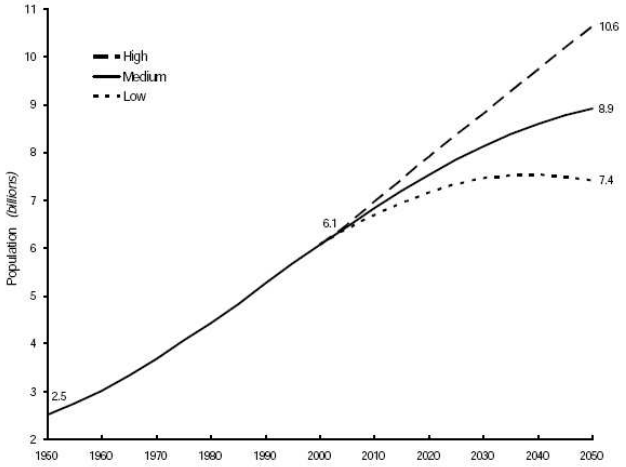


FIG. 1.1 – *Population mondiale de 1950 jusqu'à nos jours et projections d'ici 2050 pour divers scénarios(GIEC,[3]).*

Dans les pays riches industrialisés, le renouvellement des générations n'est plus assuré (en France ou aux Etats-Unis par exemple, ce sont les populations immigrées qui entretiennent une hausse de la démographie). Ce constat suit la règle générale qu'avec l'augmentation du niveau de vie, le taux de natalité baisse.

1.1.2 Une consommation d'énergie par habitant à la hausse

Rapportée au nombre d'habitants, la consommation d'énergie n'a cependant pas beaucoup évolué depuis les années 1970 : elle était de 1,58 *tonnes équivalent pétrole*[3] (tep) par habitant et par an en 1973 contre 1,67 tep en 2001. La richesse énergétique est par contre très mal distribuée de par le monde. Actuellement, 250 millions de personnes consomment autant d'énergie que tous les autres, en épuisant essentiellement les stocks d'énergie fossile et non renouvelable de la planète. En moyenne, un Américain des États-Unis consomme 8 tep par an, soit plus de 13 fois ce que consomme un habitant de l'Afrique, près de 9 fois la consommation d'un Chinois, ou le double de celle d'un Européen. Si la croissance économique que connaissent aujourd'hui les grands blocs démographiques de la planète (la Chine et l'Inde) se traduit par une élévation du niveau de vie

[3]la tonne équivalent pétrole est une unité d'énergie adoptée par les énergéticiens. Elle équivaut à 41,6 GJ.

de leur population et donc une plus grande consommation en énergie, la consommation mondiale d'énergie *par habitant* connaîtra une croissance encore plus importante.

1.1.3 L'équilibre de l'écosystème terrestre menacé par les rejets de gaz à effet de serre anthropiques

La communauté scientifique ne met plus aujourd'hui en doute l'existence d'une forte corrélation entre l'équilibre de l'écosystème terrestre et l'augmentation de la concentration de gaz à effet de serre (GES) dans l'atmosphère de notre planète. Le réchauffement climatique constaté aujourd'hui est la conséquence de l'augmentation de la teneur de l'atmosphère terrestre en GES, principalement CO_2 mais aussi CH_4, SO_2 ou NO_2.

La signature du protocole de Kyoto à la fin du XXième siècle marque, d'une façon modeste et tardive, l'éveil officiel de la conscience collective mondiale à la notion pourtant élémentaire que toute utilisation d'énergie passe par une modification de l'environnement et une accumulation de rejets ou de déchets associés. La consommation massive des réserves d'énergies fossiles (pétrole, charbon, gaz), qui a permis la croissance exponentielle de la démographie mondiale dans les cent dernières années, non seulement épuise des ressources non-renouvelables mais est la principale source d'émission des gaz à effet de serre *anthropiques*. L'utilisation de combustibles fossiles est aujourd'hui reconnue comme principal responsable de l'augmentation observée de la concentration en CO_2 atmosphérique.

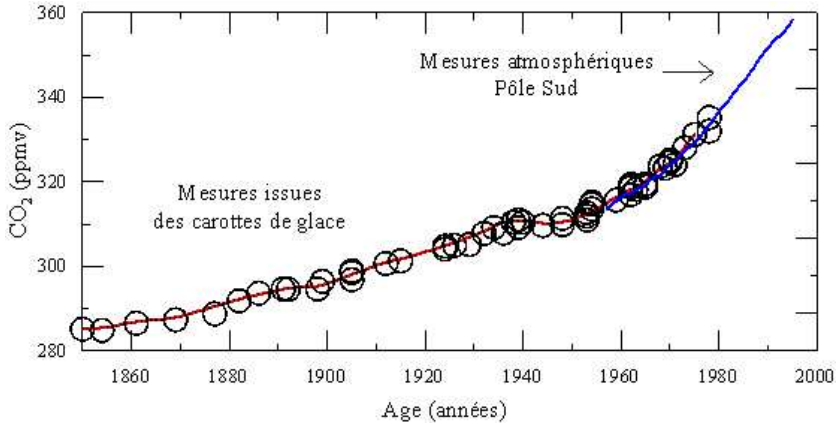


FIG. 1.2 – *Courbe d'évolution de la concentration du CO2 dans l'atmosphère depuis 1850, à partir de l'analyse des carottes de glace antarctique et de mesures directes[4].*

Ces GES sont des rejets inévitablement associés à la combustion d'une source d'énergie fossile. Nous sommes dans une période charnière de l'histoire mondiale, où il faudra –l'enjeu étant la

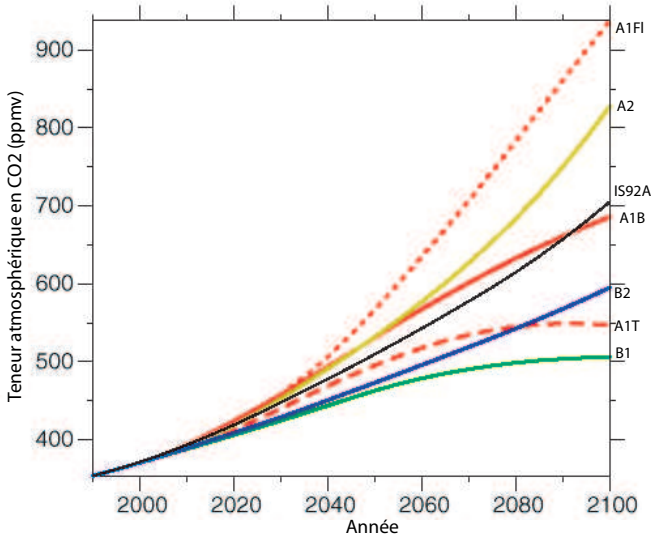


FIG. 1.3 – *Projection selon divers scénarios de la teneur en CO_2 atmosphérique pour le* XXIième *siècle. De tels scénarios dépendent du taux d'utilisation d'énergies fossiles dans notre consommation. Même le scénario le plus conservateur prévoit une nette augmentation de cette teneur à des niveaux inédits dans l'histoire[5].*

survie de la société humaine– réussir une transition vers un mode de vie nécessairement plus sobre en consommation d'énergie et sans rejets de GES. Les figures 1.2 et 1.3 donnent respectivement la variation de la teneur en CO_2 mesurée et des projections de cette teneur selon divers scénarios de consommation d'énergie fossile.

La figure 1.4 illustre la croissance observée des écarts à la température globale moyenne terrestre avec le temps.

De par sa nature énergétique intrinsèquement *dense*, la seule source massive d'énergie primaire susceptible de satisfaire rapidement une part significative des besoins mondiaux d'énergie, et sans rejets de GES, est aujourd'hui l'énergie nucléaire. Cependant, pour réussir cette transition vers une situation où le nucléaire serait développé de par le monde, le nucléaire doit être rendu durable, en veillant notamment à l'optimisation des matières fissiles et fertiles. Dans le cas d'une relance du nucléaire mondial, la réussite de cette transition passera par une acceptation, de la part de la société, du choix de la gestion surveillée des déchets ultimes associés à l'énergie nucléaire. Ne pas réussir cette transition risque de continuer à cautionner tacitement l'utilisation jusqu'à épuisement des énergies fossiles, dont les rejets en GES sont disséminés, non contrôlables et représentent aujourd'hui, à nos yeux, une menace plus grave que celle des déchets nucléaires, qui sont eux, concentrés, confinés, localisés et soumis à des contrôles stricts. Nous reviendrons

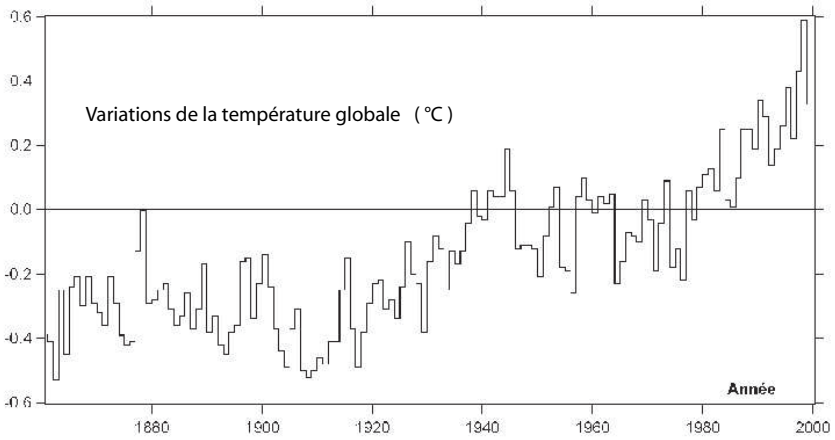


FIG. 1.4 – *Mesures des écarts à la température globale moyenne entre 1880 et 2000. D'après [6].*

en détail sur la nature de ces déchets. Soulignons que si le nucléaire est amené à augmenter dans le monde, cette culture de la sûreté des déchets et des installations requises devra certainement être étendue aux pays en voie de développement.

1.1.4 Le problème des ressources

Toute source d'énergie non-renouvelable se heurte au problème inévitable de la disparition, tôt ou tard, de ses réserves. Nous venons de voir que rien aujourd'hui ne permet de penser que la consommation d'énergie va diminuer à court ou moyen terme. Au contraire, elle a de fortes chances de continuer à croître et cette croissance risque de s'accélérer.

Le tableau 1.2 donne une estimation du nombre d'années d'exploitation dont on dispose encore, selon les experts[7], pour les principales sources d'énergie fossile non-renouvelable dans le monde. Ces échéances dépendent du taux de consommation et sont ici données pour le taux actuel : l'estimation de leur durée de vie est d'emblée optimiste. Il est toutefois difficile de bien chiffrer ces échéances, compte tenu de l'incertitude qu'entoure l'appréciation de la quantité des réserves, sujet toujours débattu. Cela illustre cependant, hors tout débat, que la deuxième moitié du XXIième siècle verra très probablement le début de la fin de près de 80 % de réserves énergétiques conventionnelles mondiales : si la durée de vie statique est ici surestimée, le pic de production que chacune de ces formes d'énergie connaîtra avant de décroître est, lui, nettement inférieur à cette durée.

Forme d'énergie	Part de la production mondiale d'énergie (2001)	R.P.R	Temps restant d'exploitation statique
Pétrole	32 %	142 Gt	40 ans
Charbon	26 %	984 Gt	190 ans
Gaz	20 %	150 Tm^3	60 ans
Total	78 %	–	–

TAB. 1.2 – *Ressources Prouvées Récupérables (R.P.R) en volume et années d'exploitation statique, des sources d'énergie fossiles et nucléaire. [8].*

1.2 Le nucléaire actuel n'est pas une source d'énergie durable

L'uranium n'est certainement pas une exception à la règle générale de la *finitude* des réserves, dont le montant est également débattu et variable selon le prix d'extraction qu'on considère. Il est par ailleurs difficile d'évaluer les ressources ultimes en uranium, d'autant plus que la prospection ne paraît pas aujourd'hui faire l'objet d'un effort important, sans doute à cause d'une existence de stocks à disponibilité immédiate. On estime aujourd'hui que le bilan de toutes les ressources minières répertoriées dépasserait 17 millions de tonnes, à des conditions d'accès toutefois très différentes.

Enfin, l'exploitation de ressources non conventionnelles comme les réserves d'uranium dilué dans l'eau de mer est souvent présentée comme permettant d'augmenter significativement les réserves en uranium. Ceci suppose cependant un saut technologique majeur, et une part importante de spéculation qui rendent l'exploitation de ces ressources à nos yeux irréaliste à court terme. En effet, la plupart des études donnent une valeur de la concentration de l'uranium comprise entre 1 et 5 $\mu g.l^{-1}$ et une valeur moyenne d'environ 3.3 $\mu g.l^{-1}$ semble être communément acceptée. Un volume d'un million de mètres cubes d'eau de mer contiendrait alors environ 3 kg d'uranium. En donnant à cet uranium une valeur hypothétique de 300 euros/kg, pour que l'extraction soit rentable il faudrait que les moyens d'extraction puissent traiter à moins de 0.1 centime d'euro le mètre cube d'eau de mer (avec un rendement de 100%), à comparer avec le prix des technologies de traitement de l'eau utilisées aujourd'hui d'environ un euro par mètre cube d'eau potable : soit 3 ordres de grandeur de différence. Ce raisonnement est détaillé dans la réference [10]. Par ailleurs, l'augmentation du volume des ressources conventionnelles en uranium en fonction des coûts qu'on est prêt à payer laisse penser que la filière surgénératrice deviendrait beaucoup plus rentable avant d'aller chercher l'uranium dans l'océan.

En définitive, à moins de 80 dollars par kilogramme, l'AIEA donne la valeur de 2,5 millions de tonnes d'uranium, soit 45 ans d'exploitation *statique* (au rythme de consommation actuel)

dans les réacteurs d'aujourd'hui.

Tel qu'il est extrait et utilisé aujourd'hui par le nucléaire conventionnel, l'uranium ne constitue donc pas une source d'énergie durable : ses réserves ne permettraient qu'une cinquantaine d'années d'exploitation, au rythme actuel d'utilisation du nucléaire dans le monde, qui n'est pourtant que d'environ 7% de la production mondiale d'énergie. Si le nucléaire est amené à se déployer davantage dans le bouquet énergétique mondial comme future source massive d'énergie, pour être durable il doit être fait autrement. Le nucléaire actuel utilise la fission de l'uranium *en spectre de neutrons thermiques*. A ces énergies de neutrons là et un combustible uranium/plutonium, le rendement du réacteur en termes de matière fissile consommée est dit sous-générateur : la façon dont on *brûle* l'uranium est très incomplète par rapport à la quantité de minerai qu'on utilise et l'on a un bilan net de consommation de matière fissile. Nous abordons maintenant ce point.

1.2.1 L'utilisation du minerai uranium en *spectre de neutrons thermiques*

La teneur isotopique en ^{235}U de l'uranium qui constitue le combustible d'un réacteur à eau légère de type REP doit être portée à environ 3,7%. Cet ordre de grandeur de la teneur des noyaux fissiles dans l'uranium permet d'avoir un taux de fission suffisant pour maintenir une réaction en chaîne, compte tenu des autres absorptions neutroniques qui existent dans ce type de réacteur, dont notamment les captures neutroniques sur l'hydrogène de l'eau. Or, l'uranium est composé à 99,3% d'isotope ^{238}U, à 0.7% d' ^{235}U et de traces d' ^{234}U. Une séparation isotopique de l'uranium va permettre d'*enrichir* l'uranium en isotope ^{235}U. Cet *enrichissement isotopique* se traduit par la création d'une quantité beaucoup plus importante d'uranium *appauvri* en ^{235}U. Afin de bien comptabiliser tout l'uranium utilisé, il faut donc non seulement compter l'uranium qui séjourne en cœur mais aussi l'uranium *appauvri* qui résulte de ce procédé d'enrichissement et dont la teneur en ^{235}U varie de 0,2% à 0,3%. L'énergie produite par tonne d'uranium naturel dépend donc du type de réacteur et de l'enrichissement utilisé. Le tableau 1.3 donne quelques valeurs de taux de combustion et de consommation d'uranium pour des réacteurs *à spectre de neutrons thermiques* existants.

Nous retiendrons l'ordre de grandeur de 30 tonnes d'uranium enrichi et de 200 tonnes d'uranium naturel consommés par an, pour un REP de 1GWe qui fonctionnerait 100% du temps et fissionnerait, au total, 1 tonne d'uranium. Le potentiel énergétique du minerai qui est utilisé ainsi n'est donc que de 1/200 : un premier critère à améliorer est donc clairement l'utilisation de la matière fertile.

Réacteur	REP-900 Bugey	REP-1300 Paluel	CANDU Bruce
Puissance électrique nette (MW)	920	1290	773
Enrichissement à l'équilibre (%)	3.2	3.1	0.7
Masse de combustible (t)	72,4	104	117
Masse d'uranium naturel nécessaire (t)	432	590	117
Taux de combustion (MWj /t U *combustible*)	33800	32200	9000
Taux de combustion (MWj /t U *naturel*)	5660	5670	9000
Consommation d'U Nat par unité d'énergie (t/GWe/an)	194,4	189,2	132,2
Contenu énergétique de l'U Nat en cycle ouvert (tep/t)	10000	10300	14700

TAB. 1.3 – *Caractéristiques de consommation d'uranium à l'équilibre pour quelques réacteurs*[11].

1.2.2 Les ressources en uranium utilisables dépendent du prix d'extraction de l'uranium naturel

Il faut considérer, dans la discussion des ressources en uranium, que des technologies comme la filière des *réacteurs à neutrons rapides* existent déjà. Ces technologies permettraient d'utiliser les stocks d'uranium appauvri, qui sont déjà disponibles, pour produire de l'énergie (en utilisant toutefois le plutonium extrait des réacteurs conventionnels). Il s'en suit alors que le potentiel énergétique des réserves, et donc la durée de vie statique d'exploitation de l'uranium, seraient multipliés par près d'un facteur 100. Cependant ces technologies ne sont pas aujourd'hui compétitives face aux réacteurs actuels : les réacteurs rapides seraient plus coûteux à construire et l'industrie nucléaire, comme toute industrie, a fait le choix économique de continuer à extraire de l'uranium naturel et de ne pas *valoriser*, pour l'instant, les stocks d'uranium appauvri, qui s'accumulent.

Lors de la fabrication du combustible, c'est essentiellement le procédé d'enrichissement qui est le plus coûteux. Si on prend en outre compte de la conversion du minerai d'uranium, sous forme de *yellok cake* (U_3O_8), en héxafluorure d'uranium (apte à la diffusion gazeuse), et le conditionnement final en pastilles de dioxyde d'uranium, le prix du minerai d'uranium ne compte que pour environ 30% du prix du combustible nucléaire.

Le prix de revient total du kWh produit par les technologies actuelles dépend peu du prix du combustible, et *a fortiori* encore moins du prix du minerai d'uranium. Cette sensibilité est fonction de plusieurs paramètres dont le taux de combustion visé, l'enrichissement utilisé, le facteur de charge ou la durée de vie de la centrale. La participation du coût du minerai d'uranium dans le prix de revient du kWh reste donc limitée et atteint, avec les techniques actuelles, quelques

pourcent.

En se faisant plus rare, l'uranium naturel va devenir plus coûteux à extraire et le prix de revient du kWh produit dans les réacteurs nucléaires actuels peut augmenter. Par ailleurs, parce que les filières à neutrons rapides optimisent l'utilisation du minerai, la sensibilité du prix du kWh qu'elles produisent au prix de l'uranium serait, par principe, deux ordres de grandeur plus faible. Il s'en suit qu'avec l'augmentation prévisible du prix d'extraction de l'uranium, il existe un seuil à partir duquel les filières rapides deviendront compétitives ; à ce moment là, il n'y aurait plus d'intérêt à extraire de l'uranium naturel, puisque ces nouvelles filières utiliseraient les stocks d'uranium appauvri.

Ce seuil sur le prix du minerai d'uranium, à partir duquel le kWh produit par des réacteurs rapides devient compétitif face aux réacteurs actuels, est délicat à estimer : il dépend de contraintes macro-économiques et est assujetti à des progrès techniques dans les deux types de technologies. Pour fixer des ordres de grandeur, en prenant un prix du kWh *"rapide"* 40% plus cher que le coût du kWh produit par des REP aujourd'hui, l'ordre de grandeur du prix maximal d'extraction serait d'environ 400$/kgU, en considérant une sensibilité du prix du kWh au prix du minerai d'uranium de 5%, soit une multiplication par environ 8 du coût actuel de l'uranium.

1.3 Le nucléaire en France

1.3.1 Une situation unique au monde

En 30 ans, la part du nucléaire dans la production d'électricité en France est passée de 8% en 1973 à plus de 84% en 2003[2]. Au rythme de 5 à 6 réacteurs REP construits par an de 1974 à 1981, l'équipement nucléaire de la France s'est poursuivi jusqu'en 1987. Le rythme s'est ralenti ensuite, puisque entre 1987 et 1991, seules deux tranches ont été construites. Au total, EDF a démarré, entre 1974 et 1999, 57 REP. Grâce à ceux-ci, la France est aujourd'hui, de loin, le pays où l'énergie nucléaire est la plus répandue et est la deuxième puissance de production d'électricité nucléaire au monde, avec une puissance globale installée de 63 000 MWe et une production annuelle de l'ordre de 420 TWhe, soit un taux d'utilisation de 75% environ.

1.3.2 Le combustible UOX usé

Dans un réacteur de type REP, le combustible séjourne en cœur de 3 à 4 ans environ, suivant le facteur de charge et le taux de combustion visés. Soumis à une irradiation neutronique intense, la nature du combustible va évoluer : les noyaux lourds vont être consommés, donnant naissance à des produits de fission (P.F.) et à des transuraniens, dont le plutonium, et autres

actinides appelés, à cause de leur faible quantité, les actinides *mineurs* (A.M.). Ces A.M. sont principalement constitués des différents isotopes de Np, Am et Cm.

Pendant son séjour en réacteur l'uranium n'est pas entièrement consommé, le combustible usé possède en effet une teneur en isotope ^{235}U voisine de 1%, et donc supérieure à la teneur naturelle. Cependant les produits de fission et les actinides mineurs accumulés qui se comportent comme absorbants neutroniques, rendent inutilisable le combustible usé.

Ainsi, le combustible usé contient des matières valorisables comme l'uranium ou le plutonium, sources fissiles d'énergie. Ils peuvent être séparés afin d'être utilisés à nouveau en réacteur, ce qui est le cas en France. Qu'advient-il des divers constituants du combustible irradié une fois celui-ci déchargé ? Nous le détaillons maintenant.

1.3.3 Le traitement des déchets

Lors du retraitement du combustible les P.F. gazeux sont relâchés dans l'atmosphère (en particulier les gaz inertes comme le krypton). D'autres, comme l'iode ou le tritium sont relâchés en mer, où ils se dissolvent en se mélangeant à leur espèce chimique.

Les autres P.F. et les A.M. (Np, Am et Cm) sont considérés aujourd'hui, sans ambiguïté, comme des déchets nucléaires. Ils sont *vitrifiés*, c'est-à-dire coulés dans des verres très résistants et spécifiquement étudiés pour empêcher d'éventuelles *migrations* de ces noyaux vers l'environnement extérieur au verre. Cette *vitrification* constitue aujourd'hui un conditionnement considéré comme définitif. Ces *verres chauds* sont donc destinés *in fine* au stockage en couche géologique profonde, où les probabilités d'un éventuel retour de ces déchets vers l'environnement sont extrêmement faibles. Il semble aujourd'hui très difficile d'envisager la reprise de ces verres pour en extraire les noyaux qui pourraient être transmutés (c'est-à-dire transformés en noyaux stables ou à vie courte) dans les réacteurs du futur. Le cas, particulier à la France, du plutonium qui est séparé pour être réutilisé, est détaillé par la suite.

1.3.4 La gestion du plutonium en France

Le parc français de réacteurs nucléaires à eau légère produit environ 10 tonnes de plutonium par an. Ce plutonium est contenu dans les combustibles UOX irradiés. La France a décidé dans les années 1970 de préparer une transition de sa politique nucléaire vers des réacteurs surgénérateurs en cycle uranium (dont les prototypes sont Rapsodie, Phénix ou Superphénix), afin de mieux utiliser le minerai uranium (cf 1.2.1). Il a donc été décidé de retraiter les combustibles UOX usés afin d'en extraire le plutonium nécessaire au combustible des réacteurs surgénérateurs. Comme on le sait, la décision politique de mettre fin aux programmes des réacteurs surgénérateurs de la France a laissé derrière elle une infrastructure prête au retraitement des combustibles UOX (La

Hague) et à la fabrication des combustibles à base de plutonium (Marcoule). Afin de valoriser cette infrastructure, le programme MOX de recyclage du plutonium en REP a été lancé.

1.3.4.1 L'utilisation de combustibles MOX à base de plutonium

Aujourd'hui, le plutonium issu de la plupart des combustibles UOX usés (environ 80%) est incorporé dans le combustible à oxyde mixte uranium-plutonium (MOX), et recyclé dans 20 REP-900, qui contiennent alors l'équivalent d'environ 3 années de production française de plutonium. Le combustible MOX est un oxyde mixte uranium-plutonium dont la teneur en plutonium est d'environ 7%, et qui utilise de l'uranium appauvri. L'utilisation du MOX contribue ainsi à fournir 8% de la puissance électrique nucléaire française et permet d'économiser à peu près le même pourcentage d'uranium naturel. Son impact reste donc limité sur l'économie d'uranium. S'il permet toutefois une diminution considérable du volume des déchets de haute activité destinés à la vitrification, il faut garder à l'esprit que les combustibles MOX irradiés sont considérablement plus radioactifs que les UOX usés, ce qui rend leur entreposage plus délicat.

Aujourd'hui les REP qui utilisent le MOX sont, typiquement, chargés avec ce type de combustible au tiers de leur capacité. Ceci représente un inventaire initial d'environ 2 tonnes de plutonium. La production annuelle totale de plutonium civil en réacteur électrogène peut donc être en principe *"résorbée"* dans le parc de réacteurs qui utilisent le programme MOX. La combustion du plutonium en MOX n'est cependant pas totale : seul 40% de l'élément plutonium est consommé, en laissant une teneur d'environ 4% en plutonium dans les combustibles MOX irradiés.

Actuellement, le combustible MOX irradié n'est pas retraité. Après leur séjour en réacteur, les assemblages MOX sont entreposés en piscine de refroidissement, en attente d'une décision concernant leur sort. Si le programme MOX continue à irradier le plutonium issu des UOX, à l'horizon 2020, date à laquelle le parc actuel de réacteurs français commencera à décroître, la quasi totalité du plutonium civil français sera alors contenu dans les combustibles MOX irradiés. Ceci représenterait un inventaire total d'entre 300 et 400 tonnes de plutonium de deuxième génération (après un premier passage en MOX).

Nous rappelons à présent quelques éléments de base de la physique des réacteurs nucléaires afin de mieux comprendre cette problématique.

1.4 Principes de fonctionnement d'un réacteur nucléaire ([13], [16], [17])

Dans un réacteur nucléaire, de l'énergie est libérée par les fissions des noyaux lourds présents dans le combustible. La chaleur qu'on récupère vient essentiellement du ralentissement des

produits de fission, rendus mobiles par la réaction de fission, dans le matériau combustible. Un noyau lourd peut effectivement fissionner après un apport extérieur de l'énergie nécessaire pour scinder le noyau en deux. Dans un réacteur, cet apport d'énergie au noyau est obtenu par l'absorption d'un neutron. Le noyau composé est ainsi formé dans un état excité, et cette énergie d'excitation peut être suffisante pour franchir la *barrière de fission* du noyau composé. La réaction de fission génère alors en sortie deux *fragments de fission*, d'autres neutrons libres (2 à 3 par fission), nécessaires à la réaction en chaîne, et de l'énergie. A l'origine de cette énergie libérée est le défaut de masse, ou énergie de liaison, qui est plus important pour les fragments de fissions, approximativement de moitié plus légers que le noyau qui fissionne (figure 1.5).

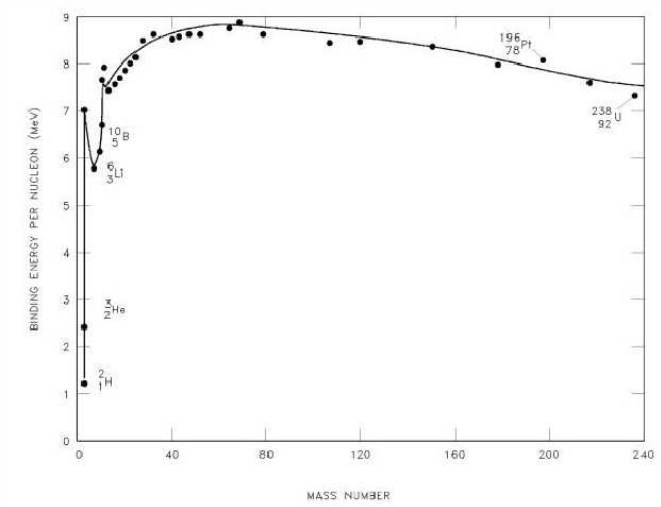


FIG. 1.5 – *Energie de liaison par nucléon dans un noyau de masse A [14].*

Pour fixer les idées, posons que l'énergie de liaison est d'environ 8,3 MeV/nucléon pour un nombre de masse voisin de 140 alors qu'elle est voisine de 7,5 pour un nombre de masse 235. En se *cassant* en deux morceaux symétriques le noyau de masse 235 libérerait alors 0,8 MeV/nucléon, soit 188 MeV. En réalité la fission est un processus asymétrique et la distribution en masse des produits de fission de la fission *thermique* de l'^{235}U présente deux *bosses* autour des nombres de masse 90 et 140 (figure 1.6). On retiendra cependant une énergie thermique récupérable d'environ 200 MeV par fission.

La fission libère des neutrons qui, à leur tour, peuvent provoquer d'autres fissions sur d'autres noyaux du combustible. On retrouve ainsi le principe de la *réaction en chaîne*. Cette réaction en chaîne doit être maintenue en veillant à l'équilibre neutronique du réacteur. Afin de privilégier les réactions de fission, génératrices d'énergie et de neutrons, sur les autres sorts que peut connaître un neutron dans un réacteur (principalement la capture radiative sur le combustible,

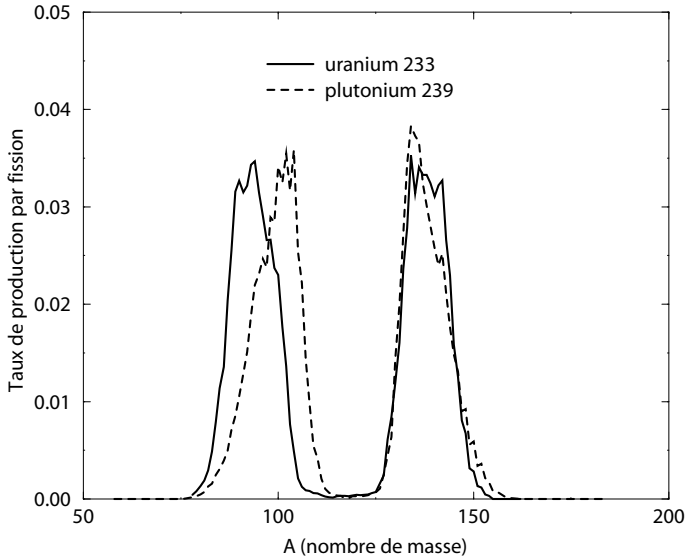


FIG. 1.6 – *Répartition en masse des produits de fission pour la fission thermique de l'uranium.*

les absorptions stériles dans les structures ou les pertes par fuites), dans un réacteur *à spectre de neutrons thermiques*, le principe est de ralentir les neutrons émis par fission (avec une distribution Maxwellienne centrée autour de 2 MeV) jusqu'à des énergies *thermiques* (en dessous de l'électron-volt), auxquelles la fission de noyau ^{235}U se voit favorisée par rapport à la capture de l'^{238}U.

Le ralentissement des neutrons se fait par chocs successifs sur un matériau léger appelé *modérateur*. Dans un REP, l'eau du circuit primaire joue le rôle de modérateur des neutrons. La teneur en ^{235}U de l'uranium naturel n'est toutefois pas suffisante pour que celui-ci soit utilisé tel quel dans des réacteurs à eau légère : la modération des neutrons par l'hydrogène de l'eau s'accompagne d'absorptions de neutrons sur celui-ci qui rendent le bilan neutronique défavorable à la *criticité*[4] du réacteur. Pour être *critique*, un réacteur à eau légère doit donc utiliser de l'uranium *enrichi*.

1.5 Les deux cycles du combustible

Par *cycle du combustible*[5] on sous-entend ici la chaîne de réactions de capture neutronique et de décroissances β^- qui mènent à la création, sous irradiation en réacteur, d'un noyau *fissile*

[4]Le terme criticité traduit le maintien dans le temps de la réaction en chaîne sans divergence de celle-ci.

[5]L'acception peut aussi sous-entendre l'ensemble des opérations industrielles autour du combustible, de l'extraction du minerai à la mine, à la gestion des déchets.

à partir d'un noyau majoritairement présent, qui est, à ce moment, considéré comme le noyau *fertile* du cycle. Au total, on ne compte que quatre noyaux *fissiles*[6]. Ceux-ci sont :

- ^{233}U, $(T_{1/2} \simeq 160 \times 10^3 ans)$
- ^{235}U, $(T_{1/2} \simeq 700 \times 10^6 ans)$
- ^{239}Pu, $(T_{1/2} \simeq 24 \times 10^3 ans)$
- ^{241}Pu. $(T_{1/2} \simeq 14.35 ans)$

Les deux cycles du combustible qu'on peut alors identifier sont celui de l'uranium et du thorium :

Cycle de l'Uranium

$$^{238}\mathrm{U} + \mathrm{n} \Longrightarrow {}^{239}\mathrm{U} \overset{\beta^-(23{,}5min)}{\Longrightarrow} {}^{239}\mathrm{Np} \overset{\beta^-(2{,}3j)}{\Longrightarrow} {}^{239}\mathrm{Pu}$$

Cycle du Thorium

$$^{232}\mathrm{Th} + \mathrm{n} \Longrightarrow {}^{233}\mathrm{Th} \overset{\beta^-(22{,}3min)}{\Longrightarrow} {}^{233}\mathrm{Pa} \overset{\beta^-(27j)}{\Longrightarrow} {}^{233}\mathrm{U}$$

Les deux noyaux fertiles du cycle uranium et thorium sont respectivement l'^{238}U et l'^{232}Th, majoritairement présents dans le minerai correspondant. Les noyaux dits *noyaux fissiles du cycle*, sont alors le ^{239}Pu , pour le cycle uranium, et l'^{233}U pour le cycle thorium. Si l'industrie nucléaire a commencé par exploiter le combustible à base d'uranium c'est parce qu'il ne pouvait pas en être autrement : l'^{235}U est le seul noyau fissile présent naturellement sur terre. Le cycle de l'uranium a ainsi pu être démarré en utilisant les fissions de l'^{235}U et a permis le début de l'industrie nucléaire : aujourd'hui tous les réacteurs électrogènes existants l'utilisent. Le cycle du thorium ne pouvait, aux débuts de l'ère nucléaire, en aucun cas être démarré sans disposer au préalable d'un noyau fissile, et une industrie basé sur un combustible à base de thorium *et* d'uranium 235 séparé allait contre tout bon sens pratique et économique.

1.6 La régénération de la matière fissile en réacteur

Un critère essentiel à la durabilité de l'énergie nucléaire est la *régénération* (ou isogénération, ou *surgénération* au cas où l'on crée plus de matière fissile qu'on n'en consomme) de la matière fissile consommée par des créations de nouveaux noyaux fissiles. Le principe de la régénération revient à considérer la matière fertile comme source indirecte d'énergie de fission, puisque un noyau

[6]Le terme *fissile* est réservé d'usage aux noyaux pouvant fissionner sous l'impact d'un neutron lent.

fertile peut, par définition, créer un nouveau noyau fissile après capture radiative et décroissance des produits intermédiaires. Cela prend tout son intérêt lorsqu'on considère les proportions dans lesquelles la matière fertile existe dans la nature : environ 100 fois plus de ^{238}U, ou 300 fois plus de ^{232}Th, que d'^{235}U.

Dans le cas du cycle du thorium, la période radioactive non négligeable (27 jours) du noyau intermédiaire ^{233}Pa rend les captures neutroniques plus significatives sur celui-ci, en réduisant le nombre de noyaux de ^{233}Pa qui peuvent en effet décroître vers l'^{233}U.

1.6.1 La régénération dépend fortement du spectre en énergie des neutrons

Pour que la condition de régénération soit satisfaite, il faut à la fois entretenir la réaction en chaîne du réacteur et faire au moins autant de captures sur le noyau fertile que de noyaux fissiles ont disparu. En raisonnant sur un modèle très simplifié à deux noyaux, le noyau fissile et le noyau fertile du cycle, on peut déterminer si la régénération est en principe possible ou non en comparant le nombre de neutrons produits et consommés. Effectuons le bilan de neutrons pour une fission :

- Une fission produit ν neutrons. Elle en consomme 1.
- Par fission il y a en moyenne α captures neutroniques sur le noyau fissile (avec $\alpha = \frac{\sigma_c}{\sigma_f}$ du noyau fissile, où σ_c et σ_f sont les sections efficaces de capture et de fission).

Pour chaque fission, $(1+\alpha)$ noyaux fissiles ont donc été consommés, et doivent être régénérés par $(1+\alpha)$ captures sur le noyau fertile. On a donc consommé *au minimum*, et sans compter les inévitables pertes et captures parasites, au total $2(1+\alpha)$ neutrons. Il faut donc avoir un *nombre minimum de neutrons disponibles*, N_d, pour réaliser ce taux minimum de capture sur le noyau fertile du cycle. Dans tous les cas, N_d doit être supérieur à 0 pour que l'isogénération soit possible. La condition de régénération, nécessaire, s'écrit donc :

$$N_d = \nu - 2(1+\alpha) > 0 \tag{1.1}$$

Il est intéressant de noter que la condition 1.1 ne dépend que des propriétés du noyau *fissile* et de ν. La figure 1.7 illustre cette quantité pour les deux noyaux fissiles des cycles uranium et thorium, ^{239}Pu et ^{233}U, en fonction de l'énergie du neutron. La figure 1.8 permet de comparer l'allure de $\eta(E)$, où $\eta = \nu \times \frac{\sigma_f}{\sigma_f+\sigma_c}$, pour les noyaux fissiles ^{233}U, ^{235}U et ^{239}Pu.

On voit clairement que, aux énergies thermiques (en dessous de 1eV), le cycle thorium présente intrinsèquement une quantité de neutrons disponibles qui reste positive, alors que cette quantité devient négative pour le cycle uranium. *La régénération de la matière fissile en cycle uranium n'est donc possible qu'en spectre rapide.* Elle est en principe possible en spectre thermique ou rapide pour le cycle thorium. Il faut ici bien noter que la condition 1.1 est une condition nécessaire mais

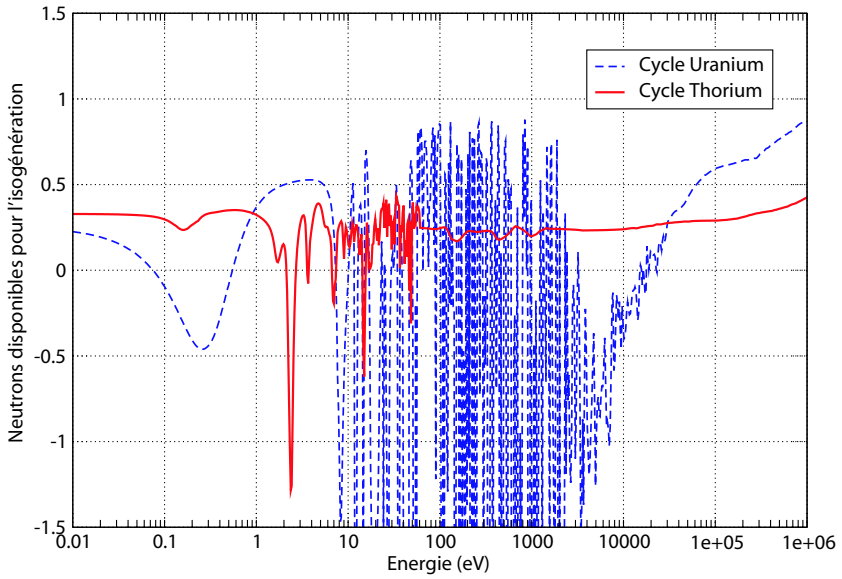


FIG. 1.7 – *Variation de la quantité* $N_d(E) = \nu - 2(1 + \alpha(E))$, *nombre minimum de neutrons disponibles sans pertes de neutron ni captures parasites, avec l'énergie du neutron*

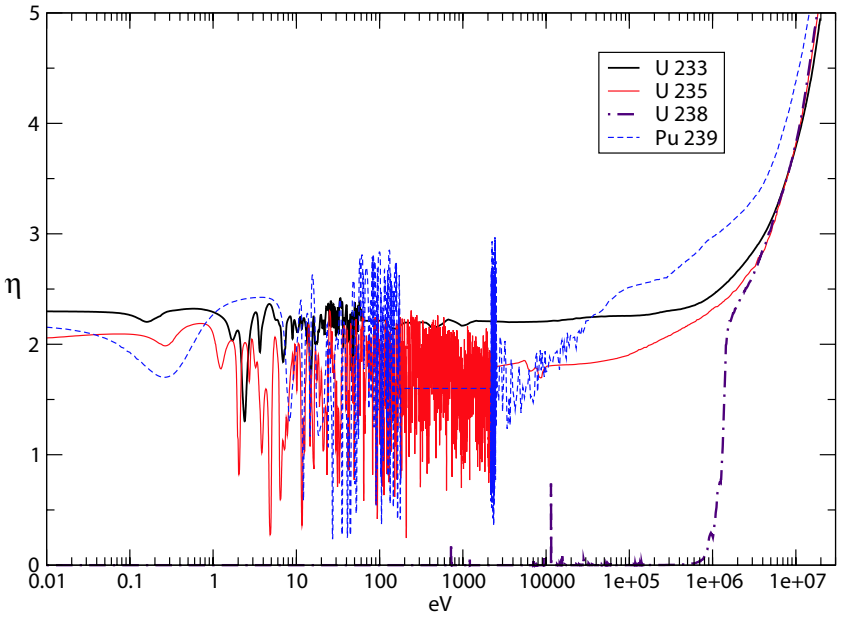


FIG. 1.8 – *Variation avec l'énergie du neutron du facteur* η. *La région des résonances du* ^{239}Pu *est supprimée pour la visibilité de la figure.*

non suffisante à la régénération, car elle ne tient pas compte des pertes neutroniques et captures

parasites qui, dépendent, elles, du type et de la gestion du réacteur qu'on considère.

Notons également qu'aux énergies rapides (au delà de 100 keV), N_d pour le cycle thorium est inférieur à la valeur de N_d du cycle uranium (environ 0,3 et 0,6 respectivement). En spectre rapide, le cycle U-Pu sera plus favorable à la surgénération.

1.6.2 Isogénération et concentration initiale théorique de fissile nécessaire

Considérons maintenant la relation qui existe entre les quantités initiales de noyaux fertiles, N_{fert}, et de noyau fissile, N_{fiss}, lorsque l'isogénération est assurée (et dans ce cas la quantité N_{fiss} reste constante). En écrivant l'égalité des taux de réactions :

$$N_{fert}\sigma_c^{fert}\phi = N_{fiss}(\sigma_c^{fiss} + \sigma_f^{fiss})\phi \tag{1.2}$$

d'où :

$$\frac{N_{fiss}}{N_{fert}} = \frac{\sigma_c^{fert}}{(\sigma_f^{fiss} + \sigma_c^{fiss})} \tag{1.3}$$

Cette relation établit donc une proportion N_{fiss}/N_{fert} initiale donnée qui ne dépend que des sections efficaces moyennes de capture et de fission des noyaux fissile et fertile du cycle. On peut alors écrire que *la concentration théorique en noyaux fissiles* notée $\tilde{C}_f$, lorsque les conditions d'isogénération sont remplies, est donnée par :

$$\tilde{C}_f = \frac{N_{fiss}}{N_{fert} + N_{fiss}} = \frac{\sigma_c^{fert}}{(\sigma_c^{fert} + \sigma_f^{fiss} + \sigma_c^{fiss})} \tag{1.4}$$

La figure 1.9 donne, pour les deux cycles uranium et thorium, l'allure de cette quantité $\tilde{C}_f$ en fonction de l'énergie de neutrons. Remarquons que sur cette figure la partie thermique de la courbe correspondante au cycle uranium est représentée en pointillés car nous avons vu que dans ce domaine d'énergie, le cycle uranium ne satisfait pas la condition 1.1 nécessaire à l'isogénération ($N_d > 0$).

L'évolution avec l'énergie de la quantité $\tilde{C}_f$, qui est proportionnelle à la quantité initiale de noyaux fissiles du cycle, permet ainsi de comprendre pourquoi le cycle Th-U permet à des réacteurs surgénérateurs qui l'utiliseraient en spectre thermique, d'avoir des inventaires de matière fissile intrinsèquement plus faibles que ceux d'un réacteur surgénérateur rapide.

Ceci est une conséquence naturelle de la *"qualité"* neutronique du noyau fissile du cycle thorium : l'^{233}U a la plus faible valeur du facteur α et le meilleur rapport η de neutrons produits par absorption pour les neutrons lents ou épithermiques.

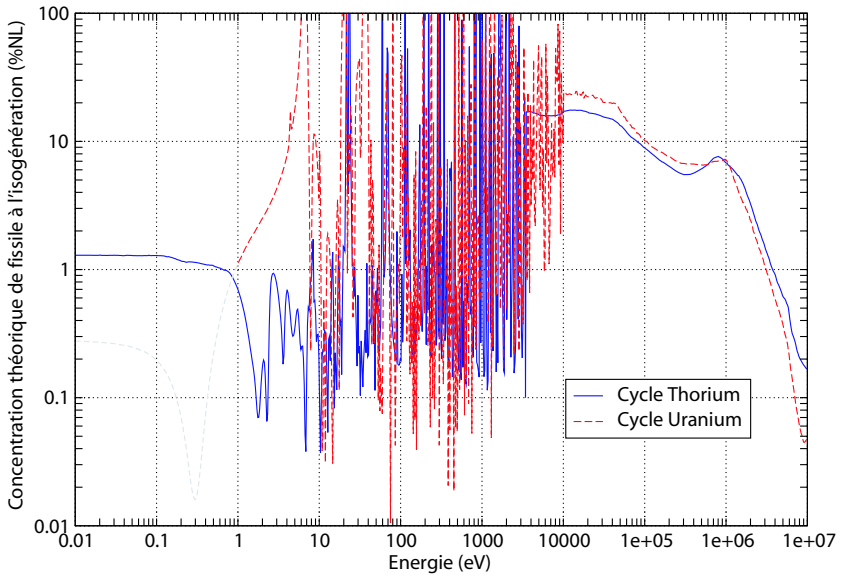


FIG. 1.9 – *Variation de la quantité $\tilde{C}_f$, concentration théorique en noyaux fissiles du combustible, lorsque les conditions d'isogénération sont remplies : seul le cycle du thorium permet cette condition aux énergies thermiques. A ces énergies de neutrons lents, le cycle thorium permet des valeurs de $\tilde{C}_f$ nettement plus faibles que celles attendues pour les deux cycles en spectre rapide (>100 keV).*

Ces calculs simplifiés ne prennent pas en compte tous les noyaux du cycle ni les captures parasites, notamment celles des noyaux intermédiaires du cycle. Ils permettent néanmoins déjà d'entrevoir quelques caractéristiques simples et physiques des cycles uranium et thorium.

1.7 Généralités du cycle thorium : avantages et inconvénients

1.7.1 Bref historique des réalisations expérimentales utilisant le thorium

Les propriétés neutroniques du cycle thorium que nous venons de détailler sont connues depuis longtemps et, en conséquence, la communauté scientifique a toujours porté un intérêt légitime sur les combustibles à base de thorium, ceci depuis les débuts des filières à base d'uranium. A cause de ces qualités neutroniques en spectre de neutrons thermiques, la recherche sur le thorium comme combustible nucléaire s'est historiquement portée sur les applications du thorium en réacteurs à neutrons lents et a même été réalisée pour certaines filières. Plusieurs réacteurs de puissance (de l'ordre de la centaine de MWth) ont effectivement fonctionné dans les années 1960 et 1970 avec divers types de combustibles à base de thorium-uranium. Parmi ceux-ci on peut citer :

- La réalisation du coeur LWBR de Shippingport qui a démontré que l'isogénération était possible en combustible solide Th/^{233}U. Nous détaillerons cette expérience plus loin.
- Le Molten Salt Breeder Reactor Experiment (MSRE) à Oakridge utilisait des sels fluorures.
- Le réacteur à haute température à caloporteur helium de Fort St. Vrain d'une puissance d'environ 850 MWth, utilisait un combustible carbure thorium/uranium hautement enrichi (UHE).
- L'expérience pilote de réacteur à haute température modéré au graphite de Peach Bottom d'une puissance d'environ 100 MWth, utilisant du combustible thorium/UHE.
- Le réacteur d'Indian Point 1, réacteur à eau légère (300 MWe) fonctionna au thorium/UHE dans les années 1970.

1.7.2 Le projet régénérateur de Shippingport ([18], [19])

Le réacteur à eau sous pression de Shippingport fut le premier réacteur nucléaire dédié à la production d'électricité connecté au réseau. En tant que tel, il consolida les bases en termes d'opération des futures centrales commerciales à eau pressurisée. Plusieurs types d'assemblages combustibles furent testés, et notamment des combustibles à base de thorium pendant la phase LWR du réacteur (cœurs 1 et 2 de Shippingport, de 1957 à 1974). L'élément combustible qui est aujourd'hui utilisé dans les REP, le crayon en zircalloy contenant des pastilles d'oxyde d'uranium enrichi, fut testé et validé a Shippingport.

Pendant la dernière phase d'opération avant son démantèlement, le réacteur fut réadapté pour recevoir du combustible Th/^{233}U afin de démontrer la possibilité d'utiliser un cycle au thorium dans des réacteurs à eau légère : c'était l'objectif du troisième cœur du réacteur qui fonctionna pendant 5 ans (1977-1982) sous le nom de *Light Water Breeder Reactor* (LWBR). Cette expérience démontra, à moyenne échelle (90 MWe), que des taux de conversion voisins de l'unité - et même la surgénération- étaient possibles dans un réacteur thermique sans l'utilisation de combustible liquide, mais nécessitait toutefois une gestion très compliquée du cœur.

Le cœur LWBR contenait 12 assemblages hexagonaux entourés de 15 modules réflecteurs. Chacun des assemblages combustible était composé d'une partie centrale qui était mobile. On appela cette partie centrale la partie *seed* (graine), le reste étant constitué de la partie *blanket* (couverture), partie immobile qui accueillait en son centre la partie *seed*. Les assemblages de type *seed* étaient utilisés alors comme moyen de contrôle de la réactivité, en modifiant la hauteur d'insertion de ceux-ci. L'utilisation de barres de contrôle ou de poisons n'était pas utilisée, afin d'optimiser au maximum l'économie de neutrons en se débarrassant le plus possible des captures parasites qui ne conduisent pas à la création de matière fissile (technique de contrôle de la réactivité dite *non-parasitique*) : l'objectif était en effet de démontrer qu'on pouvait faire autant

d'^{233}U qu'on en consommait.

Les figures 1.10 et 1.11 donnent un aperçu des géométries des assemblages utilisés. Les éléments combustibles dans les assemblages de type *seed* étaient constitués de (Th-^{233}U)O_2 à entre 4% et 5% (en masse) d'^{233}U. Les assemblages de type *blanket* contenaient du ThO_2 plus une faible quantité de UO_2 afin de permettre de tenir le taux de combustion ciblé. Les parties axiales, supérieures et inférieures, de tous les assemblages (*seed* et *blanket*) contenaient du ThO_2 pour minimiser les fuites neutroniques axiales. Enfin, une série d'assemblages *réflecteurs* (ThO_2 également), étaient situés à la périphérie du cœur. A la fin du programme et après analyse des combustibles irradiés, on détermina une surproduction d'environ 1.4% d'^{233}U par rapport au chargement initial. Pendant cette période, le LWBR fonctionna 86% du temps et délivra au total environ 2.1 TWh.

En 1977 (la même année que démarre le programme LWBR à Shippingport), les Etats-Unis sous l'administration Carter adoptent des mesures très décourageantes pour la recherche des réacteurs nucléaires innovants. Ces mesures proclament alors, pour lutter contre la prolifération nucléaire :

- l'ajournement indéfini du retraitement et du recyclage à des fins commerciales du plutonium produit aux USA.
- l'arrêt du programme de développement des surgénérateurs au plutonium et de recherche d'autres filières.
- le développement des capacités de production d'uranium enrichi des Etats-Unis.

Or, dans l'impossibilité de retraiter les combustibles pour en extraire les matériaux fissiles, le cycle du thorium ne peut être amorcé et n'a aucune perspective. Sous cette nouvelle conjoncture, même si ce fut un succès technique, le programme de Shippingport ne connut malheureusement aucune suite.

Plus récemment, en s'inspirant de l'expérience acquise à Shippingport, l'utilisation du concept *seed-blanket* est la politique suivie par les défenseurs du RTPI (Radkowsky Thorium Plutonium Incinerator)[47], qui à l'heure actuelle travaillent au sein d'une collaboration entre l'industriel privé Thorium Power Inc.[64], les laboratoires de recherche russe Kurchatov Institute (KI), et américain Oak Ridge National Laboratory (ORNL). La mise au point d'assemblages de type seed-blanket adaptés à l'usage dans un cœur de fabrication Russe de type VVER-1000 a été réalisée. Le concept RTPI n'est pas régénérateur mais est présenté comme une façon efficace d'incinérer le plutonium militaire en modifiant les réacteurs existants[41]. Le retraitement du combustible n'est pas alors envisagé et l'objectif est de consommer également une grande partie de l'^{233}U produit *in situ* dans les assemblage de type *blanket*, en laissant ceux-ci très longtemps sous irradiation (de 10 à 12 ans).

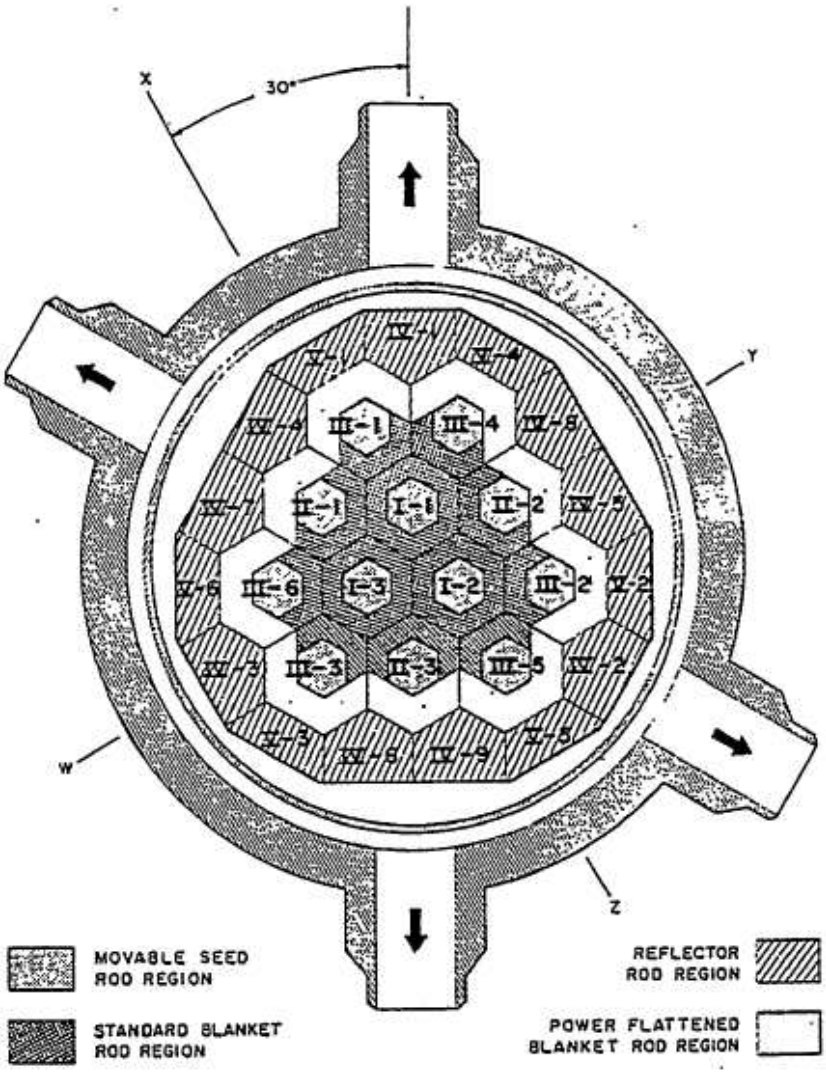
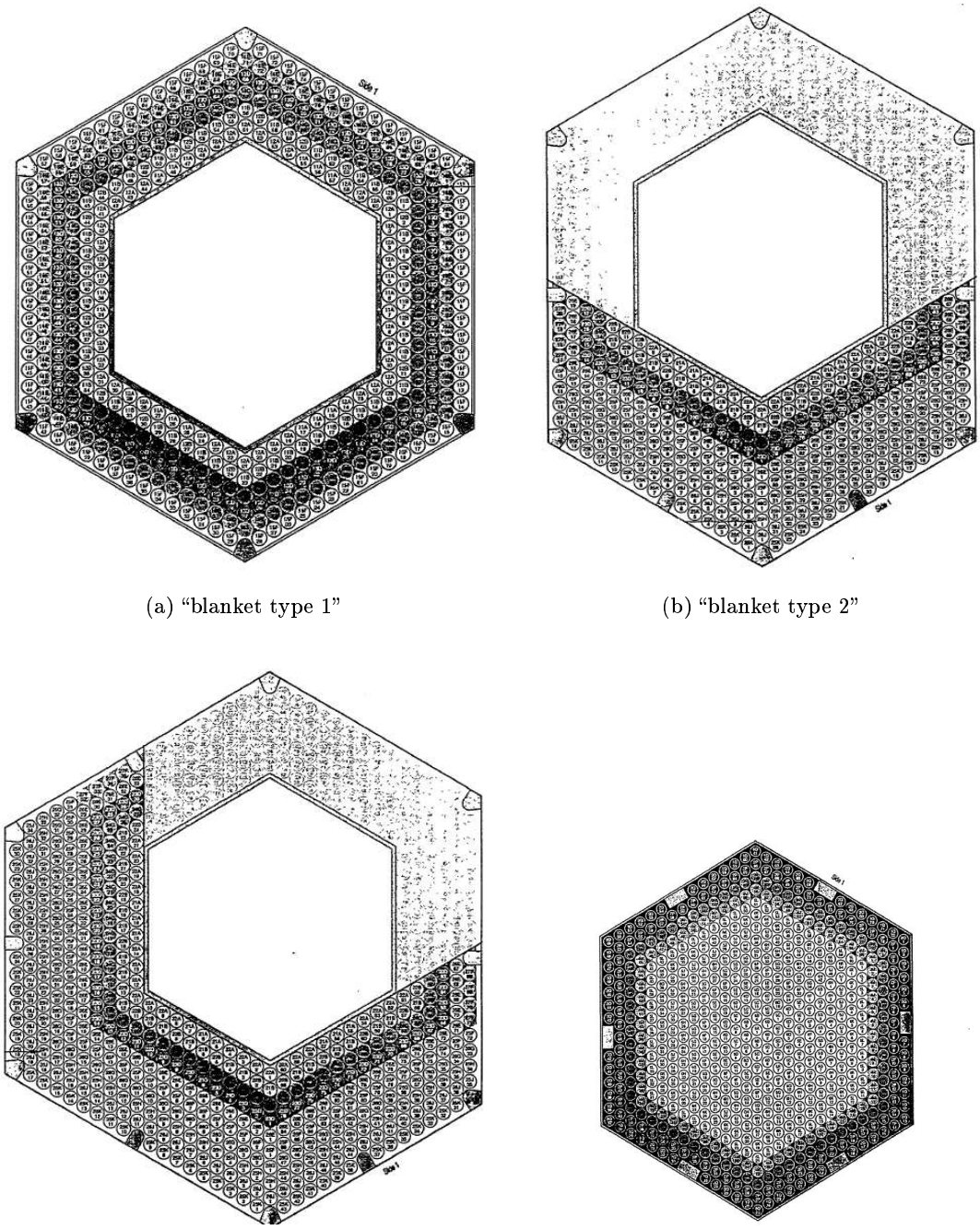


FIG. 1.10 – *Vue transversale du cœur LWBR de Shippingport qui fonctionna de 1977 à 1982.*



(a) “blanket type 1”

(b) “blanket type 2”

(c) “blanket type 3”

(d) “seed”

FIG. 1.11 – *Le concept seed-blanket implémenté au LWBR de Shippingport utilisait plusieurs types d'assemblages contenant différents combustibles : Th-$U_{nat}O_2$ et ThO_2 pour les assemblages de type “blanket”, et un combustible de type $Th^{233}U$ pour les combustibles de type “seed”. L'enrichissement des différents crayons à l'intérieur de chaque assemblage dépendait, en outre, de leur coordonnée radiale et axiale.*

Le projet MSRE ([20])

Le concept RSF trouve son origine dans le programme de recherche militaire pour la propulsion nucléaire des avions, L'*Aircraft Reactor Experiment* des années 1950 aux Etats-Unis. Les résultats prometteurs encouragent la poursuite des recherches sur le concept RSF pour la production civile d'électricité, et l'ORNL met en place un prototype de 8 MWth en 1964, le *Molten Salt Reactor Experiment* (MSRE). Le cœur du MSRE est constitué de graphite dans lequel sont percés des canaux pour la circulation du sel combustible liquide. Le MSRE fonctionne sans incident de 1964 à 1969 avec un facteur de charge d'environ 85%. Le MSRE démontre la tenue de l'Hastelloy-N face aux problèmes de corrosion du sel ainsi que la stabilité des sels fluorures. Le succès du programme prépare la voie pour l'étude d'un vrai réacteur de puissance, le Molten Salt Breeder Reactor (MSBR).

Le concept MSBR ([21])

Le MSBR est un concept proposé et étudié par l'ORNL d'un réacteur surgénérateur à combustible Th/^{233}U d'environ 2500 MWth de puissance, associée à une usine de retraitement chimique *"en ligne"* du combustible. Très sommairement, dans ce concept on retrouve le modérateur graphite percé de canaux où circule le sel combustible, qui est alors le caloporteur du système. Le combustible est un sel de fluorures qui contient environ 10% molaire de (Th+U)F_4. Afin d'assurer l'economie de neutrons et réussir la surgénération, dans ce genre de concept, les P.F. sont extraits, ainsi que le ^{233}Pa, afin de laisser celui-ci décroître vers l'^{233}U hors irradiation, aprés quoi ce dernier est reinjecté dans le circuit combustible. La chaleur à 650°C est ensuite échangée avec un circuit secondaire de sels fondus pour générer de l'électricité avec un rendement d'environ 40% grâce à la haute température en sortie. L'usine de retraitement en ligne doit traiter le volume entier de sel combustible, soit environ 50 m^3, en environ 10 jours. Le système peut ainsi en principe atteindre un taux de conversion de 1.05 environ avec un inventaire nécessaire d'^{233}U de l'ordre d'une tonne et un temps de doublement estimé à 25 ans [22].

Selon que les politiques nucléaires des divers pays aient ou non encouragé historiquement l'intérêt sur le cycle du thorium, les programmes de recherche autour des concepts utilisant ce cycle ont connu des périodes de stagnation voire d'interruption. Dans le cas du MSBR, des raisons politiques ainsi que la concurrence face aux réacteurs rapides surgénérateurs en cycle uranium font que les recherches sont arrêtées en 1976.

Une synthèse historique des efforts de recherche comme des réalisations expérimentales autour du thorium peut être trouvée dans les rapports compilés par MM. Lung[48] ou Gruppelaar[35]. L'Agence Internationale à l'Energie Atomique (IAEA) fait périodiquement, depuis 1994, le point sur la recherche autour du thorium dans le monde [25].

La recherche sur le thorium a, depuis les années 1980, principalement été restreinte à des cercles académiques. Elle renaît depuis quelques années en présentant le cycle du thorium (Th/^{233}U) comme un candidat de combustible nucléaire durable, antiproliférant et dont les déchets sont moins radioactifs. Nous faisons maintenant un point sur les avantages et les inconvénients liés à l'usage du thorium en réacteur nucléaire.

1.7.3 Avantages des combustibles au thorium

Le thorium comme combustible plus *"propre"*

Le thorium est plus léger que l' ^{238}U, et l'^{233}U a une très faible section efficace de capture. Ceci a d'importantes conséquences sur la radiotoxicité des combustibles irradiés utilisant le cycle du thorium, elle serait à long terme intrinsèquement plus faible que celle d'un UOX, du fait que l'excursion en masse des noyaux produits par irradiation est nettement réduite et conduit donc à une plus faible création d'actinides comme le Np, Pu, Am ou Cm.

Le thorium comme moyen d'incinérer le plutonium

Les stocks existants de plutonium, civil comme militaire, représentent aujourd'hui une matière valorisable par son contenu énergétique, mais présentent un risque évident comme matière proliférante et à haute radiotoxicité. L'argument qui consiste à présenter le plutonium comme une matière à risque qui doit être éliminée d'une façon sûre (et non pas stockée uniquement) est certainement valable, mais il faut noter que la façon sûre d'éliminer le plutonium n'est autre que de le consommer dans un réacteur nucléaire. Les combustibles ThPu permettent de consommer le plutonium sans le régénérer par capture radiative sur l'^{238}U et sont donc globalement plus efficaces que ceux contenant de l'uranium.

Le thorium comme combustible plus apte à des haut taux de combustion

D'un point de vue neutronique, la création d'^{233}U dans les combustibles au thorium et sa consommation en cœur permettraient d'atteindre des taux de combustion élevés avec un plus faible enrichissement que par rapport à un combustible uranium-plutonium. Dans les combustibles à l'uranium, l'isotope fissile ^{239}Pu est créé mais s'accompagne d'une production importante d'isotopes supérieurs *pairs en neutrons*, dont notamment le ^{240}Pu, qui est un fort absorbant neutronique. L'accumulation des produits de fission gazeux à l'intérieur du crayon combustible pose une limite sur le taux de combustion à ne pas dépasser afin de garder toujours une pression intérieure du crayon inférieure à la pression du circuit primaire : cette accumulation serait moindre dans le cycle thorium[40].

Par ailleurs le dioxyde de thorium présente une plus grande stabilité chimique du fait que ThO_2 est la forme la plus oxydée du thorium, alors que l'uranium dans la forme UO_2 n'a pas atteint son degré d'oxydation maximal (qui est U_3O_8). Ceci est un point qui joue en faveur du thorium comme matrice contenant le combustible irradié dans une stratégie de stockage après passage en réacteur sans retraitement.

Les réserves de thorium

L'importance des réserves de thorium, qui serait 3 à 4 fois plus abondant que l'uranium dans la croûte terrestre, est souvent citée comme un avantage important du thorium par rapport à l'uranium. Cette abondance est une conséquence directe de la plus grande période de ^{232}Th (environ 14 milliards d'années) face à celle de l'^{238}U (environ 4,5 milliards d'années), mais il faut noter que les réserves de thorium sont moins bien connues du fait du peu de prospection que le minerai de thorium a connu historiquement.

Or, si le fait que les réserves existantes de thorium doivent être effectivement suffisamment importantes pour songer à construire une industrie autour de ce minerai, le fait qu'elles soient plus abondantes que les réserves d'uranium n'est pas, à nos yeux, très pertinent à court ou moyen terme, puisque le recours à la surgénération offrirait des perspectives d'utilisation, de l'uranium comme du thorium, qui restent équivalentes à l'échelle humaine. L'importance des réserves de thorium ne représenterait un réel avantage par rapport à l'uranium que dans le très long terme, bien au delà des horizons qui sont aujourd'hui prévisibles. Cependant, dans un contexte d'indépendance nationale, l'importance des réserves de thorium par rapport à celles d'uranium d'un pays peut effectivement être un argument de poids comme l'illustre le cas de l'Inde, qui mène un programme de recherche et de développement important autour du thorium.

1.7.4 Inconvénients des combustibles au thorium

Les désavantages, quant à eux, se concentrent non pas dans la partie neutronique du couple Th/^{233}U, mais dans les difficultés qu'on peut rencontrer à l'amont et à l'aval du cycle. On peut notamment mentionner :

- La nécessité de disposer d'un inventaire fissile au préalable (plutonium, ^{235}U ou ^{233}U) pour utiliser un combustible à base de thorium.
- La production d'^{233}U s'accompagnera inévitablement de celle de traces d'^{232}U, produit selon deux voies principales :
  - par décroissance du ^{232}Pa, lui-même produit par réaction de capture neutronique sur ^{231}Pa, provenant du ^{231}Th créé par réaction (n,2n) sur ^{232}Th.
  - par reaction (n,2n) sur ^{233}U.

Or, les désintégrations α successives de l'^{232}U (de période 68,9 ans) aboutissent à la création d'émetteurs gamma de haute énergie (notamment le ^{212}Bi et le ^{208}Tl). La fabrication de combustible à base d'^{233}U serait donc délicate, à cause de la nocivité radiologique de l'^{232}U. Ceci présuppose l'existence d'une infrastructure industrielle appropriée à la manipulation de ce combustible, qui devra être effectuée à distance, derrière des blindages et de manière robotisée.

- Le passage au cycle thorium nécessitera, bien entendu, de développer l'industrie minière autour de ce minerai, point sur lequel l'uranium a aujourd'hui un clair avantage.

Remarquons que certains auteurs font de la contamination de l'^{233}U par l'^{232}U un argument toutefois favorable à l'anti-prolifération de tout combustible à base d'^{233}U. Hors de tout débat concernant la prolifération de l'^{233}U, cette contamination par l'^{232}U rendra le retraitement des combustibles irradiés beaucoup plus coûteux et ceci est certainement un handicap.

1.8 Conclusion

Nous venons d'établir la nécessité d'une meilleure utilisation de la matière fertile en évoquant le problème des réserves et d'illustrer le concept de la surgénération. Nous avons également remarqué qu'en spectre thermique, seul le cycle thorium possède un bilan neutronique suffisant pour permettre cette surgénération, qui est particulièrement intéressante, car elle permet des inventaires faibles de matière fissile à l'équilibre pour des réacteurs isogénérateurs en cycle Th/^{233}U, et donc, dans un scénario de déploiement où l'^{233}U est produit en amont, des temps de doublement plus brefs, aptes à mieux répondre à une augmentation rapide de la demande en énergie nucléaire.

L'irradiation d'un combustible à base de MOX-ThPu permet de créer le noyau fissile ^{233}U en quantités importantes. Dans le contexte français et à court terme, si le thorium a une chance d'être introduit, c'est par l'intermédiaire d'une utilisation sans modification majeure des réacteurs à eau sous pression. Ces réacteurs existent déjà et le parc existant sera probablement renouvellé. La voie suivie dans cette thèse est de valoriser les potentialités qu'ont les réacteurs d'aujourd'hui en tant qu'intermédiaires d'une transition vers des réacteurs isogénérateurs Th/^{233}U en étudiant l'évolution du combustible MOX-ThPu dans une géométrie de REP conventionnel.

Par ailleurs, parmi les pays qui utilisent le nucléaire civil, la France possède un atout majeur qui la différencie des autres : elle possède l'infrastructure industrielle de retraitement du plutonium, et la culture technique associée. Dès aujourd'hui, la France dispose déjà des conditions nécessaires (stocks de plutonium séparé, stocks de thorium, infrastructures de fabrication) qui lui permettraient de fabriquer industriellement des combustibles de type oxyde mixte $ThPuO_2$.

Par la suite, on désignera ce type de combustible, indistinctement, comme MOX *thoriés* ou MOX-ThPu.

Si par ailleurs, la volonté était d'incinérer le mieux possible le plutonium (ce qui reviendrait à rendre plus compliquée une éventuelle transition vers les surgénérateurs rapides type RNR), l'incinération du plutonium dans des matrices contenant de l'uranium manque d'efficacité car les isotopes du plutonium sont créés à partir des captures radiatives sur l'^{238}U, essentiellement. Le combustible MOX-ThPu permettrait d'incinérer plus efficacement le plutonium, à cause de l'absence de quantités significatives d'^{238}U dans le combustible qui rendent l'excursion en masse, à partir de captures radiatives successives jusqu'aux isotopes du plutonium, plus difficile.

Chapitre 2

Le Code d'évolution MURE

La participation à l'écriture du code MURE [49] (*MCNP Utility for Reactor évolution*) a constitué une part essentielle de ce travail de thèse. MURE est aujourd'hui une interface complète avec le code de transport Monte Carlo MCNP créée spécialement pour calculer l'évolution de tout système nucléaire par irradiation de neutron et qui implémente la génération et la gestion automatique de géométries complexes adaptées à ce code de transport.

Ecrit entièrement en langage C++ et suivant les principes de la programmation orientée objet, MURE est un code d'évolution en constante amélioration : il représente un vaste effort de programmation, regroupant plus de quarante *classes* d'objets et a, aujourd'hui, plus de 30 000 lignes de code.

Plus particulièrement, nous avons entrepris durant cette thèse le développement de la partie gérant l'évolution du système et le contrôle "en ligne" de cette évolution. Ceci sera, bien entendu, détaillé par la suite. Quelles étaient alors, et sont aujourd'hui encore, les motivations pour se lancer dans un vaste chantier de développement d'un nouveau code d'évolution ? Les diverses fonctionnalités de MURE constitueront sans doute un élément de réponse valable. Notons cependant qu'en créant notre propre outil de travail, aujourd'hui disponible pour tous, nous étions sûrs de contrôler cet outil, d'avoir toute la connaissance de ce que l'on fait et de ce que l'on ne fait pas dans nos simulations, de la gestion des bases de données aux méthodes intervenant dans le calcul et le contrôle de l'évolution.

Soulignons d'emblée que tout calcul MCNP peut être programmé par MURE, indépendamment de tout calcul d'évolution. Bien que contenant plusieurs méthodes spécifiquement conçues pour être appliquées à la simulation de réacteurs, MURE peut être utilisé également pour simuler d'autres types d'expériences physiques nécessitant des simulations Monte Carlo sans obligatoirement calculer l'évolution. Il est aujourd'hui utilisé dans ce sens par EDF R&D et les laboratoires du LPSC Grenoble, Subatech Nantes ou le CENBG à Bordeaux, entre autres.

2.1 Au cœur de MURE : MCNP

Le code MCNP [1] (*Monte Carlo N Particles*) représente aujourd'hui l'état de l'art en matière de transport probabiliste de particules. Développé au Laboratoire National de Los Alamos (LANL), c'est ce code, validé et reconnu, qui est utilisé au cœur de MURE pour simuler le transport des neutrons.

MCNP effectue le transport *statique* de particules dans toute configuration tridimensionnelle de matériaux et permet en conséquence de traiter des géométries exactes. Par *statique* on sous-entend que MCNP ne traite pas l'évolution du matériau dont il simule l'irradiation. Nous soulignons ceci car cela est souvent source de confusion parmi les utilisateurs qui ont peu d'expérience avec ce code : on peut très bien, avec MCNP, simuler l'irradiation par neutrons d'un matériau fissile et demander au code de calculer le taux de fission, par exemple. MCNP ne traite pourtant pas la consommation du matériau fissile ou l'apparition de produits de fission suite à l'irradiation simulée. Si le transport de neutrons effectué par MCNP considère bien la *dynamique* du transport du neutron, en propageant celui-ci dans la géométrie, le code est bien *statique* car la composition des matériaux irradiés reste toujours celle définie initialement par l'utilisateur.

Un autre point important à souligner dès le début est que dans MCNP, tout résultat du calcul doit être demandé par l'utilisateur. Ceci va donc augmenter la demande en temps de calcul nécessaire en plus du temps requis pour simuler le transport des particules. [1]

MCNP effectue le transport des particules à énergie continue (jusqu'à 20 MeV pour les neutrons). Aujourd'hui existe une version à haute énergie, MCNPX, qui repousse cette limite supérieure en énergie pour les neutrons, en utilisant divers modèles physiques pour décrire les interactions à partir d'un seuil en énergie qui varie selon la particule considérée. MCNP peut propager des neutrons, photons ou électrons. MURE a été testé pour les version 4C et 4B de MCNP et est facilement adaptable à d'autres versions de MCNP . Dans cette étude nous avons utilisé la version MCNP4C2. Succinctement et à titre de rappel, nous donnons ici les principes généraux des simulations par les méthodes de Monte Carlo.

2.1.1 Le principe des calculs de transport par les méthodes de Monte Carlo

Les méthodes de Monte Carlo effectuent un suivi, ou *transport*, de la ou des particules dont on cherche à établir le comportement au sein d'un matériau qui présente une forme donnée. On utilisera souvent le mot *géométrie* pour faire référence à l'univers spatial à l'intérieur duquel on effectue le transport des particules.

[1] MCNP peut effectivement simuler le transport des particules dans une géométrie et ne donner aucun résultat en sortie si aucun calcul d'observable n'a été demandé.

Le Monte Carlo *analogue* est la méthode de base qui, comme son nom l'indique, reproduit de façon directe le trajet physique que les particules suivraient dans la réalité. Des variantes plus élaborées de cette méthode existent, dont certaines attribuent des poids statistiques différents par particule suivie. Ces méthodes plus élaborées, dont MCNP se sert, cherchent à réduire la variance des résultats impliquant des événements peu fréquents, pour lesquels un suivi analogue des particules donnerait extrêmement peu ou pas d'occurrences. L'utilisateur peut, par dessus ce traitement de réduction de variance que MCNP implémente par défaut, choisir de définir différents *poids* des particules suivies selon l'endroit de la géométrie simulée où celles-ci se trouvent. Toutefois, les calculs qui nous concernent impliquent des événements qui ne sont pas rares dans l'espace où on les simule : il s'agit de réactions nucléaires induites par neutron dans un combustible sous irradiation en réacteur nucléaire, c'est pourquoi nous n'avons pas besoin d'utiliser ces techniques. MURE est cependant, en tant qu'interface complète de MCNP , apte à implémenter ces fonctionnalités si l'utilisateur le désire.

La première étape consiste donc à décrire le plus exactement possible, selon les objectifs du calcul, la *géométrie* qu'on veut simuler, ainsi qu'à établir la source d'émission des particules qu'on va *propager* à l'intérieur de cette géométrie. Cette géométrie peut être de complexité très variable. Chaque matériau devra effectivement occuper une forme géométrique donnée, qu'on appellera *cellule*[2]. Chaque cellule, en outre, peut à son tour être découpée en cellules intérieures si l'utilisateur désire mettre en évidence des effets qui nécessitent une plus grande résolution spatiale ou suivre l'évolution hétérogène d'un matériau.

En définitive, une fois définies toutes les cellules du problème, et pour chaque type de particule suivie (dans notre cas, uniquement des neutrons), MCNP est en mesure de prendre en compte, si elles sont disponibles dans une base de données, toutes les sections efficaces de réaction de chaque particule avec les noyaux de la composition des matériaux constituant chaque cellule. Gardons à l'esprit qu'il existe une relation de bijection entre matériaux pris en compte dans le transport et les cellules définies dans la géométrie. MCNP établit une *section efficace macroscopique totale d'interaction* $\Sigma_{tot}(E)$ pour chaque matériau :

$$\Sigma_{tot}(E) = \sum_{\forall i} \rho_i (\sum_{\forall r} \sigma_i^r(E)) \tag{2.1}$$

où $\sigma_i^r(E)$ est la *section efficace microscopique*, en barns[3] fonction de l'énergie de la particule incidente et qui mesure la probabilité que la réaction r ait lieu par interaction de la particule avec le noyau i. On note ρ_i le nombre de noyaux i par unité de volume (en $10^{24}/\text{cm}^3$). Cette

[2]le terme désigne tout volume défini dans la géométrie et ne doit pas être compris dans le sens du *jargon* déterministe !

[3]1 barn = 10^{-24}cm^2.

somme s'effectue pour tous les noyaux présents dans le matériau.

La dimension de Σ_{tot} est donc l'inverse d'une longueur et mesure ainsi la probabilité par unité de longueur (cm) que la particule suivie interagisse dans le matériau. L'inverse de cette quantité est le libre parcours moyen à une énergie donnée, $\lambda(E)$, de la particule dans le matériau. MCNP construit donc la quantité $\Sigma_{tot}(E)$ qui est une donnée du code, à partir des compositions et les bases de données nucléaires fournies par l'utilisateur.

Connaissant $\lambda(E)$, MCNP peut simuler, par une succession de tirages aléatoires, le trajet l effectif au tirage en cours entre deux interactions, en utilisant la fonction génératrice l, où p est un nombre aléatoire tiré sur [0,1[selon une loi uniforme[4].

$$l(E) = -\lambda(E)\ \ln(1-p) \tag{2.2}$$

De façon similaire, une fois le site de l'interaction défini, le noyau qui subit l'interaction et le type d'interaction subie sont tirés aléatoirement en prenant en compte les valeurs des sections efficaces à l'énergie où la réaction a lieu. La méthode employée pour déterminer le noyau et le type de réaction subie est identique. Pour déterminer quel noyau subit la réaction par neutron, on calcule d'abord la quantité :

$$\sum_{i=0}^{i=N} \Sigma_i^{tot} \times p \tag{2.3}$$

qui est la somme de toutes les sections efficaces macroscopiques des noyaux présents dans le matériau, au nombre de N, multipliée par un nouveau nombre aléatoire p tiré uniformément sur [0,1[. Cette somme est toujours la même, à matériau et énergie données : en la multipliant par p on construit ainsi une quantité qui lui est inférieure. Sachant qu'on conserve toujours le même *ordre* dans la liste des noyaux qui composent le matériau, il existe un seul indice k dans cette liste tel que :

$$\sum_{i=0}^{i=k-1} \Sigma_i^{tot} \leq (\sum_{i=0}^{i=N} \Sigma_i^{tot} \times p) < \sum_{i=0}^{i=k} \Sigma_i^{tot} \tag{2.4}$$

Nous constatons que plus la section efficace macroscopique Σ_k^{tot} est importante, plus l'intervalle entre les sommes partielles qui encadrent cette inégalité sera grand et plus il y aura des valeurs de p qui sélectionneront le noyau k en conséquence.

Une fois le noyau k défini, le type de réaction qu'il subit est déterminé de façon identique, en considérant cette fois ci la *liste de réactions* qu'il peut connaître. Si on note R le nombre de réactions autorisées pour le noyau k, σ_i la valeur de la section efficace microscopique de la

[4]De là l'origine bien connue de l'appellation de la méthode, une roulette de casino étant un générateur de nombres aléatoires selon une loi (supposée) uniforme...

réaction i à l'énergie considérée, et p un nouveau nombre aléatoire tiré de façon uniforme sur [0,1[, la réaction r dans cette liste sera choisie si :

$$\sum_{i=0}^{i=r-1} \sigma_i \leq (\sum_{i=0}^{i=R} \sigma_i \times p) < \sum_{i=0}^{i=r} \sigma_i \tag{2.5}$$

L'histoire d'un neutron s'arrête quand il y a absorption de la particule par un noyau, ou fission. Dans ce cas, MCNP propagera un nouveau neutron depuis la source d'origine définie par l'utilisateur. Ceci est détaillé à la suite.

Le facteur de multiplication k

En théorie des réacteurs nucléaires, k désigne le facteur de multiplication du système. Il est habituellement interprété comme le nombre de fissions engendrées *par fission*, à un instant donné. Il permet de décrire l'évolution que peut connaître la population neutronique au sein d'un système nucléaire au fil du temps.

Si, lors d'un calcul de transport, on considère la totalité de la géométrie du système qu'on étudie (ce cas sera pour nous l'étude du cœur entier en considérant le réflecteur), le facteur k estimé par le code de transport représentera la multiplication globale nette des neutrons en tenant compte des fuites et autres pertes neutroniques. Ce facteur est alors appelé *"effectif"* et est noté k_{eff} . Il existe trois régimes de comportement du réacteur qu'on nomme habituellement, suivant la valeur de k_{eff} :

- *sous-critique* lorsque $k_{eff} < 1$
- *critique* lorsque $k_{eff} = 1$
- *sur-critique* lorsque $k_{eff} > 1$

Bien entendu une réaction en chaîne contrôlée et donc une production constante d'énergie (sans apport de neutrons externes au système) ne peuvent être envisagées que dans le deuxième cas.

Si par contre on ne s'intéresse qu'à une partie du système en la modélisant individuellement par un *réseau infini* (ce cas correspondra aux études *cellule* ou *assemblage*, décrites dans les chapitres suivants), le facteur k ne représentera pas directement le comportement du système entier et pour le distinguer, il est noté k_∞ .

Le calcul Monte Carlo d'un système critique

Nous illustrons ici comment MCNP suit l'histoire d'un neutron lorsqu'on souhaite déterminer la valeur du facteur de multiplication k_{eff} ou k_∞ , selon le cas. On parlera alors de *calcul de la*

criticité. Pour un système à $k_{eff} \simeq 1$, l 'histoire du neutron est très longue. Bien entendu, un calcul numérique est obligé d'interrompre cette histoire à un moment donné.

Pour fixer les idées, il faut ici distinguer deux conceptions imagées de la *vie* d'un neutron. D'une part il y a *l'histoire* du neutron, qui continue quand celui-ci déclenche une fission mais s'arrête en cas de fuite ou absorption stérile. D'autre part, on peut considérer le problème en séparant les neutrons en *générations* de neutrons : l'événement séparant deux générations de neutrons est le processus de fission donne naissance à la seconde génération. Dans cette approche, le neutron qui induit une fission disparaît et donnera naissance à un certain nombre de neutrons qui appartiennent, eux, à la génération suivante.

Le calcul des systèmes critiques se base donc sur un suivi des *générations* de neutrons.[5] Les interactions conduisant à une fission interrompent la génération du neutron suivi et déterminent des sites ponctuels de fission dans la géométrie simulée. Les coordonnées spatiales de ces sites de fission seront sauvegardées par MCNP, qui les utilisera comme autant de sources ponctuelles des neutrons à propager à la génération suivante. Dans un calcul de criticité, un *cycle* est le suivi de N neutrons appartenant à la *même* génération. Un calcul complet de criticité impliquera donc plusieurs neutrons par cycle, et plusieurs cycles. Il faut remarquer que le passage au calcul du cycle suivant est entrepris par MCNP une fois que tous les neutrons de la génération en cours ont été suivis, l'un après l'autre, jusqu'à l'absorption stérile, la fuite ou la fission.

En procédant ainsi de proche en proche, d'interaction en interaction, MCNP établit l'*histoire* des neutrons, ou, si on veut, *du neutron*. Il s'agit donc de simuler une quantité importante d'*histoires* neutroniques et d'établir en fin de compte un *historique* moyen du neutron à l'intérieur de la géométrie donnée. Les résultats du transport auxquels on s'intéresse, c'est-à-dire les taux de réactions moyens par cellule et les flux neutroniques moyens par cellule seront alors normalisés *par neutron source*.

Il revient à l'utilisateur d'étudier le problème qui l'intéresse pour établir le nombre de cycles et de neutrons par cycle qui assurent la précision souhaitée des résultats. Notamment, il faudra s'assurer que toute la géométrie est bien vue par les neutrons que l'on propage, et le cas échéant, choisir de suivre un certain nombre de cycles *inactifs*, dont l'intérêt est de propager spatialement les sites de fissions, sans tenir compte des historiques des neutrons suivis. On comprend alors l'intérêt que l'utilisateur trouve dans la mesure du possible à utiliser une *source initiale étendue*, qui minimisera le nombre d'histoires nécessaires avant d'avoir des sources ponctuelles (sites de fission) bien réparties dans la géométrie. En partant dès le début du calcul avec une source étendue, les neutrons *verront* effectivement *plus rapidement* l'intégralité de la géométrie qu'on

[5] Notons ici qu'une génération de neutrons ne s'interrompt pas lors de processus de type (n,xn), qui sont considérés comme internes à la génération et ne libèrent pas d'énergie.

simule.

Pour fixer les idées, considérons un matériau homogène sphérique de rayon R. Si le parcours moyen d'un neutron *lors d'un cycle* a la valeur l, en n'utilisant qu'une source ponctuelle de neutrons au centre de la sphère, il faudra attendre en moyenne R/l cycles avant d'atteindre les *premiers* sites de fission proches de la surface de la sphère, et plus pour avoir une distribution des sites bien répartie.

Nous décrirons maintenant la manière dont MCNP calcule les observables qui nous intéressent et dont on a besoin pour simuler l'évolution du combustible nucléaire. Pour établir et résoudre les équations qui décrivent la *dynamique* de l'évolution (les équations de Bateman, dont on parlera ensuite), on doit connaître les taux moyens de réaction *de chaque noyau* de chaque matériau dans chaque cellule pour toutes les réactions ainsi que la valeur moyenne du flux dans chaque cellule.

2.1.2 Le flux de neutrons intégré dans une cellule

MCNP estime le flux neutronique dans une cellule donnée en se basant toujours sur le trajet moyen parcouru par le neutron à une énergie donnée, $l(E)$. Le flux $\phi(E)$ dans une cellule sera le rapport entre la somme de tous les parcours élémentaires l_i que chaque particule à l'énergie E a effectivement parcouru dans la cellule, et le volume V de la cellule :

$$\phi(E) = \frac{\sum_i l_i(E)}{V} \tag{2.6}$$

Connaissant $\phi(E)$ pour chaque valeur de E dans un domaine d'énergie (pour les neutrons traités par MCNP, de 0 à 20 MeV), MCNP peut alors calculer dans toute cellule de la géométrie, toute intégrale du produit d'une fonction donnée f et du flux ϕ de la forme :

$$\langle f, \phi \rangle = \int_E \int_{\overrightarrow{r}} f(E)\phi(E, \overrightarrow{r}) dE d^3\overrightarrow{r} \tag{2.7}$$

où $\phi(E, \overrightarrow{r})$ est le flux de neutrons présent dans la géométrie à l'énergie E au point $\overrightarrow{r}$ et f une fonction de l'énergie du neutron donnée par l'utilisateur. L'intégrale spatiale s'effectue sur le volume de la cellule considérée.

Le *flux neutronique dans la cellule*, intégré en énergie et dans tout l'espace délimité par la cellule, peut ainsi être calculé. Il est noté $\langle \phi \rangle$:

$$\langle \phi \rangle = \frac{1}{V} \int_E \int_{\overrightarrow{r}} \phi(E, \overrightarrow{r}) dE d^3\overrightarrow{r} \tag{2.8}$$

où V est le volume de la cellule.

2.1.3 Les sections efficaces moyennes des noyaux dans une cellule

Dans la formule 2.7, la fonction $f(E)$ peut être une section efficace microscopique de réaction induite par neutron : le résultat de l'intégrale est alors un *taux de réaction* par noyau et par neutron source.

Remarquons ici que, pour simuler le transport des neutrons, MCNP calcule (comme on a vu en section 2.1.1, formule 2.3) la valeur de la section efficace *totale* du mélange matériau. Les valeurs des sections efficaces moyennes pour chaque noyau dans chaque matériau et pour chaque réaction doivent être, elles, calculées par MCNP à la demande de l'utilisateur, et sont des résultats du calcul de transport, non pas des données.

En synthétisant, pour tout noyau qui présente une section efficace de réaction induite par neutron $\sigma(E)$, on calculera la valeur moyenne $\langle\sigma\rangle$ de cette section efficace dans la cellule où le noyau se trouve. Cette moyenne sera une intégrale sur l'énergie et l'espace de la section efficace microscopique de réaction pondérée par le flux, et normalisée par la valeur de l'intégrale du flux dans la cellule :

$$\langle\sigma\rangle = \frac{\int_E \int_{\overrightarrow{r}} \sigma(E)\phi(E, \overrightarrow{r})dEd^3\overrightarrow{r}}{\int_E \int_{\overrightarrow{r}} \phi(E, \overrightarrow{r})dEd^3\overrightarrow{r}} \tag{2.9}$$

Les sections efficaces moyennes seront donc directement exprimées en barns. De cette manière on calcule les sections efficaces et taux de réactions de tous les noyaux qui interviendront dans l'évolution y compris, notamment, ceux qui ne sont pas présents au début de l'évolution dans la composition des matériaux définis par l'utilisateur. Il faut bien entendu, demander à MCNP d'effectuer ce calcul pour les noyaux considérés. Afin de calculer la section efficace d'un noyau en particulier, on est donc amené à définir des matériaux isotopiquement purs non seulement pour chaque noyau de la composition initiale des matériaux dont on simule l'évolution, mais également pour chaque noyau qui peut apparaître ultérieurement dans leur composition, lors de l'évolution du système. Ceci nécessite donc d'établir préalablement la *liste* de tous les noyaux qui seront potentiellement présents dans le calcul d'évolution. Ceci sera repris par la suite dans le paragraphe 2.3.2 intitulé *l'arbre d'évolution*. MURE établit cet *arbre de l'évolution*, qui est la liste exhaustive de tous les noyaux éventuellement présents lors de l'évolution, et demande ensuite à MCNP de calculer toutes les sections efficaces moyennes des noyaux de l'arbre dans chaque cellule.

Soulignons que pour les noyaux *qui ne sont pas encore apparus dans la composition du matériau* à l'instant de l'évolution où l'on calcule les valeurs moyennes de leurs sections efficaces, le calcul de ces valeurs moyennes est pondéré par la fonction $\phi(E)$, qui aura été calculée sans tenir compte, dans le transport, de la présence de ce noyau dans le matériau. Cela revient donc

à calculer leur section efficace en dilution infinie. **Ceci nous permet de connaître pour tout noyau i et pour toute réaction R, la valeur moyenne $\langle \sigma_i^R \rangle$ dès le début du calcul d'évolution**, que le noyau soit présent dans le matériau ou non.

C'est en connaissant ces valeurs, flux moyens par cellule et sections efficaces moyennes de réaction dans chaque cellule pour tous les noyaux évoluants du problème, et toutes les réactions, que MURE est en mesure de simuler l'évolution du système.

2.2 La structure du code MURE

Sans pour autant approfondir dans la structure fine du programme, nous présentons maintenant les principales parties ou *modules* de MURE qui s'entrelacent pour former ce code d'évolution.

2.2.1 La définition de la géométrie à simuler

La description de la géométrie souhaitée s'accorde avec la manière dont on définit une géométrie dans MCNP. Tout d'abord l'utilisateur devra définir des "objets" renvoyant à des formes géométriques simples et prédéfinies qui reviennent souvent dans la description de la géométrie d'un réacteur, particulièrement des réacteurs à eau (cylindres, parallélépipèdes, réseaux carrés ou hexagonaux, sphères, plans). L'utilisateur n'est cependant pas contraint de se limiter à ces formes prédéfinies mais peut choisir de définir ses propres objets géométriques comme intersection ou union des formes élémentaires précédentes. Nous soulignons l'effort considérable investi dans le développement de cette partie, déjà en place lors du début de la présente étude, notamment dans la gestion des nœuds, unions et intersections des différentes formes géométriques dans le but de faciliter la définition des cellules.

Le calcul stochastique des volumes.

La manipulation de ces divers objets géométriques peut souvent conduire à définir des cellules dont le volume n'est pas simple à calculer analytiquement. Un module de calcul stochastique des volumes a été prévu pour pallier ce problème. Le principe consiste à "entourer" la géométrie dont le volume est à déterminer d'une forme simple, par exemple une sphère (dont on connaît le volume). En définissant une source surfacique de neutrons uniformément repartie sur la surface de cette sphère, on peut déduire le volume cherché d'après la valeur du flux de neutrons qui traverse ce volume. Ceci est implémenté dans MURE. Ce calcul s'effectue automatiquement quand certaines cellules *qui évoluent*, et dont MCNP ne peut calculer le volume, existent dans la géométrie.

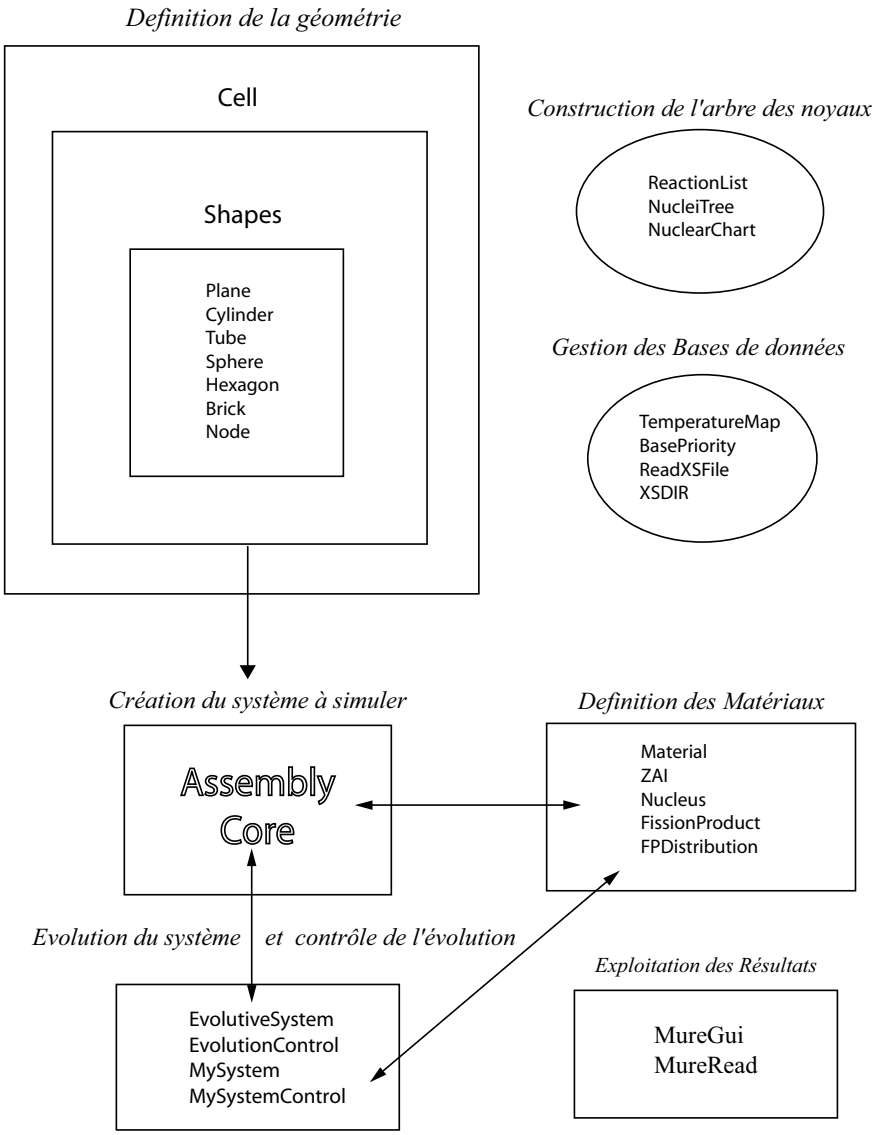


FIG. 2.1 – *Diverses classes d'objets et relations schématiques qui constituent la structure du code* MURE .

2.2.2 La définition des matériaux

Les matériaux présents dans le problème sont définis en entrant leur densité et leur composition initiale. L'utilisateur peut choisir de spécifier celle-ci selon l'unité de son choix, molaire ou massique. Notons ici que les densités des matériaux évoluent avec l'irradiation. Si, pour un réacteur à combustible solide cette évolution est minime, cette fonctionnalité peut se révéler intéressante pour la simulation des réacteurs à combustible liquide.

2.2.3 La construction d'une base de données à différentes températures

Toute donnée nucléaire de base, qu'elle soit mesurée expérimentalement ou prédite par un modèle, doit suivre un processus de mise en forme avant d'être utilisable par un code informatique. Un tel processus de correction, d'analyse et de confrontation à des modèles théoriques, a pour objectif d'établir un ensemble cohérent de données nucléaires paramétrées (de tels paramètres permettront, par exemple, d'élargir les résonances que présentent les sections efficaces si on désire extrapoler les données à d'autres températures). Ce processus de réduction des données nucléaires en un ensemble de données tabulées est appelé une *évaluation*, et conduit donc à des données dites *évaluées*. Ce travail d'évaluation s'effectue, bien entendu, pour chaque noyau et chaque réaction existant dans les librairies.

La communauté nucléaire a adopté un format commun à tous les pays et organisations qui effectuent ce genre d'évaluations de données nucléaires. C'est le *Evaluated Nuclear Data Format* (ENDF). Ce format est repris par toutes les principales librairies nucléaires existantes. Citons ici les plus importantes dans leur version la plus récente :

- JEFF 3.1 (librairie européenne)
- ENDF/B-VI (librairie américaine)
- JENDL-3.3 (librairie japonaise)

Les données évaluées doivent cependant, avant de servir à une application, être converties au format adapté au code qui les utilise. Par exemple, selon les caractéristiques du code, les données sont moyennées selon une discrétisation multigroupe en énergie (cas des méthodes déterministes) ou sont utilisées en énergie continue (cas de méthodes probabilistes). Dans tous les cas elle devront être extrapolées à la température désirée. Il existe plusieurs codes qui gèrent cette *traduction* du format ENDF vers le format propice au code. Le format requis par MCNP est le format ACE (*A Compact Evaluated nuclear data file*). Le format ACE adopte une structure différente dans l'organisation des données, ce qui permet d'optimiser l'accès à celles-ci par MCNP. Le code *traducteur* utilisé pour passer des données évaluées au format ACE est le code bien connu de traitement de données nucléaires NJOY[26].

2.2.3.1 Le code ENDF2ACE

NJOY est un code complexe dont la maîtrise nécessite des connaissances propres au travail d'évaluation de données nucléaires. Pour permettre à l'utilisateur final de MURE d'accéder aux fonctionnalités de NJOY sans s'alourdir des autres parties de ce code très vaste, le code d'interface

ENDF2ACE[27] a été écrit en 2005[6] pour permettre un passage aisé du format ENDF au format ACE, lisible par MCNP. Il regroupe plusieurs modules du programme NJOY, et simplifie l'écriture finale du fichier ACE, en permettant d'écrire celui-ci en format ascii ou en binaire (en utilisant le module MAKXSF de MCNP).

Le code ENDF2ACE nous a permis de générer toute une base de données à diverses températures, en format binaire et portable. C'est cette base que MURE utilise et qui compte aujourd'hui plus de 500 noyaux. Ce recours nous permet de disposer de tous les produits de fissions existant dans les bases, et notamment de ne pas se limiter à ceux fournis par la librairie standard de MCNP .

2.3 Le traitement de l'évolution dans MURE

Simuler l'évolution sur le temps d'un système nucléaire sous irradiation neutronique implique la résolution numérique des équations de Bateman pour chaque noyau du système qui évolue. Nous détaillons maintenant ce point important.

2.3.1 Les équations de Bateman et la matrice d'évolution

Les équations de Bateman, qui décrivent l'évolution de chaque noyau sous irradiation, sont des équations différentielles du premier ordre. Elles traduisent le fait que, à un instant donné, le taux de variation de la proportion atomique d'un noyau est la somme des taux de réactions qui conduisent à la création de cet isotope, ôtée de la somme des taux de réactions qui le font disparaître. En adoptant la notation en exposant $j \to i$ pour référencer l'ensemble des noyaux indicés j qui, soit par décroissance, soit par réaction r conduisent à la production d'un noyau de l'espèce i, et en séparant les termes relatifs aux réactions par neutron (les réactions de diffusion ne modifient pas la nature du noyau et ne sont donc pas considérées dans les équations d'évolution) et ceux relatifs à la décroissance naturelle des noyaux, on obtient :

$$\frac{\partial N_i}{\partial t} = \underbrace{-\lambda_i N_i + \sum_j \lambda_j^{j\to i} N_j}_{\text{Décroissance}} + \underbrace{\sum_{j'} N_{j'} \langle \sigma_{j'} \rangle^{j'\to i} \langle \phi \rangle - N_i \sum_{\forall r} \langle \sigma_i \rangle^{(r)} \langle \phi \rangle}_{\text{Réactions}} \tag{2.10}$$

où les rapports de branchements $R_{j\to i}$ et $R'_{j\to i}$ pour les réactions et les décroissances sont implicitement écrits dans la notation en exposant $j \to i$:

$$\langle \sigma_j \rangle^{j\to i} = \langle \sigma_j \rangle_{j\to i} R_{j\to i} \tag{2.11}$$

[6]travail de post-doctorat de Luc Perrot à l'IPN Orsay.

$$\lambda_j^{j\to i} = \lambda_j R'_{j\to i} \tag{2.12}$$

Le système d'équations couplées qu'on cherche à résoudre peut donc s'écrire sous forme matricielle comme une matrice carrée A de dimension n, le nombre de noyaux qui évoluent dans le problème. En notant $\overrightarrow{N}(t)$ le vecteur des proportions atomiques de ces noyaux dans la cellule :

$$\overrightarrow{N}(t) = \begin{pmatrix} N_1(t) \\ \dots \\ N_j(t) \\ \dots \\ N_{n-1}(t) \\ N_n(t) \end{pmatrix} \tag{2.13}$$

Le système s'écrit

$$\frac{d\overrightarrow{N}(t)}{dt} = A(t) \times \overrightarrow{N}(t) \tag{2.14}$$

Avec pour éléments de matrice

$$A_{ii} = -\lambda_i \; - \sum_k \langle\sigma_i\rangle^{i\to k}\langle\phi\rangle \tag{2.15}$$

$$A_{ij} = +\lambda_j^{j\to i} \; + \langle\sigma_j\rangle^{j\to i}\langle\phi\rangle \tag{2.16}$$

Afin de pouvoir remplir correctement cette matrice il faudra :

- Etablir les relations de filiation entre noyaux, c'est-à-dire établir, pour chaque noyau i, l'ensemble J_i tel que $\forall j \in J_i,\ j \to i$, ainsi que le sous-ensemble de noyaux $\{k\} \in I_k$ qui vérifient $i \to k$.
- Savoir normaliser la valeur du flux intégré $\langle\phi\rangle$ de la cellule dont on calcule l'évolution à la valeur qui correspond à la puissance *totale* du système.

Nous détaillons maintenant ces deux étapes importantes.

2.3.2 L'arbre des noyaux

Une fois définie la composition initiale de tous les matériaux constituant le problème, reste à construire la liste des noyaux qui sont susceptibles d'apparaître comme produits d'irradiation et de décroissance. Pour cela, il faudra prendre en compte les différentes relations de filiation, de descendance et d'ascendance, soit par réaction nucléaire, soit par désintégration, qui existent

entre les divers noyaux du problème. Cette liste exhaustive (sous certaines hypothèses simplificatrices qui seront détaillées par la suite) est modélisée par l'arborescence qu'on nomme ici *l'arbre des noyaux*. Cet arbre des noyaux est construit une fois pour toutes lors de l'initialisation du calcul d'évolution MURE.

Pour chaque isotope, la période, les modes de décroissance et les rapports de branchement correspondants sont lus dans un fichier interne à MURE qui reprend des données de la librairie JEFF et de la référence [28].

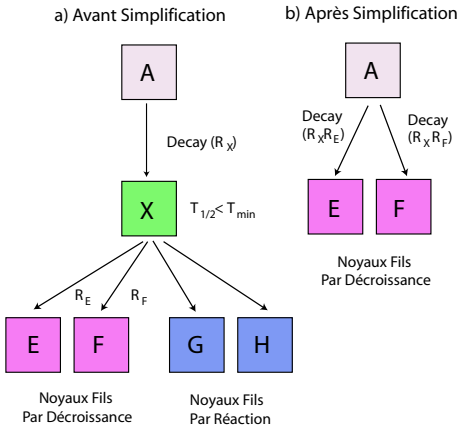
Les différents types de réactions nucléaires constituent une *classe d'objet* à part, afin d'offrir à l'utilisateur la possibilité de choisir les réactions autorisées sur chaque noyau s'il le désire. Dans notre cas, nous utilisons une détection automatique de toutes les réactions présentes et disponibles dans la base de données pour construire le premier arbre des noyaux avant simplification. Il a également été implémenté un ordre de priorité des librairies de données nucléaires à prendre. Cet ordre de priorité est établi par l'utilisateur, qui peut alors choisir de se restreindre à une base unique ou d'aller chercher des données dans d'autres bases.

2.3.2.1 Simplification de l'arbre des noyaux

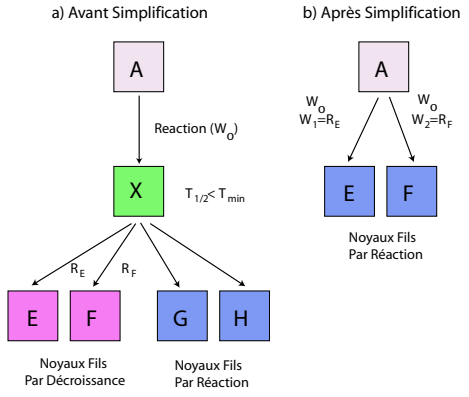
Dès lors que, dans les règles de construction de l'arbre de noyaux on considère des réactions comme la fission, la capture neutronique ou la décroissance α, on va très rapidement avoir, comme noyaux potentiellement présents dans le problème, toute la charte des nucléides. Il est donc nécessaire de procéder à des simplifications de l'arbre ne serait-ce que pour des besoins d'économie de calcul et de disponibilité des données nucléaires.

Simplification par temps de demi-vie minimum.

Pour tout noyau ayant un temps de demi-vie inférieur à une valeur seuil T_{min} imposée par l'utilisateur (et mise dans MURE par défaut à 1h), on considère que le noyau en question décroît immédiatement vers ses descendants immédiats. La figure 4.2 illustre ce raisonnement, où l'on considère le cas d'un noyau X, produit par décroissance ou réaction sur A, et dont le temps de demi-vie est inférieur à T_{min}. Sur cet exemple, le noyau X est élagué de l'arbre car il ne satisfait pas le critère de demi-vie minimale : le noyau A hérite des fils de décroissance de X. Les fils de X par réaction sont élagués et n'apparaissent donc pas pendant l'évolution dans la descendance de A. Dans tous les cas les rapports de branchements suivant une ligne de descendance sont respectés. La construction de l'arbre de noyaux s'effectue de proche en proche et ce procédé de simplification se répète pour chaque noyau à tour de rôle.



(a) *Le noyau X à "élaguer" est formé par décroissance de A*



(b) *Le noyau X à "élaguer" est formé par réaction sur A*

FIG. 2.2 – *Critère de simplification par seuil de demi-vie minimale qui intervient lors de la construction de l'arbre des noyaux de l'évolution. Soit le noyau X ($T_{1/2} < T_{min}$) est produit par décroissance du noyau A (figure a), soit il est produit par réaction sur A (figure b) avec un poids W_0. Après simplification, les noyaux fils par décroissance de X sont considérés directement comme fils de A. Dans le cas des noyaux fils par réaction de X, on considère que les réactions subies par X sont négligeables et on supprime la "branche" correspondante vers ses fils par réaction. Dans tous les cas ce critère conduit à ne conserver que la filiation par décroissance de X, dont A hérite.*

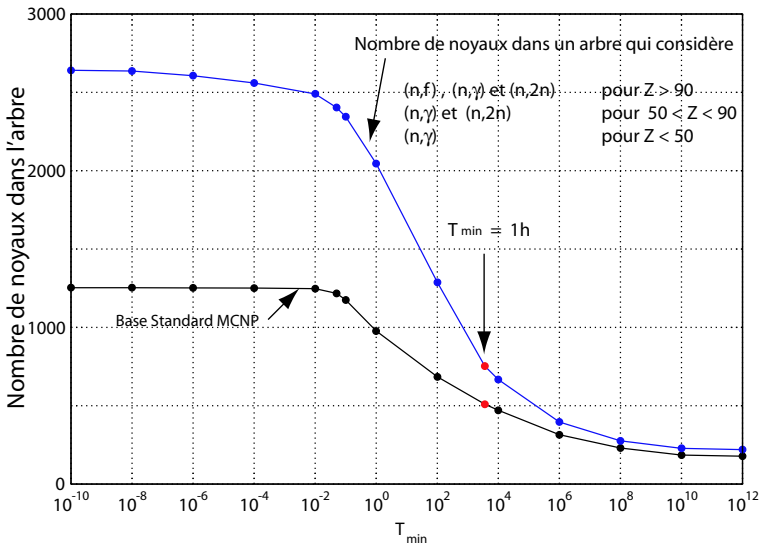


FIG. 2.3 – *Nombre de noyaux dans l'arbre en fonction du seuil de demi-vie imposé.*

Simplification des réactions peu significatives

Cette simplification concerne des réactions dont la section efficace est jugée trop peu significative. Le test effectué concerne la quantité Ξ, calculée pour chaque réaction dans l'arbre des noyaux :

$$\Xi = \frac{\int_0^{20MeV} \sigma_i(E) d\log(E)}{\int_0^{20MeV} d\log(E)} < 0.01 \text{ barns.} \tag{2.17}$$

Ξ représente, pour une réaction i donnée, une valeur moyenne, calculée entre 0 et 20 MeV de sa section efficace de réaction σ_i pondérée par le logarithme de l'énergie. La quantité Ξ peut donc être vue comme une moyenne de σ_i sur un flux *plat* en léthargie.

Il a été vérifié que cette simplification ne supprimait pas des noyaux importants qui pourraient jouer un rôle dans une zone particulière en énergie. Dans tous les cas, un fichier contenant la liste des noyaux ainsi *élagués* de l'arbre des noyaux est écrit systématiquement et doit être consulté par l'utilisateur.

Simplification par absence de données nucléaires.

Certains noyaux pour lesquels il n'y a pas de données disponibles sur les réactions induites par neutron ne sont pas pris en compte dans l'arborescence, et la ramification par réaction correspondante s'arrête en conséquence. On ne traite alors que leur disparition par décroissance.

On ne peut, face à cette éventualité, que remarquer que l'absence totale de données nucléaires pour un noyau peut refléter le rôle peu significatif que celui-ci joue aujourd'hui dans la physique des réacteurs.

2.3.3 L'intégration du système couplé : simulation de l'évolution

Une fois construit, le système d'équations couplées se résout numériquement en utilisant les méthodes classiques d'intégration de type Runge-Kutta. Nous utilisons un algorithme intégrateur Runge-Kutta du 4ème ordre à pas variable[29], qui est bien adapté à une intégration sur des pas de temps allant de quelques jours à plusieurs années. Nous détaillons dans cette partie la procédure qu'utilise le code MURE pour mener à bien cette intégration.

2.3.3.1 La simulation d'une évolution à puissance constante

Comme source de puissance, MURE ne considère que la chaleur dégagée par fission, en considérant une distribution de valeurs de chaleurs de fission pour chaque actinide[7]. On verra que simuler une puissance constante revient à renormaliser le flux moyen total vu par le système pendant l'évolution. Comme on l'a vu, MCNP calcule des flux neutroniques normalisés par *neutron source* : on les notera ϕ_{mcnp}. Afin de ramener ces valeurs à leur valeur correspondante pour la puissance souhaitée, il faut normaliser par le nombre de neutrons par seconde pour cette puissance. Cet ajustement s'effectue en considérant la somme totale des taux de fission dans tout le système, le but étant d'établir un facteur de normalisation noté α_{norm} qui sera le facteur d'échelle commun à toutes les cellules qui évoluent.

Calcul du facteur de normalisation α_{norm} pour une puissance P donnée

Le facteur de normalisation α_{norm} est donc une quantité globale qui doit être recalculée pendant l'intégration pour s'ajuster à la puissance totale qu'on désire simuler. Or, sur un pas d'intégration donné, notre algorithme intégrateur Runge-Kutta résout la matrice d'évolution de chaque cellule avec un pas variable, calculé par l'algorithme Runge-Kutta lui même, qui n'a aucune raison d'être le même pour toutes les cellules.

Ceci soulève donc l'impossibilité de calculer, *au même instant d'intégration*, un facteur α_{norm} commun à toutes les cellules, et par conséquence d'intervenir sur la valeur du flux $< \phi >$ afin de renormaliser la puissance, puisque en faisant un seul pas Runge-Kutta entre deux calculs MCNP, on n'a pas obligatoirement les mêmes pas d'intégration pour l'ensemble des cellules. Pour contourner ce problème, et afin de pouvoir calculer correctement α_{norm} et intervenir sur

[7] Certains résultats présentés ici correspondent cependant à des tests de réglage où seule une énergie de 200MeV par fission à été considérée.

la normalisation de la puissance pendant l'intégration, on divisera l'intervalle existant entre deux pas MCNP consécutifs en plusieurs pas d'intégration Runge-Kutta adjacents. Ces pas seront appelés "pas R.K". Cette subdivision nous permet d'imposer des instants communs à toutes les cellules dans notre méthode d'intégration où l'on pourra calculer le facteur α_{norm} et intervenir pour imposer un contrôle externe au système.

A chaque pas R.K, on en déduit le taux global de fissions par neutron source en sommant les taux partiels de fission (par neutron source) pour tous les noyaux de toutes les cellules. Ceci équivaut à calculer une *puissance par neutron source* qu'on notera P_{mcnp}.

$$P_{\text{mcnp}} = \sum_j \sum_i N_i^j \sigma_i^j \phi_{\text{mcnp}}^j \epsilon_i \tag{2.18}$$

où σ est la section efficace de fission, i fait référence au noyau considéré et j à la cellule. Le facteur d'échelle α_{norm}, qu'on cherche comme normalisation du flux à la puissance P voulue, est, en notant ϵ_i l'énergie libérée par fission par le noyau i :

$$\alpha_{norm} \equiv \frac{P}{P_{mcnp}} = \frac{P}{\sum_i \sum_j N_i^j \sigma_i^j \phi_{\text{mcnp}}^j \epsilon_i} \tag{2.19}$$

Quantité de neutrons pour une puissance donnée

Nous pouvons vérifier cette valeur en tenant le raisonnement, simple, suivant :

Pour un système critique ($k_{eff} = 1$), à un instant donné, le nombre des neutrons (libres) existant dans le système est donné par le produit de la puissance (en fissions par seconde) et le nombre moyen de neutrons émis par fission, ν. Cette valeur, en neutrons par seconde, doit être compatible avec la valeur α_{norm} calculée précédemment.

$$\alpha_{norm} \cong \nu \frac{P}{\epsilon} \tag{2.20}$$

Nous avons vérifié par une application numérique directe, en prenant une valeur moyenne ϵ de l'énergie libérée par fission (200MeV) et une valeur moyenne ν du nombre de neutrons libérés par fission (2.5), que sur un exemple où l'on réalise la condition k_{eff} =1, on retrouve bien, par les deux méthodes, deux valeurs pour α_{norm} qui ne s'écartent que de 2%. L'écart est facilement expliqué par la valeur aprochée de ν et la valeur constante de ϵ dans cette application numérique.

Plusieurs niveaux de discrétisation en temps

La façon dont on procède au calcul de l'évolution en renormalisant le flux pendant l'intégration nécessite donc d'une discrétisation temporelle du problème à trois niveaux, puisque à

l'intérieur de chaque pas R.K, l'intégration implémente une structure fine (ce sont les *"pas variables"* de la méthode utilisée). En reprenant, on aura donc globalement :

- Un premier *découpage en temps* qui fera référence aux instants où MCNP effectue le transport des neutrons (en réévaluant ainsi les valeurs des sections efficaces moyennes et du flux moyen dans chaque cellule). **Ces pas sont fournis par l'utilisateur qui doit les interpréter comme des temps équivalent pleine puissance (e.p.p) du réacteur pour la puissance qu'il aura préalablement définie**. L'écart en temps entre deux pas MCNP consécutifs est noté ici $\Delta t_i^{mcnp} = t_{i+1}^{mcnp} - t_i^{mcnp}$

- A l'intérieur de ce premier découpage vient s'imbriquer une deuxième structure temporelle nécessaire à l'intégration numérique. Ce découpage sera donc constitué de plusieurs pas d'intégration Runge-Kutta, de même longueur, entre deux pas MCNP consécutifs. Ces pas R.K sont au nombre de N_{RK} et leur longueur est donc, au sein d'un Δt_i^{mcnp} égale à $\delta t_i^{RK} = t_i^{mcnp}/N_{RK}$. **L'utilisateur spécifie soit la valeur de δt^{RK}, soit la valeur de N_{RK}.**

  A chaque pas R.K on réécrit et on résout la matrice d'évolution en considérant la nouvelle renormalisation du flux. C'est à ce niveau que, comme on le verra par la suite, interviendra la méthode d'extrapolation des sections efficaces moyennes (détaillé dans 2.3.3.2) qui existe dans MURE.

- Le troisième et dernier niveau de discrétisation en temps est choisi automatiquement, à l'intérieur de chaque pas RK, par l'algorithme de pas adaptatif de la méthode d'intégration Runge Kutta qu'on utilise. A ce niveau de découpage en temps, les sections efficaces et le flux moyens pour chaque cellule sont gardés constants. **Ce niveau est en pratique invisible à l'utilisateur.**

2.3.3.2 L'évolution extrapolée des sections efficaces moyennes entre deux pas de temps

Lors de l'intégration du système d'équations couplées qui s'effectue entre deux pas MCNP , les taux de réaction pris en compte dans les équations de Bateman sont extrapolés selon une régression linéaire faite sur un nombre N de valeurs du taux de réaction calculées par MCNP lors des pas précédents. Le nombre N de pas pris en compte dans cette extrapolation linéaire

est de 4 par défaut, cette valeur peut être choisie par l'utilisateur. Remarquons que pour les N premiers pas ces sections efficaces sont bien entendu gardées constantes pendant tout l'intervalle d'intégration et égales à la dernière valeur calculée par MCNP. Ce traitement concerne toutes les sections efficaces de tous les noyaux dans toutes les cellules. Soulignons que l'utilisateur peut aussi choisir de ne pas effectuer ce traitement en le spécifiant dans le fichier d'entrée MURE .

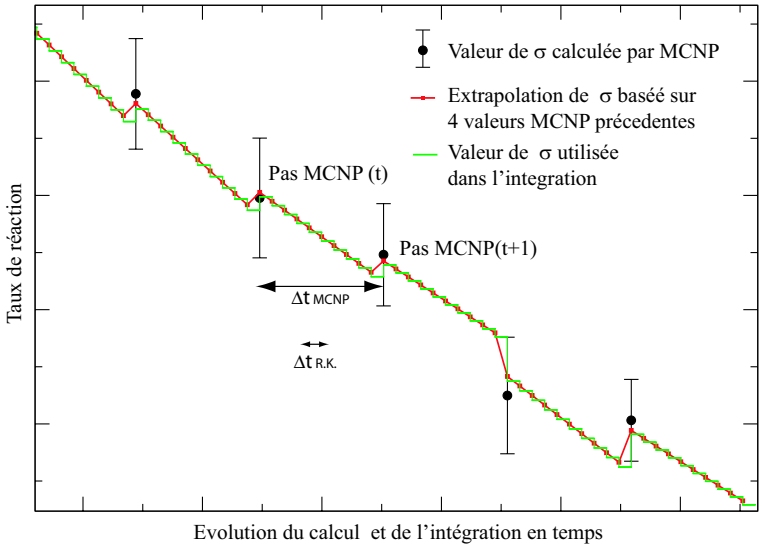


FIG. 2.4 – *Les taux de réactions considérées dans l'écriture de la matrice d'évolution sont extrapolés sur l'intervalle d'intégration. Cette extrapolation est une régression linéaire basée sur les N dernières valeurs du taux calculées par* MCNP *lors des N "pas* MCNP *" précédents.*

La figure 2.4 illustre schématiquement l'extrapolation des taux de réactions prise en compte lors de l'évolution par MURE, et illustre qu'une telle démarche permet d'allonger les intervalles entre chaque calcul MCNP, où l'on recalcule les taux de réaction, et de réduire en conséquence le temps de calcul.

2.3.4 Le processus itératif d'évolution

Au niveau du découpage en temps mcnp, le processus qu'on itère pour chaque pas de temps t_i peut donc se résumer en trois étapes, que la figure 2.5 illustre :

1. Exécution de MCNP à t_i.
2. Lecture des valeurs moyennes calculées par MCNP de σ et de ϕ et résolution des équations de Bateman en prenant en compte ou non une extrapolation des sections efficaces moyennes.
3. Génération du nouveau fichier d'entrée MCNP avec les nouvelles compositions, à $t_{i+1} = t_i + \Delta t^{mcnp}$ des matériaux qui évoluent et éventuellement des modifications de la géométrie.

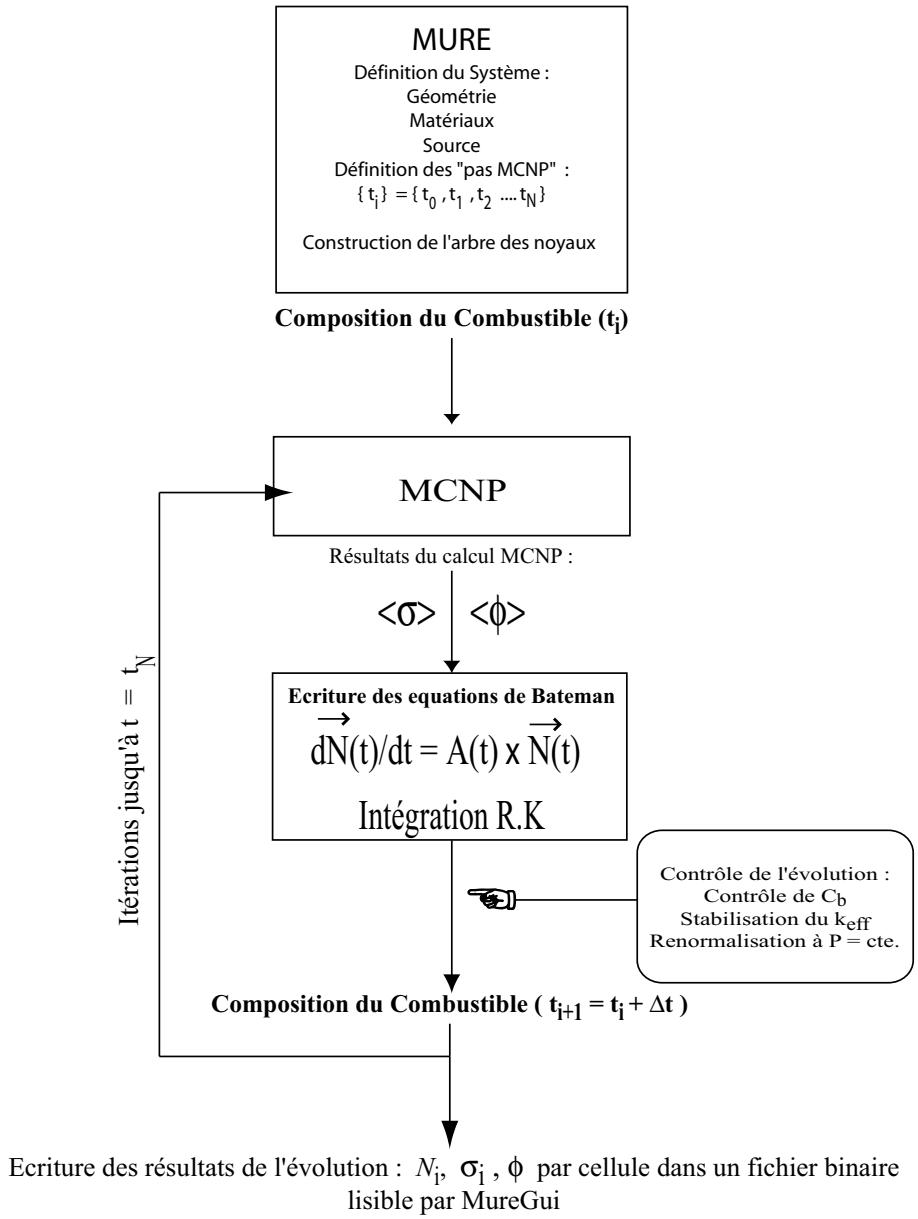


FIG. 2.5 – *Principe itératif du calcul d'évolution dans* MURE .

2.4 L'évolution d'un système critique et le maintien du facteur de multiplication

Une fois le calcul de l'évolution du système implémenté, nous nous sommes intéressés à la problématique du maintien de la valeur du facteur de multiplication tout au long de l'irradiation

simulée. En effet, pour qu'une simulation d'un système nucléaire s'approche le plus d'un cas physiquement réaliste, elle doit être effectuée à puissance constante, le système maintenu en permanence critique ($k_{eff} = 1$). Nous avons donc élaboré une méthodologie qui permet, pendant l'évolution, d'estimer la valeur qu'aurait le facteur de multiplication k (k_{eff} ou k_∞ selon le cas) *au prochain calcul* MCNP, et qui nous permet ainsi d'intervenir, lors du calcul d'évolution avant le prochain calcul MCNP, afin de *"corriger le tir"* et de rétablir k à la valeur souhaitée en modifiant un paramètre de contrôle adapté.

Choix du paramètre de contrôle

Quel paramètre, auquel k est sensible, peut on choisir comme variable de *"contrôle"* pendant l'évolution ? Pour notre simulation de REP, le choix de ce paramètre variable sur lequel on pouvait intervenir s'est porté naturellement sur la concentration de bore soluble dans le modérateur.[8]

En effet, dans un réacteur à eau légère, la criticité initiale devrait chuter pendant l'irradiation comme conséquence de la consommation de la matière fissile et de l'accumulation des produits de fission (absorbants neutroniques). Faute de pouvoir soustraire ces produits de fission (lesquels, dans un réacteur à combustible solide, restent présents pendant toute l'irradiation), ou de faire des rechargements de combustible neuf en continu, dans la pratique tout réacteur de ce type démarre donc avec un *"réservoir" d'antiréactivité* qui fournit ainsi un paramètre sur lequel les opérateurs du réacteur peuvent intervenir.

La méthode de stabilisation du facteur k que nous avons écrite est cependant plus générale et peut être adaptée à d'autres types d'interventions et à d'autres types de réacteur (notamment, dans le cas des réacteurs à sels fondus, à la variation de l'alimentation *en ligne* de matière fertile ou fissile, comme cela a été fait précédemment par [22]).

Afin de savoir dans quelle proportion intervenir sur le noyau *"contrôle"* choisi (en l'occurrence le bore du modérateur) pour avoir l'effet souhaité sur l'évolution du facteur k, il faut construire un estimateur $\tilde{k}$ adapté et qui explicite notamment la contribution de ce noyau.

Une autre expression de k

Nous avions défini précédemment le facteur de multiplication du système comme le nombre de fissions *engendrées* par fission (en 2.1.1). Cette description n'explicite pas les contributions des principales réactions d'absorption, capture radiative ou (n,xn), qui interviennent dans le bilan neutronique du système. Afin de regarder de plus près ces contributions nous établissons une expression équivalente du facteur k.

[8] Le relevage éventuel des barres de contrôle intervient pour des injections de réactivité à plus courte échelle.

Qui dit nombre de fissions engendrées dit nombre de fissions *à la génération suivante*. On peut donc poser, en notant $N_f(j)$ le nombre de fissions à la génération j :

$$k = \frac{N_f(j)}{N_f(j-1)} \tag{2.21}$$

D'autre part, nous pouvons constater que ce rapport équivaut au rapport des populations neutroniques d'une génération donnée sur la population de la génération précédente, puisque, en multipliant le numérateur et le dénominateur par ν, le nombre de neutrons émis par fission, nous pouvons établir que :

$$k = \frac{N_f(j) \times \nu}{N_f(j-1) \times \nu} = \frac{N_{fiss}(j+1)}{N_{fiss}(j)} \tag{2.22}$$

où $N_{fiss}(i)$ est le nombre total de neutrons émis par fission présents à la génération i.

Si on considère que tous les neutrons connaissent un sort qui est soit la fuite, soit la fission soit l'absorption (sous la forme (n,γ), (n,α), (n,xn)...) on peut écrire, pour chaque génération :

$$k = \frac{\text{créations par fission}}{\text{absorptions} + \text{fuites}} \tag{2.23}$$

L'écriture du dénominateur traduit tout simplement le fait qu'un neutron n'est présent dans la population neutronique (et ne doit être compté dans le bilan) que s'il interagit pendant sa vie. On peut alors écrire, pour une génération donnée, le facteur de multiplication k sous la forme d'un *rendement* du nombre net de neutrons *produits* par nombre net de neutrons *consommés*. Il faut toutefois considérer que les réactions (n,xn) conduisent à la production de neutrons. En définissant γ_r comme le nombre net de neutrons absorbés à l'intérieur d'une génération lors de l'interaction r :

$$\gamma_r = 1 - \nu_r \tag{2.24}$$

où ν_r est le nombre de neutrons libres après l'interaction : $\nu_{(n,n')} = 1,\ \nu_{(n,xn)} = x$.

L'évènement de fission délimite deux générations successives de neutrons et ne génère pas de neutron *dans la génération où cette fission survient* : γ_{fiss} vaut donc 1. Les interactions de type (n,xn), considérées comme internes à la génération, ont par contre un facteur γ négatif car leur bilan neutronique est producteur de neutrons. Le bilan des réactions de diffusion (n,n') est nul et n'intervient donc pas.

Si τ_i^r désigne le taux de réaction r sur le noyau i, on peut écrire, pour chaque génération :

$$k = \frac{\sum_i \nu_i N_i \sigma_{fiss}^i \phi}{\sum_i N_i \gamma_r \sigma_r^i \phi \ + \ P} \tag{2.25}$$

On voit que la formule 2.25 explicite la contribution des taux de réaction dans l'expression de k. Nous décrivons maintenant comment on se sert de cette expression pour construire et extrapoler un estimateur du facteur de multiplication du système au temps $t+\Delta t$, en nous basant sur les valeurs calculées au temps t. Cette estimation du facteur k *à venir* va nous permettre, *avant de lancer le prochain calcul* MCNP, d'agir sur le taux choisi comme paramètre à corriger pour stabiliser ce facteur.

La construction d'un estimateur de k, $\tilde{k}$

Notre algorithme de contrôle de la proportion de bore est une méthode du type *prédicteur-correcteur*. Le paramètre à prédire est le facteur de multiplication du système. Le paramètre correcteur est la proportion de bore soluble dans l'eau du modérateur, sur laquelle on agit.

Les principales réactions qui interviennent dans ce bilan sont les réactions (n,γ), (n,α), (n,2n), (n,3n) et bien sûr, de fission. Notre estimateur $\tilde{k}$ s'écrit donc :

$$\tilde{k} = \frac{\sum_c \sum_i \nu N_c^i \sigma_i^{fiss} \phi_c}{\sum_c \sum_i N_c^i \phi_c (\sigma_{fiss}^i + \sigma_{abs}^i - \sigma_{(n,2n)}^i - 2 \times \sigma_{(n,3n)}^i) + N_c^{bore} \sigma_{abs}^{bore} \phi_c + P} \tag{2.26}$$

où σ_{abs} est la somme des sections efficaces d'absorption consommatrices de neutrons (fission non incluse). L'indice c fait référence à la cellule du problème et i au noyau de la composition du matériau dans la cellule respective. On peut écrire τ, le taux total de la réaction r dans tout le système à l'instant t, comme :

$$\tau_r(t) = \sum_c \sum_i (N_c^i \sigma_r^i \phi_c)(t) \tag{2.27}$$

De cette façon on notera :

- τ_{fiss} le taux total de fission
- $\tau_{\nu.fiss}$ le taux total de fission pondéré par la valeur de ν correspondante à chaque fission.
- τ_{abs} le taux d'absorption hormis dans le bore du modérateur
- τ_{abs}^{bore} le taux d'absorption dans le bore
- $\tau_{(n,2n)}$ le taux total de (n,2n)
- $\tau_{(n,3n)}$ le taux total de (n,3n).

L'estimateur $\tilde{k}$ devient :

$$\tilde{k} = \frac{\tau_{\nu.fiss}}{\tau_{fiss} + \tau_{abs} - \tau_{(n,2n)} - 2 \times \tau_{(n,3n)} + \tau_{abs}^{bore} + P} \tag{2.28}$$

Notons qu'avec cette méthode il faudra évaluer les taux de capture dans tous les matériaux, même ceux dont on ne calcule pas l'évolution (dans notre cas il s'agit des structures, des gaines, de l'eau borée) ainsi que les pertes de neutrons par fuite. Ceci impliquera une plus grande demande en résultats à calculer par MCNP et donc une nette augmentation en temps de calcul.

Extrapolation linéaire de l'estimateur $\tilde{k}$

Pour obtenir la valeur qu'aura notre estimateur au prochain calcul MCNP effectué au temps $t + \Delta t$, nous effectuons une extrapolation linéaire des différents taux τ_i qui interviennent dans l'expression de $\tilde{k}$ à partir des valeurs de ces taux lors des précédents calculs MCNP. Le nombre de pas MCNP précédents à prendre en compte dans la régression linéaire est défini par l'utilisateur. Nous avons choisi d'en prendre en compte trois.

Nous supposons que les taux de réaction de type (n,xn) évoluent peu, ce qui est vérifié *a posteriori*, comme l'illustre la figure 2.6. Comme pour les pertes de neutrons par fuite (qui dépendent essentiellement de la géométrie, inchangée), les valeurs de ces taux dans l'expression de notre estimateur $\tilde{k}$ à $t = t + \Delta t$ sont conservées constantes et égales à leur valeur estimée par le calcul MCNP à t.

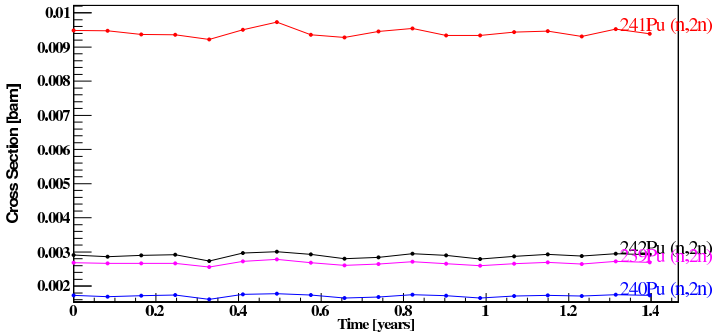


FIG. 2.6 – *évolution des valeurs moyennes des sections efficaces de réactions (n,2n) pour quelques isotopes du plutonium pour un cas de référence.*

Si on note $\overline{\tau_i(t + \Delta t)}$ toutes les valeurs extrapolées des différents taux $\tau_i(t)$, la valeur de $\tilde{k}$ cherchée à l'instant $t + \Delta t$ est donc :

$$\tilde{k}(t + \Delta t) = \frac{\overline{\tau_{\nu.fiss}(t + \Delta t)}}{\overline{\tau_{fiss}(t + \Delta t)} + \overline{\tau_{abs}(t + \Delta t)} - \tau_{(n,2n)} - 2 \times \tau_{(n,3n)} + \overline{\tau_{abs}^{bore}(t + \Delta t)} + P} \tag{2.29}$$

Maintien du facteur k à une valeur donnée k_0 : le contrôle du bore soluble dans le modérateur

Supposons qu'on veuille garde l'évolution du facteur k (k_∞ ou k_{eff} selon le cas) constant et égal à une valeur k_0 donnée (par exemple, la valeur du facteur k au début de l'irradiation). On note alors $\tau_{abs}^{bore}(t+\Delta t)_{k_0}$ la valeur de τ_{abs}^{bore} qui égalise notre estimateur $\tilde{k}\,(t+\Delta t)$ à la valeur souhaitée k_0 :

$$\tau_{abs}^{bore}(t+\Delta t)_{k_0} = \frac{\overline{\tau_{\nu.fiss}(t+\Delta t)}}{k_0} - (\,\overline{\tau_{abs}(t+\Delta t)} + \overline{\tau_{fiss}(t+\Delta t)} - \tau_{(n,2n)} - 2\times\tau_{(n,3n)} + P\,) \quad (2.30)$$

La proportion de bore qu'on cherche à établir au pas $t+\Delta t$ est donnée par N_{bore}, le nombre d'atomes de bore présents dans le modérateur :

$$N_{bore}(t+\Delta t) = \frac{\tau_{abs}^{bore}(t+\Delta t)_{k_0}}{(\tau_{abs}^{bore}(t)/N_{bore}(t))} \quad (2.31)$$

ce qui suppose que la section efficace moyenne d'absorption du bore reste constante ou varie peu entre t et $t+\Delta t$: ceci est également vérifié par le calcul.

Le seuil de tolérance d'écart à la valeur choisie du facteur k_{eff}

Cette modification de la quantité de bore présent dans le modérateur n'intervient que si l'estimateur $\tilde{k}\,(t+\Delta t)$ s'éloigne de la valeur k_0 par un écart qui est supérieur à δk_{eff}, l'incertitude statistique sur le facteur k estimé par MCNP. Si ce n'est pas le cas, la proportion de bore est laissée inchangée. La condition prise pour agir sur la valeur du bore dans l'eau est :

$$|\tilde{k} - k_0| > 2 \times \delta k_{eff} \quad (2.32)$$

ce qui nous permet d'avoir un intervalle de confiance de 95%, à l'intérieur duquel on choisit de ne pas modifier N_{bore}.

2.5 Valeurs par défaut prises pour ϵ_i, l'énergie déposée par fission pour les différents noyau lourds

Pour un noyau lourd donné, la valeur de ϵ_i, l'énergie déposée dans le réacteur (hors neutrinos) lorsqu'il fissionne est pertinente lorsqu'on simule une évolution à puissance constante. Le tableau 2.1 donne les valeurs de ϵ effectivement prises en compte dans MURE pour les noyaux des deux cycles du combustible, cycle thorium et cycle uranium.

Th 232	196,2 MeV
U 233	199,0 MeV
U 235	201,7 MeV
U 238	208,5 MeV
Pu 239	210,7 MeV
Pu 241	213,8 MeV

TAB. 2.1 – *Les différentes valeurs d'énergie déposée par fission considérées([30])*

MURE implémente toutefois une option pour court-circuiter ces valeurs prises par défaut et permet à l'utilisateur de fournir une distribution de valeurs s'il le désire.

2.6 MureGui : l'interface de visualisation des résultats

MureGui (d'après le sigle en anglais de *Graphical User Interface*) est un module extérieur couplé à MURE et qui gère la relecture des résultats des calculs d'évolution. Il s'est très vite avéré nécessaire de disposer d'un tel outil pour pouvoir exploiter et visualiser aisément l'évolution des inventaires de chaque isotope ainsi que les sections efficaces moyennes. *Trop d'information tue l'information* et pouvoir dégager les tendances de ces observables est essentiel lorsqu'on cherche à optimiser ou valider un calcul. Aujourd'hui MureGui permet de représenter graphiquement l'évolution de l'inventaire molaire ou massique pour chaque noyau dans l'arbre des noyaux, le flux neutronique moyen vu par chaque cellule et toutes les sections efficaces moyennes des réaction prises en compte dans l'évolution.

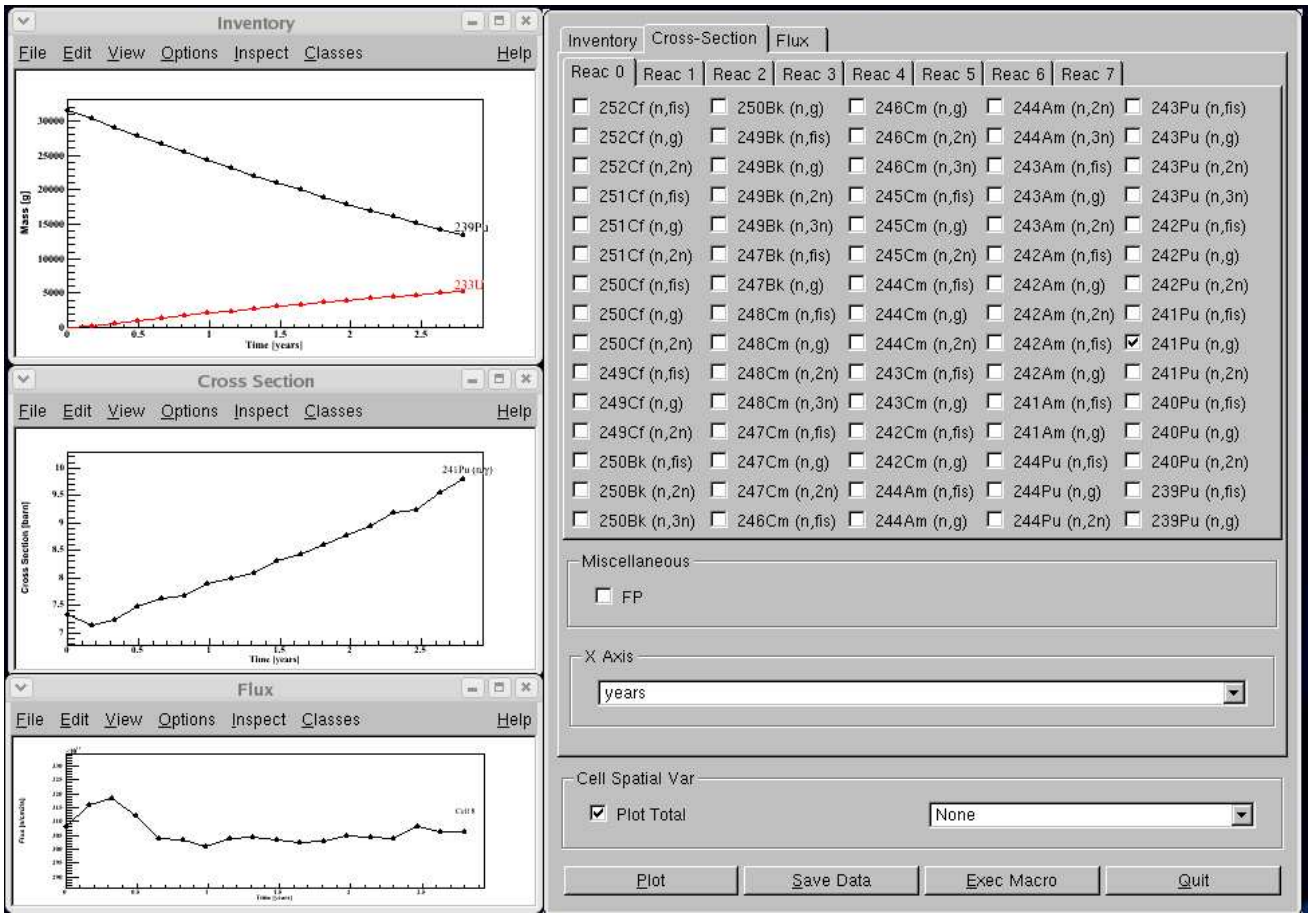


FIG. 2.7 – *Une vue d'une des interfaces graphiques d'exploitation des résultats* MURE *dans le module MureGui.*

Chapitre 3

Validation et optimisation du calcul d'évolution MURE

3.1 Introduction

Dans cette partie, nous présentons une synthèse de l'étude *benchmark* effectuée entre le code d'évolution Monte Carlo MURE et le code d'évolution déterministe Apollo2[68] utilisé à EDF R&D/ SINETICS, sur deux types de combustible, l'un à uranium enrichi (UOX), l'autre de type oxyde mixte thorium-plutonium (ThPu). Soulignons que les calculs Apollo ont été effectués par le département SINETICS de EDF R&D. Nous nous intéresserons aussi au choix des divers paramètres qui définissent un calcul d'évolution dans MURE en nous basant sur des résultats obtenus en calculs cellule ou assemblage (ces différentes géométries seront détaillées plus tard). Ces paramètres, on le verra, concernent la finesse avec laquelle on décrit la géométrie simulée. En calcul cellule, nous montrerons les différences qui existent entre un système à combustible à base d'uranium et un système à combustible à base de plutonium et les simplifications prises en conséquence.

Diverses sortes de découpages

Un concept qui reviendra souvent dans cette étude, sous diverses formes, est celui de *découpage*. Par *découpage en temps*, on parlera du choix des divers instants au cours de l'évolution où l'on souhaite effectuer un calcul MCNP[1]. On parlera aussi de *découpage de la géométrie simulée* lorsqu'on souhaitera mettre en évidence (et tenir compte !) des valeurs intégrales d'observables qui varient selon les dimensions du problème, comme par exemple le flux de neutrons moyen intégré en énergie. Si, par exemple, on veut obtenir le profil du flux moyen au niveau du cœur

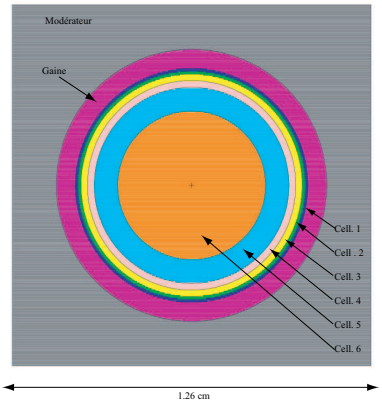
[1] A ne pas confondre avec les pas "R.K" définis précédemment, intermédiaires aux calculs MCNP.

du réacteur, selon la hauteur à laquelle on se place, ou le profil de densité de certains isotopes à l'intérieur du crayon, on parlera alors d'un découpage du cœur en tranches horizontales ou d'un découpage du crayon en couronnes internes. Un tel découpage sera nécessaire pour suivre l'évolution spatialement hétérogène de la composition du combustible pendant l'irradiation.

En calcul assemblage nous étudierons la pertinence, pour notre simulation, d'une différentiation des crayons combustible en *types de crayon* selon leur position dans l'assemblage (par exemple, selon que ceux-ci soient proches ou non d'un *"tube d'eau"* ou l'emplacement dans l'assemblage prévu pour les barres de contrôle ou de poison consommable). Nous nous intéresserons aussi, toujours pour des calculs en modèle assemblage, au choix du découpage en temps pour nos calculs ThPu. Parmi les critères adoptés pour retenir l'un de ces choix il y aura la bonne convergence du calcul d'évolution. D'autre part, dans la mesure du possible nous choisirons toujours la configuration la plus économe en temps de calcul, paramètre restrictif bien connu des méthodes de simulation Monte Carlo aujourd'hui.

3.2 La géométrie cellule

Nous considérons ici l'évolution d'un seul crayon combustible. Ce calcul simple permet de mettre en évidence plusieurs effets ou ordres de grandeur caractéristiques du combustible ThPu qu'il convient d'évaluer, préalablement à l'étude d'une géométrie plus complexe, ainsi que d'apprécier les différences intrinsèques qu'existent avec un combustible à base d'uranium.



(a)

couronne	Rayon extérieur (mm)
1	4.09500
2	3.99131
3	3.88486
4	3.66268
5	3.42612
6	2.58991

(b)

FIG. 3.1 – *Géométrie "cellule". (a) Le crayon combustible, entouré de sa gaine, est découpé en six couronnes. (b) Rayons externes des couronnes.*

3.2.1 Benchmark avec le code Apollo

La comparaison des deux codes d'évolution est effectuée sur un calcul cellule dit *en milieu infini*. La cellule carrée est alors le motif d'un réseau carré répété à l'infini. Pour le transport MCNP, la particule parvenant aux parois de la cellule est réfléchie vers l'intérieur de façon spéculaire. Nous avons adopté pour le découpage en couronnes internes du crayon combustible, le même découpage qu'utilise le code Apollo pour tenir compte des effets d'autoprotection des résonances (nous reviendrons longuement sur les effets d'autoprotection). La cellule combustible est découpée radialement en 6 couronnes intérieures comme le montre la figure 3.1. Nous discuterons de l'importance d'un tel découpage pour les codes Monte Carlo par la suite.

Bases de données utilisées

A l'exception de quelques fragments et produits de fission, tous les noyaux sont pris dans JEFF 2.2, à une température de 300 K. Dans tous les cas et selon disponibilité, l'ordre de priorité des fichiers à prendre pour chaque noyau dans notre base de données a été :

- JEFF 2.2, 3.0 ou 3.1, puis
- ENDF 6.8, 6.1 ou 5.0, puis
- JENDL 3.3

Nous avons aussi effectué les calculs MURE avec la base JEFF 3.1, ce qui nous permet de comparer au cas JEFF 2.2.

3.2.1.1 Résultats du calcul UOX

Le combustible considéré est du dioxyde d'uranium, enrichi à 3.7%(massique) en ^{235}U. La densité de puissance définie pour ce calcul est la moyenne de celle d'un REP-900 (2700 MWth), c'est-à-dire 338W par cm^3 de combustible. L'eau du modérateur contient 600 ppm de bore naturel dissous.

Evolution du facteur de multiplication k_∞

Le facteur de multiplication k_∞ a été estimé en utilisant 3000 neutrons source par cycle, une source étendue de points de fission et 65 cycles actifs. Avec cette statistique, l'incertitude autour du facteur de multiplication estimée par MCNP est d'environ 200 pcm. La durée de calcul de chaque tâche MCNP est alors d'environ 3 heures sur un monoprocesseur XEON 2.7 GHz. La figure 3.2 et le tableau 3.1 montrent les résultats. L'écart observé entre les deux codes présente des différences de l'ordre de 600 pcm à partir du pas correspondant à 4GWj/t.

GWJ/T	$k_\infty^{\text{MURE (JEFF 2.2)}}$	k_∞^{apollo}	$\Delta = (k_\infty^{\text{MURE}} - k_\infty^{apollo})/k_\infty^{\text{MURE}}$ (pcm)
0	1.3228	1.320	170
0,150	1.2774	1.275	179
0,500	1.2717	1.267	369
1	1.2615	1.260	113
2	1.2476	1.248	-96
4	1.2302	1.224	420
6	1.2081	1.200	600
10	1.1642	1.155	705
15	1.1152	1.108	558
20	1.0738	1.064	846
25	1.0305	1.024	595
30	0.9951	0.987	794
33	0.9682	0.966	199
40	0.9318	0.921	1104

TAB. 3.1 – *Calcul UOX : Comparaison de l'évolution du facteur k_∞ calculé par* MURE *par rapport au calcul Apollo. L'erreur statistique dans le calcul* MURE *est d'environ 200 pcm.*

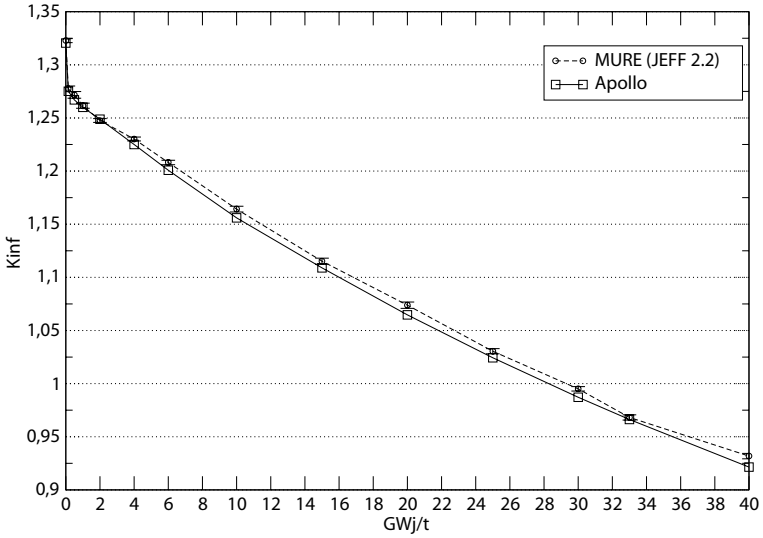


FIG. 3.2 – *Calcul UOX : Evolution du k_∞ pour les deux codes. Les écarts dépassent l'incertitude autour du calcul* MURE *et sont attribués à la prise en compte, dans ce calcul* MURE*, d'une valeur de ϵ pour le ^{239}Pu égale à 200MeV.*

Evolution des inventaires des noyaux dans les différentes couronnes du crayon

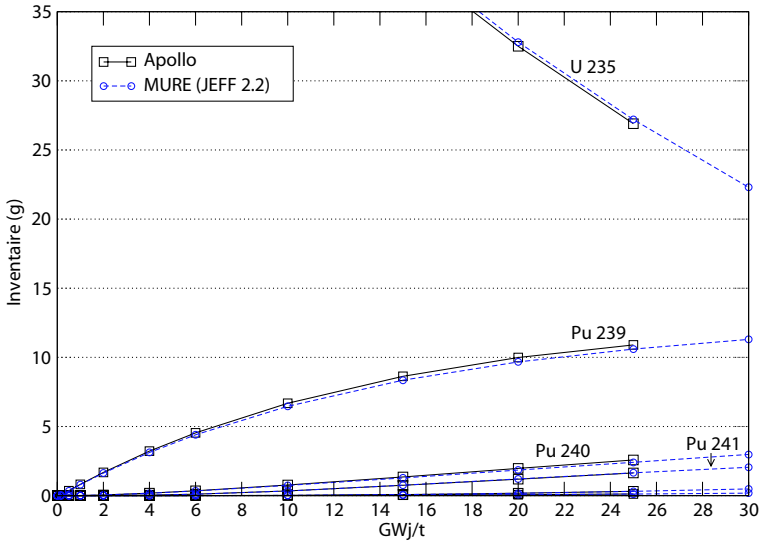


FIG. 3.3 – *Evolution des inventaires totaux de U et Pu pour les deux codes un écart de 3% sur l'inventaire de ^{239}Pu est mis en évidence.*

La figure 3.4 illustre, dans le cas du combustible UOX, pour les isotopes du plutonium et

de l'uranium, l'évolution en fonction du taux de combustion de l'écart entre les deux codes sur l'inventaire pour les couronnes externes et internes du crayon.

Nous constatons que, par rapport au calcul Apollo, MURE sous-estime l'inventaire en ^{239}Pu d'environ 3% dès le premier pas de burnup, l'écart constaté reste ensuite à cette valeur pendant le reste de l'évolution (fig 3.3). L'écart maximum constaté sur l'^{235}U est d'environ 1%. Cette différence provient d'avoir pris, dans le calcul MURE, une valeur pour ϵ, l'énergie libérée par fission, pour la valeur du ^{239}Pu de 200 MeV. La valeur de ϵ pour le ^{239}Pu en spectre thermique est cependant d'environ 210 MeV. La simulation étant faite à puissance constante on s'attend donc à faire environ 5% de plus de fissions de plutonium dans le calcul MURE pour la même contribution en puissance de ce noyau à la puissance totale. Ceci est compatible avec l'ordre de grandeur et le signe de l'écart observé. Les écarts observés sur les isotopes supérieurs du plutonium, formés par capture, sont conséquence de l'ecart sur le ^{239}Pu . Les valeurs des énergies par fission dans MURE ont été implémentés depuis et correspondent pour toute la suite, à celles correspondant à chaque noyau.

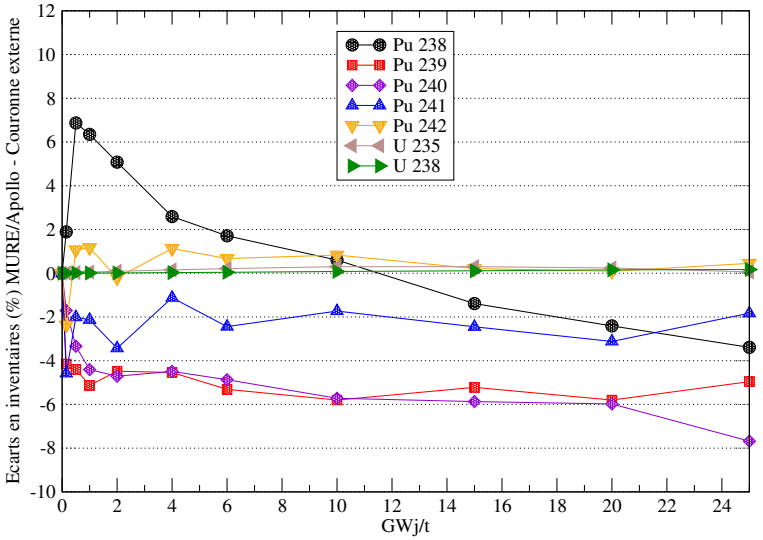
L'évolution du flux à puissance constante

A puissance constante, on observe une augmentation de la valeur du flux intégré (flux *à un groupe*) sur l'ensemble des cellules pendant le *burnup*. En effet, afin de stabiliser la puissance P et maintenir un taux de fission constant $N_{fiss}\sigma_{fiss}\phi\,\epsilon = P$, la valeur du flux moyen ϕ doit compenser la variation $N_{fiss}\sigma_{fiss}$, qui décroît du fait de la consommation progressive de la matière fissile.

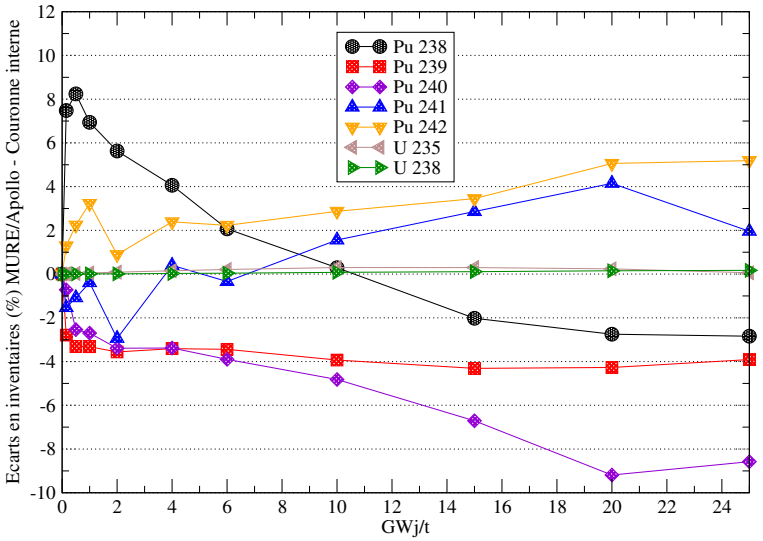
Il faut tenir compte de ce que la concentration de bore dans l'eau est gardée constante pendant le burnup dans ce calcul, ce qui amplifie cette augmentation du flux par rapport à une situation plus réaliste où les poisons neutroniques sont consommés et/ou filtrés dans le modérateur (ce qui est le cas du bore soluble). Le tableau 3.2 détaille la contribution des principaux noyaux fissiles ; il permet de comprendre pourquoi dans ce calcul une telle augmentation du flux est attendue : en fin de burnup la concentration en teneur fissile a diminué presque de moitié.

MWj/t	$\sigma^{\mathrm{Pu239}}_{(n,f)}$ (b)	$\sigma^{\mathrm{Pu241}}_{(n,f)}$ (b)	$\sigma^{\mathrm{U235}}_{(n,f)}$ (b)	N_{239} (mol.)	N_{241} (mol.)	N_{235} (mol.)	$<\phi>$ (n/cm ^{2} /s)
150	89	92	39	$2,4.10^{-4}$	$5,7.10^{-9}$	$2,7.10^{-1}$	$2,9.10^{14}$
33000	72	81	37	$4,8.10^{-2}$	$9,7.10^{-3}$	$8,0.10^{-2}$	$4,3.10^{14}$

TAB. 3.2 – *Calcul* UOX *: pendant l'irradiation les isotopes fissiles ^{239}Pu et ^{241}Pu sont créés. Bien que leur section efficace de fission soit nettement plus importante que celle de l'^{235}U, l'intensité du flux moyen doit néanmoins augmenter pour compenser la consommation globale de matière fissile.*



(a) Ecarts en inventaire du calcul MURE sur la couronne externe



(b) Ecarts en inventaire du calcul MURE sur la couronne interne du crayon, par rapport au calcul Apollo

FIG. 3.4 – *Calcul* UOX *: écart observé entre l'estimation des inventaires (a) pour la couronne externe du crayon (b) pour la couronne interne du crayon. Pour les isotopes significatifs de U et Pu, aucun écart supérieur à 9% n'est observé.*

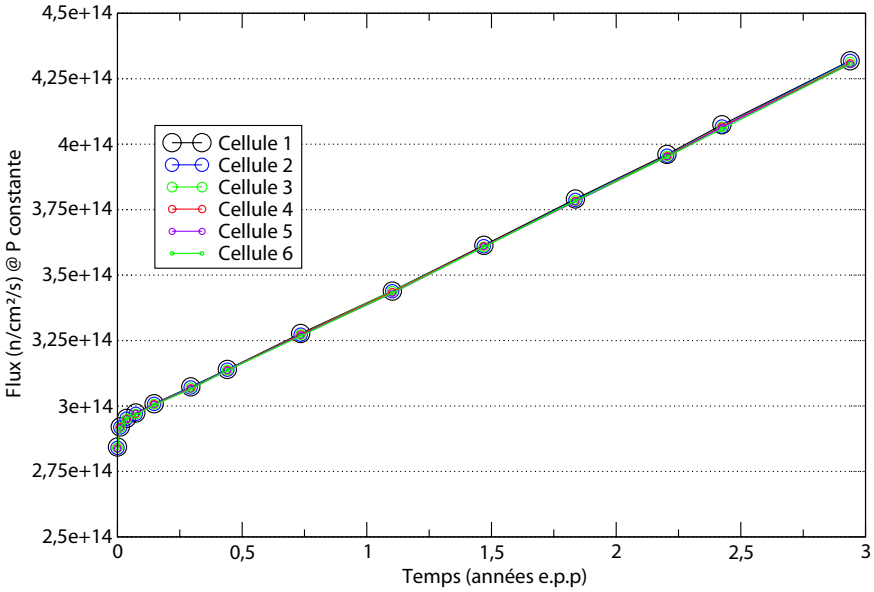


FIG. 3.5 – *Calcul* UOX *: Variation du flux integré dans chaque cellule lors de l'évolution du combustible. L'intégrale du flux dans les différentes couronnes est la même.*

3.2.1.2 Résultats du calcul ThPu

En adoptant la même configuration géométrique et la même densité de puissance, nous simulons maintenant l'évolution d'un combustible d'oxyde mixte thorium-plutonium. La comparaison se fait sur les mêmes pas d'irradiation définis dans le calcul UOX.

Définition du combustible utilisé

Le vecteur isotopique du plutonium utilisé est comparable à celui du type de plutonium qu'on extrait d'un combustible UOX irradié : il est donné dans le tableau 3.3. La concentration massique de plutonium (tous isotopes confondus) dans l'oxyde est de 9,22%[2]. La masse volumique du combustible $ThPuO_2$ est de 10.151 g/cm^3. Cette teneur en plutonium est représentative du combustible ThPu issu d'un combustible UOX qu'on étudiera plus tard (c.f. chapitre 4).

Isotope	% *massique*
Pu 238	2,68%
Pu 239	55,78%
Pu 240	25,98%
Pu 241	7,47%
Pu 242	7,38%
Am 241	0,71%

TAB. 3.3 – *Vecteur isotopique du plutonium. La teneur en isotope 239 supérieure à 50 % signe un plutonium extrait d'un combustible* UOX *conventionnel usé. L'américium provient de la décroissance du* ^{241}Pu. *La quantité de* ^{241}Am *présent dans le combustible permet d'estimer à environ 2 ans la période de refroidissement du combustible aprés séparation du plutonium. Le combustible simulé a une teneur de 9.22% en masse de ce vecteur isotopique.*

Spectres à 172 groupes

Bien que MURE , au travers de MCNP , utilise un traitement *à énergie continue* pour le transport probabiliste des neutrons, on peut calculer avec MCNP des spectres neutroniques *multigroupes*. Ceci revient à faire un histogramme de la population neutronique dans une cellule donnée en groupes d'énergie déterminés. Les calculs effectués par le code Apollo dans ce benchmark utilisent un traitement multigroupe à 172 groupes d'énergie. Afin de comparer les spectres

[2]Ce pourcentage équivaut à une valeur de 10,5% en masse de noyaux lourds.

de neutrons avec ceux pris en compte par les codes déterministes comme Apollo, nous donnons ici ces spectres à 172 groupes calculés par les deux codes. La figure 3.6 les illustre pour le premier pas d'irradiation. Nous constatons dans le groupe autour de 1 eV (groupe de la résonance du ^{240}Pu) du spectre Apollo calculé dans la deuxième couronne du crayon combustible, une anomalie (remontée brusque du spectre à cette énergie) qui n'est pas reproduite pour les autres couronnes.

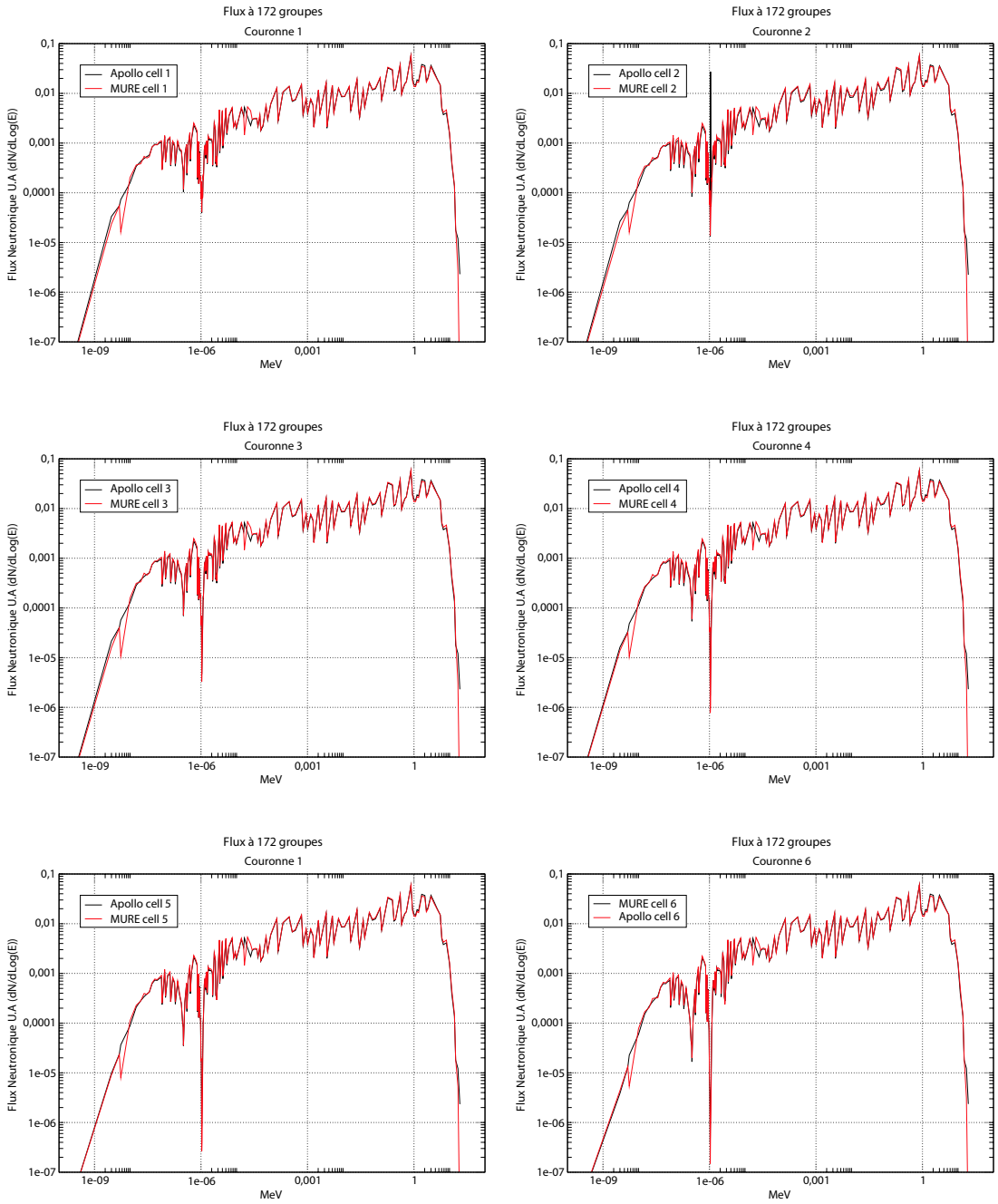


FIG. 3.6 – *Calcul ThPu – Comparaison* MURE / *Apollo : Spectre à 172 groupes d'énergie au début de l'irradiation.*

Evolution du facteur de multiplication k_∞

La figure 3.7 donne l'évolution du facteur k_∞ pour les deux codes. Le tableau 3.4 détaille les valeurs et l'écart constaté entre les deux codes. Avec la statistique du calcul MURE , l'incertitude sur la valeur du facteur k_∞ donnée par MCNP est d'environ 200 pcm. L'évolution du k_∞ dans le calcul MURE (JEFF 2.2) s'écarte de plus de 500 pcm (soit plus de deux fois l'incertitude statistique du calcul MURE) des valeurs Apollo pour des pas d'irradiation supérieurs à 25 GWj/t. L'accord semble meilleur avec les calculs MURE (JEFF 3.1) où cet écart est moindre à cette hauteur de l'évolution.

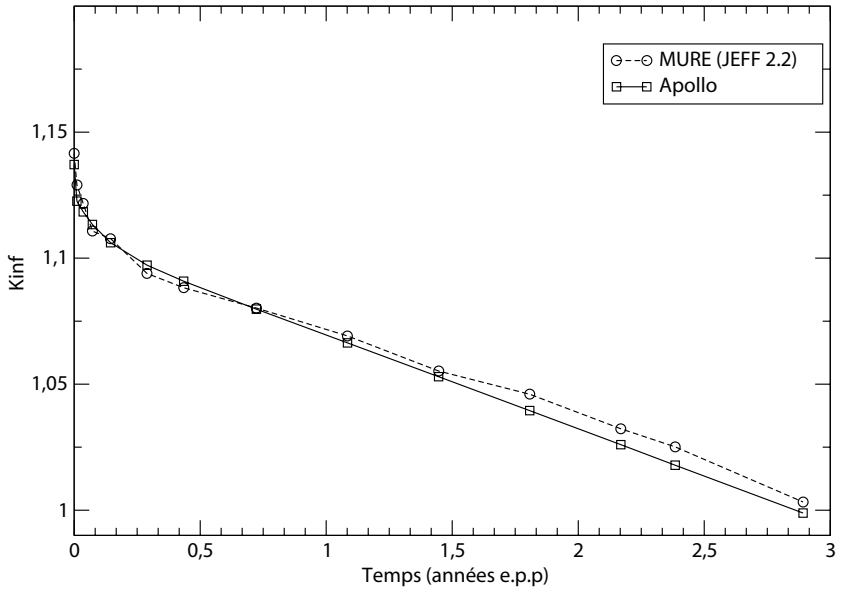


FIG. 3.7 – *Evolution du k_∞ dans le calcul ThPu MURE(JEFF 2.2) et Apollo.*

Le détail des écarts observés sur les différentes couronnes du crayon pour la plupart des actinides à vie longue est reporté à l'annexe A afin de ne pas alourdir inutilement la lecture ici. Les figures 3.8 et 3.9 illustrent les écarts, en pourcentage, constatés sur les inventaires totaux (somme sur toutes les couronnes).

Soulignons tout de même que, par rapport au cas du combustible UOX, les principaux isotopes du plutonium évoluent ici à partir d'une quantité non nulle au début de l'irradiation. Lorsqu'on regarde un écart relatif sur l'inventaire d'un noyau qui évolue à partir d'une quantité nulle ou infinitésimale, la comparaison est artificiellement faussée du fait de l'importance des écarts par rapport à l'inventaire initial. Le cas ThPu contient quant à lui une quantité importante et bien définie de plutonium dès le début de l'irradiation pour les deux codes, bien entendu. D'une part ceci aura comme conséquence d'estimer un écart relatif moins important, d'une autre part les

GWJ/T	k_∞^{apollo}	$k_\infty^{\text{MURE JEFF 2.2}}$	$k_\infty^{\text{MURE JEFF 3.1}}$	Δ (JEFF 2.2) (pcm)	Δ (JEFF 3.1) (pcm)
0	1.137	1.139	1.135	190	-229
0.150	1.123	1.129	1.118	570	-379
0.500	1.118	1.122	1.112	294	-561
1	1.113	1.111	1.112	-235	-166
2	1.106	1.108	1.099	145	-517
4	1.097	1.094	1.098	-302	35
6	1.091	1.088	1.088	-238	-263
10	1.080	1.080	1.077	42	-216
15	1.066	1.069	1.065	258	-128
20	1.053	1.055	1.053	212	-43
25	1.040	1.046	1.041	621	102
30	1.026	1.032	1.025	611	-84
33	1.018	1.025	1.019	710	103
40	0.999	1.003	1.002	438	290

TAB. 3.4 – *Calcul ThPu : Comparaison de l'évolution du facteur k_∞ calculé par* MURE *et par Apollo, l'ecart donné est $\Delta = (k_\infty^{MURE} - k_\infty^{apollo})/k_\infty^{MURE}$. L'erreur statistique dans le calcul* MURE *est d'environ 200 pcm.*

valeurs moyennes des sections efficaces du plutonium seront, dès le départ, autoprotégées, ce qui peut favoriser un meilleur accord entre les deux codes sur ces valeurs moyennes dès le début de l'évolution.

En ce qui concerne l'évolution de l'inventaire des noyaux initialement présents, on constate qu'il existe une discrépance de 1% dans l'inventaire de ^{242}Pu initial entre les deux calculs. Pour les autres noyaux du combustible nous observons cependant un accord satisfaisant : les écarts entre les deux codes restent inférieurs à 2%, à l'exception du ^{238}Pu . Pour ce noyau on a environ 8% d'écart sur l'inventaire total en fin d'irradiation. La production de ce noyau se fait par décroissance α de ^{242}Cm, lui même produit par décroissance β (16h) de ^{242}Am et est donc très sensible aux écarts constatés sur ce noyau. Sur l'inventaire d'^{233}U, l'écart entre les deux codes est inférieur 1% en fin d'irradiation.

Dans le cas des actinides mineurs, les inventaires de Am et Cm présentent des différences importantes qui peuvent aller jusqu'à 20%. Ces écarts sont cependant comparables aux écarts constatés entre deux calculs MURE effectués en prenant deux bases de données différentes (JEFF/ENDF et JENDL/ENDF). Cette comparaison entre différentes bases de données, pour

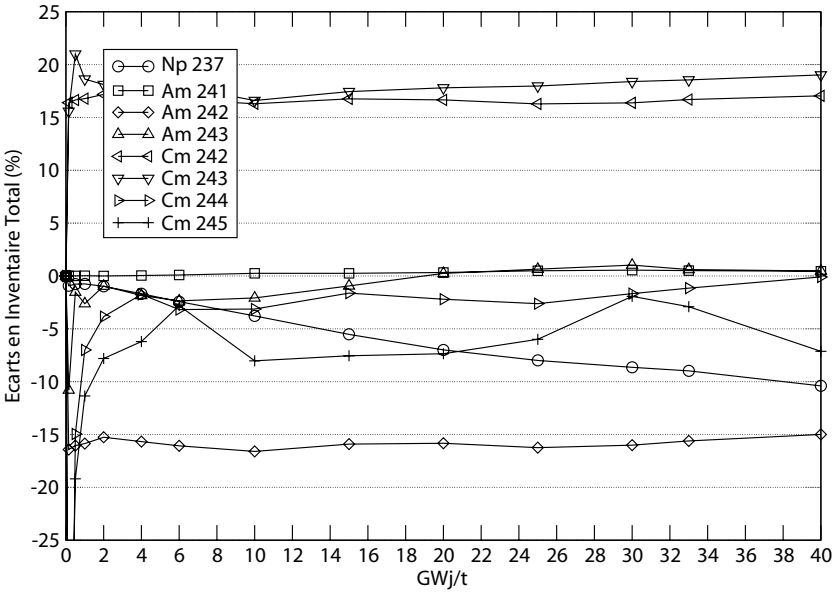


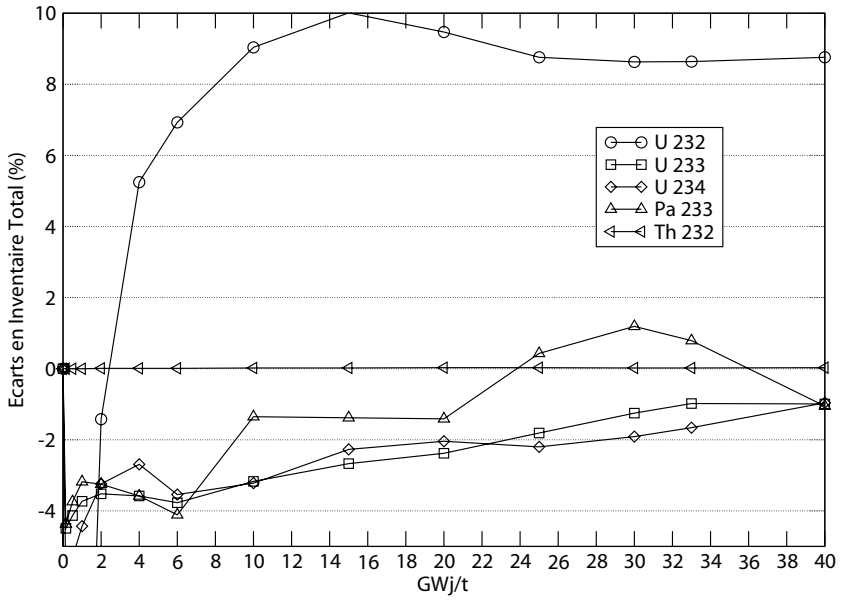
FIG. 3.8 – *Evolution des écarts sur l'inventaire total dans le calcul ThPu* MURE *(JEFF 2.2) et Apollo.*

le calcul MURE, est abordée plus loin.

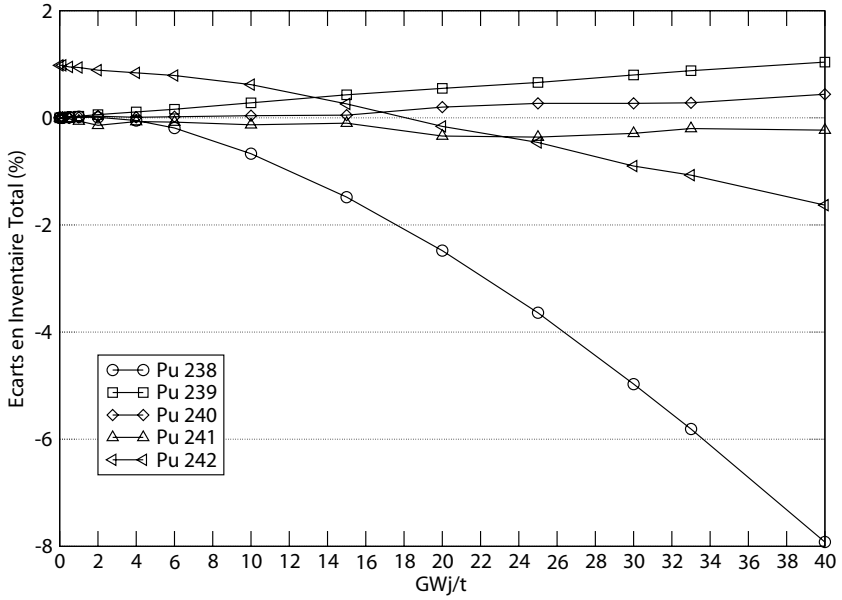
Le cas de ^{242m}Am présente un écart d'environ 15% qui reste constant pendant l'évolution : un tel écart peut être en partie attribué à la prise en compte d'un rapport de branchement ^{241}Am$+n \rightarrow^{242m}$Am différent pour les deux codes. Il est de 10% dans le calcul MURE . L'écart observé sur la production d'^{242m}Am se répercute donc sur l'inventaire des isotopes de Cm à partir du ^{242}Cm ; on constate effectivement que l'écart de -15% sur ^{242m}Am est traduit par un écart de +15% sur ^{242}Cm qui se repercute sur ^{243}Cm et isotopes supérieurs.

L'évolution du flux à puissance constante

La figure 3.10 illustre l'évolution du flux moyen pour toutes les cellules du crayon en fonction du taux de combustion. La variation du flux moyen par cellule pendant l'évolution est cependant nettement moins importante que dans le cas UOX . L'augmentation imposée sur ϕ par le fait de simuler une puissance constante, est dans ce cas effectivement *amortie* par l'augmentation des valeurs σ_{fiss}, conséquence de la moindre autoprotection des sections efficaces, car dans ce cas le plutonium est consommé. Lors de l'évolution, la consommation des isotopes fissiles du plutonium aura tendance à améliorer la partie thermique du spectre, et donc à augmenter les valeurs moyennes des sections efficaces de fission. Le tableau 3.5 explicite les différentes quantités intervenant dans l'expression du taux de fission pour les principaux noyaux fissiles du combustible



(a)



(b)

FIG. 3.9 – *Calcul ThPu – Comparaison des calculs* MURE *(JEFF 2.2) et Apollo : Evolution des écarts sur l'inventaire total des isotopes de Th, Pa, U et Pu.*

ThPu vers le début et la fin de l'irradiation.

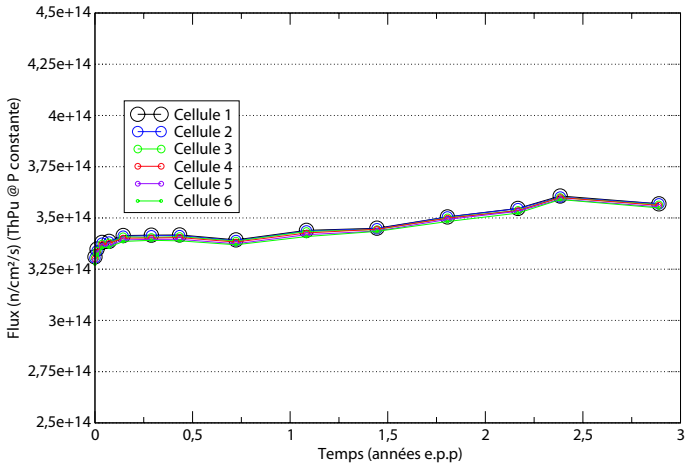


FIG. 3.10 – *Calcul ThPu : Variation du flux integré dans le calcul* MURE *pour chaque cellule lors de l'évolution du combustible à puissance constante.*

MWj/t	$\sigma^{\mathrm{Pu239}}_{(n,f)}$ (b)	$\sigma^{\mathrm{Pu241}}_{(n,f)}$ (b)	$\sigma^{\mathrm{U233}}_{(n,f)}$ (b)	N_{239} (mol.)	N_{241} (mol.)	N_{233} (mol.)	$< \phi >$ (n/cm ^{2} /s)
150	18	27	24	$0,42$	$5.6.10^{-2}$	$2.4.10^{-5}$	$3.3.10^{14}$
33000	23	29	23	$0,19$	$8.0.10^{-2}$	$7.7.10^{-2}$	$3.6.10^{14}$

TAB. 3.5 – *Calcul ThPu : la variation de l'intensité du flux calculée par* MURE *à puissance constante pendant l'évolution est faible : les isotopes du plutonium sont consommés : leur section efficace de fission croît significativement et compense sensiblement la consommation de matière fissile, tout en générant de l'*^{233}U *qui est un excellent noyau fissile.*

Conclusion sur la convergence des résultats des calculs MURE et Apollo

Pour l'estimation des observables qui nous intéressent, notamment les inventaires des divers isotopes du plutonium et de l'uranium en combustible ThPu, l'accord entre les deux codes est très satisfaisant, la figure 3.11 donne l'évolution de ceux-ci. Les deux codes, l'un probabiliste, l'autre déterministe, abordent l'évolution du système de manière très différente. La manipulation de ces codes n'est pas aisée et des légers décalages des paramètres effectivement simulés ne sont pas inconcevables, notamment le taux de combustion, la puissance effectivement simulés, ou les valeurs des chaleurs de fission effectivement prises en compte pour chaque noyau. La comparaison reste délicate du fait que certaines sections efficaces prises en compte ne sont pas rigoureusement

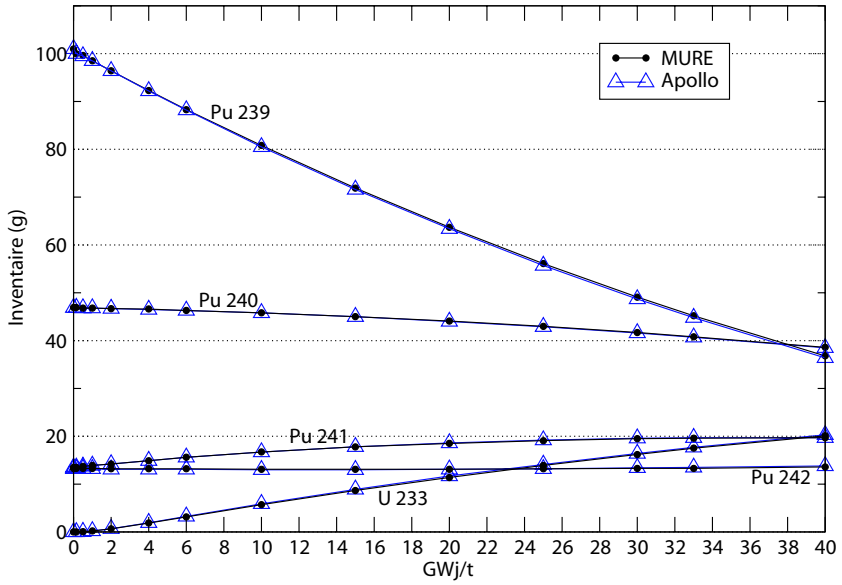


FIG. 3.11 – *Evolution des Inventaires de Pu et ^{233}U pour les deux codes.*

identiques pour les deux codes ici comparés. Soulignons enfin que la bibliothèque de bases de données utilisée par Apollo est une version basée sur la librairie JEFF 2.2 qui implémente des modifications adaptées pour ce code.

3.3 Estimation de l'erreur statistique induite sur les inventaires

Notre étude cherche à estimer plusieurs observables et à simuler leur évolution. Au premier rang de ces observables se trouvent les inventaires pour chaque isotope du combustible ainsi que les coefficients de réactivité du système simulé, qui valident un choix particulier de combustible. Il est donc important de chercher à évaluer l'erreur statistique dont ces observables seront entachées.

Nous nous proposons dans cette partie de quantifier l'incertitude statistique qui existe dans le calcul d'évolution MURE sur l'estimation de l'inventaire de chaque noyau. Pour ce faire, une manière directe, bien que gourmande en temps de calcul, est d'effectuer à répétition le même calcul d'évolution, en prenant soin de changer de germe stochastique à chaque fois qu'un nouveau calcul MCNP est lancé. Le code MCNP permet à l'utilisateur de fournir en tant que paramètre du calcul, un nombre aléatoirement tiré selon une loi uniforme que MCNP utilise ensuite pour déterminer le germe stochastique du calcul probabiliste de transport de neutrons.

Nous avons appliqué cette méthodologie à l'étude des erreurs statistiques induites sur l'étude des deux combustibles, UOX et ThPu, afin d'avoir un premier aperçu des différences intrinsèques qui existent entre les deux types de combustible. Dans les deux cas, l'évolution a été faite en géo-

métrie cellule homogène (sans découpage du crayon), en effectuant une cinquantaine de calculs.

Nous obtenons ainsi une cinquantaine de valeurs différentes pour l'inventaire de chaque noyau à chaque pas de temps. Une méthode incorporée à MURE [3] permet de tracer le spectre des inventaires pour chaque noyau et d'en extraire ainsi l'écart type. C'est cet écart type qui est pris ici comme incertitude statistique. La valeur annoncée comme inventaire est la valeur moyenne de l'ensemble des valeurs. La figure 3.12 illustre la méthode sur le calcul de l'inventaire du noyau ^{240}Pu en calcul cellule UOX.

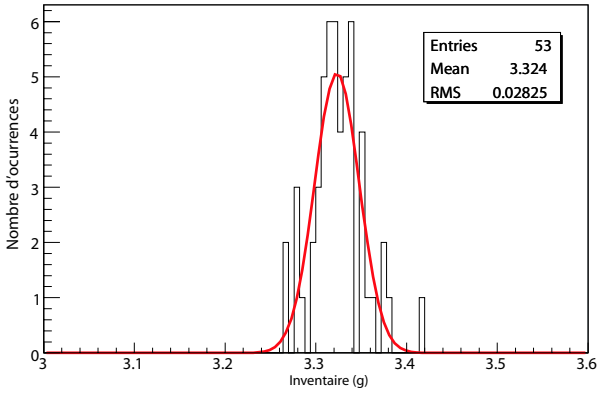


FIG. 3.12 – *Calcul UOX. Estimation de la valeur moyenne de l'inventaire du noyau ^{240}Pu à un* burnup *donné (ici 25GWj/t). Cette estimation prend en compte 53 évolutions calculées avec des germes stochastiques différents. L'écart type de cet ensemble de valeurs, qu'on donnera comme erreur statistique pour cet inventaire à cette valeur du burnup, est ici de l'ordre de 0.8% de la valeur de l'inventaire moyen.*

Propagation de l'incertitude statistique sur l'inventaire le long de l'arbre des noyaux

Une fois cet ajustement par une gaussienne effectué pour tous les histogrammes d'inventaires du problème nous pouvons mettre en évidence le couplage qui existe entre les erreurs induites à chaque pas du *burnup* sur l'inventaire des différents noyaux du système. Cette erreur dépend fortement, pour un noyau donné, de l'accumulation des erreurs statistiques sur l'inventaire des noyaux qui le précèdent le long d'une ligne de l'arbre des noyaux.

La figure 3.13 illustre bien ces relations pour le calcul UOX : l'incertitude statistique est quasiment nulle sur l'inventaire de ^{238}U dont la valeur est donnée initialement et croît lorsqu'on s'éloigne en nombre de masse de celui-ci. Pour un noyau donné, créé lors de l'évolution, on observe

[3] Et qui utilise toutefois les fonctionnalités du code Root.

ce à quoi l'on s'attend intuitivement : l'erreur statistique sur l'inventaire se superpose à celle qui existe sur l'inventaire du noyau *père* qui lui donne naissance. Le tableau 3.6 donne ces erreurs statistiques pour les principaux actinides à 5 instants de l'évolution. On voit que le calcul est stable : pour le dernier pas considéré (40 GWj/t), l'incertitude statistique propagée est inférieure à 2% pour quasiment tous les noyaux.

On remarquera, sur ce même tableau, que même à puissance constante, l'évolution du calcul UOX donne une fluctuation statistique sur l'inventaire de l'^{235}U dont l'inventaire est bien défini à l'instant initial : ce léger décalage est dû aux fluctuations des autres noyaux (^{239}Pu , ^{241}Pu principalement) dont les fissions contribuent aussi à la puissance, constante, qu'on simule.

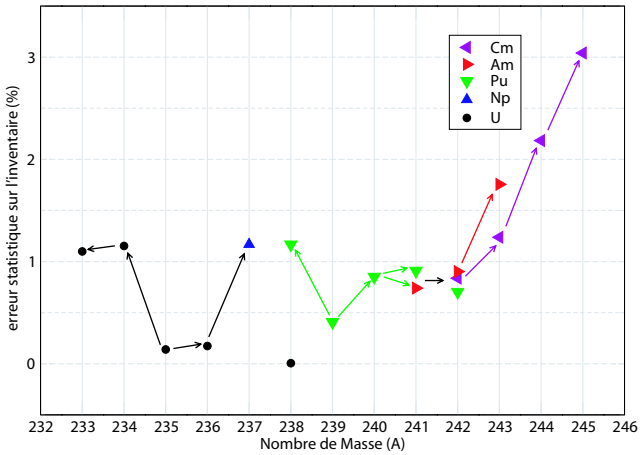


FIG. 3.13 – *Propagation des erreurs statistiques sur les inventaires le long de l'arbre des noyaux à un* burnup *donné (ici 25GWj/t) pour un calcul cellule* UOX *homogène. Les actinides présents au début de l'irradiation sont l'^{235}U et l'^{238}U. Les flèches représentent les réactions neutroniques et donc la (une des) chaîne de formation.*

Existence d'une erreur systématique sur le facteur de multiplication k

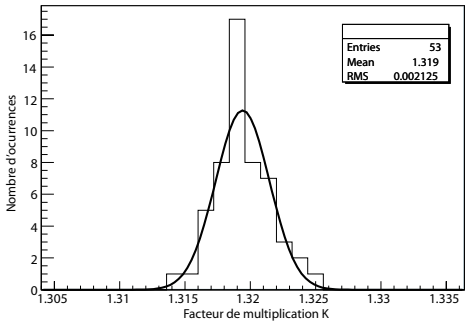
De manière analogue à l'analyse faite précédemment sur les inventaires des noyaux, nous pouvons vérifier sur l'ensemble des calculs cellule effectués avec des germes stochastiques différents, que les fluctuations observées sur les diverses estimations de k sont compatibles avec l'erreur statistique annoncée par MCNP , c'est-à-dire autour de 200 pcm pour la statistique choisie dans chaque calcul. Sur la cinquantaine de valeurs estimées à chaque pas d'évolution, nous évaluons la

	150 Mwj/t	10 Gwj/t	20 Gwj/t	33 Gwj/t	40 Gwj/t
^{244}Cm	3.83%	3.69%	2.44%	1.97%	1.35%
^{243}Cm	2.68%	2.30%	1.61%	1.12%	1.26%
^{242}Cm	2.21%	1.32%	1.02%	0.71%	0.48%
^{243}Am	3.62%	3.50%	2.37%	1.47%	1.72%
^{242*}Am	2.21%	1.33%	1.08%	0.81%	0.61%
^{242}Am	2.21%	1.42%	1.29%	1.10%	1.16%
^{241}Am	2.06%	1.48%	0.94%	0.67%	0.50%
^{242}Pu	2.09%	1.45%	0.94%	0.63%	0.60%
^{241}Pu	2.06%	2.27%	1.04%	0.68%	1.02%
^{240}Pu	0.66%	1.12%	0.84%	0.72%	0.85%
^{239}Pu	0.52%	0.39%	0.46%	0.41%	0.48%
^{238}Pu	3.65%	1.55%	1.20%	1.09%	0.91%
^{237}Np	3.70%	1.71%	1.48%	1.08%	0.97%
^{238}U	$< 0.01\%$	$< 0.01\%$	$< 0.01\%$	$< 0.01\%$	0.01%
^{237}U	3.66%	4.46%	3.30%	2.08%	2.74%
^{236}U	0.16%	0.14%	0.18%	0.17%	0.17%
^{235}U	0.00%	0.02%	0.10%	0.17%	0.22%
^{234}U	2.99%	1.74%	1.33%	1.06%	0.90%
^{233}U	3.63%	1.38%	1.12%	1.05%	0.90%
^{232}U	0.41%	0.45%	0.23%	0.19%	0.23%

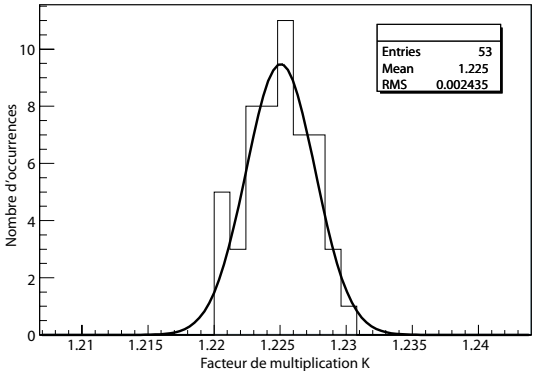
TAB. 3.6 – *Cellule* UOX *: évolution pendant le* burnup *des incertitudes statistiques sur les inventaires totaux des principaux actinides dans le calcul* MURE.

dispersion observée autour de la valeur moyenne de k, pour tous les pas d'irradiation. La figure 3.14 illustre ceci sur le cas UOX.

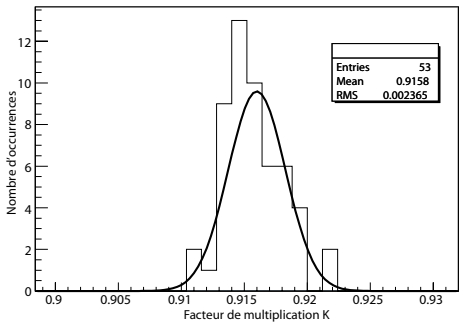
La dispersion de la distribution des valeurs de k semble s'accroître pendant l'évolution mais reste toutefois compatible avec l'incertitude de 200 pcm donnée par MCNP . Cette considération simple nous permet de vérifier qu'une éventuelle propagation d'une erreur *systématique* sur l'évolution du facteur k, qui serait introduite lors du calcul d'évolution par le fait que le système a évolué à partir d'un état dont le facteur k est très légèrement différent est en pratique indiscernable de la fluctuation statistique existante.



(a) 0 GWj/t : $\sigma_k = 160pcm$



(b) 4GWj/t : $\sigma_k = 200pcm$



(c) 40GWj/t : $\sigma_k = 250pcm$

FIG. 3.14 – *Calcul* UOX *: spectres des différentes valeurs du facteur k pour trois valeurs de* burnup *obtenus à partir de 53 calculs d'évolution identiques à un germe stochastique près. La fluctuation statistique observée sur k à chaque pas est compatible avec une valeur d'environ 250 pcm. La valeur annoncée par* MCNP *pour chaque calcul est de 200 pcm.*

3.4 La modélisation de l'hétérogénéité du crayon combustible est-elle nécessaire ?

Dans quelle mesure modéliser de façon homogène un crayon combustible, dont la composition évolue de façon spatialement hétérogène, reste une approximation correcte ? En d'autres termes, faut-il prendre en compte un *découpage* en couronnes du crayon pour les besoins de notre simulation, qui cherche à établir l'évolution des inventaires totaux des principaux noyaux ? On verra que les méthodes Monte Carlo permettent, selon le cas étudié, de faire une telle simplification afin de réduire le temps de calcul.

Nous avons plusieurs fois fait référence au phénomène d'autoprotection des résonances, nous l'expliquons maintenant afin d'illustrer pourquoi le crayon combustible évolue de cette façon hétérogène.

L'effet de peau du crayon combustible

Le crayon combustible, bien que très fin à notre échelle (son rayon est de l'ordre de quatre millimètres) évolue de façon très hétérogène radialement. En effet, la surface ou la *peau* du crayon est en contact immédiat[4] avec le milieu modérateur. Le combustible en surface du crayon sera donc prioritaire pour absorber les neutrons thermiques qui viennent pratiquement tous de l'extérieur du crayon, puisque c'est dans l'eau qu'ils se modèrent. Cet effet sera grandement amplifié aux énergies de résonance des noyaux du combustible. La figure 3.15 représente le spectres en énergie des neutrons dans le domaine des énergies thermiques pour un système ThPu au début de l'irradiation et illustre clairement le creusement important du flux neutronique aux énergies résonantes du plutonium.

Cette différence de flux neutronique à une énergie de résonance d'un noyau, en fonction de la profondeur dans le crayon, explique l'évolution spatialement hétérogène du crayon. En effet, les sections efficaces présentant d'importantes résonances voient leur valeur moyenne d'une couronne à l'autre du crayon varier de façon très significative : c'est l'autoprotection *spatiale* des sections efficaces moyennes, qui existe même quand la proportion du noyau considéré dans le combustible est partout identique dans le crayon combustible.

L'autoprotection spatiale des sections efficaces

Pour la même composition du combustible dans toutes les couronnes du crayon (au début de l'irradiation), les tableaux 3.7 et 3.8 reprennent quelques valeurs de sections efficaces calculées par

[4] au travers de sa gaine en zirconium, matériau choisi pour sa tenue mécanique et sa bonne "transparence" aux neutrons.

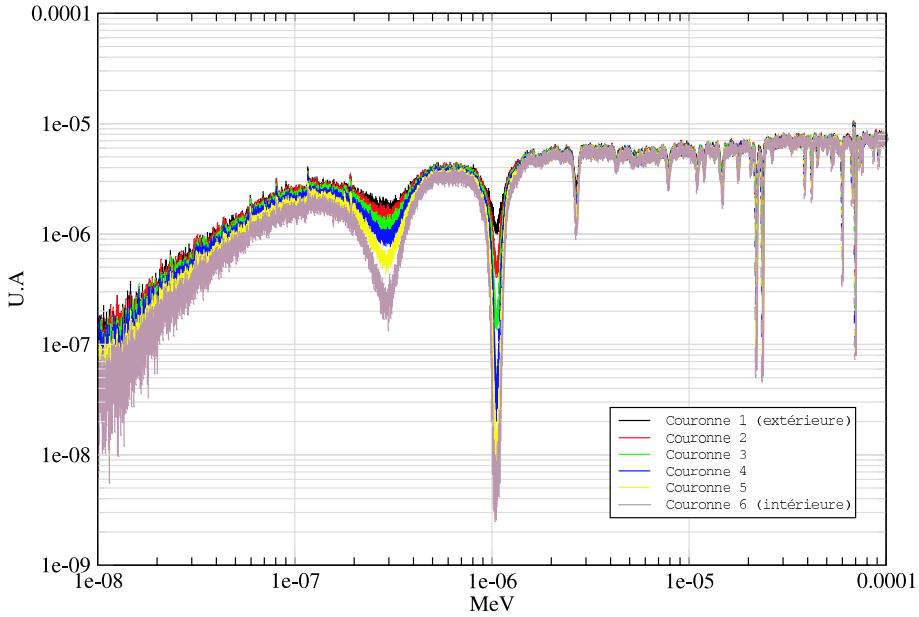


FIG. 3.15 – *Spectre ThPu. Creusement du flux neutronique aux énergies de résonance d'absorption dans les différentes couronnes du crayon. Avec ce découpage en énergie (*binning*), cette différence atteint presque un facteur 1000 dans le groupe de la résonance du* ^{240}Pu *autour de 1eV (le flux est représenté ici par unité de léthargie, soit* $dN/dLog(E)$*).*

MURE dans les différentes couronnes du crayon pour différentes réactions et noyaux significatifs des deux combustibles étudiés, en fonction du rayon externe de la couronne.

R_{couronne} (mm)	$\sigma^{\text{Pu239}}_{(n,f)}$	$\sigma^{\text{Pu239}}_{(n,\gamma)}$	$\sigma^{\text{Pu240}}_{(n,\gamma)}$	$\sigma^{\text{Pu241}}_{(n,f)}$
4.095	26	14	58	32
3.991	24	13	38	31
3.885	22	12	28	30
3.663	21	11	23	29
3.426	18	9	19	26
2.590	15	8	16	24

TAB. 3.7 – *Crayon ThPu : sections efficaces moyennes (en barn) dans les différentes couronnes du crayon, calculées au début de l'irradiation*

Remarquons que dans le cas UOX, le tableau 3.8 donne la valeur de la section efficace de fission du ^{239}Pu alors que celui-ci n'est pas présent dans le combustible. La variation de la section

R_{couronne} (mm)	$\sigma^{\text{U235}}_{(n,f)}$	$\sigma^{\text{U235}}_{(n,\gamma)}$	$\sigma^{\text{U238}}_{(n,\gamma)}$	$\sigma^{\text{Pu239}}_{(n,f)}$	$\sigma^{\text{Pu240}}_{(n,\gamma)}$
4.095	43.5	9.8	1.82	96	244
3.991	42.8	9.6	1.10	95	245
3.885	42.4	9.5	0.92	94	246
3.663	41.7	9.4	0.83	93	245
3.426	40.6	9.2	0.76	91	242
2.590	39.0	8.8	0.69	88	242

TAB. 3.8 – *Crayon* UOX *: sections efficaces moyennes (en barn) dans les différentes couronnes du crayon, calculées au début de l'irradiation. Le nuclide* ^{239}*Pu n'est pas présent dans la composition initiale : il est autoprotégé par d'autres noyaux à résonances voisines.*

efficace moyenne existe pourtant et ne peut pas être attribuée à un effet d'autoprotection spatiale des résonances du ^{239}Pu sur lui même. Ceci illustre l'effet d'autoprotection d'une section efficace d'un noyau donné par une résonance d'un autre noyau, que nous expliquons maintenant.

L'autoprotection d'une résonance sur une autre

Raisonnons pour un noyau x donné. Supposons que la section efficace $\sigma_{\text{x}}(E)$ d'une réaction donnée sur ce noyau présente une résonance à l'énergie E_0. Il se peut qu'aux environs de E_0 existe de fait un creusement du spectre $\phi(E)$ comme conséquence de la présence, dans le même milieu, d'autres noyaux ayant des résonances voisines de l'énergie E_0. L'effet d'autoprotection résultant sur la valeur de la section efficace moyenne du noyau x, qui est la convolution $\int_E \sigma_{\text{x}}(E)\phi(E)dE$, sera plus ou moins important selon le recouvrement de la résonance du noyau x avec la ou les résonances qui sont à l'origine du creusement du flux. Ce cas existe même si le noyau x n'est pas *initialement* présent dans le milieu : sa section efficace sera quand même autoprotégée par la présence dans le milieu d'autres noyaux à résonances voisines.

Dans l'exemple susmentionné de $\sigma^{(n,f)}_{\text{Pu239}}$ (cas du combustible UOX au début de l'irradiation), il y a un écart d'environ 8% entre la valeur au centre et en périphérie du crayon de la valeur moyenne de $\sigma^{(n,f)}_{\text{Pu239}}$. Cet effet d'autoprotection est dû au creusement du flux instauré par la présence d'^{238}U dans le milieu, dont les nombreuses résonances et principalement celle à environ 6 eV, se recouvrent avec celles du ^{239}Pu dans la région des résonances résolues.

Les exemples précédents illustrent l'autoprotection des sections efficaces comme conséquence de l'existence d'un gradient spatial de flux à une énergie donnée, indépendamment d'un gradient de densité des noyaux résonants dans le milieu. Pour fixer les idées, nous regardons maintenant le cas inverse : une situation où, à une énergie donnée, on ne prend pas en compte un gradient

spatial de flux dans le milieu. Afin d'illustrer cette situation on peut prendre l'exemple d'un crayon combustible non découpé, où, pour une énergie donnée, une seule valeur du flux moyen dans le crayon existe. Le creusement du flux de neutrons au niveau d'une résonance existe bien entendu, mais est pris constant et égal à la valeur moyenne du flux à cette énergie pour tout le crayon.

Afin d'illustrer cette situation, nous donnons les sections efficaces moyennes d'absorption du ^{240}Pu calculées par MURE dans un milieu combustible ThPu homogène en considérant diverses concentrations de plutonium. Le tableau 3.9 donne ces valeurs.

% Pu	σ_{abs} ^{240}Pu (barns)
5	41
10	24
15	16

TAB. 3.9 – *Autoprotection "non spatiale " des section efficaces en crayon homogène pour trois teneurs en plutonium différentes. Pour chaque teneur en plutonium la valeur considérée du flux de neutrons à une énergie donnée est partout la même dans le crayon. L'effet d'autoprotection est ici lié directement à la densité du noyau résonant.*

Nous voyons dans cet exemple simple que l'effet d'autoprotection est directement lié à la densité du noyau résonant présent. Comme à une énergie donnée il n'y a pas de gradient spatial du flux neutronique pris en compte dans le modèle de crayon homogène pour calculer ces valeurs de sections efficaces, on peut dire qu'il s'agit ici d'un effet d'autoprotection "non spatiale".

Cet effet n'existe pas pour un noyau sans résonances, même s'il présente une forte section efficace moyenne d'absorption. C'est le cas du ^{10}B, dont la section efficace d'absorption (n,α) est strictement en $1/v$. Le tableau 3.10 donne sa section efficace moyenne d'absorption calculée pour différentes concentrations de celui-ci en cellule homogène (dans ce cas, l'eau du modérateur). La faible variation de la section efficace moyenne qu'on observe n'est pas ici due à un quelconque effet d'autoprotection mais à un effet de spectre : à plus grande concentration de bore, moins de neutrons, ralentis dans l'eau borée, peupleront les domaines des basses énergies, en abaissant ainsi le "poids" de la partie thermique du spectre dans le calcul de la section efficace moyenne, plus importante aux énergies thermiques.

Si, pour privilégier la clarté, nous avons essayé d'exposer ces effets d'autoprotection en différenciant deux origines immédiates (gradient spatial du flux d'une part, différentes densités du noyau résonant d'une autre), dans la réalité des choses, ils coexistent à tout moment et s'auto-entretiennent. Dès les premiers instants du séjour en cœur d'un élément combustible, c'est d'abord

C_b (ppm)	σ_{abs} ^{10}B (barns)
1000	66
2000	65
3000	63

TAB. 3.10 – *Section efficace moyenne d'absorption du ^{10}B (un noyau "en $1/v$") : sans résonances, pas d'autoprotection : la diminution de la section efficace moyenne est due à un effet global de spectre dans le modérateur, qui se durcit lorsqu'on augmente la proportion de bore.*

l'effet d'autoprotection spatial des résonances du combustible qui *amorce* une évolution spatialement hétérogène du crayon combustible. Au cours de l'évolution, ces noyaux *"à résonance"* et leurs descendants vont donc être consommés et créés avec des taux qui peuvent être très différents au centre et en surface du crayon, instaurant ainsi un gradient spatial de densité pour ces noyaux.

L'effet sur la densité d'un noyau donné sera plus ou moins important selon que celui-ci est présent ou non dès le départ dans le combustible. Pour les noyaux fertiles du cycle, habituellement présents à plus de 90% en noyaux lourds (dans les réacteurs électrogènes) cet effet de gradient sera limité. Pour un noyau qui *apparaît* pendant l'irradiation, l'effet sur sa densité dans le crayon sera bien entendu beaucoup plus significatif, puisque le gradient spatial de densité sera alors analogue au gradient spatial du taux de création net de ce noyau dans le crayon. Ceci est détaillé par la suite.

Exemples illustrant l'impact relatif du découpage en couronnes du crayon combustible sur l'estimation de l'inventaire total d'un noyau.

Nous allons maintenant voir que dans certaines situations qui dépendent du combustible qu'on simule et des observables qu'on désire évaluer, le traitement probabiliste à énergie continue des simulations Monte Carlo permet de se passer d'un découpage du crayon combustible lors du calcul d'évolution. Nous illustrons ceci en prenant des exemples de l'évolution calculée pour les deux types de combustible jusqu'à présent étudiés, UOX et ThPu. Nous comparons les résultats obtenus *"avec découpage du crayon"* (configuration hétérogène) à ceux calculés *"sans découpage"* (configuration homogène).

Dans le cas UOX nous nous intéressons à l'évolution de trois noyaux en particulier : ^{235}U ^{238}U, et ^{240}Pu. Ces noyaux sont pris ici comme exemple car ils sont, pour les deux premiers, majoritairement présents dans le combustible UOX . Les deux derniers sont, quant à eux, ceux qui présentent des sections efficaces à résonances particulièrement importantes (à environ 6 eV et

1 eV respectivement) et dont on s'attend à voir les effets de l'autoprotection spatiale les plus flagrants. Nous avons déjà établi que ce sont ces effets d'autoprotection qui induisent une évolution spatialement hétérogène du crayon. Si un découpage du crayon doit se révéler indispensable à la bonne simulation de l'évolution, on s'attend à observer d'importantes différences sur l'évolution de ces noyaux selon qu'elle soit faite en configuration homogène ou en configuration hétérogène.

Ces trois noyaux sont présents au début de l'irradiation à des proportions très différentes. Dans le calcul UOX : 96.3% pour l'^{238}U, 3.7% pour l'^{235}U et à proportion nulle pour le ^{240}Pu . Ces différentes proportions vont nous permettre de mettre plus clairement en évidence l'importance qu'a l'inventaire initial du noyau concerné sur l'hétérogénéité de son évolution dans le crayon.

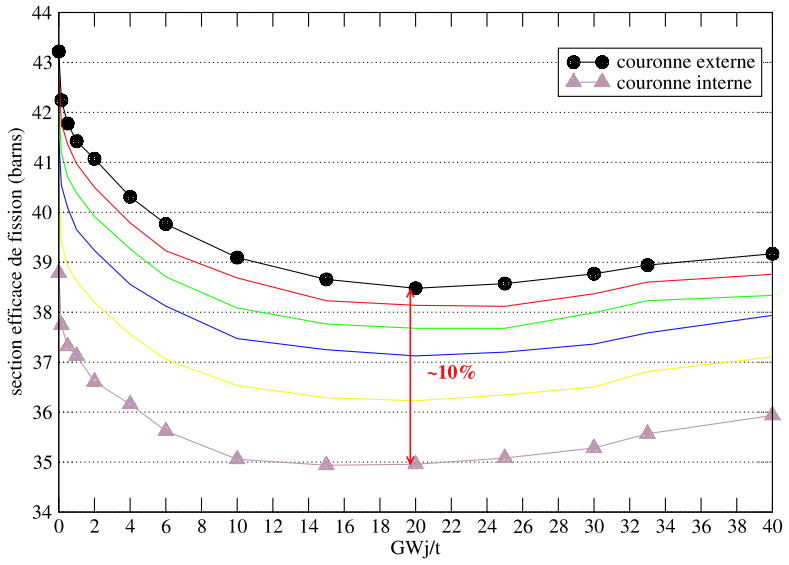
Pour ces trois noyaux, les figures 3.16, 3.17 et 3.18, représentent l'évolution suivant le *burnup* des sections efficaces moyennes du principal mode de disparition ainsi que leur densité molaire pour les différentes couronnes du crayon combustible.

Cas de ^{235}U dans le combustible UOX

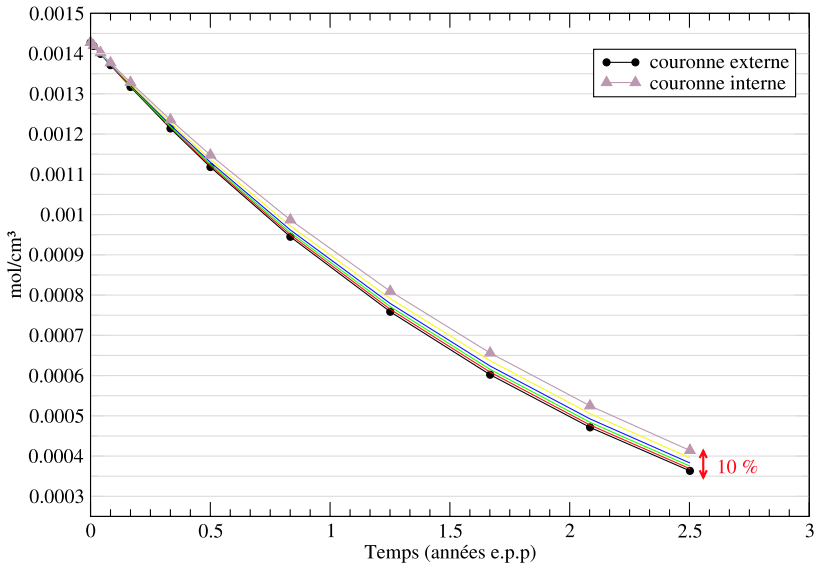
La figure 3.16 montre que la variation entre la section efficace de fission de l'^{235}U vue par la couronne externe est environ 10% plus importante que la valeur de la section efficace moyenne vue par la couronne interne du crayon et que cet écart reste à peu près constant pendant toute l'évolution. Nous constatons effectivement un écart de 10% sur la densité d'^{235}U entre ces deux couronnes en fin d'irradiation. Cet écart n'a cependant pratiquement aucune influence sur l'inventaire total d'^{235}U par rapport au cas homogène : la couronne externe est suffisamment fine pour ne concerner que peu de noyaux et l'inventaire d'^{235}U initial est suffisamment grand pour que cet écart en densité soit totalement négligeable en ce qui concerne l'évolution de l'inventaire total, somme sur toutes les couronnes du crayon.

Cas de ^{238}U dans le combustible UOX

Prenons par exemple le cas de l'^{238}U en combustible UOX . Il est majoritairement présent dans le combustible dès le début. L'^{238}U disparaît majoritairement par capture radiative. Sa section efficace moyenne de capture radiative varie pourtant significativement au sein du crayon de presque un facteur 3 entre la couronne interne et externe comme nous l'avons présenté dans le tableau 3.8 et comme l'illustre la figure 3.17. La variation relative en densité dans les couronnes en bord et au centre du crayon n'est cependant que de 3%. Compte tenu que ces couronnes n'ont pas le même volume, la variation de l'inventaire total de l'^{238}U est complètement négligeable entre le calcul homogène et hétérogène.



(a) ^{235}U : $< \sigma_f > (r,t)$



(b) ^{235}U : densité $\rho(r,t)$

FIG. 3.16 – *Combustible* UOX *, cas de l'^{235}U : (a) évolution de la section efficace moyenne de fission et (b) gradient en densité molaire, couronne par couronne du crayon.*

Cas du ^{240}Pu dans le combustible UOX

Dans le combustible UOX le ^{240}Pu est créé par capture radiative sur le ^{239}Pu, lui même créé par capture sur l'^{238}U et décroissances β successives :

$$^{239}\mathrm{Pu} \overset{(n,\gamma)}{\rightarrow} {}^{240}\mathrm{Pu} \overset{(n,\gamma)}{\rightarrow} {}^{241}\mathrm{Pu} \tag{3.1}$$

Le ^{240}Pu est le noyau *charnière* entre les deux captures radiatives qui mènent du ^{239}Pu au ^{241}Pu, noyaux fissiles importants dont les sections efficaces de réaction (n, γ) présentent d'importantes résonances dans le domaine d'énergie thermique. Les taux de création et de destruction du ^{240}Pu vont donc changer radialement au sein du crayon combustible de façon significative, et d'autant plus que les sections efficaces des isotopes du plutonium ne seront pas autoprotégées au début de l'irradiation car à ce moment cet élément n'est pas encore créé dans le combustible.

La figure 3.18 montre qu'effectivement on constate un écart de plus de 30% entre les sections efficaces moyennes de capture radiative calculées dans les couronnes internes et externes du crayon. L'écart induit sur l'évolution de la densité atteint presque un facteur 2 entre la densité du ^{240}Pu dans la couronne externe et la densité du ^{240}Pu dans la couronne centrale. Cet écart en densité est suffisamment important pour être constaté dans l'inventaire total du ^{240}Pu selon qu'on découpe le crayon ou pas. La figure 3.19 montre que sur l'évolution de l'inventaire total de ce noyau, les cas homogène et hétérogène se différencient pour atteindre un écart de 10% en fin d'irradiation. Remarquons que les effets de cette hétérogénéité ne sont visibles sur l'inventaire total qu'à partir d'un instant de l'évolution, lorsque le combustible aura connu une irradiation suffisante.

Cas du ^{240}Pu dans le combustible ThPu

La situation est très différente en combustible ThPu où l'on s'attend à avoir des concentrations initiales de plutonium de l'ordre de la dizaine de pourcent en masse du combustible. Les isotopes de plutonium seront alors les principaux responsables des effets d'autoprotection qui différencient l'évolution du crayon. **Or, les sections efficaces des isotopes du plutonium seront déjà autoprotégées par la présence de ce dernier dès le début de l'irradiation : l'évolution de leurs sections efficaces moyennes avec le taux de combustion sera beaucoup plus douce**. La figure 3.20 montre ceci.

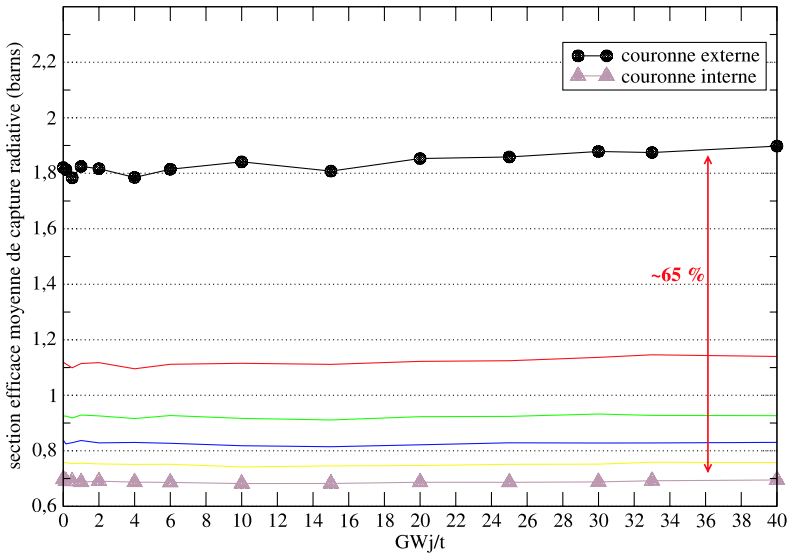
La variation en densité est plus significative pour les couronnes extérieures : on retrouve ici une illustration de l'effet de peau. Le modèle de crayon homogène reproduit une valeur de densité moyenne sur tout le crayon qui rend bien compte de l'évolution de l'inventaire total, comme le montre la figure 3.21. Sur l'inventaire total du ^{240}Pu, on n'observe pas d'écart significatif entre

les évolution effectuées avec et sans découpage du crayon.

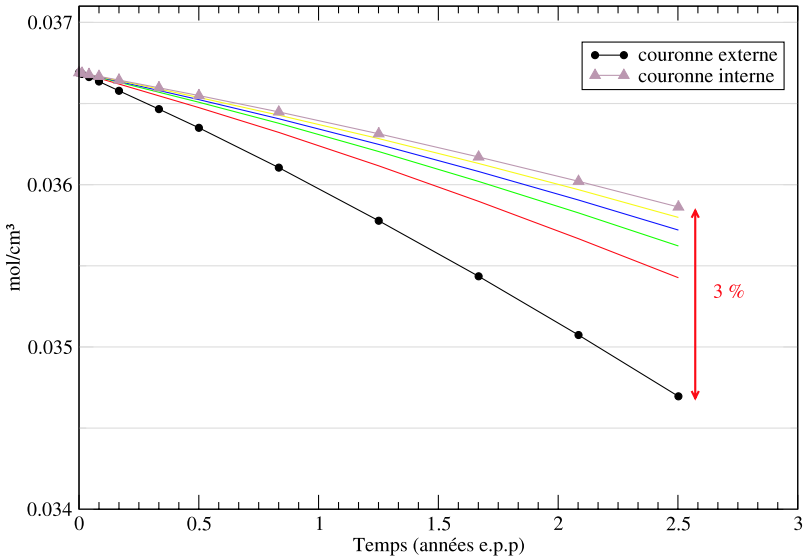
Les tableaux 3.11 et 3.12 donnent, pour les principaux actinides de chaque type de combustible UOX et ThPu, la valeurs des écarts constatés sur l'inventaire à des valeurs du taux de combustion en fin d'irradiation, entre les calculs crayon homogène et crayon hétérogène. Sur ces tableaux nous avons inclus, dans la colonne intitulée *"écart statistique"*, les valeurs des incertitudes statistiques à cette valeur du taux de combustion évaluées précédemment en calcul crayon homogène.

Z	A	Hétérogène (g)	Homogène (g)	écart	erreur statistique
Cm	245	1,4E-03	1,2E-03	11,4%	3,0%
Cm	244	2,6E-02	2,4E-02	9,0%	2,2%
Cm	243	3,8E-04	3,4E-04	10,5%	1,2%
Cm	242	2,0E-02	1,8E-02	8,9%	0,8%
Am	243	9,7E-02	8,8E-02	9,3%	1,8%
Am	242*	1,8E-03	1,7E-03	8,4%	0,9%
Am	241	5,0E-02	4,7E-02	6,4%	0,7%
Pu	242	5,4E-01	5,0E-01	9,2%	0,7%
Pu	241	2,1E+00	2,0E+00	6,0%	0,9%
Pu	240	3,0E+00	3,3E+00	-10,1%	0,8%
Pu	239	1,1E+01	1,2E+01	-2,0%	0,4%
Pu	238	1,9E-01	1,9E-01	1,0%	1,2%
Np	237	6,9E-01	6,8E-01	1,5%	1,2%
U	238	1,6E+03	1,6E+03	0,0%	0,0%
U	237	1,9E-02	1,8E-02	4,6%	2,5%
U	236	7,5E+00	7,5E+00	-0,6%	0,2%
U	235	2,1E+01	2,1E+01	0,3%	0,1%
U	234	3,5E-03	3,6E-03	-2,0%	1,2%

TAB. 3.11 – *Combustible* UOX *: écarts observés à 30GWJ/t dans l'estimation des inventaires des actinides mineurs en calcul cellule* UOX *. Comparaison du calcul* MURE *en crayon hétérogène et en crayon homogène. La dernière colonne donne l'erreur statistique estimée précédemment sur chaque noyau en calcul homogène.*

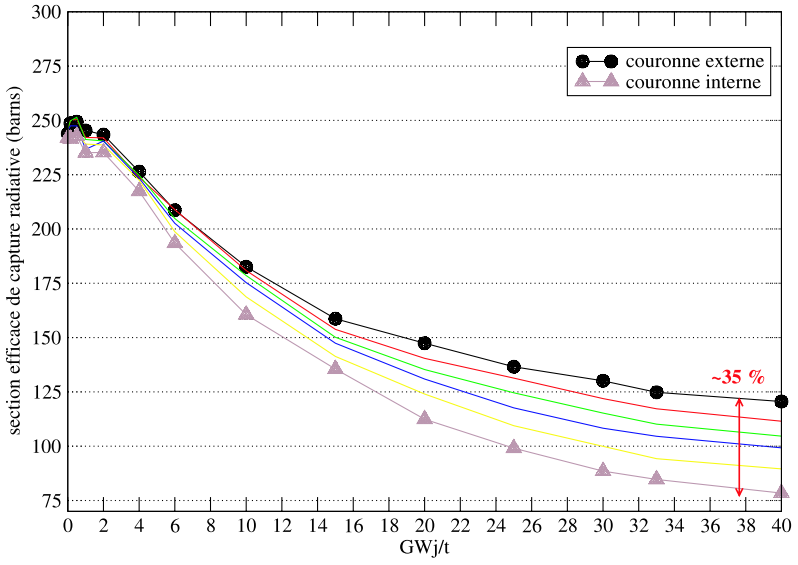


(a) ^{238}U : $< \sigma_{(n,\gamma)} >$(r,t)

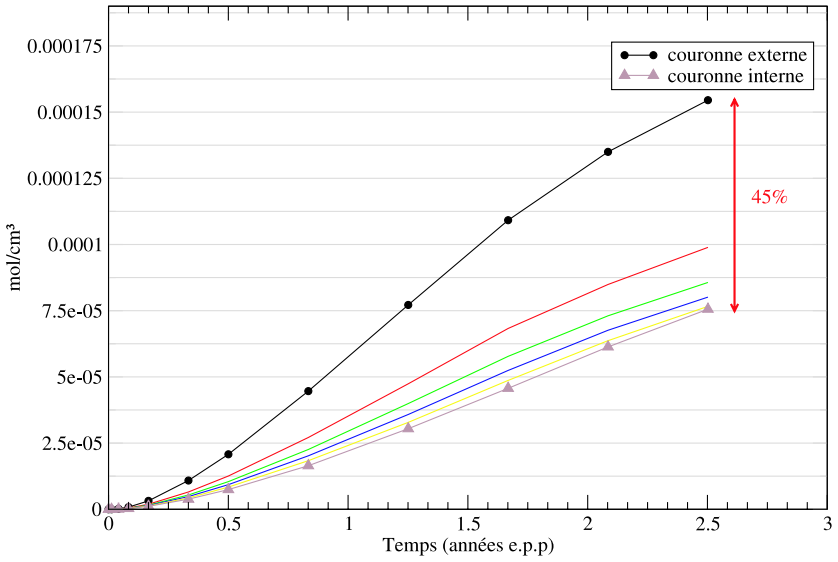


(b) ^{238}U : densité $\rho(r,t)$

FIG. 3.17 – *Combustible* UOX *, cas de l'^{238}U : (a) l'importance de la résonance à 6,67 eV autoprotège sa section efficace de capture radiative (mode de disparition de l'^{238}U) à des valeurs qui s'écartent de plus d'un facteur 2 au centre et en périphérie du crayon (cf : tableau 3.8). La variation relative en densité n'est cependant que de 3%. Ceci est dû à l'importance de l'inventaire initial. (b) L'évolution du gradient en densité de l'^{238}U, couronne par couronne du crayon.*



(a) ^{240}Pu : $< \sigma_{(n,\gamma)} > (r,t)$



(b) ^{240}Pu : densité $\rho(r,t)$

FIG. 3.18 – *Combustible* UOX*, cas du ^{240}Pu : évolution du gradient en densité du ^{240}Pu. Le noyau ^{240}Pu est créé et consommé à la fois avec des taux qui dépendent radialement de sa position dans le crayon. L'écart en densité de ^{240}Pu entre la couronne périphérique et la couronne centrale est d'environ 45% vers 30 GWj/t.*

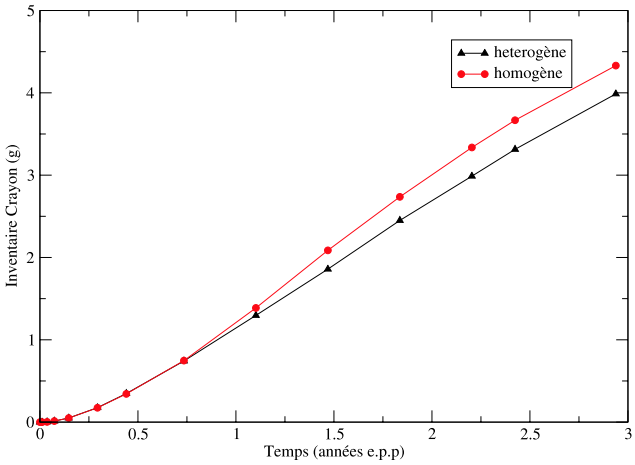
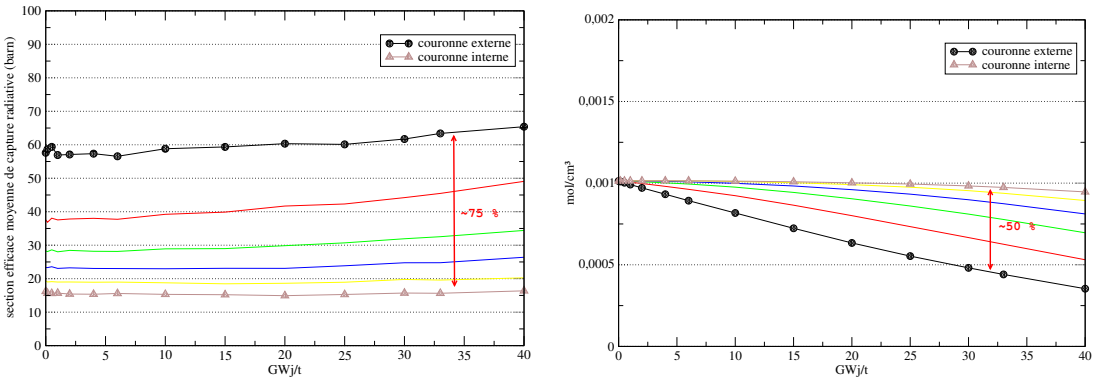


FIG. 3.19 – *Combustible* UOX*, cas du* ^{240}Pu *: évolution de l'inventaire total selon que l'on prenne en compte ou pas un découpage géométrique du crayon en couronnes intérieures. L'écart entre les deux calculs atteint 10% en fin d'irradiation.*



(a) ^{240}Pu : $< \sigma_{(n,\gamma)} > (r,t)$ (b) ^{240}Pu : densité $\rho(r,t)$

FIG. 3.20 – *Combustible ThPu, cas du* ^{240}Pu *: l'évolution, pour une couronne donnée, de la valeur moyenne de la section efficace (ici capture radiative) sera douce du fait que le plutonium est déjà présent dès le début de l'irradiation et son inventaire varie peu comparé au cas* UOX *du gradient en densité du* ^{240}Pu *.*

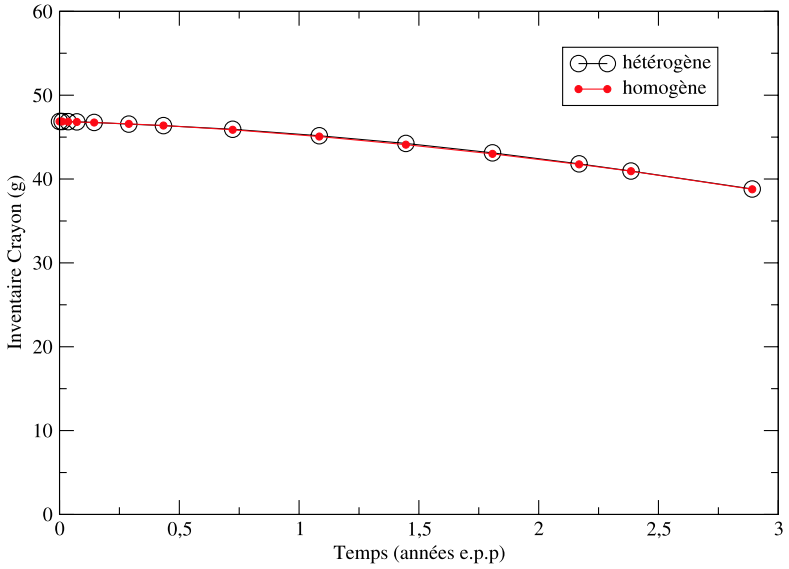


FIG. 3.21 – *Combustible ThPu, cas du ^{240}Pu : évolution de l'inventaire total pour les deux configurations de crayon, découpé et non découpé. L'écart entre les deux calculs reste négligeable.*

		Hétérogène (g)	Homogène (g)	écart	erreur statistique
Cm	246	0,00413	0,00401	3,0%	2,15%
Cm	245	0,1046	0,1047	-0,1%	2,14%
Cm	244	1,05183	1,03141	1,9%	0,97%
Cm	243	0,0147713	0,0148802	-0,7%	0,89%
Cm	242	0,388993	0,389652	-0,2%	0,27%
Am	243	2,54134	2,51843	0,9%	0,85%
Am	242*	0,0775401	0,0778966	-0,5%	0,25%
Am	242	1,14E-06	1,13E-06	0,7%	0,50%
Am	241	1,65175	1,66325	-0,7%	0,19%
Pu	242	13,4615	13,4628	0,0%	0,23%
Pu	241	19,5341	19,806	-1,4%	0,25%
Pu	240	41,2848	41,2641	0,1%	0,20%
Pu	239	46,4916	46,1853	0,7%	0,10%
Pu	238	4,0855	4,08322	0,1%	0,07%
Np	237	0,00478165	0,00476766	0,3%	0,22%
U	238	3,17E-05	3,13E-05	1,1%	0,35%
U	237	3,06E-05	2,87E-05	6,1%	3,55%
U	236	0,0117055	0,0114278	2,4%	1,03%
U	235	0,18685	0,182761	2,2%	1,87%
U	234	1,31326	1,29903	1,1%	0,40%
U	233	17,5203	17,532	-0,1%	0,27%
U	232	0,0593939	0,0591784	0,4%	1,87%

TAB. 3.12 – *Combustible ThPu : écarts observés à 40 GWj/t dans l'estimation des inventaires des actinides mineurs en calcul cellule ThPu. Comparaison du calcul* MURE *en crayon hétérogène et en crayon homogène. La dernière colonne donne l'erreur statistique estimée précédemment sur chaque noyau en calcul homogène.*

Conclusion sur la pertinence du découpage du crayon combustible pour l'estimation des inventaires.

Pour le calcul d'évolution du combustible UOX , nous avons mis en évidence que le calcul en crayon homogène introduit, par rapport à un calcul effectué en configuration crayon hétérogène, un écart sur l'inventaire des isotopes des actinides à partir du plutonium qui est supérieur à l'incertitude statistique évaluée sur ces inventaires en crayon homogène. L'écart maximal observé pour les isotopes du plutonium est constaté sur l'inventaire du ^{240}Pu et est de l'ordre de 10% en fin d'irradiation. Nous observons des écarts du même ordre de grandeur sur les inventaires des transplutoniens qui sont interpretés comme étant introduits par l'incertitude autour des inventaires des isotopes du plutonium.

Nous n'avons pas observé en calcul ThPu une sensibilité importante des inventaires au découpage du crayon combustible. Les écarts observés sur les inventaires calculés avec une géométrie crayon découpée ou non, sont de l'ordre de l'incertitude statistique pour les principaux actinides. On ne peut pas affirmer qu'il y ait une différence visible entre les deux calculs en ce qui concerne les inventaires des noyaux.[5] Les écarts les plus importants observés (qui restent de moins de 2% sur l'inventaire du ^{241}Pu) ne justifient pas, à nos yeux, l'investissement en temps de calcul supplémentaire que nécessite la simulation Monte Carlo du crayon découpé en couronnes. Nous prendrons donc pour toute la suite de cette étude un modèle de crayon combustible homogène.

Ce découpage du crayon combustible a plus de raison d'être dans les calculs déterministes. Il permet de bien prendre en compte la variation réelle de la section efficace vue par le neutron à différentes profondeurs du crayon. Le traitement multigroupe en énergie utilisé par les codes déterministes n'est pas suffisamment fin pour prendre en compte les rapides variations d'intensité d'une section efficace au voisinage d'une résonance. Pour contourner ce problème sans augmenter la résolution en énergie, les calculs déterministes sont amenés à tabuler des sections efficaces *effectives* déjà autoprotégées : ces valeurs tabulées rendent compte correctement de l'absorption pour une valeur du flux qui est partout égal à la valeur que le flux aurait en dehors de la résonance, dans chaque groupe d'énergie[52]. Pendant l'évolution, ces valeurs autoprotégées doivent être recalculées pour prendre en compte l'évolution de la densité des noyaux.

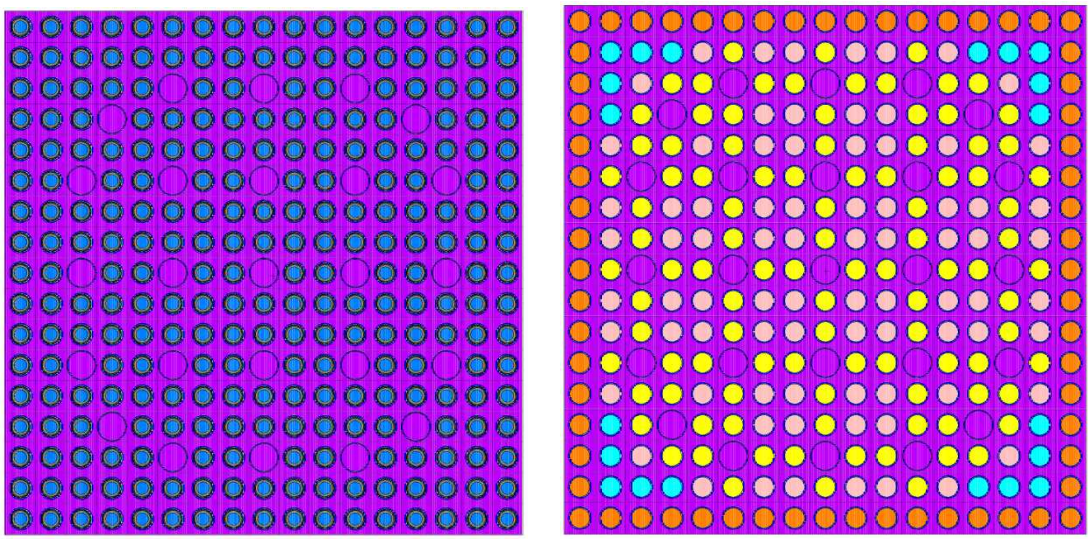
Les calculs Monte Carlo se font cependant à énergie ponctuelle, de ce fait on simule, pour chaque valeur en énergie, la bonne valeur du flux neutronique moyen dans chaque cellule de la géométrie. Pour toute réaction induite par neutron, la bonne section efficace moyenne est de ce fait prise en compte pour chaque noyau, dans chaque cellule du problème. En ne faisant pas de découpage, on aura alors, à chaque énergie, la bonne moyenne *dans l'espace* du flux neutronique.

[5] outre le temps de calcul !

Aux environs d'une énergie de résonance, on sous-estimera donc le flux en bordure du crayon tout en le surestimant au centre, mais la valeur prise sera bien la valeur moyenne correspondant à l'autoprotection spatiale du flux dans tout le crayon.

3.5 La géométrie Assemblage

L'assemblage combustible étudié ici est un assemblage standard de REP-900. C'est un réseau carré 17×17 qui contient 264 crayons de combustible et 25 tubes guides. Ces tubes guides sont, soit remplis d'eau borée, soit reçoivent les barres de contrôle ou de poison consommables (généralement du B_4C). La disposition des crayons et des tubes guides dans ce réseau est illustrée sur la figure 3.22.



(a) (b)

FIG. 3.22 – *Géométrie Assemblage. (a) Crayons combustible découpés. (b) Différentiation des crayons en 4 types de voisins des trous d'eau.*

La différentiation en voisins des trous d'eau

Une différentiation des crayons en types de voisins peut donc être introduite afin de voir si elle met en évidence une éventuelle différence sur l'estimation des inventaires totaux ; les crayons plus proches d'un trou d'eau voient en principe un spectre de neutrons plus modéré. Nous avons donc effectué le calcul d'évolution pour ces deux configurations. Nous n'avons pas observé de différence

notable dans l'estimation des inventaires pour les principaux actinides du combustible ThPu en différenciant les crayon en type de voisins d'un trou d'eau. Le tableau montre les écarts sur les inventaires calculés à différentes valeurs du taux de combustion : ces écarts restent pratiquement tous inférieurs au pourcent à la fin de l'évolution.

	2200 MWj/t	11200 MWj/t	15600 MWj/t	22300 MWj/t	38000MWj/t
^{245}Cm	-3.2%	5.8%	-1.9%	-0.1%	1.4%
^{244}Cm	-3.2%	-1.4%	-0.7%	0.6%	-0.3%
^{243}Cm	0.9%	0.6%	-0.5%	0.0%	0.4%
^{242}Cm	0.4%	-0.3%	-0.3%	0.0%	0.3%
^{245}Am	-3.2%	-5.4%	3.5%	-2.6%	-0.7%
^{244}Am	-3.2%	-4.6%	3.8%	-1.7%	-0.2%
^{243}Am	-2.1%	0.3%	0.8%	0.5%	0.6%
^{242}Am^{m}	0.4%	-0.2%	-0.2%	0.1%	0.3%
^{242}Am	-0.6%	0.8%	-0.2%	-0.3%	-1.0%
^{241}Am	0.0%	0.1%	0.1%	0.0%	-0.2%
^{242}Pu	0.0%	0.0%	-0.1%	-0.2%	-0.2%
^{241}Pu	0.1%	-0.2%	-0.3%	-0.1%	-0.1%
^{240}Pu	0.0%	0.1%	0.2%	0.1%	0.2%
^{239}Pu	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%	-0.2%
^{238}Pu	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%
^{237}Np	0.0%	0.1%	0.2%	0.2%	0.2%
^{236}U	0.0%	-0.2%	-0.3%	-0.5%	-0.9%
^{235}U	0.1%	-0.4%	-1.8%	-1.5%	-0.2%
^{234}U	0.8%	0.0%	-0.3%	0.1%	-0.4%
^{233}U	0.7%	0.4%	0.1%	0.1%	0.0%
^{232}U	-11.2%	-1.5%	0.3%	1.7%	0.6%
^{233}Pa	0.7%	-0.1%	-0.1%	-0.6%	-0.5%

TAB. 3.13 – *Combustible ThPu : écarts observés sur l'inventaire total pour différents taux de combustion, entre un simulation prenant compte d'une différentiation des crayon combustible en types de voisins d'un trou d'eau par rapport à une configuration où tous les crayons sont identiques. Vers 38 GWj/t, pratiquement tous les écarts sont inférieurs au pourcent.*

Il faut remarquer que en calcul Monte Carlo, le modèle assemblage sans différentiation des crayons impose les mêmes contraintes en temps de calcul que la simulation de la géométrie "cellulle" (crayon combustible seul).

Calcul du coefficient de température du combustible.

Préalablement à notre étude plus détaillée du combustible ThPu, nous nous proposons dans cette partie de regarder l'impact d'un découpage crayon sur l'estimation du coefficient de température du combustible ThPu en effectuant des calculs *assemblage*. Nous serons amenés à calculer des coefficients de température du combustible. Ceux-ci seront définis par la suite (cf chapitre 4).

On cherche a estimer la valeur de $\partial k_\infty/\partial T$ en calculant la valeur de k à diverses températures du combustible. Pour une température donnée, celle-ci est prise uniforme dans le crayon. La température *nominale* est prise ici à 900 K, cette valeur correspond à la température moyenne à l'intérieur d'un crayon combustible et est la valeur utilisée dans tous nos calculs par la suite.

Pour pouvoir estimer une valeur du coefficient de réactivité du combustible en effectuant une excursion sur plusieurs points en température, il faudra, d'une part, que ces points en température soient suffisamment éloignés les uns des autres pour pouvoir observer une variation du coefficient de multiplication grande devant son erreur statistique. En même temps, il faudra vérifier la linéarité du facteur de multiplication (en pratique, de la réactivité ρ) sur tout l'intervalle d'exploration. Cette exploration en température a d'abord été prise en sept points différents, de 900 K à 1600 K. La précision sur chaque calcul de k_∞ effectué est ici de l'ordre de 100 pcm. Une tel intervalle en température permet de lisser l'erreur statistique commise sur l'estimation de $\partial k_\infty/\partial T$. Cela permet d'avoir une erreur de l'ordre de 0.3 pcm/K sur la valeur du coefficient de température.

Nous avons voulu vérifier si le calcul assemblage avec crayons homogènes reproduisait bien la même estimation du coefficient de température du combustible calculé en crayon homogène. De manière analogue à l'analyse précédente faite sur l'évolution des inventaires de noyaux, nous effectuons le calcul du coefficient de température du combustible en mode crayons homogène et crayon hétérogènes.

Le tableau donne l'estimation de ces coefficients à plusieurs temps de l'irradiation. Ces calculs ont été effectués en mode assemblage pour un combustible ThPu à 10% de plutonium similaire au vecteur isotopique défini précèdemment.

Pour une telle excursion en température où chaque calcul MCNP a une précision de 100 pcm, on arrive à avoir une erreur sur la pente $\partial k_\infty/\partial T$ d'environ 0.3pcm/K. Compte tenu de cette incertitude on n'observe pas de différence entre les deux calculs en mode homogène ou hétérogène.

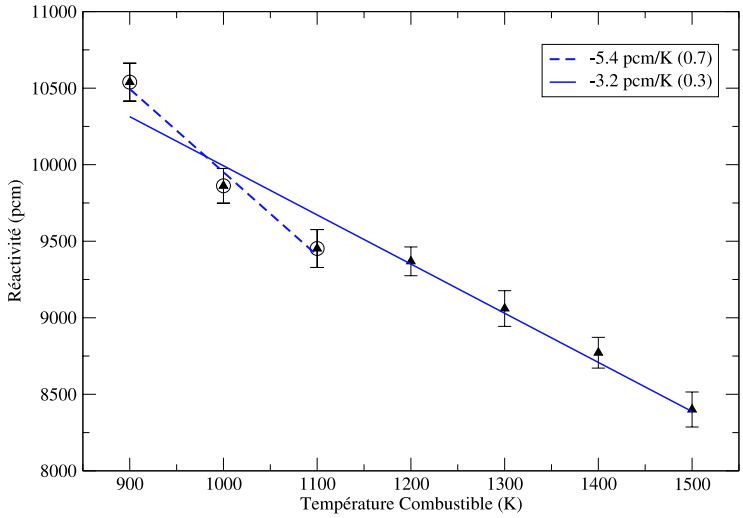


FIG. 3.23 – *Variation observée de la réactivité par rapport à une excursion en température du crayon combustible (la température du modérateur est gardée constante et égale à 600K). Exemple d'un combustible ThPu à 10% de teneur en plutonium.*

Temps (e.p.p)	Hétérogène (pcm/K)	Homogène (pcm/K)
0	-3.3	-3.3
1 an	-3.0	-3.1
1.5 ans	-3.2	-3.2
2.6 ans	-3.2	-3.4

TAB. 3.14 – *Estimation des coefficients de température du combustible en calcul assemblage. La comparaison s'effectue entre un calcul dont les crayons sont découpés (hétérogène) et non découpés (homogène). Compte tenu de l'incertitude estimée à 0.3pcm/K, on n'observe pas de différence entre les deux calculs.*

Le choix du découpage en pas de temps entre chaque calcul MCNP

A puissance fixée, ce choix a peu d'effet sur un noyau fissile par exemple, l'inventaire du noyau fissile principal ou d'un noyau dont le taux de fission contribue de façon importante à la puissance, comme l'^{233}U. L'évolution des inventaires des noyaux qui constituent les sources majoritaires de fission du combustible a peu de marge de manœuvre lorsqu'on impose un taux global de fission constant et un inventaire initial donné.

Nous avons vérifié la sensibilité, au choix des pas de temps entre chaque calcul MCNP , de l'évolution des inventaires pour les principaux actinides à vie longue. La figure 3.24 montre l'évolution des inventaires pour les principaux isotopes du plutonium et pour l'^{233}U, principales observables qui nous intéressent pour différents choix du pas de temps. Nous avons retenu comme choix de pas de temps une valeur de 1 mois dans nos calculs d'évolution assemblage. Nous avons vérifié que ce choix était stable par rapport à des évolutions faites sur des pas de temps plus brefs (1, 7 et 15 jours). Nous avons choisi d'effectuer des pas réguliers, quitte à en faire davantage, pour ne pas fausser les diverses méthodes de contrôle de la réactivité (qui ont été détaillées dans le chapitre 2) basées sur l'extrapolation de valeurs calculées sur un nombre N de pas précédents et qui sont sensibles à un changement brusque de la longueur entre ces pas.

3.5.1 Ecarts observés sur différentes bases de données choisies

Le calcul d'évolution assemblage a été réalisé en prenant, pour la plupart des actinides et produits de fission, différentes bases afin de quantifier l'écart qu'elles induisent sur l'évolution des inventaires. Les bases comparées ici ont été ENDFB-6.8, JEFF-3.1 et JENDL-3.3.

On pourra retenir, pour la plupart des actinides un bon accord entre les trois bases, dans tous les cas inférieur ou du même ordre que l'erreur statistique propagée suivant l'évolution. Seuls quelques noyaux présentent des écarts supérieurs à cette erreur statistique et peuvent être assimilés à une différence notable des bases. Ces exceptions sont, par rapport au calcul ENDF, pris comme référence, en fin de combustion (vers 40GWj/t) :

- une sous-estimation d'environ 30% de ^{243}Cm, pour les deux bases JEFF et JENDL.
- une forte surestimation d'environ 130% du ^{242m}Am pour JEFF.
- une sous estimation d'environ 4% du ^{233}Pa, pour JENDL, ce qui induit une sousestimation du même ordre observée sur ^{233}U.

Les écarts observés pour tous les principaux actinides à différents pas d'irradiation est reporté à l'annexe B. Pour la suite de nos calculs nous avons retenu le choix de la base ENDFB-6.8, sur laquelle on disposait un plus grand nombre de noyaux à différentes températures.

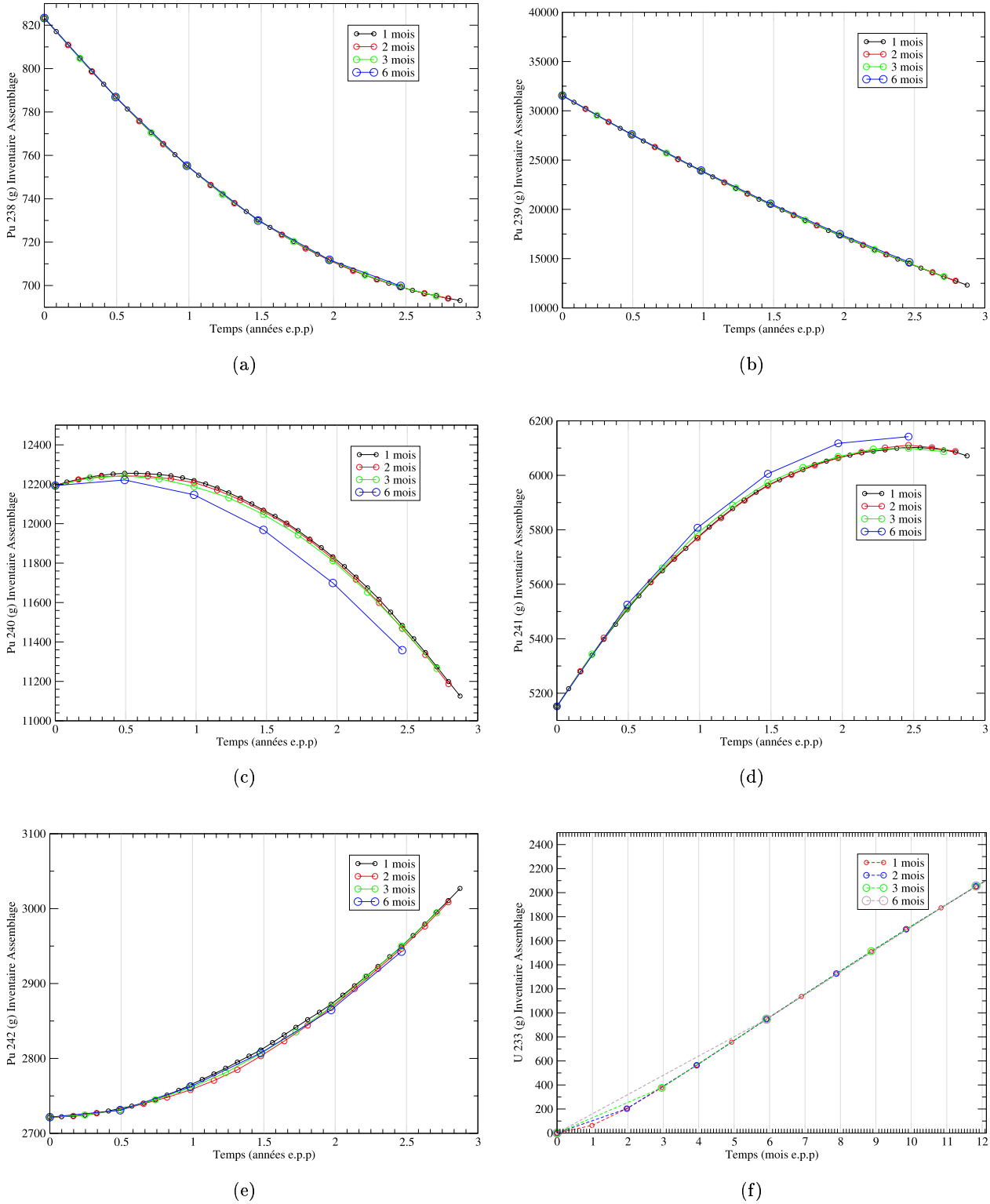


FIG. 3.24 – *Evolution des inventaires des principaux noyaux du plutonium et* ^{233}U *pour différents espacements en temps entre deux calculs* MCNP.

Chapitre 4

Etude du combustible Mixte Oxyde Thorium Plutonium

4.1 Introduction

Nous abordons à présent une *exploration du paysage neutronique* des combustibles MOX thoriés. Cette approche est faite en calcul *"assemblage"* et se propose d'investiguer l'évolution de divers types et teneurs en plutonium des combustibles. Les observables qui nous intéressent sont tout d'abord celles qui sont en mesure de *valider*, du point de vue neutronique, le choix d'une configuration de combustible. Par configuration on sous-entend ici un vecteur isotopique de plutonium et une teneur donnés. Nous étudierons donc le comportement de ces combustibles par rapport à la température (coefficients de contre-réaction en température du combustible ou du modérateur) ou à une perte du modérateur (coefficients de vide). Enfin, nous estimerons le taux de combustion maximal que chaque combustible étudié est en mesure d'endurer. Pour une configuration de combustible validée, les inventaires en actinides et leur évolution pendant l'irradiation nous permettront alors d'établir des bilans de production ou consommation de matière : ces bilans constitueront par la suite des données dont on se servira dans notre étude de scénarios de transition vers des systèmes Th/^{233}U. Un intérêt particulier sera donc porté à la production d'^{233}U ainsi qu'aux capacités d'incinération du plutonium de chaque type de combustible.

4.1.1 La problématique du plutonium en réacteur à eau légère

L'expérience technologique acquise avec le combustible MOX (UO_2-PuO_2) permet aujourd'hui d'avoir une bonne connaissance des combustibles au plutonium. Que ce soit dans des matrices thorium ou uranium, on observera sur la physique des systèmes à base de plutonium des effets bien connus, du fait de la présence de cet élément, sur le comportement du combustible. D'ores

et déjà on peut en citer les principaux :

- Un spectre neutronique plus dur du fait de la dégradation de la partie thermique par les isotopes du plutonium, fort absorbants neutroniques à ces énergies.
- Une diminution de l'efficacité des poisons neutroniques utilisés pour le réglage de la criticité du cœur. Ce sera le cas du bore soluble qui est utilisé pour le pilotage (et si besoin l'injection d'acide borique de sécurité dans le circuit primaire) ainsi que des barres de commande en B_4C qui constituent le système d'arrêt d'urgence.
- Un comportement dynamique plus vif du réacteur qui conduira à des transitoires plus rapides, du fait de la moindre proportion de neutrons retardés (cf tableau 4.1) issus des fissions du plutonium, qui aura tendance à abaisser le temps moyen entre deux générations de neutrons (par rapport à un combustible UOX conventionnel).
- Comme les isotopes du plutonium sont des noyaux fortement résonnants aux énergies thermiques, l'effet des contre-réactions Doppler sera accru. Intrinsèquement, la stabilisation de la réactivité sera plus efficace lors d'une excursion en température. Cependant, le coefficient de vide sera moins bon du fait d'une plus forte concentration en bore soluble dans le modérateur et une forte teneur en ^{240}Pu , dont les fissions rapides peuvent contribuer à faire remonter la réactivité lors de la perte quasi totale du modérateur.

nucléide	^{232}Th	^{238}U	^{233}U	^{235}U	^{239}Pu	^{241}Pu
β_r	2.0 %	1.48%	0.26%	0.64%	0.21%	0.54 %

TAB. 4.1 – *Valeur de β_r, proportion de neutrons retardés pour les principaux noyaux fissiles[31]*

L'utilisation de MOX $ThPuO_2$ en réacteur REP ne devrait pas, en principe, différer significativement de la technologie aujourd'hui maîtrisée des réacteurs à eau utilisant du plutonium, comme l'illustre le cas du réacteur EPR, qui peut en principe être *moxé* à 100%. Nous avons, dans cette étude, fait le choix de simuler un REP-900 conventionnel et de voir quel type de configuration combustible ThPu pouvait s'adapter à ce type de réacteur, sans modification de la géométrie.

Les principaux acteurs neutroniques

Les noyaux ^{232}Th, ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu ,^{241}Am , présents en quantité significative dans le combustible $ThPuO_2$ dès le début de l'irradiation, seront les principaux acteurs sur le plan neutronique. Le nucléide ^{241}Am , émetteur α et γ, est produit par désintégration β^- du ^{241}Pu ($T_{1/2}$ = 14.35 ans). Ainsi, lors de cette étude, on sera amené à définir plusieurs qualités

du plutonium. La qualité du plutonium, qui dépend de son origine et de son âge (temps après séparation), sera définie par le vecteur de ces six isotopes.

Valeur du bore critique

Les poisons solubles dans le modérateur, comme le bore, voient leur efficacité d'absorption grandement diminuée à cause de la dégradation du spectre neutronique dans sa partie thermique (la section efficace d'absorption du ^{10}B est en $1/v$). L'ordre de grandeur de cette efficacité (autour de 2pcm/ppm[1] pour un combustible ThPu) sera souvent d'un facteur 3 ou 4 plus faible que pour un combustible UOX (autour de 8 pcm/ppm), nécessitant d'augmenter du même facteur la concentration en bore critique.

4.2 Le modèle Assemblage

La géométrie assemblage qu'utilise notre modèle a été définie dans le chapitre précédent. Elle correspond à un assemblage de type REP-900. Remarquons que nous ne considérons pas, dans cette étude, la différentiation de teneurs de plutonium pour les crayons d'un assemblage (nous n'implémentons donc pas de *zonage*[2]). Ce choix simplificateur se trouve être compatible avec le choix technologique envisagé, pour assemblages MOX des cœurs EPR, non zonés. Nous rappelons ici les spécifications géométriques utilisées.

Structures diluées dans l'eau

Les différentes grilles (au nombre de 8 dans un REP-900) qui assurent la stabilité verticale des crayons dans l'assemblage ne sont pas simulées dans notre géométrie. Pour prendre en compte néanmoins les captures parasites sur ces structures, nous simulons leur présence en diluant leur composition dans le matériau modérateur. Cette simplification est d'usage, par exemple, dans le calculs Apollo effectués à EDF R&D et présentés dans le benchmark précédent (cf. chapitre 3).

Poisons solubles et consommables

Par souci de simplification, nous n'avons pas cherché à simuler, dans notre modèle d'assemblage, les différentes barres (et positions pour ces barres) de poison consommable qui peuvent

[1] ppm (en masse) de bore naturel dissous dans l'eau du circuit primaire.

[2] Le terme *zonage* décrit la différentiation, au sein du même assemblage, de la teneur en plutonium des crayons. Ceux-ci sont enrichis différemment selon leur position dans l'assemblage. Le zonage est introduit dans des réacteurs utilisant du MOX classique (U-Pu) pour aplatir la distribution locale de puissance et réduire les pics de puissance à l'interface entre deux assemblages UOX/MOX.

(a) Assemblage REP[38]

Hauteur combustible	3.6582 m
$R_{\text{combustible}}$	4.0945 mm
$R_{\text{gaine du combustible}}$	4.7500 mm
$R_{\text{tube guide}}$	5.730 mm
$R_{\text{gaine du tube guide}}$	6.123 mm
Côté cellule combustible	1.265 cm
Côté assemblage	21.504 cm
Demi-lame d'eau	0.538 mm

(b) Spécifications géométriques

FIG. 4.1 – *Caractéristiques géométriques d'un assemblage* REP *standard.*

être présentes dans la pratique. La conséquence immédiate de cette simplification est alors une réserve d'antiréactivité totalement assumée par le bore soluble du modérateur. Notre simulation surestime donc la valeur du bore critique et par conséquent sous-estime la valeur absolue du coefficient de vidange (que l'on désire garder négatif). C'est donc un cas volontairement pessimiste qu'on cherche à valider.

4.3 Comparaison des fuites neutroniques en combustible ThPu et combustible UOX

La figure 4.3 donne les spectres neutroniques dans le combustible calculés pour deux systèmes, l'un à combustible UOX , le deuxième de type ThPu. Le spectre neutronique du combustible ThPu est, par rapport au spectre dans le combustible UOX , nettement plus *dur*. On peut visuellement constater l'absence de *"bosse"* thermique dans le spectre du combustible ThPu : les neutrons, ralentis dans le modérateur (sur le graphe, ces neutrons *arrivent par la droite*), sont entièrement absorbés par les isotopes du plutonium, notamment par la résonance à environ 0.25 eV du ^{239}Pu et à 1 eV du ^{240}Pu .

On s'attend à avoir alors, pour le combustible de type ThPu, plus de fuites de neutrons hors du cœur que dans le cas du combustible UOX : ce sont en effet, les neutrons d'énergie plus *rapide* qui, ayant plus de chances d'échapper aux captures dans le combustible, ont alors un libre parcours moyen plus grand et une plus grande probabilité de fuir hors du cœur.

La figure 4.3 donne les spectres neutroniques calculés pour les deux systèmes, à deux endroits différents de la géométrie du cœur : en sortie des assemblages périphériques du cœur, et dans

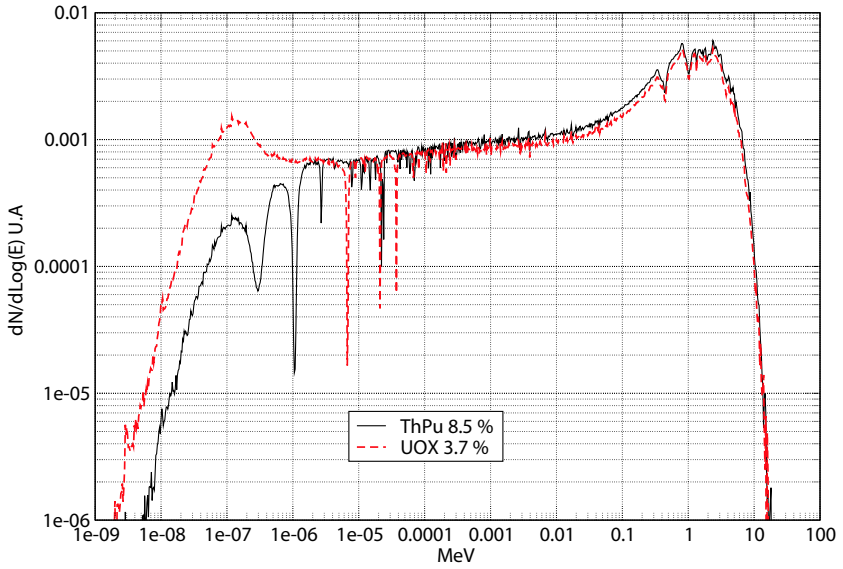


FIG. 4.2 – *Spectres neutroniques dans le combustible, pour un système ThPu (8.5% en Pu) et un système UOX (3.7% en ^{235}U).*

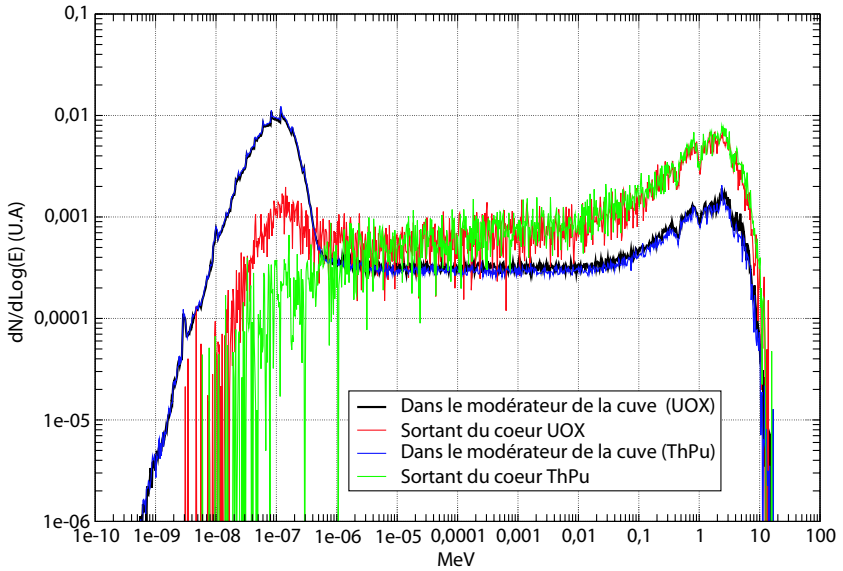


FIG. 4.3 – *Spectres neutroniques sortant du combustible (à la surface) et dans le modérateur de la cuve, pour un système ThPu (8.5% en Pu) et un système UOX (3.7% en ^{235}U)* : une fois dans l'eau les deux spectres sont complètement modérés et se superposent.

l'eau qui les entoure. Même si les neutrons sortant du combustible ThPu sont clairement plus rapides, en moyenne, que ceux sortant du combustible UOX , une fois dans l'eau du modérateur

Type de combustible	ThPu (8.5%)	UOX (3.7%)
C_b (ppm massique B_{nat}/H_20)	6100	3600
k_{eff} (cœur mono-assemblage)	1.000(50)	1.000(50)
k_∞ (assemblage)	1.016(83)	1.040(41)
Abs. dans l'eau de la cuve (non borée) + fuites (par fission)	4.9%	3.3%
Abs. dans l'eau de la cuve (borée) + fuites (par fission)	5.5%	4.0%
$(k_\infty - 1)/k_\infty$ (pcm)	1650	3900

TAB. 4.2 – *Pertes neutroniques normalisées par fission ((n,γ) + (n,α) dans l'eau de la cuve + fuites hors de la cuve) pour une configuration de cœur mono-assemblage avec un combustible ThPu et un combustible UOX. Valeurs de k_∞ calculées.*

les spectres dans l'eau de la cuve se superposent pratiquement.

4.3.1 Estimation des absorptions neutroniques dans la cuve

La proportion de neutrons qui fuient hors du cœur dépend, d'une part de la géométrie du cœur, qui pour nous est celle d'un REP, mais aussi du type de spectre de neutrons et donc, du combustible considéré.

Nous avons évalué les pertes neutroniques dans notre modèle de cœur mono-assemblage, en calculant les absorptions neutroniques dans l'eau de la cuve du réacteur ainsi que la proportion de neutrons qui s'échappent de celle-ci. Nous avons uniquement considéré, dans ce calcul, les captures radiatives et réactions (n,α) ayant lieu dans l'eau borée de la cuve, à l'extérieur des assemblages.

Soulignons toutefois que cette façon d'estimer les pertes présente des limites évidentes : elle est faite sur une géométrie cœur dont tous les assemblages ont du combustible frais. Cependant, comme le spectre dans l'eau de la cuve est sensiblement le même, que ce soit pour les neutrons sortant d'un combustible ThPu ou d'un combustible UOX , on peut qualitativement conclure sur l'importance des fuites de neutrons hors de la région combustible en comparant le rapport des absorptions neutroniques dans l'eau de la cuve calculées pour les deux systèmes. Le tableau 4.2 donne ces valeurs. Le rapport des "pertes" neutroniques, par absorption dans l'eau de la cuve ou fuite hors d'elle, est environ 1.5 fois plus grand pour le combustible ThPu, proportion de neutrons qui est perdue pour le bilan neutronique dans le combustible. Sur ce même tableau sont incluses les valeurs du facteur k_∞ calculées sur l'assemblage avec la concentration de bore C_b pour laquelle on a k_{eff} (cœur) = 1. (Nous détaillerons comment on calcule C_b à la section 4.4.1).

4.3.2 Fuites neutroniques vs perte de réactivité

Lorsque la condition $k_{eff} = 1$ est réalisée pour le modèle de cœur mono-assemblage, la différence ($k_\infty - k_{eff}$), permet de retrouver, dans le cas de l'UOX, l'ordre de grandeur, en termes de réactivité, des fuites neutroniques qu'on peut communément trouver dans la littérature, soit de 3000 à 5000 pcm([39], [42]). On retrouve alors, pour le calcul assemblage UOX, une valeur pour k_∞ d'environ 1.04, correspondant aux neutrons qui, n'ayant pas été perdus dans le modèle assemblage infini, apportent environ 4000 pcm de réactivité supplémentaires.

Ce même raisonnement, appliqué au cas ThPu, ne permet cependant pas d'identifier un gain de 5500 pcm en réactivité (ce qui correspondrait à retrouver un k_∞ de 1.055 en calcul assemblage), cette valeur serait en effet dans le rapport des absorptions ThPu dans la cuve par rapport aux absorptions calculées dans le cas de l'UOX.

4.3.3 Limites du calcul assemblage

La proportion de fuites neutroniques hors du cœur et les pertes que ces fuites induisent en termes de réactivité ne peuvent pas être calculées en mode assemblage. Dans un spectre comme celui du combustible ThPu, aucun neutron thermique ne sort pratiquement du combustible. En modélisant un assemblage en milieu infini, on reproduit alors des conditions aux limites de l'assemblage qui sont très différentes de celles que connaîtrait, par exemple, un assemblage en périphérie du cœur : les neutrons réfléchis vers l'intérieur sont distribués, dans le cas du calcul assemblage infini, selon le spectre en énergie propre au neutrons sortant du combustible.

Or, à leur surface extérieure, commune avec l'eau de la cuve, les assemblages périphériques voient effectivement un spectre très thermalisé. Les neutrons qui reviennent dans ces assemblages seront alors complètement absorbés dans le combustible : ils contribuent ainsi à faire remonter la réactivité localement. Les assemblages extérieurs auront une réactivité plus importante. Il faut cependant tenir compte que cette situation ne concerne, dans un REP, que 36 assemblages sur 157 et que ceux-ci, de par leur forte absorption, agissent en tant que barrière des neutrons thermiques provenant de la cuve. Le calcul assemblage est alors plus représentatif des assemblages intérieurs, qui constituent la majorité des assemblages.

Cette remarque est, en toute rigueur, également valable pour le combustible UOX ; elle est cependant nuancée par le fait que dans le cas du calcul assemblage en milieu infini UOX, le combustible voit, à sa surface extérieure, un spectre qui reste de type thermique. On peut, d'une façon qualitative, conclure que le *poids* en réactivité des assemblages extérieurs d'un cœur UOX diffère moins de celui des assemblages intérieurs, et que cet écart sera plus prononcé dans un cœur ThPu.

4.4 Les différents types de plutonium considérés.

Nous étudierons deux types de combustible $ThPuO_2$ *de référence*, en distinguant l'origine du plutonium qui les compose. Pour différentier le plutonium issu d'un combustible UOX irradié de celui issu d'un combustible de type MOX irradié nous adoptons la notation explicite Pu_{uox} et Pu_{mox} respectivement. Le tableau 4.3 donne les vecteurs isotopiques, pour ces deux types de plutonium qu'on considère, à divers temps de refroidissement avant séparation. Une période de fabrication de deux ans après séparation du plutonium est prise en compte dans tous les cas et conduit à l'apparition de ^{241}Am dans le combustible.

Type de Pu		Pu_{uox}		Pu_{mox}	
Issu d'un combustible		UOX (^{235}U 3.5%)		MOX (Pu 8.2 %)	
Taux de combustion total		33 000 MWj/t		43500 MWj/t	
Refroidissement avant séparation		5 ans	30 ans	5 ans	30 ans
^{238}Pu	(%mol.)	1.56	1.38	4.34	3.99
^{239}Pu	(%mol.)	60.32	64.98	37.67	42.13
^{240}Pu	(%mol.)	23.21	24.96	31.32	34.96
^{241}Pu	(%mol.)	8.87	2.86	12.63	4.22
^{242}Pu	(%mol.)	5.14	5.54	12.75	14.27
^{241}Am	(%mol.)	0.90	0.29	1.28	0.43
Teneur en fissile	(%mol.)	69.2	67.8	50.2	46.3

TAB. 4.3 – *Provenance des variétés de plutonium[32] et vecteurs isotopiques du plutonium pour deux temps de refroidissement étudiés. Une période de deux ans (fabrication) est considérée entre la séparation et l'utilisation, qui conduit à la présence d'^{241}Am.*

Effet du viellissement du combustible sur le taux de combustion

Le temps d'attente avant le séjour en cœur du combustible est un paramètre important. Suivant ce temps d'attente, le nucléide ^{241}Pu ($T_{1/2} = 14.35$ ans) présent dans le combustible peut décroître significativement, en diminuant ainsi la proportion de noyaux fissiles, remplacés par de l'^{241}Am, absorbant neutronique. Cet effet sera encore plus visible sur le plutonium de type Pu_{mox}, car la proportion de ^{241}Pu y est plus importante. La figure 4.4 illustre l'effet de ce *vieillissement* sur l'évolution du k_∞ d'un combustible Pu_{mox}. On observe sur cette figure, que la disparition du ^{241}Pu réduit considérablement la durée pendant laquelle le k_∞ du combustible est

supérieur à 1. Dans ce combustible, le ^{241}Pu représente environ 25% des noyaux fissiles (^{239}Pu et ^{241}Pu). Une fois fabriqué, un combustible à base de plutonium est *"à consommer de préférence avant"* une certaine date qui varie avec sa teneur en isotope ^{241}Pu .

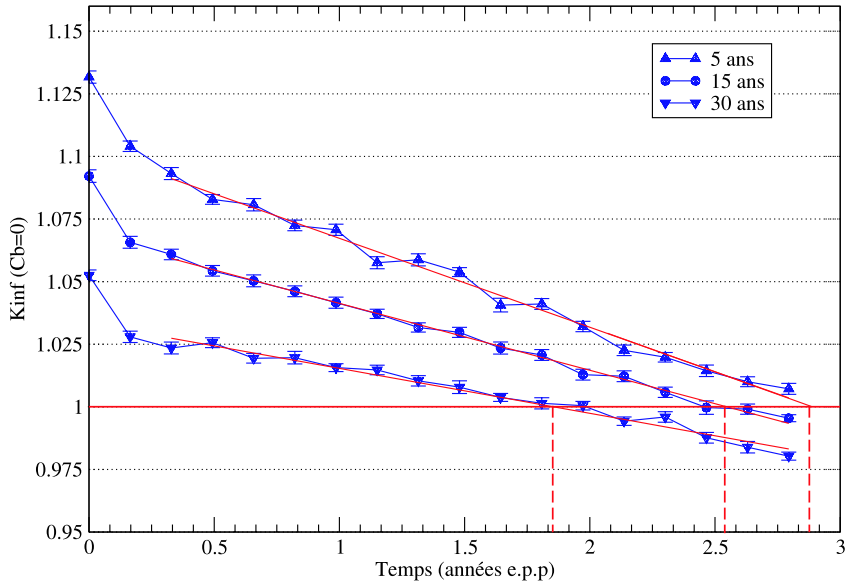


FIG. 4.4 – *Le temps d'attente après fabrication est un paramètre important. La décroissance du ^{241}Pu réduit considérablement le burnup qu'un combustible "en attente" pendant trop longtemps peut endurer. Cas d'un combustible $ThPu_{mox}$ à 12.5%.*

Nous avons considéré deux temps d'attente avant le retraitement du plutonium considéré, de 5 et de 30 ans. Le premier reflète une durée représentative des délais minimum concevables avec la technologie de retraitement actuelle, le deuxième est une durée typique de l'attente qu'un combustible MOX connaîtra dans les scénarios français de transition ; il illustre également l'effet du vieillissement du combustible à une date où son contenu en ^{241}Pu aura décru de trois quarts environ. Nous avons adopté, pour faire référence à ces deux durées avant séparation, l'appellation *"jeune"* et *"vieux"* respectivement.

Effet de la teneur en fissile du combustible sur le flux moyen

A puissance constante P, le taux global de fissions est fixé. Ceci impose une condition sur la valeur du flux moyen $< \phi >$ vu par le combustible. En raisonnant sur une cellule combustible qui voit le même flux moyen, cette relation est donnée par :

$$< \phi >= \frac{P}{\sum_i N_i \sigma_i^{fiss} \epsilon_i} \tag{4.1}$$

où la somme (avec les notations habituelles) est effectuée sur tous les noyaux lourds. En écrivant cette égalité pour les principaux noyaux fissiles, N_i est directement proportionnel à la proportion de noyaux fissiles, donc aux teneurs en plutonium pour un combustible ThPu. Ceci reflète la notion usuelle qu'à moindre concentration en fissile, un flux moyen plus important est nécessaire pour maintenir une puissance constante. La relation entre la concentration en noyaux fissiles et le flux n'est cependant pas une relation de proportionnalité inverse. Dans le cas du plutonium, en abaissant la teneur en fissile (ou la teneur en plutonium tout court) les sections efficaces de fission et d'absorption du plutonium sont modifiées, du fait d'une nouvelle valeur de l'autoprotection et d'une plus grande thermalisation des neutrons. La marge à compenser par une hausse du flux est donc *amortie* par cette nouvelle autoprotection des sections efficaces, qui, à moindre teneur en noyau fissile, sont moins autoprotégées. La figure 4.5 illustre l'évolution du flux moyen pour deux teneurs différentes de plutonium : en réduisant d'une teneur de 10% à une teneur de 7%, la quantité présente de plutonium dans le combustible et, en réajustant la concentration de bore critique nécessaire dans notre modèle, l'effet sur l'augmentation du flux moyen n'est que d'environ 3%.

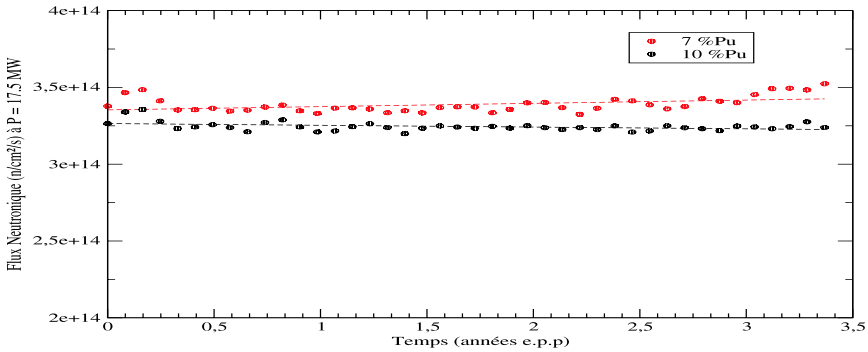


FIG. 4.5 – *Pour un même type de combustible et à puissance donnée, différentes teneurs en plutonium induiront un flux moyen différent, moindre à plus grande teneur. Exemple sur le ThPu type* Pu_{uox} *jeune.*

Effet du bore sur la forme du spectre neutronique

L'ajout de bore dans le modérateur a pour effet de réduire sensiblement la population neutronique sur toute la gamme d'énergie, mais plus sensiblement aux faibles énergies où la section

efficace de réaction (n, α) du ^{10}B a une valeur très élevée. L'effet du bore sera donc visible sur la *forme* du spectre et concernera plus particulièrement la partie thermique. Afin de fixer les idées, nous discutons un exemple donné, celui d'un combustible ThPu de type Pu_{uox} enrichi à 10%. La figure 4.6 montre clairement la différence entre les spectres calculés, l'un avec une quantité importante de bore (7500 ppm)[3], l'autre sans. Le tableau 4.4 donne quelques valeurs de sections efficaces, calculées pour ces deux cas au début de l'irradiation, pour les principaux actinides du combustible. On constate une baisse des sections efficaces moyennes de fission dans le cas contenant du bore, ce qui peut s'expliquer par la baisse globale de la population neutronique dans le domaine d'énergie thermique, où les sections efficaces de fission de ces noyaux présentent des résonances.

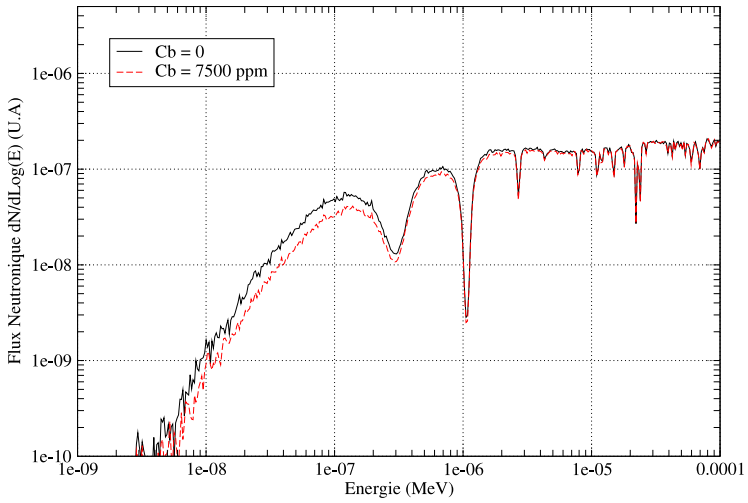


FIG. 4.6 – *Effet du bore dissous dans le modérateur sur le spectre neutronique dans le combustible (ici au début de l'irradiation). L'ajout de bore dégrade significativement la partie thermique du spectre.*

Retenons cependant que si un changement de la forme du flux entraîne *a fortiori* un changement des valeurs moyennes des sections efficaces de réaction des noyaux du combustible, le sens et l'intensité de cette variation ne sont pas déterminés *a priori* : ils dépendent de l'allure du spectre neutronique et des sections efficaces concernés.

[3]Cette quantité de bore, on le verra par la suite, est celle qui rétablit une valeur de $k_{eff} = 1$ pour un cœur entièrement chargé avec ce type de combustible, sans barres de contrôle.

C_b	$\sigma^{\mathrm{Th232}}_{(n,\gamma)}$	$\sigma^{\mathrm{Pa233}}_{(n,\gamma)}$	$\sigma^{\mathrm{U233}}_{(n,\gamma)}$	$\sigma^{\mathrm{U233}}_{(n,f)}$	$\sigma^{\mathrm{Pu239}}_{(n,\gamma)}$	$\sigma^{\mathrm{Pu239}}_{(n,f)}$	$\sigma^{\mathrm{Pu240}}_{(n,\gamma)}$
0 ppm	0.68	21	3.7	23	10.5	19	24
7500ppm	0.67	21	3.6	22	9.2	17	22
C_b	$\sigma^{\mathrm{Pu241}}_{(n,\gamma)}$	$\sigma^{\mathrm{Pu241}}_{(n,f)}$	$\sigma^{\mathrm{Pu242}}_{(n,\gamma)}$	$\sigma^{\mathrm{Cm242}}_{(n,\gamma)}$	$\sigma^{\mathrm{Cm243}}_{(n,\gamma)}$	$\sigma^{\mathrm{Cm244}}_{(n,\gamma)}$	$\sigma^{\mathrm{Am241}}_{(n,\gamma)}$
0 ppm	8.1	27	14	3.5	7.7	13	37
7500 ppm	7.2	24	14	3.5	7.2	13	35

TAB. 4.4 – *Sections efficaces moyennes (en barn) de capture radiative ou fission des principaux actinides et quelques actinides mineurs selon que l'on ajoute du bore dans la composition du modérateur. L'augmentation globale du flux moyen résultante aura des effets différents sur les taux de réaction de chaque noyau selon la nouvelle valeur moyenne des sections efficaces.*

Effet du bore sur l'intensité ou valeur moyenne du flux neutronique

Parce qu'il consomme des neutrons majoritairement thermiques, la présence de bore entraînera un *durcissement* du spectre. A puissance constante, l'intensité du flux moyen va augmenter, car elle doit s'adapter aux nouvelles valeurs moyennes de sections efficaces thermiques de fission des noyaux fissiles, revues à la baisse à cause de l'ajout du bore. Il est intéressant de calculer l'évolution du combustible en deux situations extrêmes, l'une en gardant $C_b = C_{b_0}$ constante pendant l'évolution, l'autre en prenant $C_b = 0$. La figure 4.7 illustre l'évolution du flux moyen vu par le combustible dans les deux cas.

Pour un même taux de fission global, on pourra observer un taux de capture plus important pour un noyau donné, dans une situation où le bore est présent. Ainsi, pour les noyaux transplutoniens, formés par captures radiatives successives, on observe par exemple une augmentation sensible de leur production, conséquence de l'augmentation du flux moyen nécessaire pour maintenir une valeur de puissance constante, et des nouvelles sections efficaces moyennes.

La figure 4.8 montre l'évolution de l'inventaire d'^{233}U sur le même exemple de combustible que précédemment[4]. Les deux valeurs d'inventaire calculées avec et sans bore s'écartent d'environ 8% en fin de *burnup* : c'est écart est encore la conséquence des modifications subies par le niveau de flux neutronique et des sections efficaces moyennes lorsque le bore est présent. Le tableau 4.5 donne l'écart induit sur l'inventaire calculé pour les principaux actinides.

[4] $\mathrm{Pu_{uox}}$ jeune enrichi à 10%, $C_b = 7500$ ppm

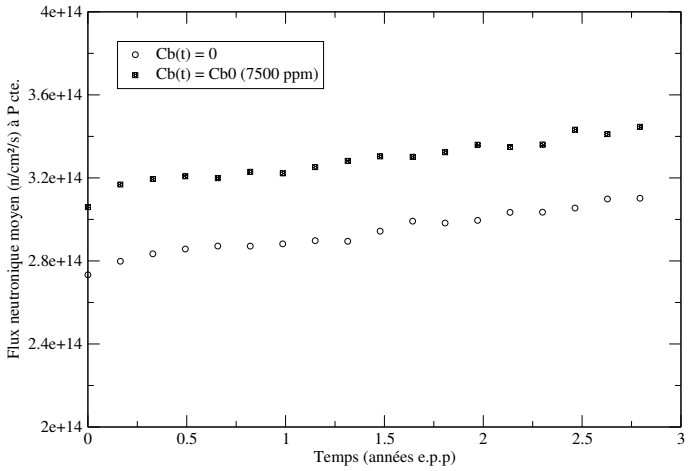


FIG. 4.7 – *Evolution du flux neutronique moyen vu dans le combustible, en gardant C_{b_0} constante pendant l'évolution*

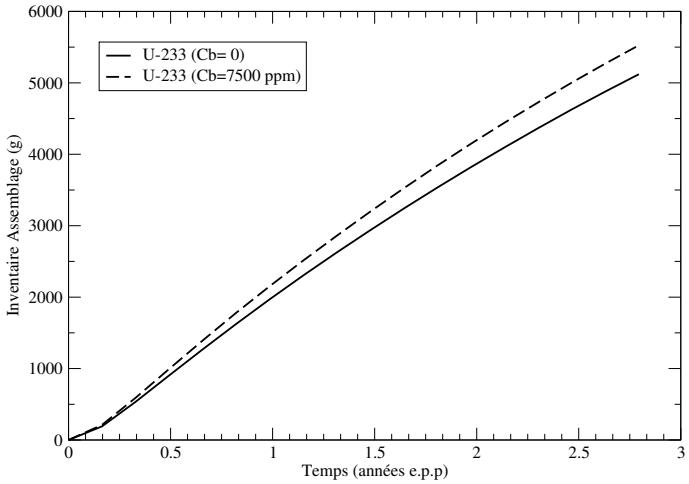


FIG. 4.8 – *Evolution de l'inventaire d'^{233}U en gardant C_{b_0} constante pendant l'évolution, par rapport à une situation sans bore (Cb=0). Exemple d'évolution d'un combustible Th Pu_{uox} jeune à 10% de plutonium.*

4.4.1 Détermination d'une valeur de C_{b_0}

Nous avons vu, au début de ce chapitre, que l'efficacité du bore est très amoindrie dans un combustible à base de plutonium. Quelle est la valeur de la concentration de bore critique C_b à considérer lors de nos calculs en modèle assemblage ? L'approximation utilisée ici consiste à calculer la valeur qui, *pour une géométrie de cœur entièrement chargé en combustible ThPu du*

^{246}Cm	18.8%	^{244}Am	7.1%
^{245}Cm	23.5%	^{243}Am	3.6%
^{244}Cm	11.1%	^{242*}Am	3.8%
^{243}Cm	8.5%	^{242}Am	4.8%
^{242}Cm	1.5%	^{241}Am	1.6%
^{242}Pu	-2.6%	^{237}Np	3.2%
^{241}Pu	3.1%	^{234}U	12.3%
^{240}Pu	-2.8%	^{233}U	7.9%
^{239}Pu	2.5%	^{232}U	15.1%
^{238}Pu	0.5%	^{233}Pa	7.3%

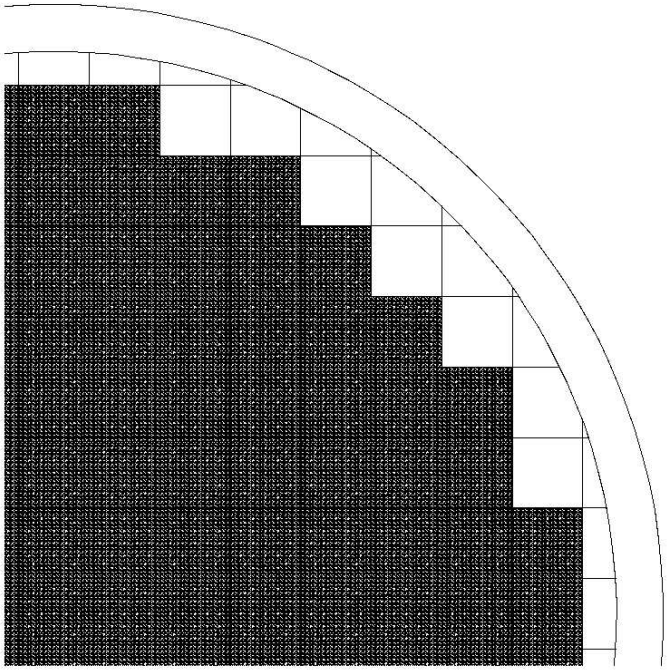
TAB. 4.5 – *Ecarts par rapport à une évolution sans bore sur les inventaires des principaux actinides en fin d'irradiation (40GWj/t) dans l'évolution d'un combustible ThPu à 10% de type Pu_{uox} jeune contenant 7500 ppm de bore dans le modérateur.*

même type, assure la valeur 1 du facteur k_{eff} au début de l'irradiation. La figure 4.9 donne un aperçu de la géométrie d'un cœur REP-900 à 157 assemblages.

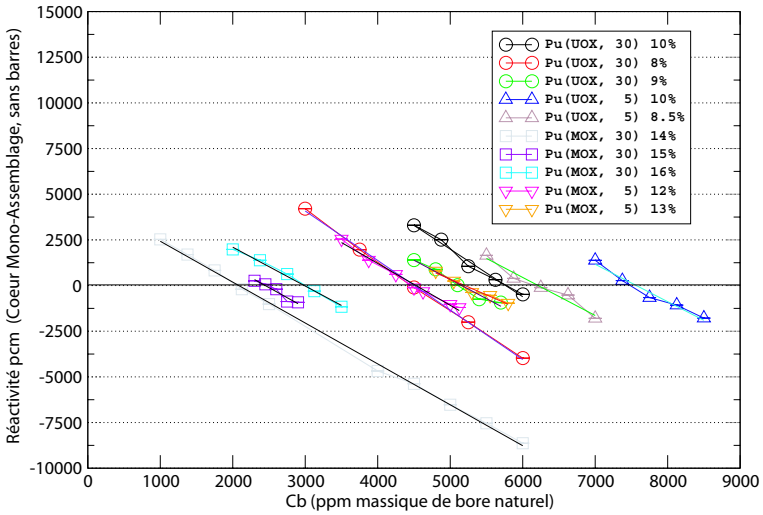
Or, cette configuration cœur, qu'on appelle *mono-assemblage*, puisque tous les assemblages du cœur sont identiques, surestimera d'emblée C_{b_0}, la quantité de bore soluble dans l'eau du modérateur nécessaire pour avoir $k_{eff} = 1$. D'une part comme nous l'avons déjà dit (en 4.2) nous ne simulons pas la présence de barres de contrôle ou de poison consommable, car le nombre et la hauteur d'insertion de celles-ci varient pendant l'irradiation et suivant la position de l'assemblage qu'on considère, ce qui est dépourvu d'intérêt dans un calcul d'assemblage en mode infini qui veut se rapprocher de conditions *moyennes* du cœur. Par ailleurs il faut considérer que la réactivité présente (hormis la situation du cœur neuf au démarrage) dans un cœur en régime de fonctionnement, est forcément moindre que celle estimée dans notre modèle de cœur mono-assemblage. Dans une situation réaliste, le cœur du réacteur est constitué d'assemblages qui ont subi des cycles et des taux de combustion différents et où les produits de fission sont présents sur les assemblages déjà irradiés.

Toutefois, en n'ayant que le bore soluble du modérateur comme seule source d'antiréactivité présente au début de l'irradiation, nous simulerons le bon nombre d'absorptions sur l'évolution entière, lorsque, nous le verrons par la suite, nous prendrons en compte la perte du bore soluble.

Nous effectuons donc une exploration en concentration de bore afin de trouver la valeur C_{b_0} dans la configuration cœur mono-assemblage pour les différents type de combustible MOX ThPu

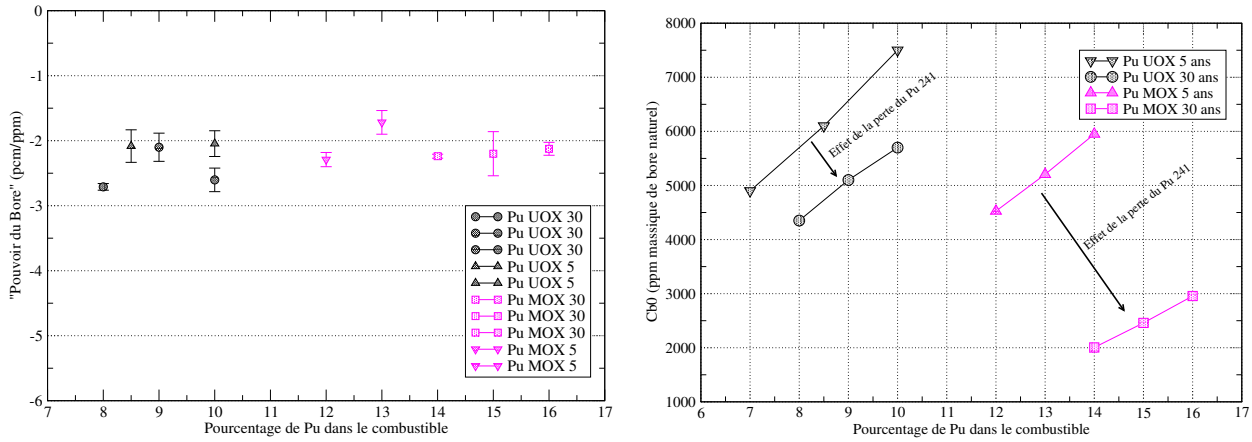


(a)



(b)

FIG. 4.9 – *(a) Géométrie Cœur mono assemblage sans barres de contrôle (montrée ici en quart) et (b) Exploration de C_b afin de déterminer C_{b_0} telle que $k_{eff}(C_{b_0}) = 1$.*



(a) (b)

FIG. 4.10 – (a) *"Pouvoir du bore" estimé en pcm/ppm par la pente des courbes $\rho(C_b)$ pour chaque combustible étudié.* et (b) $C_{b_0} = f(\%\text{Pu})$

considérés. La figure 4.9.b illustre cette exploration en termes de réactivité. Nous vérifions par ces calculs que le *pouvoir du bore*, exprimé en pcm/ppm, est bien, dans un combustible ThPu, inférieur aux valeurs typiquement rencontrées dans un combustible UOX (autour de -8pcm/ppm). Pour nos différents types de combustible MOX ThPu, ces valeurs oscillent autour de -2pcm/ppm, d'où l'importante quantité de bore requise. Ceci est illustré à la figure 4.10. On constate que le *vieillissement* du plutonium, qui conduit à la perte de sa teneur en ^{241}Pu, a d'importantes conséquences sur la valeur de C_{b_0}, qui est beaucoup plus faible pour les combustibles à base de plutonium de type Pu_{mox} vieux, plus riches en ^{240}Pu . Le tableau 4.6 donne les valeurs de C_{b_0} retenues pour les différents types de combustible MOX ThPu.

Type de Pu	Pu_{uox} *jeune*			Pu_{uox} *vieux*		
Teneur (% massique de Pu dans oxyde $ThPu0_2$)	7%	8.5%	10%	8%	9%	10%
C_{b_0} (sans barres) [ppm]	4900	6100	7500	4350	5100	5700
Type de Pu	Pu_{mox} *jeune*			Pu_{mox} *vieux*		
Teneur (% massique de Pu dans oxyde $ThPu0_2$)	12%	13%	14%	14%	15%	16%
C_{b_0} (sans barres) [ppm]	4500	5200	5950	2000	2450	2950

TAB. 4.6 – *Concentrations en bore critique C_{b_0} déterminées pour chaque type de combustible ThPu au début de l'irradiation.*

4.5 Les Coefficients de Réactivité

Une fois la valeur de C_{b_0} déterminée pour chaque type de combustible, nous pouvons entamer le calcul des coefficients de contre-réaction pour une configuration de combustible donnée au début de l'irradiation. Nous considérons ici la réactivité ρ du système, définie comme

$$\rho = \frac{k_\infty - 1}{k_\infty} \tag{4.2}$$

Nous nous intéressons à la variation de la réactivité comme réponse à un changement des paramètres qui définissent l'état du réacteur. Ces paramètres, qu'on prendra ici comme variables indépendantes, sont la température du combustible (T_{F}), ainsi que la température du modérateur (T_{M}) et la densité du modérateur (D).

Perte du modérateur : effet sur la réactivité

Dans les critères de sûreté d'un réacteur à eau légère, la valeur du coefficient de vide joue un rôle particulièrement important. Dans ces réacteurs, l'eau est à la fois le modérateur et le caloporteur du système. Une perte ou une dilatation du modérateur (qui peut être provoquée par une défaillance du circuit primaire ou une brusque montée en température) entraînera plusieurs effets, qui peuvent être antagonistes du point de vue de la réactivité qu'ils apporteront au nouvel état (transitoire) du système. On peut ici, par la pensée, séparer ces effets en deux catégories : ceux susceptibles d'augmenter la réactivité du système, et ceux susceptibles de la diminuer.

Parmi les effets qui, suite à la perte du modérateur, augmenteront la réactivité, on doit citer :

- La perte du bore dissous dans l'eau et de son antiréactivité associée, plus la perte des absorptions sur l'hydrogène de l'eau. Cette contribution en réactivité positive dépendra de la valeur de C_b, et donc du type de combustible et de l'instant dans le cycle d'irradiation où cette perte survient.
- A perte quasi totale du modérateur, les fissions qui surviennent lorsque le spectre devient suffisamment *rapide* pour que les réactions (à seuil) de fission des éléments non-fissiles (^{240}Pu et ^{242}Pu) soient significatives. Cet effet sera d'autant plus grand que la teneur en plutonium du combustible est grande.

Les effets qui, lors de la perte du modérateur, font chuter la réactivité du système sont :

- La baisse des taux de fissions thermiques due au durcissement du spectre.

- La contre-réaction Doppler du combustible, suite à l'augmentation en température qui survient lorsque l'on perd le caloporteur. Cet effet relève toutefois d'un calcul complet de transitoire et est quantifié ici par les coefficients de température du combustible et du modérateur.

La figure 4.11 illustre l'effet de la perte du modérateur sur le spectre de neutrons lorsqu'on diminue la densité de celui-ci. Soulignons que le durcissement du spectre s'accélère pour devenir clairement rapide à partir d'une perte de 80% de la densité du modérateur : les effets les plus flagrants sur la forme globale du spectre sont constatés sur la perte des derniers 10% de densité.

Allure du facteur de multiplication k_∞ en fonction de l'énergie

Afin de mieux visualiser la variation du facteur de multiplication k_∞ (et par conséquent, de la réactivité ρ) avec l'énergie moyenne des neutrons, nous définissons la quantité K fonction de l'énergie des neutrons comme suit :

$$K(E) = \frac{\sum_i \nu_i N_i \sigma_i^{(n,f)}(E)}{\sum_i N_i \sigma_i^{\text{abs}}(E)} \tag{4.3}$$

où la somme sur i considère les principaux noyaux du combustible et les précurseurs des noyaux fissiles importants :

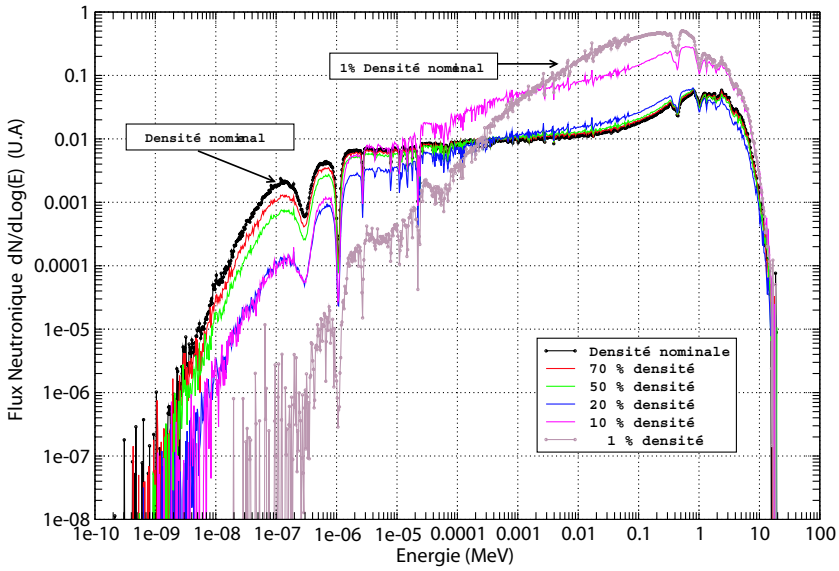
^{232}Th, ^{233}Pa, ^{233}U, ^{234}U, ^{235}U, ^{238}U, ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu , ^{241}Am .

La fonction $K(E)$ peut être considérée comme un indicateur du comportement du facteur k_∞ du combustible seul suivant l'énergie des neutrons. Nous pouvons ainsi suivre le comportement de la fonction $K(E)$ à divers moments de l'évolution du combustible en considérant l'évolution du vecteur N_i des proportions des noyaux dans l'expression de K.

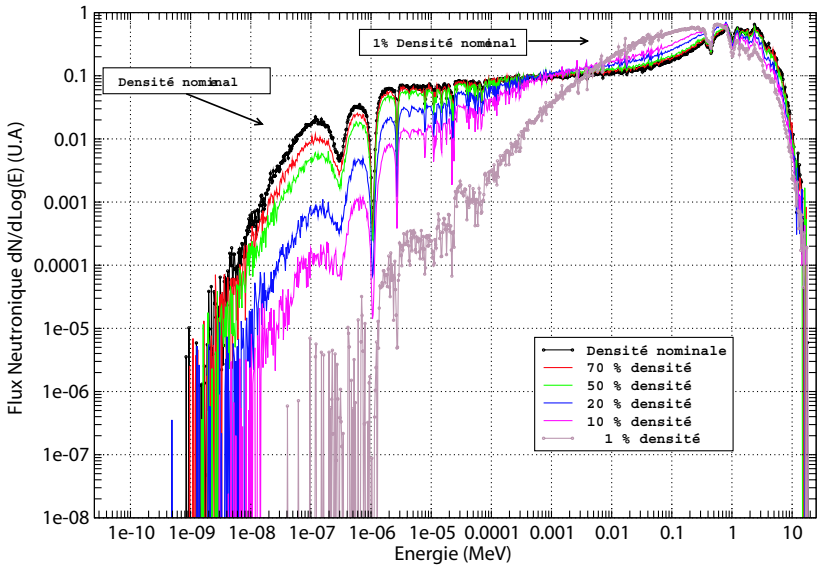
La figure 4.12 trace l'allure de la fonction K(E) au début de l'irradiation. L'analyse de cette quantité K(E), tracée pour les différentes configurations de combustible, va nous aider à mieux comprendre le comportement de la réactivité du système lors de la dilatation du modérateur, ou, de façon équivalente, du décalage du spectre de neutrons vers des zones d'énergies plus *rapides*.

Remarquons tout de suite que lorsque le spectre de neutrons se décale *légèrement*, en restant dans le domaine des énergies thermiques, vers les énergies croissantes, l'effet de la perte de modération sur la réactivité est toujours négatif : le ^{240}Pu présent dans le combustible, quelque soit le type de plutonium considéré, annule pratiquement la valeur de $K(E)$ à sa résonance de 1eV. Une augmentation de la température aura donc pour effet de faire chuter la réactivité, puisque le spectre de neutrons se décale effectivement *"vers la droite"* dans ce cas de figure.

La figure 4.13.a reprend la partie thermique et épi-thermique (en dessous de 100 eV) pour plus de clarté et illustre le *"creux"* qui existe dans l'allure de $K(E)$ à la valeur de la résonance de



(a) $C_b = C_{b_0}$



(b) $C_b = 0$

FIG. 4.11 – *Durcissement du spectre de neutrons lors d'une diminution de la densité du modérateur pour deux type de combustibles ThPu : (a) $ThPu_{uox}$, à teneur de 8.5% en Pu et (b) $ThPu_{mox}$, à teneur de 15% en Pu.*

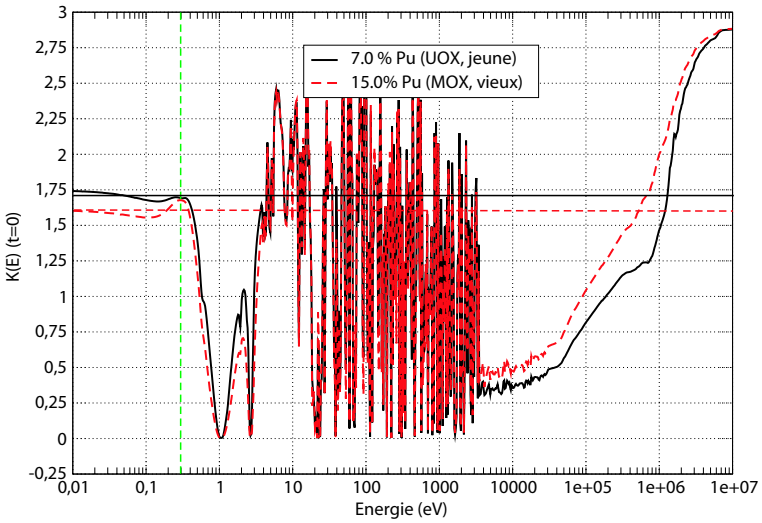


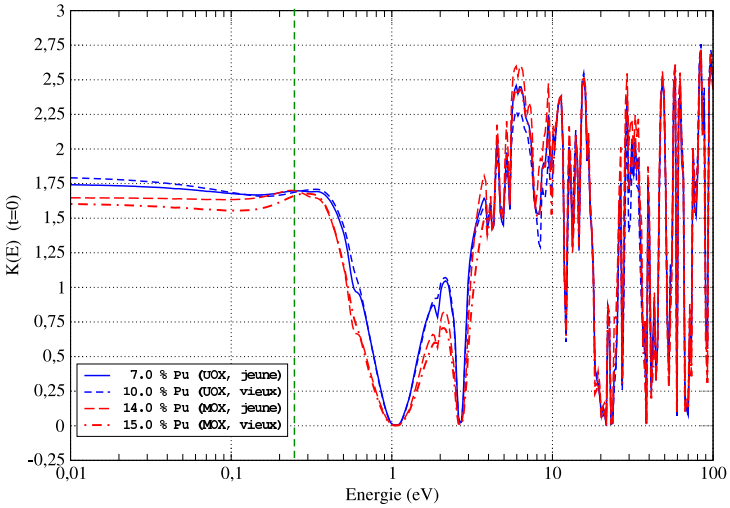
FIG. 4.12 – *Comportement de la quantité K(E) pour le combustible au début de l'irradiation, en fonction de l'énergie du neutron.*

1 eV du ^{240}Pu . La figure 4.13.b donne la variation de la fonction $K(E)$ aux énergies *rapides* (au delà de 100 keV) et nous permet d'aborder la suite de la discussion qui concerne la perte, jusqu'à des valeurs quasi nulles en densité, du modérateur. Dans ce dernier cas de figure, le spectre devenu clairement rapide, on observera une remontée de la réactivité du fait de la contribution des fissions à seuil des isotopes non-fissiles.

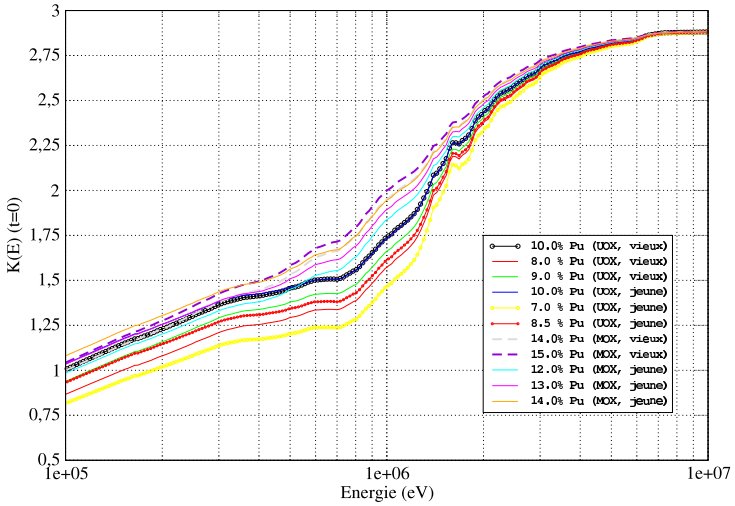
Le cas particulier du combustible à base de $\mathbf{Pu_{mox}}$

Les combustibles ThPu à base de $\mathrm{Pu_{mox}}$ nécessitent, comme on a vu, des teneurs beaucoup plus élevées en plutonium à cause de la moindre qualité neutronique de ce dernier. Ces teneurs en plutonium sont dans le domaine des teneurs en fissile qu'on s'attend à trouver dans un réacteur rapide surgénérateur (cf chapitre 1.). En outre, leur concentration en ^{240}Pu , dont le seuil de fission est à environ 0.8 MeV, est beaucoup plus élevée, à plus de 30% contre 20% environ dans les $\mathrm{Pu_{uox}}$. En spectre rapide, les noyaux non-fissiles contribueront de façon plus importante à faire remonter la réactivité via les fissions à seuil, puisque présents en plus grande proportion. Cet apport de réactivité supplémentaire sera plus important que dans les combustibles de type $\mathrm{Pu_{uox}}$.

Le comportement de la réactivité lors de la perte de modération diffère de façon flagrante lorsque le spectre devient nettement rapide. Nous constatons, pour les combustibles de type $\mathrm{Pu_{mox}}$, une moindre perte de réactivité lors de la perte du modérateur. Nous illustrons ceci par la suite.



(a)



(b)

FIG. 4.13 – *Parties (a) thermique et (b) rapide de la fonction K(E) pour différentes configurations de combustible ThPu au début de l'irradiation.*

Calcul du coefficient de vide

Afin de voir le comportement de la réactivité ρ du système en fonction de la densité D du modérateur, nous effectuons des calculs de criticité directs. Nous considérons alors une exploration en densité, de la valeur nominale, D_0 (0,72037, à 600 K et 155 bar), à 1% de cette valeur, en pas de 10%. Nous nous intéressons particulièrement à deux valeurs déduites de ces calculs :

- La pente à l'origine de la fonction $\rho(D)$, calculée sur l'écart en réactivité lors de la perte des premiers 10% en densité du modérateur. On notera $(\partial\rho/\partial D)_{D_0}$ cette valeur, exprimée en pcm/%.
- En notant $\rho_0 = \rho(D_0)$ et $\rho_{1\%} = \rho(D_0/100)$, on donnera l'écart total en reactivité, α_{vide}, qui est la différence $\rho_{1\%} - \rho_0$, exprimé en pcm.

On pourra observer sur l'évolution de $\rho(D)$, du fait des effets sur la réactivité énoncés plus haut et qui coexistent à tout moment, des signes différents pour la pente initiale $(\partial\rho/\partial D)_{D_0}$ et l'écart final en réactivité α_{vide}. Le bilan en terme de réactivité globale du système peut s'inverser à mesure que la densité du modérateur diminue. Pour mieux comprendre ceci nous séparons la perte de modération de la perte de l'eau borée. Ceci est détaillé maintenant.

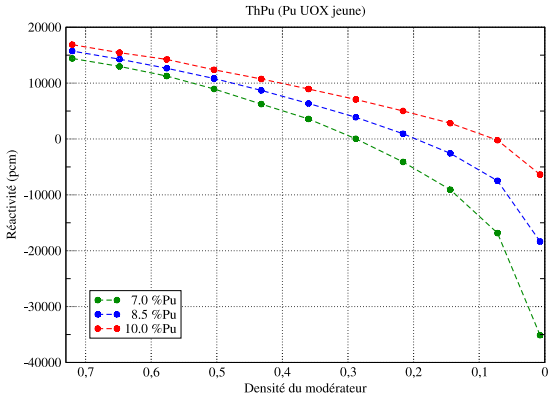
Perte du modérateur sans bore dissous

Dans un premier temps nous effectuons ces calculs sans bore dissous dans le modérateur afin de voir uniquement l'effet de la perte de modération. Les figures 4.14 et 4.15 montrent l'allure de la réactivité en fonction de la densité <u>décroissante</u> du modérateur.

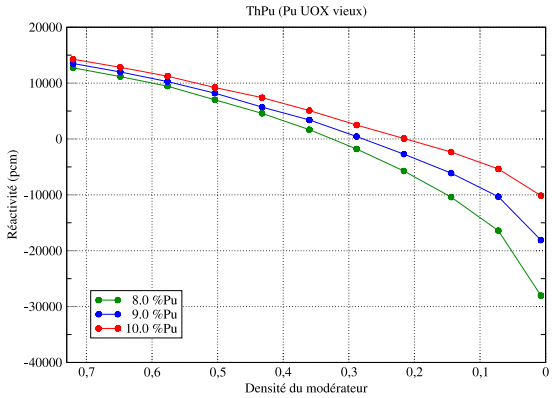
Nous observons une diminution nette de la réactivité dans tous les cas. Au début de la diminution de la densité du modérateur, les pentes $(\partial\rho/\partial D)_{D_0}$ et les coefficients de vide α_{vide} observés dans les différents combustibles sont tous strictement négatifs. Les valeurs de α_{vide} sont toutefois beaucoup plus faibles (en valeur absolue) pour les combustibles à base de Pu_{mox} . Pour ce type de combustible, la chute de réactivité observée s'adoucit lorsque la densité diminue et dans le cas du Pu_{mox} *vieux* on observe même une remontée de la réactivité. Ces différences sont encore une fois attribuées à la grande teneur en plutonium des combustibles à base de Pu_{mox} .

Perte du modérateur avec une concentration C_{b_0} de bore dissous

Nous effectuons maintenant ce même calcul en incluant dans l'eau du modérateur une quantité de bore naturel à la concentration C_{b_0}, déterminée pour chaque combustible étudié. Soulignons ici que le *"pouvoir"* absorbant du bore varie aussi avec le spectre. Ainsi, en diminuant la densité du modérateur en pas de 10%, on perd à chaque pas une quantité $(C_{b_0}/10)$ en ppm de bore présent dans le modérateur. Ainsi non seulement on a de moins en moins de bore mais le bore

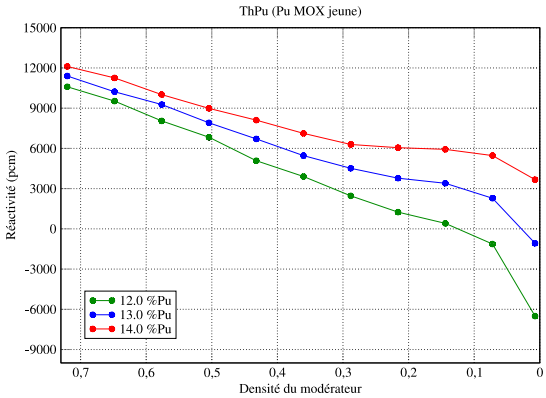


(a) $\mathrm{Pu_{uox}}$ *"jeune"*

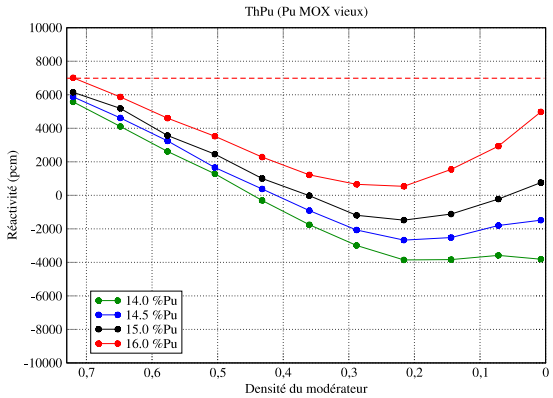


(b) $\mathrm{Pu_{uox}}$ *"vieux"*

FIG. 4.14 – *Cas du combustible à base de* Pu_{uox} *: évolution de la réactivité avec une densité du modérateur décroissante* **sans bore dissous**.



(a) $\mathrm{Pu_{mox}}$ *"jeune"*

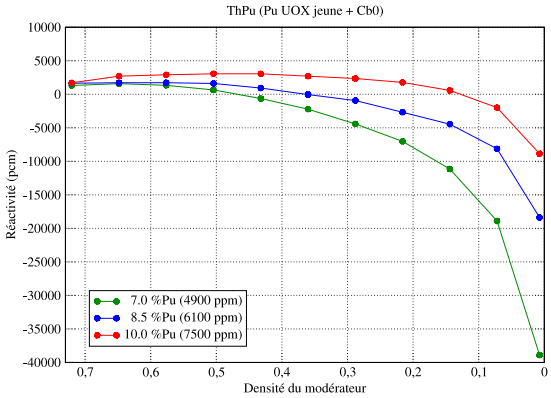


(b) $\mathrm{Pu_{mox}}$ *"vieux"*

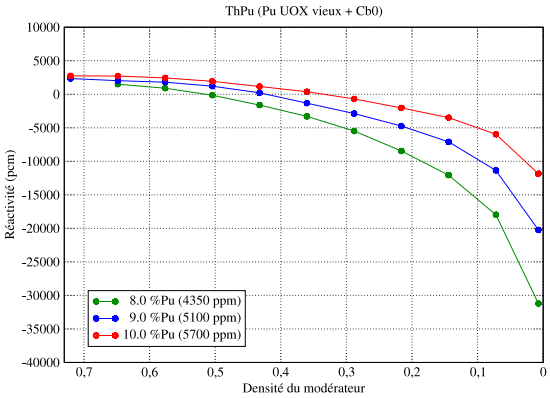
FIG. 4.15 – *Cas du combustible à base de* Pu_{mox} *: évolution de la réactivité avec une densité du modérateur décroissante* **sans bore dissous**.

qui reste est de moins en moins efficace à cause du durcissement résultant du spectre.

Les figure 4.16 et 4.17 illustrent l'effet de la perte du modérateur avec du bore dissous aux concentrations C_{b_0} établies par notre modèle.

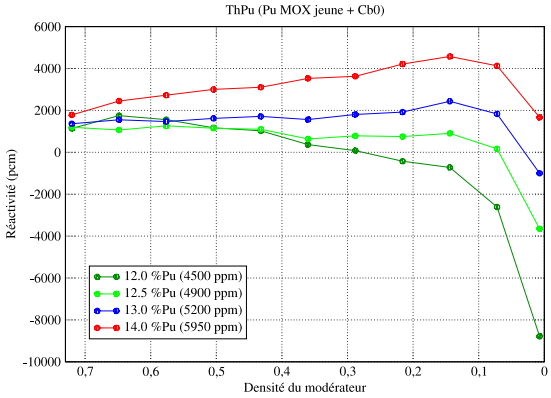


(a) $\mathrm{Pu_{uox}}$ *"jeune"*

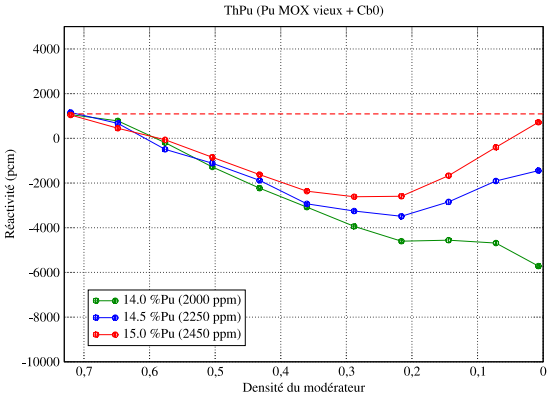


(b) $\mathrm{Pu_{uox}}$ *"vieux"*

FIG. 4.16 – *Cas du combustible à base de* Pu_{uox} *: évolution de la réactivité avec une densité du modérateur décroissante* **et du bore présent dans le modérateur**.



(a) $\mathrm{Pu_{mox}}$ *"jeune"*



(b) $\mathrm{Pu_{mox}}$ *"vieux"*

FIG. 4.17 – *Cas du combustible à base de* Pu_{mox} *: évolution de la réactivité avec une densité du modérateur décroissante* **et du bore présent dans le modérateur**.

Lors de l'ajout de bore dans le modérateur la marge en réactivité *à ne pas dépasser* est beaucoup plus étroite, puisqu'elle est déterminée par la valeur initiale ρ_0, qui est plus faible. Les combustibles à base de $\mathrm{Pu_{uox}}$ présentent des valeurs de α_{vide} qui restent négatives mais avec des

pentes $(\partial\rho/\partial D)_{D_0}$ qui peuvent être positives. C'est effectivement quand D est proche de D_0 que le bore est le plus efficace, le spectre de neutrons étant le plus thermique.

Le cas du $\mathrm{Pu_{mox}}$ *jeune* est particulier : nous observons très vite une nette remontée de la réactivité lors de la perte de l'eau borée : les concentrations de bore C_{b_0} pour ce type de plutonium y sont nettement plus élevées que celles pour le $\mathrm{Pu_{mox}}$ *vieux* : du fait de la plus grande teneur en $^{240}\mathrm{Pu}$ de ce dernier, moins de bore est nécessaire pour rétablir $k_{eff} = 1$ du cœur. L'allure des courbes $\rho(D)$ établies pour le combustible à base de $\mathrm{Pu_{mox}}$ est analogue à celles établies lors de la perte du modérateur sans bore dissous : elles connaissent une inflexion et une remontée de la réactivité quand D diminue, attribuée principalement aux fissions à seuil qui surviennent lorsque le spectre est clairement rapide. Les tableaux 4.7 et 4.8 résument les valeurs calculées pour α_{vide} et $(\partial\rho/\partial D)_{D_0}$ dans les différents cas illustrés précédemment.

Type de Pu	$\mathrm{Pu_{uox}}$ *jeune*			$\mathrm{Pu_{uox}}$ *vieux*		
Teneur (% massique dans oxyde $\mathrm{ThPu0_2}$)	7%	8.5%	10%	8%	9%	10%
C_{b_0} (sans barres) [ppm]	4900	6100	7500	4350	5100	5700
$(\partial\rho/\partial D)_{D_0}$ $(Cb = 0)$ [pcm/%]	-142	-145	-143	-156	-152	-145
α_{vide} $(Cb = 0)$ [pcm]	-50000	-34400	-23500	-41100	-31900	-24600
$(\partial\rho/\partial D)_{D_0}$ $(Cb = C_{b_0})$ [pcm/%]	-7*	7*	100	-10*	-34	-3*
α_{vide} $(Cb = C_{b_0})$ [pcm]	-40200	-20000	-10500	-32600	-19800	-14600

TAB. 4.7 – *Combustible $ThPuO_2$ avec Pu_{uox}. Coefficients relatifs à la perte du modérateur. Les astérisques démarquent les quantités qui sont dans les barres d'erreur.*

Calcul des coefficients de température

Les effets de température interviennent à deux niveaux différents dans la stabilité du système :

- Dans le combustible, par effet Doppler d'élargissement des résonances des sections efficaces de capture radiative des noyaux non-fissiles :
  L'énergie d'agitation thermique des noyaux du combustible dépend de la température de ce dernier. Pour une énergie de neutron donnée, l'énergie du neutron effectivement vue par le noyau cible est dispersée, dans le référentiel du centre de masse neutron-noyau, selon le spectre en énergie propre à l'agitation thermique du noyau. L'effet Doppler *élargit* les résonances, en abaissant leur pic. L'abaissement du pic de la résonance n'a cependant pas

Type de Pu	Pu_{mox} *jeune*			Pu_{mox} *vieux*		
Teneur (% massique dans oxyde $ThPu0_2$)	12%	13%	14%	14%	15%	16%
C_{b_0} (sans barres) [ppm]	4500	5200	5950	2000	2450	2950
$(\partial\rho/\partial D)_{D_0}$ $(Cb = 0)$ [pcm/%]	-107	-117	-85	-146	-100	-114
α_{vide} $(Cb = 0)$ [pcm]	-17300	-12600	-8500	-9400	-5400	-2000
$(\partial\rho/\partial D)_{D_0}$ $(Cb = C_{b_0})$ [pcm/%]	60	19*	66	-28	-57	-37
α_{vide} $(Cb = C_{b_0})$ [pcm]	-10000	-2300	-100*	-6700	-300*	+1600

TAB. 4.8 – *Combustible $ThPuO_2$ avec Pu_{mox}. Coefficients relatifs à la perte du modérateur.. Les astérisques démarquent les quantités qui sont dans les barres d'erreur.*

d'incidence sur la probabilité d'absorption du neutron dans le combustible, qui peut être considéré comme un milieu *cible épaisse*, où le neutron, à l'énergie de la résonance, est toujours absorbé. L'effet significatif est dû à l'élargissement des *ailes* des résonances, qui élève les taux d'absorptions neutroniques dans une plage en énergie des neutrons plus grande. Pour un noyau fissile, l'effet existe simultanément pour les sections efficaces de fission et de capture radiative et peut se compenser. Dans notre cas de combustible ThPu, cet effet sera dominé principalement par les noyaux ^{232}Th, présent en quantités importantes, et ^{240}Pu, noyau grandement résonant.

- Dans le modérateur, par effet de *décalage* de la *bosse thermique* du spectre des neutrons vers des énergies plus importantes suite à l'augmentation de la température du modérateur.

Les coefficients de contre-réaction en température sont calculés séparément pour le combustible, α_{comb}, et le modérateur, α_{mod}. Nous les définissons comme suit :

$$\alpha_{\text{comb}} = \frac{\partial\rho}{\partial T_{\text{F}}}|_{T_{\text{M}}} \qquad \alpha_{\text{mod}} = \frac{\partial\rho}{\partial T_{\text{M}}}|_{T_{\text{M}}} \tag{4.4}$$

Coefficient de température du combustible

Nous vérifions que le coefficient de température du combustible, α_{comb}, reste strictement négatif pour toutes les configurations de combustible considérées. Il a été estimé en augmentant la température de 900K à 1100K en trois pas de 100K. Avec notre statistique, (200 000 neutrons source) l'erreur qui entache cette estimation est d'environ 0.3 pcm/K. Les tableaux 4.9 et 4.10 donnent ces résultats.

Type de Pu	Pu_{uox} jeune			Pu_{uox} vieux		
Teneur en Pu	7%	8.5%	10%	8%	9%	10%
α_{comb}(pcm/K)	-4.9	-5.8	-5.8	-7.0	-6.7	-7.8

TAB. 4.9 – *Coefficients de température du combustible calculés pour les combustibles à base de Pu_{uox}. L'erreur statistique est de 0.3 pcm/K environ.*

Type de Pu	Pu_{mox} jeune			Pu_{mox} vieux		
Teneur en Pu	12%	13%	14%	14%	15%	16%
α_{comb}(pcm/K)	-5.1	-4.9	-5.0	-7.0	-7.5	-7.3

TAB. 4.10 – *Coefficient de température du combustible calculés pour les combustibles à base de Pu_{mox}. L'erreur statistique est de 0.3 pcm/K environ.*

Coefficient de température du modérateur

Pour le calcul du coefficient de température du modérateur α_{mod}, la température a été augmenté de 600K à 650K par pas de 10K et la densité du modérateur corrigée selon une loi de dilatation de -3×10^{-3}/K, supposée valide sur cet intervalle[12]. L'effet prédominant est celui de la dilatation de l'eau que nous avons largement discuté dans la partie précédente. L'erreur statistique est d'environ 3 pcm/K. Le tableau 4.11 montre les résultats.

Type de Pu	Pu_{uox} jeune			Pu_{uox} vieux		
Teneur en Pu	7%	8.5%	10%	8%	9%	10%
α_{mod}(pcm/K)	-16	-5*	+15	-22	-10	-4*
Type de Pu	Pu_{mox} jeune			Pu_{mox} vieux		
Teneur en Pu	12%	13%	14%	14%	15%	16%
α_{mod}(pcm/K)	-5.4*	+3*	+8.4	-38	-27	-16

TAB. 4.11 – *Coefficients de température du modérateur calculés. L'erreur statistique est de 3 pcm/K environ. Compte tenu de cette erreur l'astérisque repère les coefficients qui doivent être réévalués avec une statistique plus importante.*

En définitive, notre modèle assemblage ainsi que la façon dont nous avons donné une valeur à C_{b_0}, nous permettent d'affiner des plages de teneur en plutonium bornées supérieurement par une teneur maximale qui, dans notre modèle, nous permet de conserver des coefficient de vide et

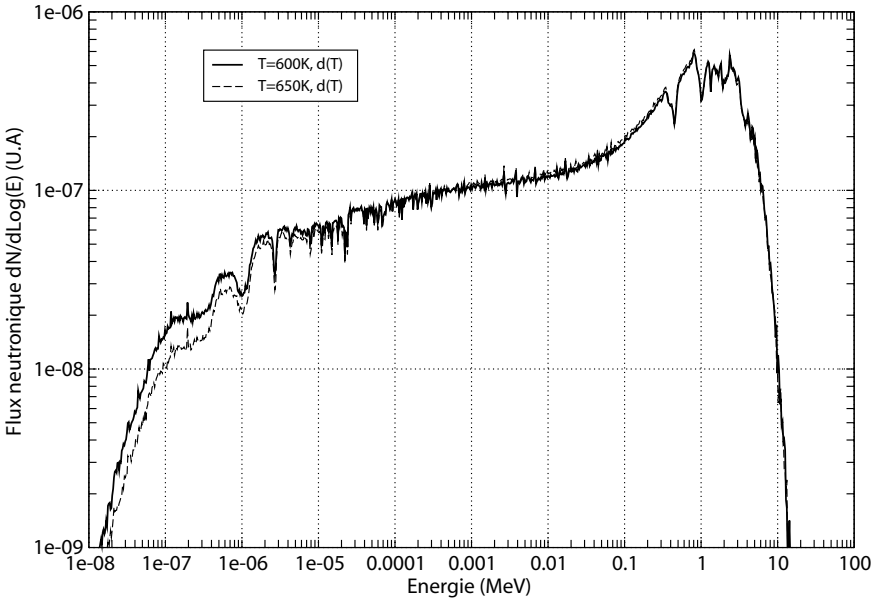


FIG. 4.18 – *Perte de modération suite à une augmentation de température du modérateur (50K). C'est l'effet de dilatation de l'eau qui est majoritairement responsable de la modification du spectre de neutrons.*

de température strictement négatifs. Les coefficients de température du modérateur et de vide sont comme nous l'avons dit, sous-estimés en valeur absolue à cause de la grande quantité de bore présent. Nous avons vérifié que ceux-ci restaient strictement négatifs à concentration de bore nulle. L'utilisation de poisons consommables, en diminuant la concentration de bore critique, va améliorer ces coefficients dans le sens de la sûreté.

Chapitre 5

Evolution du combustible Mixte Oxyde Thorium Plutonium

Nous venons, dans le chapitre précédent, de calculer les coefficients de contre-reáction, pour diverses configurations de combustible ThPu en mode asemblage. Afin d'optimiser le taux de combustion pour chaque type de combustible, nous retiendrons pour la suite de la discussion les teneurs étudiées maximales, dont tous les coefficients on été estimés négatifs : $\mathrm{ThPu_{uox}}$ jeune 8.5 %, $\mathrm{ThPu_{uox}}$ vieux 9%, $\mathrm{ThPu_{mox}}$ jeune 12%, et $\mathrm{ThPu_{mox}}$ vieux 14%.

Afin d'estimer le taux de combustion total que ces combustibles peuvent permettre, nous faisons d'abord un point sur la manière dont, dans un cœur en régime de fonctionnement, sont gérés les différents assemblages qui le constituent. Nous verrons que l'incertitude autour des pertes neutroniques en termes de réactivité dans une géométrie cœur va induire une incertitude autour de l'estimation du taux de combustion total qu'un combustible donné peut permettre. Nous donnerons alors, en disposant des résultats d'évolution des calculs assemblage, un intervalle qui encadrera ce taux de combustion total.

5.1 Gestion d'un cœur REP par fractionnement *en batch*

On désigne ici par le terme *batch*, entré dans l'usage, un lot d'assemblages dans le cœur du réacteur. Dans une gestion par *batchs*, le cœur du réacteur est fractionné en *zones* d'assemblages afin de rendre la distribution de puissance radiale la plus plate possible. Une fois en régime de fonctionnement, ces assemblages sont chargés *en batch* (par tiers ou par quart dans un REP, par exemple) : leur positionnement dans le cœur change pendant leur séjour et ils sont déplacés selon un *plan de chargement* donné à chaque fois qu'un *batch* de combustible frais doit être chargé.

Le facteur de forme sur le plan radial du cœur mesure l'écart entre le pic de puissance maximal

et la puissance moyenne. La simplification faite ici de raisonner en considérant un flux plat sur le cœur (facteur de forme égal à 1) suppose alors que, pour une longueur de cycle fixe, le taux de combustion à chaque cycle est le même pour chaque assemblage du cœur.

Un réacteur géré avec un nombre N de cycles (en pratique de l'ordre de 3, 4 ou 5) démarre chaque cycle avec 1 *batch* de combustible frais, 1 *batch* d'assemblages ayant enduré un cycle d'irradiation, 1 *batch* ayant enduré deux cycles..., jusqu'au *batch* ayant vu $N-1$ cycles. A la fin du cycle, on décharge les assemblages irradiés pendant N cycles. Le taux de combustion de chaque assemblage aura alors été augmenté de la valeur τ_c, le taux de combustion par cycle. Le taux de combustion moyen τ_m sur tous les assemblages du cœur à la fin d'un cycle est alors simplement :

$$\tau_m = \frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N} i\tau_c \tag{5.1}$$

On désigne par τ_d le taux de combustion final de l'assemblage, c'est-à-dire à la décharge du combustible. On a alors :

$$\tau_d = N\tau_c = \frac{2N}{N+1}\tau_m \tag{5.2}$$

Ainsi, pour estimer le taux de combustion total τ_d qu'on peut avoir dans un cœur, on peut passer, en calcul assemblage, par la détermination de τ_m ou de τ_c.

La figure 5.1 illustre le cas limite où N tendrait vers l'infini (rechargement en continu), on gagnerait alors un facteur 2 sur le taux de combustion ; ceci n'est bien entendu pas réaliste dans un réacteur qui fonctionne avec un nombre fini de cycles.

En imposant une gestion à nombre de N cycles donné, on en déduit la longueur de cycle τ_c par l'intermédiaire de la formule 5.2. Une gestion à 3 cycles permet ainsi d'avoir un taux de combustion à la décharge d'un facteur 1,5 fois le taux de combustion moyen. Or, on ne connaît pas *a priori*, la longueur de cycle qu'un combustible innovant peut permettre. Nous illustrons maintenant deux façons d'estimer les valeurs des différents τ_i.

5.1.1 Estimation du taux de combustion par la simulation de l'évolution sans bore

Un cœur en fonctionnement est à tout moment critique ($k_{eff} = 1$) et la valeur moyenne des facteurs k_∞ des assemblages sur toute la longueur d'irradiation doit correspondre à cette condition. Cette première méthode d'estimation du taux de combustion total qu'un combustible donné peut permettre repose alors sur la simulation d'une évolution sans bore soluble. En effet, pour une configuration combustible donnée, la valeur du facteur k_∞ va chuter pendant l'irradiation,

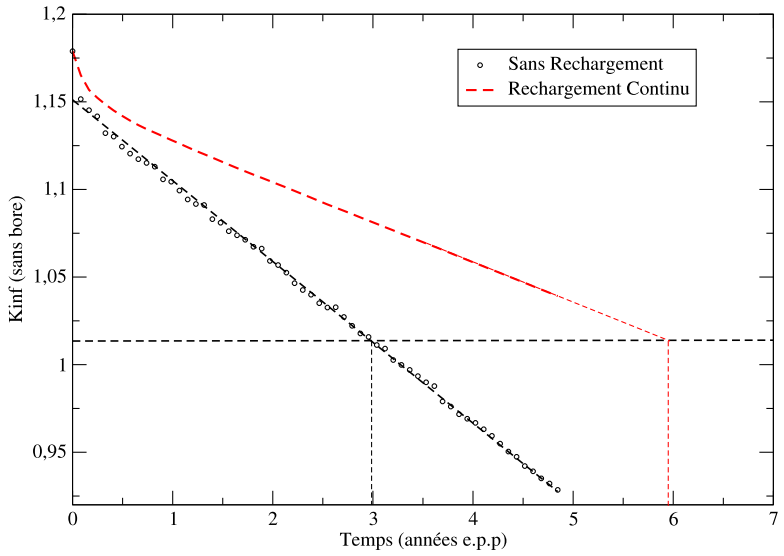


FIG. 5.1 – *Le taux de combustion total dépend du nombre N de cycles effectué, dans la pratique N est égal à 3, 4 ou 5. La courbe en pointillés represente la fonction $\frac{1}{T}\int_0^T k_\infty(t)dt$, soit la limite quand N tend vers l'infini, qui serait celle d'un rechargement en continu.*

du fait de l'accumulation des produits de fission et de la consommation des isotopes fissiles. Nous faisons alors les hypothèses suivantes :

- La longueur du cycle (et donc le taux de combustion par cycle) est en principe telle que, en absence de bore soluble et à la fin du cycle, le cœur à l'équilibre (en régime de fonctionnement) possède la réactivité suffisante pour être juste critique à la décharge.
- On suppose que la réactivité décroît linéairement avec l'irradiation du combustible.

Sous ces hypothèses là, lors d'une simulation d'une évolution sans bore, la valeur que présente le facteur k_∞ à la fin du cycle $(N+1)/2$ correspond à la valeur moyenne qu'a le facteur k_∞ dans une gestion à N cycles. L'estimation de τ_m est alors identifiée à la date à laquelle on constate l'épuisement de la réactivité. Cette situation correspond, en calcul assemblage, au cas où le facteur de multiplication k_∞ devient inférieur à $1+P$, P étant les pertes neutroniques en termes de réactivité, supposées connues. La figure 5.2 illustre cette méthode pour une gestion à $N=3$ cycles.

Nous avons donc, dans un premier temps, pour chaque type de plutonium et teneurs considérées de celui-ci, calculé l'évolution sans bore, *en mode assemblage* du combustible MOX ThPu

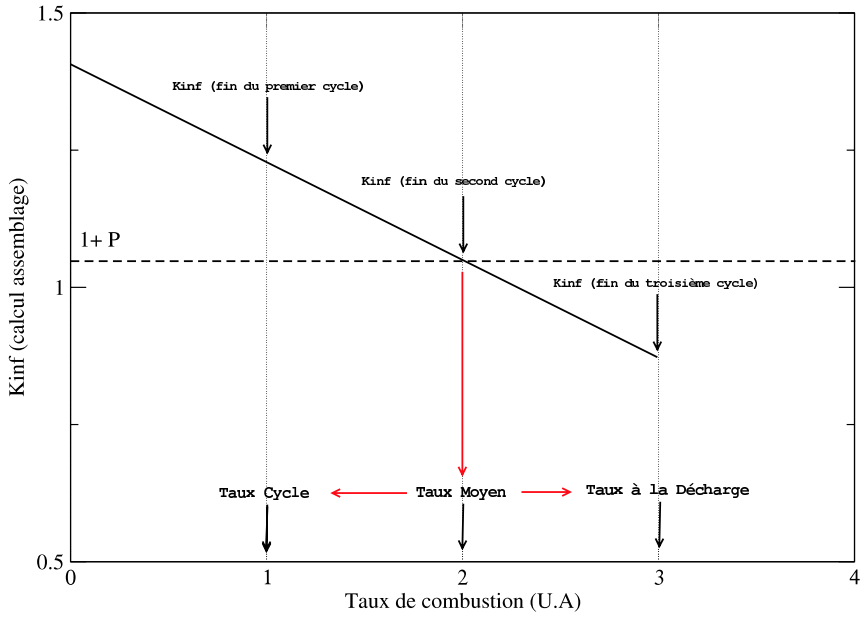


FIG. 5.2 – *Lors d'une gestion à 3 cycles, le taux de combustion moyen peut être estimé, connaissant P, lorsque la valeur moyenne des valeurs de k_∞ des assemblages en fin de cycle est égale à $1+P$.*

à une puissance moyenne par assemblage de 17,2 MW *thermiques*[1]. La figure 5.3 illustre la chute du facteur k_∞ pour quelques combustibles MOX ThPu et nous donne un premier aperçu de la problématique.

On vérifie sur cette figure que l'évolution avec le temps du facteur k_∞ est bien linéaire pour les combustibles ThPu. On constate également que la pente de cette évolution s'adoucit à mesure qu'on augmente la teneur en plutonium. Ceci est dû au durcissement du spectre qui rend les PF moins absorbants et réduit de même les captures parasites dans les structures. En outre, une plus grande teneur en plutonium, notamment en ^{240}Pu, crée du ^{241}Pu fissile ; ceci contribue à adoucir la chute du facteur k_∞ .

Ceci soulève alors la problématique suivante : une incertitude donnée sur la valeur de P, les pertes en termes de réactivité à considérer, aura des incidences beaucoup plus importantes sur l'incertitude projettée, par cette méthode, sur le taux de combustion moyen τ_m d'un combustible dont la pente $\partial k_\infty / \partial t$ est plus douce.

[1] ce qui équivaut à 2700 MW *thermiques* pour un cœur à 157 assemblages.

Ceci est illustré clairement à la figure 5.3 où une variation de la valeur de P de 2000 pcm fausse complétement l'appréciation de τ_m sur l'exemple du combustible $\mathrm{ThPu_{mox}}$ à 14%.

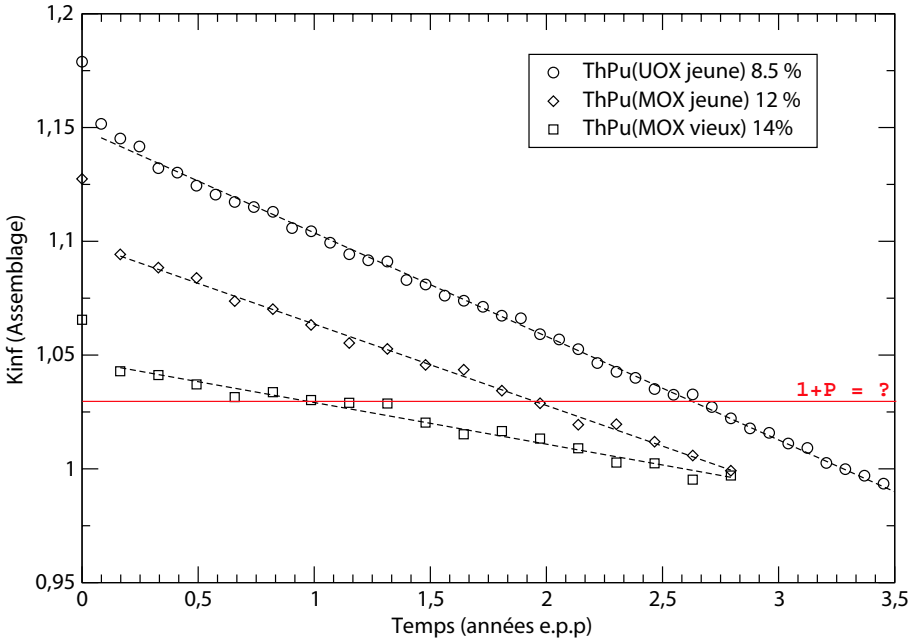


FIG. 5.3 – *Evolution du facteur k_∞ pour diverses configurations combustibles ThPu sans ajout de bore dans le modérateur.*

Ce raisonnement, appliqué au calcul assemblage trouve donc cependant ses limites dès lors que l'on sera amené à considérer un cœur mixte ThPu/UOX dont le *plan de chargement* peut être très varié et contenir différents types et proportions de combustible, UOX ou ThPu, ce qui induira une plus grande incertitude au niveau de la valeur globale de P à considèrer. Le calcul assemblage ne permet pas de répondre et le calcul du cœur entier doit être effectué.

5.1.2 Estimation du taux de combustion par la simulation d'une évolution à réactivité constante

Nous avons développé dans le code MURE une méthode qui permet d'effectuer l'évolution d'un système en gardant la valeur du facteur de multiplication du système constante et égale, aux fluctuations statistiques près, à une valeur donnée. Ce contrôle de la réactivité passe alors par l'ajustement de la concentration de bore soluble C_b à chaque pas d'évolution. La méthodologie implémentée a été décrite au chapitre 2. Cette méthode est particulièrement adaptée au calcul cœur où aucune ambiguité est introduite sur la valeur du facteur k_{eff} : il doit valoir 1. Dans l'absence d'un calcul cœur, nous l'avons appliquée au calcul assemblage ; elle nous permet de

stabiliser le facteur k_∞ à sa valeur initiale et de reproduire ainsi les conditions qu'un assemblage *moyen* verrait, par exemple, au centre du cœur du réacteur.

Dans notre modèle sans poisons consommables, le bore soluble représente la réserve totale d'antiréactivité. L'ajustement de C_b nous permet ainsi de simuler une évolution à puissance constante et à k_∞ constant. L'ajout de bore dans le modérateur durcit le spectre. En simulant la disparition progressive du bore soluble dans l'eau du modérateur, on prend mieux en compte les modifications du spectre neutronique pendant l'irradiation et l'impact que ceci a sur l'évolution des inventaires.

La figure 5.4 illustre l'effet de l'ajustement de C_b sur l'évolution du facteur k_∞ du système : elle représente ce facteur et la proportion $C_b(t)/C_b(0)$ à chaque calcul MCNP . On peut alors estimer τ_m en l'identifiant à la date où le bore a été consommé entièrement. Par cette voie nous vérifions que la méthode précédente d'evolution sans bore est consistante avec celle-ci, qui permet effectivement de maintenir une valeur de k_∞ constante : on constate que la courbe sans bore recoupe celle où le bore est ajusté lorsque le bore a pratiquement disparu. Ceci revient, dans la méthode précédente, à prendre comme valeur pour P la valeur (k_∞ -1) avec pour k_∞ la valeur initiale calculée avec bore. Cette comparaison des deux méthodes est illustrée à la figure 5.5.

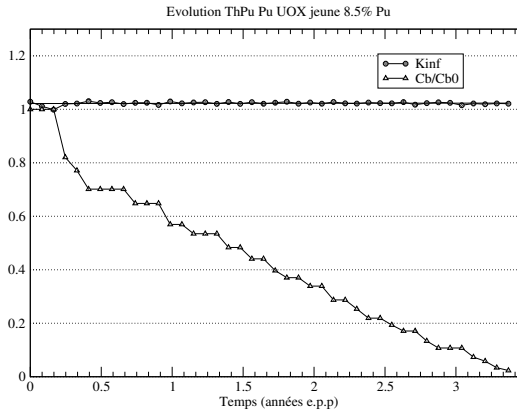
En pratique on laisse une marge de bore soluble lors de l'arrêt du réacteur, on se fixe alors comme hypothèse de travail que τ_m, le taux de combustion moyen (sans considérer une gestion par fractionnement du cœur) des assemblages en fin de cycle est alors égal au taux de combustion où l'on constate la disparition de 90% du bore.

5.1.2.1 Limites de cette méthode appliquée au calcul assemblage

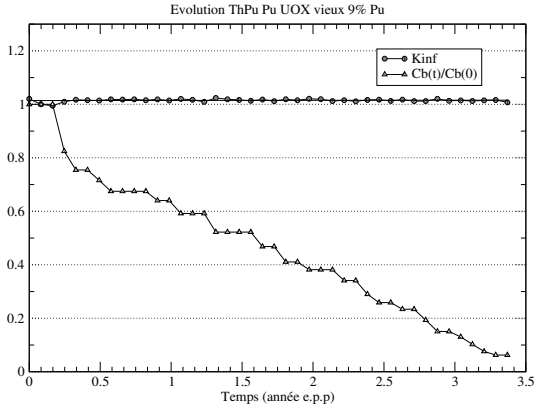
Nous avons maintenu k_∞ constant à sa valeur initiale calculée dans le modèle assemblage lorsque le bore en quantités C_{b_0} (calculée précédemment) est présent. Ceci nous amène à considérer des valeurs de k_∞ qui dépendent du type et de la teneur du combustible avec en plus une teneur en bore qui est différente pour chaque combustible. Dans le cas du combustible $\mathrm{ThPu_{uox}}$ *jeune* à 8.5%, la valeur initiale de k_∞ avec le bore est d'environ 1.018. Dans le cas du $\mathrm{ThPu_{mox}}$ *vieux* à 14%, k_∞ vaut environ 1.007.

Nos efforts de développement du modèle cœur multi-assemblage n'ont pas été récompensés. Nous avons modélisé un cœur REP à plusieurs zones d'assemblages mais la complexité de la gestion de la migration des assemblages (en r et en z) a soulevé plusieurs obstacles qui ne sont pas encore résolus. Notamment, la différentiation en plusieurs tranches verticales du modèle cœur dépasse les contraintes en temps de calcul et mémoire que le système de calcul parallélisé qu'on utilise impose.

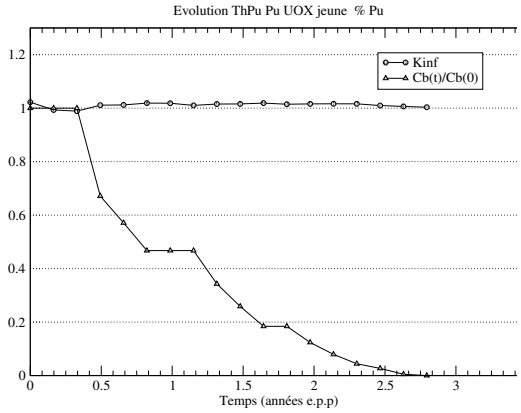
Nous avons fait le choix de proposer une première application des résultats du calcul assem-



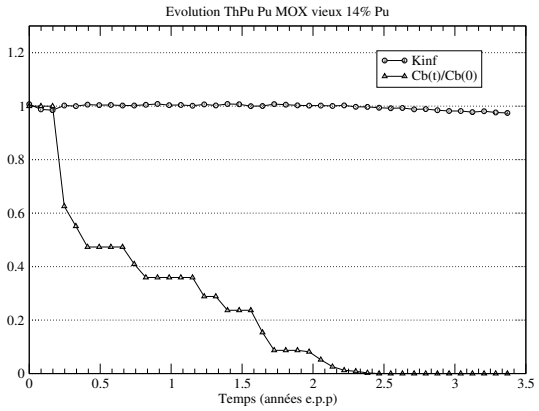
(a) 8.5% Pu_{uox} jeune



(b) 9.0% Pu_{uox} vieux



(c) 12% Pu_{mox} jeune



(d) 14% Pu_{mox} vieux

FIG. 5.4 – *Maintien du facteur k_∞ à sa valeur initiale par ajustement de la concentration C_b de bore soluble pour quatre exemples de combustible ThPu.*

blage. Il est néanmoins évident que la pertinence de la méthode Monte Carlo et des procédures mises en place et testées dans ce travail de thèse trouveront tout leur sens lors du calcul cœur entier.

5.1.2.2 Intérêt de la méthode

- Simuler l'évolution du cœur jusqu'au taux de combustion total en reproduisant le maintien du facteur k_{eff} à 1, sans ambiguité sur les fuites.
- Prendre en compte l'impact de la disparition du bore sur les inventaires via les modifications du spectre.

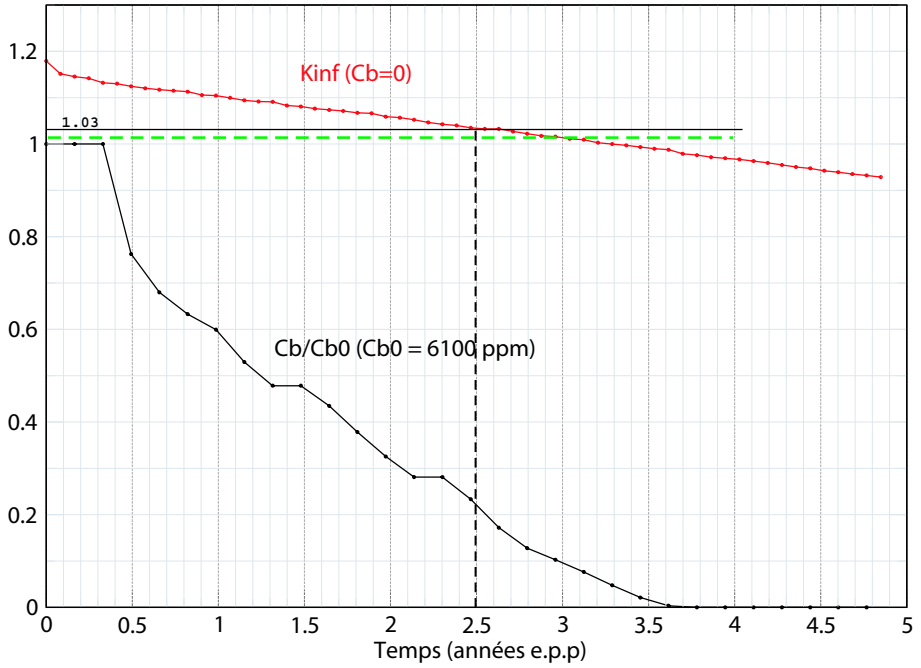


FIG. 5.5 – *Comparaison des deux critères d'estimation du taux de combustion moyen selon les deux méthodes décrites précedemment. 1) Par l'évolution du k_∞ sans bore, lorsque la courbe $k_\infty(t)$, linéaire, recoupe la valeur 1+P, supposée connue. 2) Par épuisement du bore lorsqu'on ne peut plus maintenir la valeur du k_∞ constante et égale à sa valeur initiale, pour laquelle on a k_{eff} (cœur) = 1. En calcul assemblage, k_∞ est cependant sousestimé puisqu'on est dans l'impossibilité de déterminer la contribution des neutrons qui reviennent modérés de l'extérieur de la zone cœur. Les deux méthodes sont compatibles si on identifie k_∞ (assemblage) à 1+P.*

5.1.3 Bilans de matière à la décharge

On peut toutefois encadrer les bilans de production de matière par deux valeurs extrêmes qui correspondraient alors à des cas pessimistes et optimistes de l'estimation du taux de combustion total. Les tableaux 5.1 et 5.2 donnent ces valeurs pour les combustibles considérés.

5.1.4 Production d'^{233}U

La production d'^{233}U profitera d'un flux neutronique moyen plus élevé, qui maximise les captures sur le ^{232}Th, ainsi que de courts cycles d'irradiation pour minimiser, en écourtant le séjour en cœur du combustible, la disparition de l'^{233}U par capture radiative et fission. On peut considérer que la totalité de l'inventaire de ^{233}Pa présent dans le combustible en fin d'irradiation décroît vers l'^{233}U pendant la période de refroidissement du combustible, qui est supérieure à

Type de Pu	Pu_{uox} jeune			Pu_{uox} vieux		
Teneur (% massique de Pu dans oxide $ThPu0_2$)	7%	8.5%	10%	8%	9%	10%
C_{b_0} (sans barres) [ppm]	4900	6100	7500	4350	5100	5700
Taux de combustion τ_m @ $C_b = C_{b_0}/10$ [MWj/t]	30000	42000	54000*	35000	43500	51000*
Taux de combustion final (3 cycles) $\tau_d = 1.5 \times \tau_m$ [MWj/t]	45000	63000	81000*	52500	65250	76500*

TAB. 5.1 – *Combustible $ThPuO_2$ avec Pu_{uox}. Estimation de τ_m à la date de disparition de 90% du bore soluble ; Dans l'hypothèse d'une gestion à trois cycles, le taux à la décharge est alors pris égal à $1.5\tau_m$. Les astérisques signalent des configurations qui dans notre modèle n'ont pas des coefficients de vide ou de modérateur négatifs.*

Type de Pu	Pu_{mox} jeune			Pu_{mox} vieux		
Teneur (% massique de Pu dans oxide $ThPu0_2$)	12%	13%	14%	14%	15%	16%
C_{b_0} (sans barres) [ppm]	4500	5200	5950	2000	2450	2950
Taux de combustion τ_m @ $C_b = C_{b_0}/10$ [MWj/t]	28500	35300*	39400*	25800	32500*	36600*
Taux de combustion final (3 cycles) $\tau_d = 1.5 \times \tau_m$ [MWj/t]	42700	53000*	59000*	38700	48700*	55000*

TAB. 5.2 – *Combustible $ThPuO_2$ avec Pu_{mox}. Valeurs de τ_m et τ_d dans l'hypothèse d'une gestion à 3 cycles. Les astérisques signalent des configurations qui dans notre modèle n'ont pas des coefficients de vide ou de modérateur négatifs.*

l'année.

La figure 5.6 donne, sur la courbe d'évolution de l'^{233}U, les bilans de production à plusieurs temps d'irradiation. Elle illustre l'idée que si l'on désire maximiser la production d'^{233}U par unité de temps il faut préférer les cycles courts d'irradiation. Ce raisonnement suppose toutefois que l'on dispose d'une quantité infinie de matière fissile (dans notre cas le plutonium), qu'on serait prêt à irradier sans optimiser du tout la combustion de celle-ci. Si, dans cette optique, on dispose d'un parc de réacteurs dédiés qui, en un temps donné, désireraient produire *le plus possible* d'^{233}U, on constate alors que des durées d'irradiation inférieures à l'année n'apporteraient pas un gain notable : l´écart de la courbe de production à la pente initiale (qui serait idéalement celle qu'on obtiendrait en faisant des irradiations infiniment courtes) n'est que de 7%.

L'optique de production d'^{233}U dans le cas d'une étude de scénario de déploiement est cependant toute autre : l'objectif est de démarrer le cycle du thorium en incinérant le plutonium

et de produire de l'énergie. Cette amorce du cycle thorium se fait alors avec un stock initial de plutonium donné, qu'on a tout intérêt à ne pas gaspiller. Dans les scénarios qu'on étudiera par la suite (chapitre 6), nous considérons la production d'^{233}U dans des réacteurs à eau électrogènes, et non pas des réacteurs dédiés à une production d'^{233}U, où l'on pourrait imaginer effectivement de faire des cycles très courts d'irradiation.

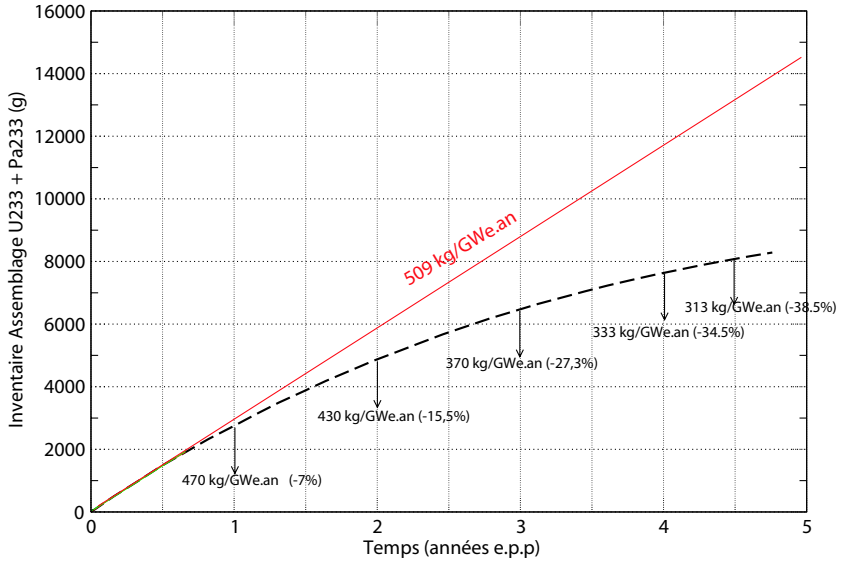


FIG. 5.6 – *Exemple d'un combustible MOX $ThPu_{uox}$: les bilans de production par GWe.an qu'on obtiendrait si on récupère le combustible aux dates indiquées par les flèches (en considérant la décroissance totale du ^{233}Pa). Les valeurs entre parenthèses donnent l'écart avec une gestion en cycles très courts qui profiterait alors de la pente initiale de la courbe.*

Pour un type de plutonium donné et afin de maximiser le flux vu par le combustible MOX ThPu, on préférera les faibles teneurs en plutonium qui auront l'avantage de présenter des meilleurs coefficients de vide et de température du modérateur, vu que la concentration en bore critique nécessaire sera moindre. Or, comme on a vu, baisser la teneur en plutonium du combustible n'a pas du tout l'effet escompté sur la valeur du flux moyen ni donc sur la production d'^{233}U, du fait d'une modification importante du spectre neutronique.

Par ailleurs, sur le plan de ce qui est économiquement intéressant, les exploitants du réacteur auront tendance à favoriser des taux de combustion élevés et, par conséquent, à adopter des teneurs en plutonium qui amélioreront le taux de combustion maximal. Toutefois, l'écart qu'on observe sur l'inventaire d'^{233}U, pour tous les types et teneurs de plutonium confondus, dont l'évolution a été calculée à puissance constante, est inférieur à 10% à environ 48 GWj/t. La figure 5.7 donne l'évolution des inventaires d'^{233}U pour les quatre familles de combustible MOX

ThPu étudiées.

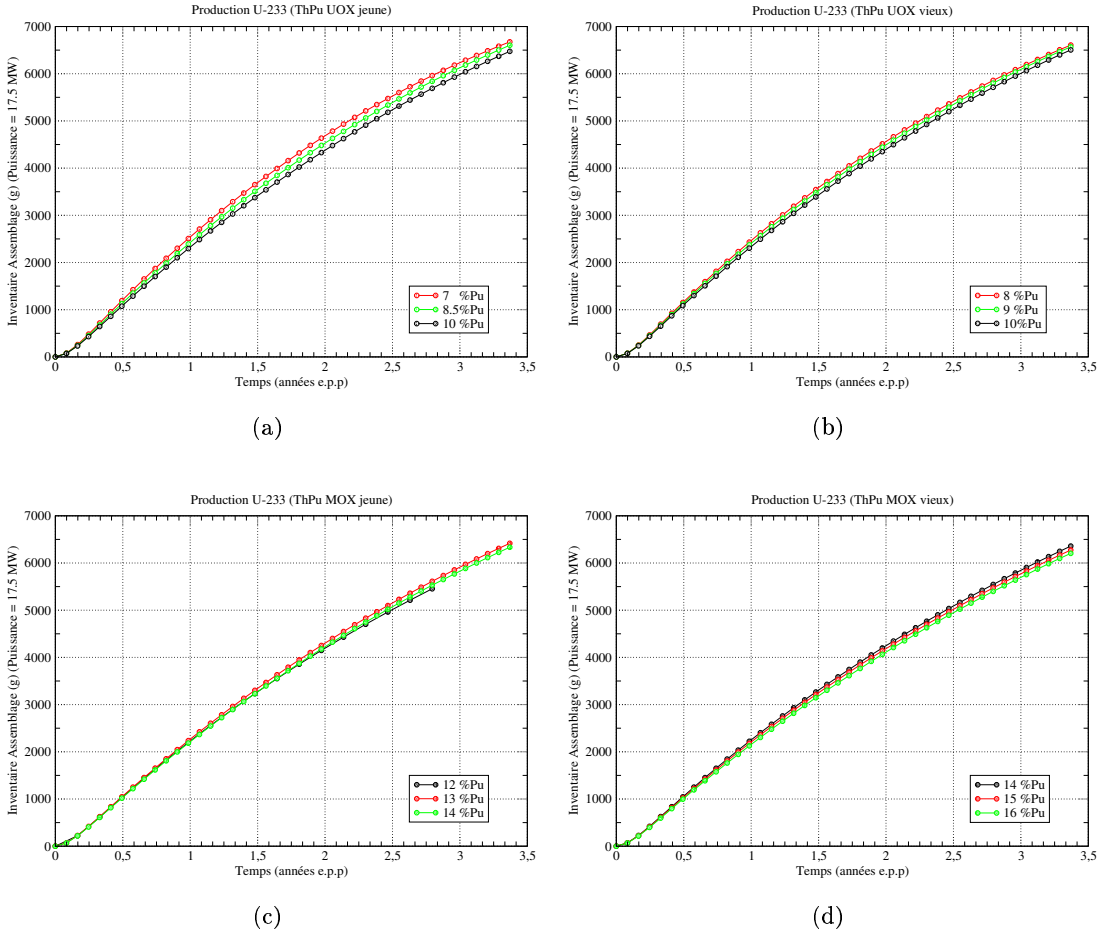


FIG. 5.7 – *Evolution des inventaires d'^{233}U pour les quatre familles de combustible ThPu.*

5.1.5 Incinération du plutonium

Nous venons de voir qu'à puissance fixée, la quantité d'^{233}U produit par unité d'énergie dépend peu du type de plutonium considéré dans le combustible ThPu. Il s'en suit que la consommation de plutonium par unité d'énergie est pratiquement fixée, elle aussi, et dépend peu du combustible choisi lorsqu'on impose une puissance.

Si l'on cherche à incinérer en un temps donné une quantité donnée de plutonium, et que l'on dispose d'un parc de réacteurs pouvant le consommer, il faudra donc privilégier les faibles teneurs en plutonium du combustible, afin d'augmenter le rapport entre le plutonium consommé et le plutonium présent initialement dans chaque réacteur.

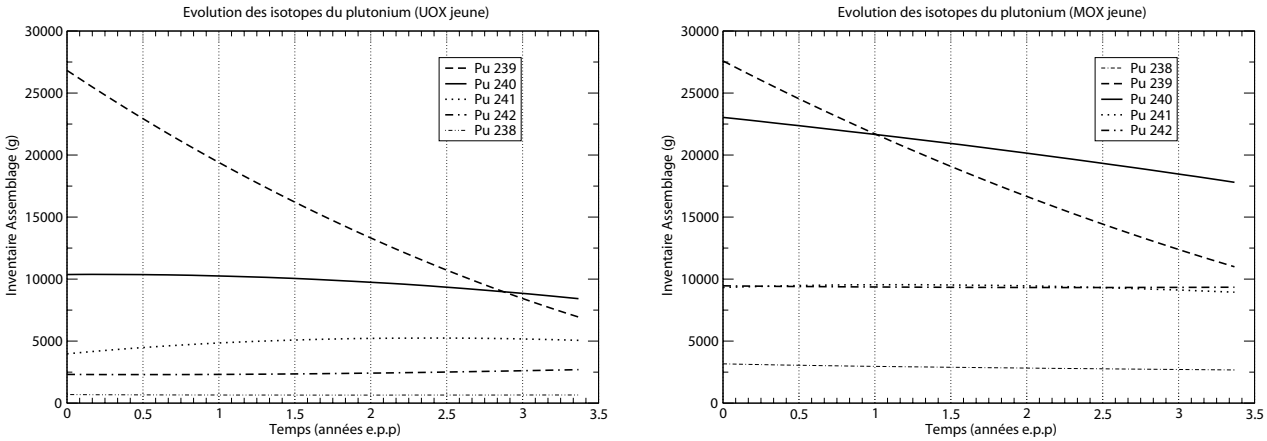
La figure 5.8 montre l'évolution des inventaires des principaux isotopes du plutonium pour deux exemples de combustible MOX $ThPu_{uox}$ et MOX $ThPu_{mox}$. Ces figures mettent plus clairement en évidence la moindre qualité neutronique du Pu_{mox} : sur cet exemple l'inventaire de ^{240}Pu dépasse celui de ^{239}Pu après 1 an d'irradiation, alors que dans le cas Pu_{uox}, le ^{239}Pu reste plus abondant que le ^{240}Pu dans le combustible pendant presque 3 ans.

Nous présentons maintenant les bilans de production des principaux actinides à vie longue en les normalisant par unité d'énergie produite. Afin de garder des unités simples nous adoptons le GWe.an, soit la quantité totale d'énergie électrique produite pendant un an de fonctionnement continu d'un REP entièrement chargé en MOX ThPu qui aurait une puissance de 1 GWe. Il faut toutefois tenir compte du fait que, si l'on souhaite raisonner en terme de production effective par an, par exemple, qu'un réacteur ne fonctionne pas 100% du temps. A un facteur de charge de 75%, un REP-900 délivre 0.675 GWe.an en une année.

Les tableaux 5.3, 5.4, 5.5, et 5.6 donnent ces bilans pour les principaux actinides dont la demi-vie est supérieure à 6 mois et présents en quantités non négligeables. Ces bilans de production sont normalisés par GWe.an et tiennent compte d'un refroidissement de 6 mois : l'inventaire de ^{233}Pa a totalement décru et est incorporé à l'inventaire d'^{233}U. Ces résultats nous servent de données d'entrée pour les études de scénario.

Production d'actinides mineurs Am, Cm

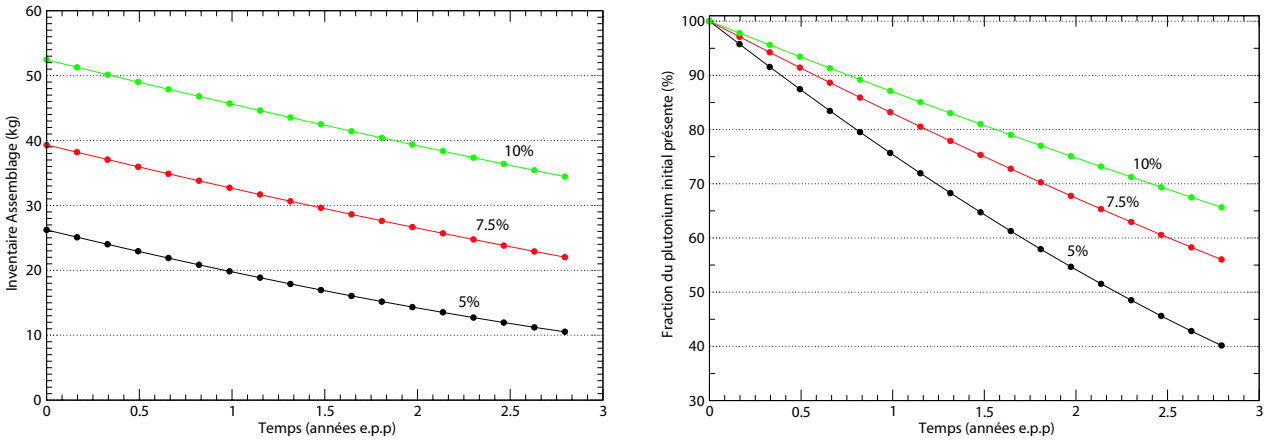
Nous constatons sur ces tableaux que, à production comparable d'^{233}U, la production d'actinides comme ^{241}Am, ^{243}Am ou ^{244}Cm en MOX utilisant du Pu_{mox} est grandement augmentée, à cause des teneurs en plutonium plus importantes du combustible, par rapport à la production de ces noyaux observée dans le cas du Pu_{uox}. Ceci constitue sans doute un argument supplémentaire contre l'utilisation du plutonium de type Pu_{mox} dans du combustible MOX ThPu.



(a) MOX $\mathrm{ThPu_{uox}}$ 8.5%

(b) MOX $\mathrm{ThPu_{mox}}$ 14%

FIG. 5.8 – *Evolution des inventaires des isotopes du plutonium pour deux exemples de combustible MOX ThPu.*



(a) MOX $\mathrm{ThPu_{uox}}$

(b) MOX $\mathrm{ThPu_{uox}}$

FIG. 5.9 – *Consommation du plutonium (tous isotopes confondus). Les différents enrichissements cependant ne donneront pas le même burnup. (a) Si l'on impose la puissance, la teneur en plutonium du combustible n'a pas d'incidence sur la consommation de plutonium par unité d'énergie produite. (b) Cependant, à moindre teneur de plutonium, la quantité consommée représentera bien entendu une plus grande proportion de l'inventaire initial.*

Actinide	Inventaire I(t=0) (g)	I(t) (g)	$\Delta = I(t) - I(0)$ (g)	Δ/E (kg/GWe.an)
^{248}Cm	0	2.69e-03	2.69e-03	1.47e-04
^{247}Cm	0	5.94e-02	5.94e-02	3.26e-03
^{246}Cm	0	3.30e+00	3.30e+00	1.81e-01
^{245}Cm	0	6.57e+01	6.57e+01	3.61e+00
^{244}Cm	0	3.96e+02	3.96e+02	2.17e+01
^{243}Cm	0	8.60e+00	8.60e+00	4.72e-01
^{243}Am	0	7.48e+02	7.48e+02	4.11e+01
^{242}Am^{m}	0	1.10e+01	1.10e+01	6.02e-01
^{242}Am	0	1.68e-04	1.68e-04	9.21e-06
^{241}Am	4.03e+02	5.29e+02	1.26e+02	6.90e+00
^{242}Pu	2.31e+03	2.64e+03	3.22e+02	1.77e+01
^{241}Pu	3.98e+03	5.13e+03	1.16e+03	6.34e+01
^{240}Pu	1.04e+04	8.72e+03	-1.65e+03	-9.05e+01
^{239}Pu	2.68e+04	7.94e+03	-1.89e+04	-1.04e+03
^{238}Pu	6.89e+02	6.54e+02	-3.47e+01	-1.90e+00
^{237}Np	0	2.13e+00	2.13e+00	1.17e-01
^{238}U	0	7.74e-03	7.74e-03	4.25e-04
^{236}U	0	6.04e+00	6.04e+00	3.32e-01
^{235}U	0	9.45e+01	9.45e+01	5.19e+00
^{234}U	0	5.31e+02	5.31e+02	2.92e+01
^{233}U	0	6.64e+03	6.64e+03	3.64e+02
^{232}U	0	2.50e+01	2.50e+01	1.37e+00
^{231}Pa	0	6.15e+01	6.15e+01	3.38e+00
^{232}Th	4.17e+05	4.07e+05	-1.04e+04	-5.72e+02

TAB. 5.3 – *Bilans de matière à t=3 e.p.p ou 42 GWj/t établis pour un combustible de type* $ThPu_{uox}$ jeune *à 8.5%.*

Actinide	Inventaire I(t=0) (g)	I(t) (g)	$\Delta = I(t) - I(0)$ (g)	Δ/E (kg/GWe.an)
^{248}Cm	0	2.23e-02	2.23e-02	8.63e-04
^{247}Cm	0	3.27e-01	3.27e-01	1.26e-02
^{246}Cm	0	1.35e+01	1.35e+01	5.23e-01
^{245}Cm	0	1.56e+02	1.56e+02	6.03e+00
^{244}Cm	0	6.53e+02	6.53e+02	2.52e+01
^{243}Cm	0	1.42e+01	1.42e+01	5.49e-01
^{243}Am	0	9.40e+02	9.40e+02	3.63e+01
^{242}Am^{m}	0	9.49e+00	9.49e+00	3.67e-01
^{241}Am	4.03e+02	4.83e+02	7.92e+01	3.06e+00
^{242}Pu	2.31e+03	2.99e+03	6.76e+02	2.61e+01
^{241}Pu	3.98e+03	4.46e+03	4.84e+02	1.87e+01
^{240}Pu	1.04e+04	6.90e+03	-3.47e+03	-1.34e+02
^{239}Pu	2.68e+04	3.55e+03	-2.33e+04	-8.99e+02
^{238}Pu	6.89e+02	6.62e+02	-2.73e+01	-1.06e+00
^{237}Np	0	3.44e+00	3.44e+00	1.33e-01
^{238}U	0	1.51e-02	1.51e-02	5.83e-04
^{236}U	0	1.65e+01	1.65e+01	6.37e-01
^{235}U	0	1.94e+02	1.94e+02	7.49e+00
^{234}U	0	8.78e+02	8.78e+02	3.39e+01
^{233}U	0	8.03e+03	8.03e+03	3.10e+02
^{232}U	0	4.45e+01	4.45e+01	1.72e+00
^{231}Pa	0	7.20e+01	7.20e+01	2.78e+00
^{232}Th	4.17e+05	4.02e+05	-1.52e+04	-5.85e+02

TAB. 5.4 – *Bilans de matière à t=4.5 ans e.p.p ou 63 GWj/t établis pour un combustible de type* $ThPu_{uox}$ jeune *à 8.5%.*

Actinide	Inventaire I(t=0) (g)	I(t) (g)	$\Delta = I(t) - I(0)$ (g)	Δ/E (kg/GWe.an)
^{248}Cm	0	1.95e-04	1.95e-04	1.63e-05
^{247}Cm	0	8.53e-03	8.53e-03	7.11e-04
^{246}Cm	0	7.42e-01	7.42e-01	6.19e-02
^{245}Cm	0	2.92e+01	2.92e+01	2.44e+00
^{244}Cm	0	3.05e+02	3.05e+02	2.54e+01
^{243}Cm	0	7.49e+00	7.49e+00	6.25e-01
^{243}Am	0	1.01e+03	1.01e+03	8.42e+01
^{242}Am^{m}	0	2.05e+01	2.05e+01	1.71e+00
^{241}Am	8.11e+02	9.93e+02	1.82e+02	1.52e+01
^{242}Pu	8.11e+03	8.10e+03	-5.09e+00	-4.24e-01
^{241}Pu	7.99e+03	8.18e+03	1.88e+02	1.57e+01
^{240}Pu	1.97e+04	1.68e+04	-2.95e+03	-2.46e+02
^{239}Pu	2.36e+04	1.25e+04	-1.11e+04	-9.29e+02
^{238}Pu	2.71e+03	2.38e+03	-3.30e+02	-2.76e+01
^{237}Np	0	2.65e+00	2.65e+00	2.21e-01
^{238}U	0	1.47e-02	1.47e-02	1.22e-03
^{236}U	0	2.75e+00	2.75e+00	2.29e-01
^{235}U	0	3.34e+01	3.34e+01	2.78e+00
^{234}U	0	2.67e+02	2.67e+02	2.22e+01
^{233}U	0	4.64e+03	4.64e+03	3.88e+02
^{232}U	0	1.03e+01	1.03e+01	8.63e-01
^{231}Pa	0	4.57e+01	4.57e+01	3.81e+00
^{232}Th	3.99e+05	3.93e+05	-6.16e+03	-5.14e+02

TAB. 5.5 – *Bilans de matière à t=2 ans e.p.p ou 28 GWj/t établis pour un combustible de type* $ThPu_{mox}$ jeune *à 12%.*

Actinide	Inventaire I(t=0) (g)	I(t) (g)	$\Delta = I(t) - I(0)$ (g)	Δ/E (kg/GWe.an)
^{248}Cm	0	2.03e-03	2.03e-03	1.14e-04
^{247}Cm	0	5.75e-02	5.75e-02	3.24e-03
^{246}Cm	0	3.42e+00	3.42e+00	1.93e-01
^{245}Cm	0	8.34e+01	8.34e+01	4.70e+00
^{244}Cm	0	5.72e+02	5.72e+02	3.23e+01
^{243}Cm	0	1.32e+01	1.32e+01	7.46e-01
^{243}Am	0	1.34e+03	1.34e+03	7.54e+01
^{242}Am^{m}	0	2.15e+01	2.15e+01	1.21e+00
^{241}Am	8.11e+02	1.01e+03	1.96e+02	1.10e+01
^{242}Pu	8.11e+03	8.17e+03	6.54e+01	3.69e+00
^{241}Pu	7.99e+03	7.79e+03	-1.99e+02	-1.12e+01
^{240}Pu	1.97e+04	1.50e+04	-4.74e+03	-2.67e+02
^{239}Pu	2.36e+04	8.62e+03	-1.50e+04	-8.47e+02
^{238}Pu	2.71e+03	2.27e+03	-4.42e+02	-2.49e+01
^{237}Np	0	3.88e+00	3.88e+00	2.19e-01
^{238}U	0	2.17e-02	2.17e-02	1.22e-03
^{236}U	0	5.82e+00	5.82e+00	3.28e-01
^{235}U	0	7.74e+01	7.74e+01	4.36e+00
^{234}U	0	4.66e+02	4.66e+02	2.63e+01
^{233}U	0	6.25e+03	6.25e+03	3.52e+02
^{232}U	0	2.09e+01	2.09e+01	1.18e+00
^{231}Pa	0	6.07e+01	6.07e+01	3.42e+00
^{232}Th	3.99e+05	3.90e+05	-9.30e+03	-5.24e+02

TAB. 5.6 – *Bilans de matière à t=3 ans e.p.p ou 42 GWj/t établis pour un combustible de type* $ThPu_{mox}$jeune *à 12%.*

Actinide	Inventaire I(t=0) (g)	I(t) (g)	$\Delta = I(t) - I(0)$ (g)	Δ/E (kg/GWe.an)
^{248}Cm	0	1.58e-04	1.58e-04	1.37e-05
^{247}Cm	0	7.68e-03	7.68e-03	6.67e-04
^{246}Cm	0	6.64e-01	6.64e-01	5.77e-02
^{245}Cm	0	2.86e+01	2.86e+01	2.49e+00
^{244}Cm	0	3.19e+02	3.19e+02	2.77e+01
^{243}Cm	0	3.00e+00	3.00e+00	2.61e-01
^{243}Am	0	1.12e+03	1.12e+03	9.71e+01
^{242}Am^{m}	0	1.01e+01	1.01e+01	8.76e-01
^{241}Am	3.16e+02	5.53e+02	2.37e+02	2.06e+01
^{242}Pu	1.06e+04	9.84e+03	-7.39e+02	-6.42e+01
^{241}Pu	3.12e+03	6.73e+03	3.61e+03	3.14e+02
^{240}Pu	2.57e+04	2.27e+04	-3.02e+03	-2.63e+02
^{239}Pu	3.09e+04	1.77e+04	-1.31e+04	-1.14e+03
^{238}Pu	2.91e+03	2.48e+03	-4.32e+02	-3.76e+01
^{237}Np	0	1.32e+00	1.32e+00	1.14e-01
^{238}U	0	1.76e-02	1.76e-02	1.53e-03
^{236}U	0	3.15e+00	3.15e+00	2.74e-01
^{235}U	0	3.17e+01	3.17e+01	2.76e+00
^{234}U	0	2.49e+02	2.49e+02	2.16e+01
^{233}U	0	4.46e+03	4.46e+03	3.87e+02
^{232}U	0	8.83e+00	8.83e+00	7.67e-01
^{231}Pa	0	4.34e+01	4.34e+01	3.77e+00
^{232}Th	3.88e+05	3.83e+05	-5.83e+03	-5.07e+02

TAB. 5.7 – *Bilans de matière à t=2 ans e.p.p ou 28 GWj/t établis pour un combustible de type* $ThPu_{mox}$ vieux *à 14%.*

Actinide	Inventaire I(t=0) (g)	I(t) (g)	$\Delta = I(t) - I(0)$ (g)	Δ/E (kg/GWe.an)
^{248}Cm	0	1.60e-03	1.60e-03	9.27e-05
^{247}Cm	0	5.13e-02	5.13e-02	2.97e-03
^{246}Cm	0	3.01e+00	3.01e+00	1.75e-01
^{245}Cm	0	8.23e+01	8.23e+01	4.77e+00
^{244}Cm	0	5.97e+02	5.97e+02	3.46e+01
^{243}Cm	0	5.88e+00	5.88e+00	3.41e-01
^{243}Am	0	1.48e+03	1.48e+03	8.57e+01
^{242}Am^{m}	0	1.33e+01	1.33e+01	7.69e-01
^{241}Am	3.16e+02	6.90e+02	3.74e+02	2.16e+01
^{242}Pu	1.06e+04	9.69e+03	-8.95e+02	-5.18e+01
^{241}Pu	3.12e+03	7.43e+03	4.31e+03	2.50e+02
^{240}Pu	2.57e+04	2.08e+04	-4.90e+03	-2.84e+02
^{239}Pu	3.09e+04	1.29e+04	-1.79e+04	-1.04e+03
^{238}Pu	2.91e+03	2.31e+03	-5.99e+02	-3.47e+01
^{237}Np	0	2.30e+00	2.30e+00	1.33e-01
^{238}U	0	2.59e-02	2.59e-02	1.50e-03
^{236}U	0	6.22e+00	6.22e+00	3.60e-01
^{235}U	0	7.30e+01	7.30e+01	4.23e+00
^{234}U	0	4.32e+02	4.32e+02	2.50e+01
^{233}U	0	6.05e+03	6.05e+03	3.51e+02
^{232}U	0	1.82e+01	1.82e+01	1.05e+00
^{231}Pa	0	5.90e+01	5.90e+01	3.42e+00
^{232}Th	3.88e+05	3.80e+05	-8.81e+03	-5.11e+02

TAB. 5.8 – *Bilans de matière à t=3 ans e.p.p ou 42 GWj/t établis pour un combustible de type* $ThPu_{mox}$ vieux *à 14%.*

Chapitre 6

Scénarios de transition vers des systèmes isogénérateurs Th/^{233}U en spectre de neutrons thermiques

6.1 Introduction

Nous regardons à présent la faisabilité d'une production continue d'un stock d'^{233}U qui serait en mesure d'assurer une transition progressive du nucléaire actuel vers une filière de réacteurs isogénérateurs à base de combustible Th/^{233}U. Nous considérons deux cas de base, celui d'un combustible ThPu à base de $\mathrm{Pu_{uox}}$ et celui d'un combustible à base de $\mathrm{Pu_{mox}}$.

L'idée commune à tous les scénarios que l'on présente ici est que la production d'^{233}U *en amont* de la filière isogénératrice est assurée par un parc de réacteurs à eau légère *de transition*. Nous nous situons dans le cas français, soit un parc existant de réacteurs REP qui devra être progressivement renouvelé lorsque ceux-ci viendront à terme de leur durée de vie. Le déclin du parc actuel commencera vers 2020, c'est pourquoi on prendra cette date comme début de la transition.

Nous essayons alors de voir la valeur compatible d'inventaire maximal en ^{233}U qu'il est possible d'envisager par réacteur isogénérateur, et ceci avec différents scénarios de déploiement de ceux-ci. Différents scénarios permettront alors d'effectuer la transition avec un inventaire initial maximal en ^{233}U différent : c'est pourquoi nous ferons alors varier l'inventaire initial d'^{233}U requis par réacteur. L'inventaire maximal en ^{233}U par réacteur qu'un scénario donné est en mesure de valider est donc un résultat de l'étude et non une donnée d'entrée ; ce résultat permettra alors de selectionner les concepts de réacteurs isogénérateurs compatibles avec le scénario de transition étudié.

Ces scénarios de déploiement sont directement inspirés des scénarios existant pour le déploiement des Réacteurs à Neutrons Rapides (RNR) au sodium étudiés par le CEA et EdF ([57], [58]).

6.1.1 Le concept de Réacteur à Sels Fondus : un candidat possible de réacteur isogénérateur en combustible Th/^{233}U

Nous nous intéressons à des systèmes Th/^{233}U fonctionnant en spectre de neutrons thermiques du type Réacteur à Sels Fondus (RSF). Ce concept de réacteur présente l'avantage d'un inventaire fissile initial théoriquement faible. Les études menées au LPSC([24],[22]) sur ce type de système estiment l'inventaire minimal d' ^{233}U à environ une tonne pour un réacteur de 1GWe isogénérateur à spectre de neutrons thermiques, inspiré du concept américain MSBR des années 1970.

6.1.2 Bilans de matière utilisés

Nous avons, dans le chapitre précédent, encadré les bilans de production d'^{233}U et d'incinération de plutonium en les calculant à deux instants de l'évolution différents ; instants qui correspondent à deux taux de combustion à la décharge différents :

- Le premier est pessimiste car il sous-estime le taux de combustion en ne considérant pas la gestion par fractionnement du cœur. Dans ce cas, la production d'^{233}U est plus grande par unité d'énergie mais on aura eu besoin, pour en fabriquer une quantité donné, d'utiliser une plus grande quantité de plutonium dont l'incinération n'aura pas été optimisée.
- Le deuxième peut être considéré optimiste ; il considère une gestion à 3 cycles du combustible, qui le prolonge de 50% par rapport au cas précédent et atteint des valeurs d'environ 60 GWj/t, ce qui est aujourd'hui considéré un taux de combustion elevé qui suppose la tenue des matériaux de structure à cette fluence. Avec une quantité de plutonium donnée on fabriquera, en plus de temps, plus d'^{233}U. **Les résultats relatifs à cette hypothèse seront présentés dans le texte entre parenthèses pour la suite de la discussion**.

Nous effectuons alors chaque calcul de scénario en considérant ces deux taux de combustion différents à la décharge pour chaque type de combustible ThPu. Nous avons pris les résultats de nos calculs correspondant aux cas ThPu$_{\text{uox}}$ *jeune* à 8.5% et le cas ThPu$_{\text{mox}}$ *vieux* à 14% pour illustrer les capacités que peuvent avoir des réacteurs à eau légère en terme de production d'^{233}U. Dans le cas du Pu$_{\text{mox}}$, cette teneur est compatible à la teneur qu'on s'attend à avoir pour un plutonium de ce type qui aura un âge moyen compris entre 5 et 30 ans au début du scénario de transition.

Type	$ThPu_{uox}$ (jeune)	$ThPu_{mox}$ (vieux)
Teneur	8.5 %	14 %
Taux moyen de combustion estimé (τ_m)	3 a.e.p.p / 42 GWj/t	2 a.e.p.p / 28 GWj/t
τ_d "pessimiste" ($\tau_d = \tau_m$)	3 a.e.p.p / 42 GWj/t	2 a.e.p.p / 28 GWj/t
τ_d "optimiste" ($\tau_d = 1.5 \times \tau_m$)	4.5 a.e.p.p / 63 GWj/t	3 a.e.p.p / 42 GWj/t

TAB. 6.1 – *Types de combustibles ThPu et taux à la décharge considérés dans les scénarios présentés ici.*

Le tableau 6.1 résume les instants lors de l'évolution auxquels on effectue les bilans de matière qu'on considère ici. Les tableaux 6.2 à 6.4 rappellent ici les bilans de production d'^{233}U et de consommation de plutonium déjà établis pour ces deux types de combustibles.

Noyau	Inventaire I(3 ans)	$\Delta = I(3) - I(0)$	Δ/E (kg/GWe.an)
^{242}Pu	2.60e+03 g	2.89e+02 g	1.67e+01
^{241}Pu	5.18e+03 g	1.21e+03 g	7.00e+01
^{240}Pu	8.89e+03 g	-1.47e+03 g	-8.52e+01
^{239}Pu	8.62e+03 g	-1.82e+04 g	-1.05e+03
^{238}Pu	6.54e+02 g	-3.54e+01 g	-2.05e+00
Consommation Pu	–	–	-1.05e+03
^{233}U	6.42e+03 g	6.42e+03 g	3.72e+02

TAB. 6.2 – *Bilans de production d'^{233}U et de consommation de plutonium à 3 ans d'irradiation pour un combustible MOX ThPu à base de Pu_{uox} "jeune" à 8.5% de teneur en Pu.*

6.1.3 Hypothèses de base des scénarios ici considérés

L'étude de scénarios est complexe et nécessite beaucoup d'hypothèses de travail. Il ne s'agit pas, bien entendu, de prédire l'évolution de la politique nucléaire d'un pays, mais de *concevoir* et *d'illustrer* des choix possibles de ce qui serait physiquement réalisable dans les décennies à venir si la volonté d'aller vers un cycle du thorium existe. Ceci requiert de fixer certaines hypothèses. Celles que nous adoptons, pour toute la suite, sont cohérentes avec les critères suivants :

- Toute transition technologique vers un nouveau type de réacteur ou de combustible (que ce soit un réacteur à eau légère de 3e génération utilisant des combustibles ThPu ou un réacteur à sels fondus de 4e génération) implique un investissement scientifique, technique et

Noyau	Inventaire I(4.5 ans)	$\Delta = I(4.5) - I(0)$ (g)	Δ/E (kg/GWe.an)
^{242}Pu	2.99e+03 g	6.76e+02 g	2.61e+01
^{241}Pu	4.46e+03 g	4.84e+02 g	1.87e+01
^{240}Pu	6.90e+03 g	-3.47e+03 g	-1.34e+02
^{239}Pu	3.55e+03 g	-2.33e+04 g	-8.99e+02
^{238}Pu	6.62e+02 g	-2.73e+01 g	-1.06e+00
Consommation Pu	–	–	-9.90e+02
^{233}U	8.03e+03 g	8.03e+03 g	3.10e+02

TAB. 6.3 – *Bilans de production d'^{233}U et de consommation de plutonium à 4.5 ans d'irradiation pour un combustible MOX ThPu à base de Pu_{uox} "jeune" à 8.5% de teneur en Pu.*

Noyau	Inventaire I(2 ans)	$\Delta = I(2) - I(0)$	Δ/E (kg/GWe.an)
^{242}Pu	8.68e+03 g	-9.78e+01 g	-8.50e+00
^{241}Pu	8.87e+03 g	2.11e+02 g	1.83e+01
^{240}Pu	1.85e+04 g	-2.87e+03 g	-2.50e+02 n
^{239}Pu	1.49e+04 g	-1.07e+04 g	-9.33e+02
^{238}Pu	2.61e+03 g	-3.27e+02 g	-2.84e+01
Consommation Pu	–	–	-1.20e+03
^{233}U	4.56e+03 g	4.56e+03 g	3.96e+02

TAB. 6.4 – *Bilans de production d'^{233}U et de consommation de plutonium à 2 ans d'irradiation pour un combustible MOX ThPu à bas de Pu_{mox} à 14% de teneur en Pu.*

industriel considérable. Ainsi on prendra en tant qu'hypothèse de base qu'il n'est pas envisageable d'entretenir le déploiement simultané de deux concepts de réacteurs régénérateurs différents.

- Dans une perspective d'utilisation d'un combustible MOX *thorié*, il nous semble cohérent de supposer l'arrêt du programme MOX conventionnel (uranium-plutonium) au plus tard à la date du début de la transition. Nous encadrons alors nos scénarios par deux hypothèses de travail : une première hypothèse qui stipule l'arrêt du programme MOX à la date actuelle, et une deuxième qui n'envisage cet arrêt qu'au début de la période de transition.
- Enfin, nous supposons que la volonté de garder au minimum constante la puissance électrogène d'origine nucléaire, voire de l'augmenter, existe. Ceci suppose le renouvellement continu du parc actuel par un parc de réacteurs de transition de 3^{e}génération. Nous suppo-

sons ce parc constitué de réacteurs à eau légère qui peuvent être assimilés à des réacteurs de type EPR.

Dates clé et acteurs du scénario de transition

Les hypothèses précédentes supposent alors l'existence de trois familles de réacteurs pendant la transition qui nous intéresse. Ces réacteurs sont, en nous inspirant du cas français :

- Les réacteurs de type REP du parc actuel, qui viennent à décroître à partir de la date de 2020. Nous prendrons une décroissance de 2 GWe par an à partir de cette date, soit un rythme plus faible que celui avec lequel ces réacteurs ont été installés : ils auront, pendant leur vie, connu un prolongement de leur durée de vie à 48 ans en moyenne. On prendra leur date de disparition en 2050.
- Les réacteurs à eau légère de 3e génération, de type EPR, qui prennent la relève à partir de 2020, et dont l'hypothèse essentielle est qu'ils sont chargés en partie avec du combustible MOX ThPu. Pour ces réacteurs, le taux de tranches créées par an, ainsi que la proportion du cœur qui utilise du *mox thorié* sont des données du scénario à valider. Nous considérons une durée de vie de 60 ans pour ces réacteurs.
- Enfin et bien entendu, les concepts de réacteurs isogénérateurs de type RSF dont l'inventaire initial en ^{233}U et la date de leur entrée en scène sont des hypothèses du scénario.

Nous prenons, afin de simplifier le raisonnement, une puissance électrique de 1GW pour tous les systèmes, ainsi qu'un facteur de charge de 85%.

6.2 Méthodologie

Les scénarios que l'on présente ici sont élaborés en prenant en compte un modèle qui décompte, à chaque instant de la transition, les bilans de matière présents. La figure 6.1 illustre la démarche suivie, où l'on décompte la production d'^{233}U et la consommation du plutonium en combustible MOX ThPu dans les réacteurs de transition. Nous considérons, selon l'instant de la transition, diverses valeurs pour le facteur d'utilisation du combustible ThPu en cœur. Ce facteur, que nous noterons F, est le rapport de la quantité de combustible de type MOX ThPu au combustible total dans le réacteur, le reste étant du combustible UOX conventionnel. Définir différentes valeurs de F suivant les différentes périodes de la transition nous permet, par exemple, d'optimiser la production d' ^{233}U en période de déploiement des RSF ou de profiter d'une plus grande production de plutonium (en combustible UOX), pendant les périodes où les isogénérateurs sont stables.

Ainsi, la valeur du facteur F changera au cours du temps, selon la stratégie de production

d'^{233}U ou d'incinération du plutonium adoptée. On cherche alors les valeurs de F qui maximisent l'inventaire maximal possible d'^{233}U par RSF. Pour une valeur donnée d'inventaire initial en ^{233}U, un scénario consiste alors en une proposition de différentes valeurs de F qui permet de garder des bilans matière qui rendent la transition possible.

Nous considérons un décalage de 5 ans nécessaire au refroidissement et à la fabrication du combustible, entre les inventaires produits et les inventaires requis, ceci nous permet en outre de prendre en compte la part d'^{233}U produit par la décroissance du ^{233}Pa. Notre analyse se fixe alors, comme scénario de travail, la forme des courbes de puissance installée par type de réacteur.

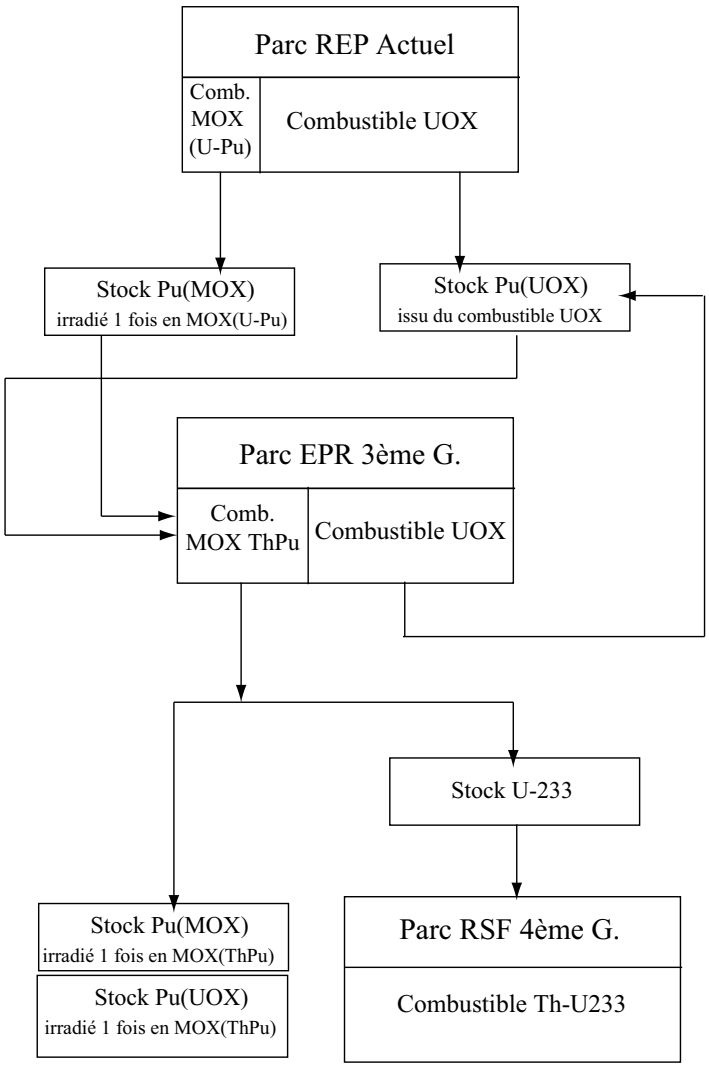


FIG. 6.1 – *Gestion du plutonium de différentes origines dans du combustible* MOX*ThPu pour la production d'^{233}U dans les réacteurs à eau légère de 3ème génération. Schéma général pour tous les scénarios considérés.*

En sortie d'un scénario donné, nous aurons établi la valeur à chaque instant, pendant toute la période de transition, des bilans de matière suivants :

- L'inventaire d'^{233}U *disponible*
- L'inventaire de plutonium de type Pu_{uox} *disponible*
- L'inventaire de plutonium de type Pu_{mox} *disponible*
- L'inventaire de plutonium de type Pu_{uox} *usé* après passage en MOX *thorié*
- L'inventaire de plutonium de type Pu_{mox} *usé* après passage en MOX *thorié*
- L'inventaire d'uranium *total*, dans le cycle, de la filière Th/^{233}U (*disponible + utilisé*).

Par *disponible* on sous-entend ici l'inventaire total (de plutonium ou d' ^{233}U) qui, à un instant donné, est prêt à être chargé en réacteur. Ainsi la contribution de matière produite a un décalage de 5 ans avant que celle-ci soit considérée *disponible*. Comme le concept RSF est ici, par définition du scénario, isogénérateur, l'objectif optimum est d'arriver à l'échéance de la transition complète avec un inventaire nul d' ^{233}U disponible.

Critère de validation d'un scénario donné

Le scénario est considéré validé s'il permet de garder, pendant toute la durée de la transition, des inventaires *disponibles* de plutonium et d' ^{233}U positifs à tout instant. Nous avons, pour chaque cas, essayé de valider le scénario tout en cherchant à maximiser l'inventaire initial d' ^{233}U par RSF que le scénario était capable de supporter.

Soulignons enfin l'importance des réacteurs EPR de transition dont le rôle dans ces scénarios est non seulement de produire l'^{233}U, mais de continuer à fournir le plutonium nécessaire à la création de MOX *thoriés* en quantités suffisantes. Si l'horizon envisagé reste le déploiement d'un parc de 4e génération, il ne faut pas perdre de vue que la réussite de cette transition passe inévitablement par le remplacement d'une partie du parc actuel par des réacteurs à eau légère. La rapidité avec laquelle les réacteurs de génération IV pourront assumer la relève dépendra et de l'objectif de puissance installée visé, et de leur inventaire en fissile requis.

Nous faisons maintenant un point sur les hypothèse qu'on prendra pour les stocks disponibles de plutonium à considérer au début du scénario, soit en 2020.

Stocks français de plutonium à l'horizon 2020

En 2002 l'état des lieux des stocks en plutonium établi par l'ANDRA[51] est de :

- 105 tonnes de plutonium contenu dans les combustibles UOX usés
- 26 tonnes de plutonium contenu dans les combustibles MOX usés
- 90 tonnes de plutonium *"engagé"* de qualité Pu_{uox} prêt à faire un passage en MOX . En considérant une incinération de 40% aprés passage en MOX, ceci équivaut, après irradiation,

à 54 tonnes de Pu_{mox}.

Hypothèse 1 : Arrêt du programme MOX (U-Pu) dès aujourd'hui

En considérant le plutonium produit de 2002 à 2020 (11t/an), ceci nous conduit à prendre comme inventaires en plutonium présents en 2020, *si on arrête le programme* MOX *à la date actuelle*, le cas de figure suivant :

- 300 tonnes de plutonium de qualité Pu_{uox}
- 80 tonnes de plutonium de qualité Pu_{mox}

Ce cas correspond donc à une estimation optimiste, dans le sens de l'importance du stock, des stocks en plutonium de type Pu_{uox} français.

Hypothèse 2 : Arrêt du programme MOX (U-Pu) en 2020

Dans l'hypothèse de la continuité du programme MOX d'aujourd'hui jusqu'en 2020 nous prendrons alors comme cas de figure *pessimiste* un inventaire total de 300 tonnes de plutonium de type Pu_{mox} en 2020 et un inventaire nul de plutonium de type Pu_{uox}.

Nous considérons divers scénarios inspirés du cas français actuel, celui d'un parc de 60 GWe de REP. Nous illustrons deux scénarios de transition à puissance constante et un scénario de transition avec doublement de la puissance installée entre 2020 et 2100.

Dans toute la suite nous donnons, pour chaque scénario, trois cas qui correspondent aux hypothèses sur la nature et la quantité du stock de plutonium initial. Ces trois cas sont :

- Selon l'hypothèse 1 de l'arrêt du programme MOX, nous ne considérons que l'utilisation du plutonium de type Pu_{uox}, soit 300 t au début de la transition.
- Selon cette même hypothèse, nous regardons l'apport qu'aurait dans le scénario, l'utilisation du plutonium de type Pu_{mox}, soit 80 t au début de la transition.
- Enfin, selon l'hypothèse 2 de l'arrêt du programme MOX en 2020, nous regardons le scénario en partant d'un stock unique de Pu_{mox} de 300 tonnes.

Dans les figures suivantes nous illustrons, pour chaque scénario considéré, les inventaires obtenus selon les différentes valeurs de F adoptées pour les trois situations susmentionnées. Nous avons déterminé ces valeurs de F en cherchant toujours la plus grande valeur de l'inventaire en ^{233}U par RSF qui valide le scénario.

6.3 Les scénarios de transition à puissance constante

Nous regardons un modèle simple de scénario qui prend comme date d'introduction du concept RSF l'an 2035. La date de début des RSF représente ici un choix très optimiste car il n'intervient que 15 ans après le début de la transition, à un moment où les trois types de réacteurs coexistent encore.

L'hypothèse d'un renouvellement du parc actuel par des EPR de transition fixe, pour les dates d'introduction du concept RSF, deux intervalles ou celles-ci sont cohérentes avec une transition à puissance installée constante. Ces intervalles de temps possibles sont : soit avant 2050, soit après 2080, comme nous l'expliquons maintenant :

- **Avant 2050 :** le concept de 4e génération, ici les RSF, est introduit pour fournir une part significative de la puissance installée avant le renouvellement complet du parc actuel. Dans ce cas de figure la date d'introduction de 2035 illustre les contraintes à attendre d'un début prompt et significatif des réacteurs fonctionnant en cycle Th-U3, qui correspond à une proportion de 50% du parc installé en 2050.
- **Entre 2050 et 2080 :** si les réacteurs de 4e génération n'ont pas fait leur apparition, on suppose qu'en 2050, *afin de garder une puissance installée constante*, tout le parc actuel est remplacé par des EPR, d'une durée de vie de 60 ans. Dans ce cas de figure, on doit attendre le déclin de ces derniers avant d'entamer la construction d'une nouvelle filière.
- **Après 2080 :** dans tous les cas de figure le parc EPR de transition aura commencé son déclin. Les concepts de 4ème génération peuvent donc être introduits.

6.4 Scénario A : Introduction du concept RSF en 2035

La figure 6.2 donne l'allure des courbes de puissance par famille de réacteurs lors de la transition à puissance constante considérée, qu'on appelle le scénario A. La date de 2095, à laquelle la transition vers un parc constitué entièrement de RSF doit être assurée, est ici fixée par la durée de vie des réacteurs de transition, soit 60 ans.

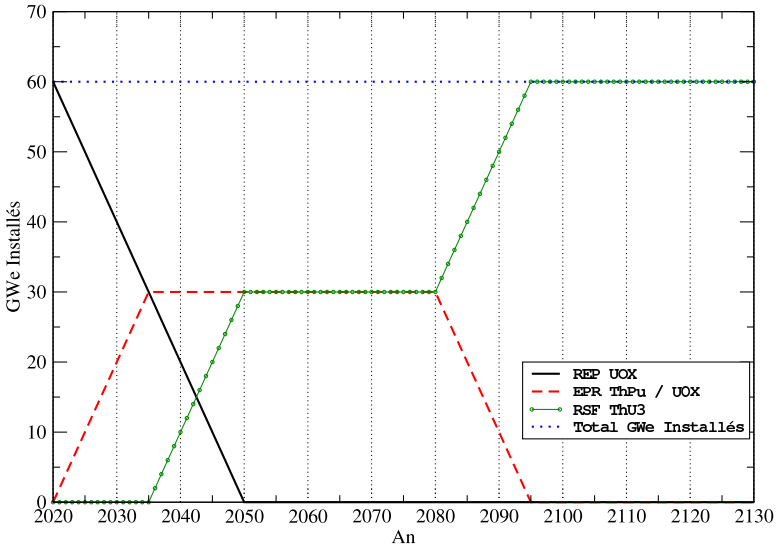


FIG. 6.2 – *Scénario A : scénario de transition à puissance constante pour un parc de 60 GWe installés et introduction du concept RSF à la date de 2035.*

Nous commentons en détail ce scénario afin d'illustrer le raisonnement qui peut s'étendre aux autres exemples qui suivront, et pour lesquels on ne donnera que les résultats, en renvoyant les figures correspondantes à la fin de ce chapitre, ceci afin de ne pas encombrer la lecture des conclusions simples qu'il faut tirer de ces illustrations.

Scénario A : Utilisation du stock Pu_{uox} et d'un inventaire initial de 1.9 tonnes par RSF de 1GWe

La figure 6.3 donne, pour le scénario A, l'évolution des inventaires disponibles de plutonium et d' ^{233}U. Sur la figure 6.3.b sont représentées les diverses valeurs du facteur F sous la période où cette valeur de F intervient.

Cet exemple illustre qu'un inventaire de 1.9 (2.35) tonnes par RSF peut être rendu compatible avec ce scénario en utilisant 36% (50%) de participation du combustible MOX ThPu chargé en cœur des EPRs, lorsque ceux-ci connaissent leur déploiement, de 2020 à 2035. Cette valeur de 36% pour le facteur F est celle qui annule l'inventaire d'^{233}U disponible en 2050, c´est-à-dire lorsqu'on arrive au premier palier des RSF.

De 2050 à 2080 : le nombre de RSF installés est constant et on accumule l'^{233}U produit en MOX ThPu, en attendant une nouvelle phase de déploiement de RSF. Une fois qu'un RSF est démarré, il n'a plus besoin qu'on l'alimente en ^{233}U, puisqu'on suppose qu'il est isogénérateur. Pendant cette période, la contrainte principale est de garder un inventaire de plutonium disponible positif, tout en utilisant la quantité suffisante en MOX ThPu afin de produire la quantité d'^{233}U nécessaire à assurer la deuxième phase de déploiement des RSF. Ceci ne peut être obtenu en gardant le même taux d'utilisation F, qu'on est forcé de réduire à 10% (17%) pendant cette période pour que les inventaires de plutonium et d'^{233}U disponibles restent positifs.

De 2080 à 2095 : on relance la construction des RSF et on passe à une valeur de F de 21% (19%) qui permet d'augmenter la production d'^{233}U pendant la dernière remontée des RSF en minimisant le plus possible l'inventaire de plutonium disponible restant à la fin de la transition.

Choix des valeurs du facteur F

On peut bien entendu, en prenant d'autres valeurs de F à d'autres périodes de la transition, retrouver d'autres configurations qui valideraient ce même scénario. Toutefois, toute série de valeurs de F qui annule l'inventaire disponible d'^{233}U à des dates clés de la transition, c'est à dire au début du premier déploiement (ici en 2035) et en fin de transition (ici en 2095), peut être considérée comme optimisant l'inventaire d'^{233}U *si elle minimise aussi le plus possible l'inventaire de plutonium disponible à la date où la transition est achevée.* On aura dans ce cas produit et utilisé le plus d'^{233}U possible.

C'est ce que nous avons essayé de faire ici, tout en veillant à ne pas avoir de grandes discontinuités dans les valeurs de F d'une période à l'autre : un cas où l'on passerait de 90% d'utilisation du MOX ThPu à 1% serait jugé peu intéressant si on peut obtenir le même résultat en n'utilisant qu'une valeur d'environ 45%, par exemple, ne serait-ce-que pour des raisons de flux de matière dans les usines de fabrication des MOX ThPu.

Soulignons que cette recherche de valeurs de F, qui maximisent l'inventaire en ^{233}U par RSF, conduit à des bilans de plutonium et d' ^{233}U disponibles qui sont très tendus à certaines dates et sont en conséquence particulièrement sensibles aux temps d'attente entre la séparation et la fabrication des combustibles. Le scénario présenté à la figure 6.3 permet de valider un inventaire de 1.9 (2.35 pour le cas *"optimiste"*) tonnes par RSF de 1GWe, ce qui est compatible avec les

concepts RSF à spectre thermique.

A la fin de la transition, il faudra bien entendu gérer le plutonium qui aura connu un passage en MOX ThPu. Sur cet exemple, on a environ 460 (272) tonnes de plutonium irradié en combustible MOX ThPu à la fin de la transition. Il s'agit, en plus, de plutonium séparé, puisqu'il aura fallu extraire l'^{233}U des combustible MOX ThPu irradiés. Par ailleurs il est probablement à considérer comme déchet puisque l'hypothèse, dans ce scénario, est qu'à cette date tous les réacteurs à eau, où l'on pourrait le recycler, auront disparu. Ceci constitue un point délicat sur des critères de prolifération. Soulignons toutefois (c.f tableaux 5.3 à 5.8) que le plutonium, que ce soit du type $\mathrm{Pu_{uox}}$ ou $\mathrm{Pu_{mox}}$, après le passage en MOX ThPu a un vecteur isotopique où le ^{240}Pu est dans tous les cas majoritaire, ce qui rend la fabrication d'une arme de fission à partir de ce type de plutonium très difficile, sinon impossible.

Scénario A : Utilisation du stock $\mathbf{Pu_{uox} + Pu_{mox}}$

Nous essayons maintenant de voir, sur ce même scénario, le gain en production d'^{233}U que permettrait l'utilisation du stock de 80 t de $\mathrm{Pu_{mox}}$.

La figure 6.4 donne l'allure des courbes d'inventaires disponibles et utilisés en considérant l'utilisation de ce stock à taux d'utilisation F de 6% (10%) en cœur pendant les premiers 15 ans de la transition. Cette valeur de F pour le $\mathrm{Pu_{mox}}$ est celle qui permet de faire un passage en MOX ThPu pour la totalité du stock de 2020 à 2035 en MOX ThPu. Dans cet exemple nous avons considéré qu'on commence par utiliser tout le stock de $\mathrm{Pu_{mox}}$ séparé et disponible, avant qu'il ne vieillisse encore plus et perde de sa qualité neutronique. Nous utilisons alors que 30% (35%) de $\mathrm{Pu_{uox}}$ à cette même période, ce qui revient à utiliser 36% (50%) de MOX ThPu en cœur EPR. A partir de 2035 on n'a plus de stock de $\mathrm{Pu_{mox}}$ disponible et on se retrouve alors dans une situation similaire à la précedente. On retrouve par la suite des valeurs semblables de F, de 12% (17%) entre 2050 et 2080, et de 20% (20%) entre 2080 et 2095. Ces valeurs valident un inventaire d'^{233}U par RSF de 1.95 (2.45) tonnes.

Le gain en inventaire initial d'^{233}U par RSF grâce à l'utilisation du stock de $\mathrm{Pu_{mox}}$ est dans cet exemple de seulement 50 kg (100 kg) d'^{233}U, qui passe de 1,9t à 1,95t (de 2,35t à 2,45t). **Le gain en ^{233}U ne semble pas très pertinent, dans ce type de scénario, face à l'investissement que représenterait le retraitement des combustibles MOX irradiés pour en extraire l'inventaire de $\mathrm{Pu_{mox}}$ ici considéré.**

Scénario A : Utilisation d'un stock unique de $\mathbf{Pu_{mox}}$

On suppose maintenant que l'on ne dispose que d'un stock de plutonium en 2020 de 300 tonnes qui est entièrement de type $\mathrm{Pu_{mox}}$, et donc que pour constituer ce stock on a du retraiter tous

les MOX (U-Pu) irradiés. La figure 6.5 donne, comme précédemment, les inventaires de matière disponible dans ce scénario. L'inventaire de 1.5t (1.85t) par RSF validé dans ce cas de figure reste toutefois supérieur et donc compatible avec la valeur de 1 tonne par RSF. Ce cas illustre cependant le fait que continuer le programme MOX (U-Pu) jusqu'en 2020 ne peut être que pénalisant du point de vue de la production d'^{233}U : l'inventaire maximal d'^{233}U en RSF chute de 1.95 à 1.5 tonnes (de 2.35 à 1.85), soit environ 25% de moins par rapport au scénario où l'on dispose d'un stock initial de Pu_{uox}. Bien entendu la transition ne reste possible que parce qu'on régénère assez rapidement un stock important de Pu_{uox} en sortie des EPR, qui utilisent aussi du combustible UOX .

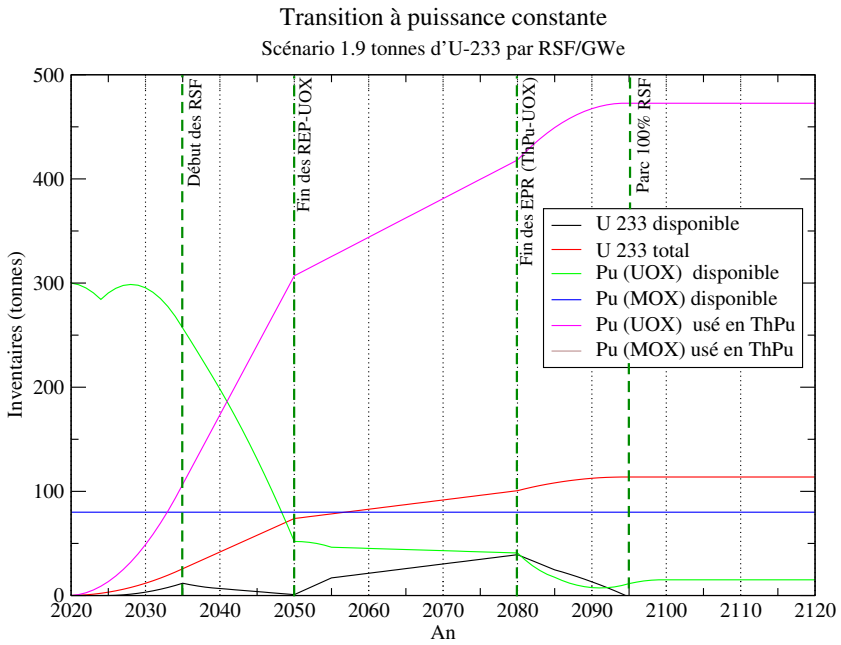
Le tableau 6.5 donne les inventaires des divers types de plutonium et d'^{233}U à la fin de la transition pour les trois hypothèses de stock initiaux de plutonium dans ce scénario. Le tableau 6.6 redonne ces quantités dans pour le cas *optimiste* qui maximise le taux de combustion total du combustible.

Utilisation d'un stock initial de :	Pu_{uox} (300t)	Pu_{uox} (300t) + Pu_{mox} **(80t)**	Pu_{mox} (300t)
Inventaire ^{233}U/ RSF	1.90 t	1.95t	1.50t
Masse d'^{233}U (dans le cycle Th/^{233}U)	114t	117t	90t
Inventaire de Pu_{uox} (après passage en MOX ThPu)	460t	475t	300t
Inventaire de Pu_{mox} (après passage en MOX ThPu)	0t	60t	250t
Inventaire de Pu_{uox} disponible	18	9	20t
Inventaire de Pu_{mox} disponible	80t	0t	0t

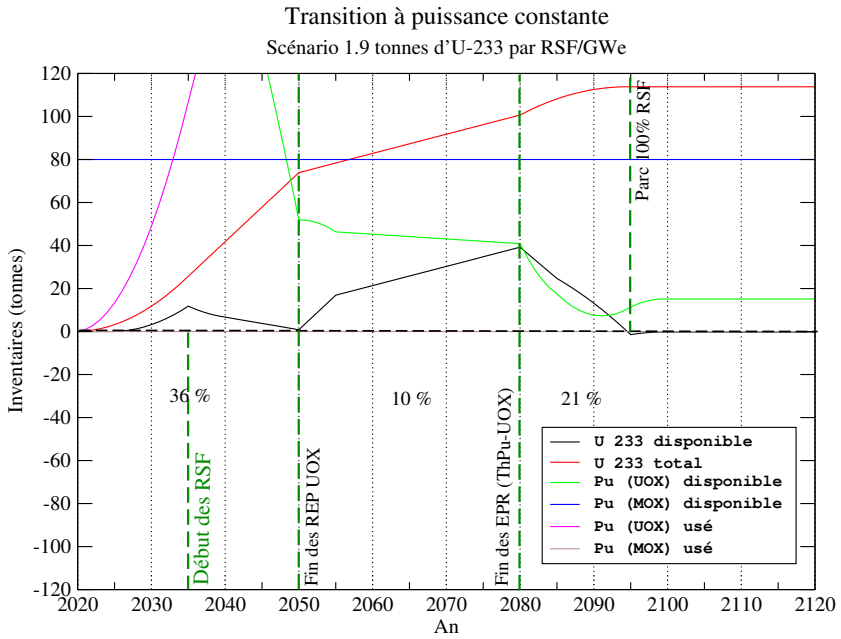
TAB. 6.5 – *Scénario A : Inventaires de Pu et ^{233}U dans le cycle et hors cycle à la fin de la transition.*

Utilisation d'un stock initial de :	Pu_{uox} (300t)	Pu_{uox} (300t) + Pu_{mox} (80t)	Pu_{mox} (300t)
Inventaire ^{233}U/RSF	2.35t	2.45t	1.85t
Inventaire ^{233}U (dans le cycle Th/^{233}U)	141t	147t	111t
Inventaire Pu_{uox} (après passage en MOX ThPu)	272t	274t	181t
Inventaire Pu_{mox} (après passage en MOX ThPu)	0t	52t	208t
Inventaire Pu_{uox} disponible	30t	22t	17t
Inventaire Pu_{mox} disponible	80t	0t	0t

TAB. 6.6 – *Scénario A* "optimiste" *: Inventaires de Pu et ^{233}U dans le cycle et hors cycle à la fin de la transition.*

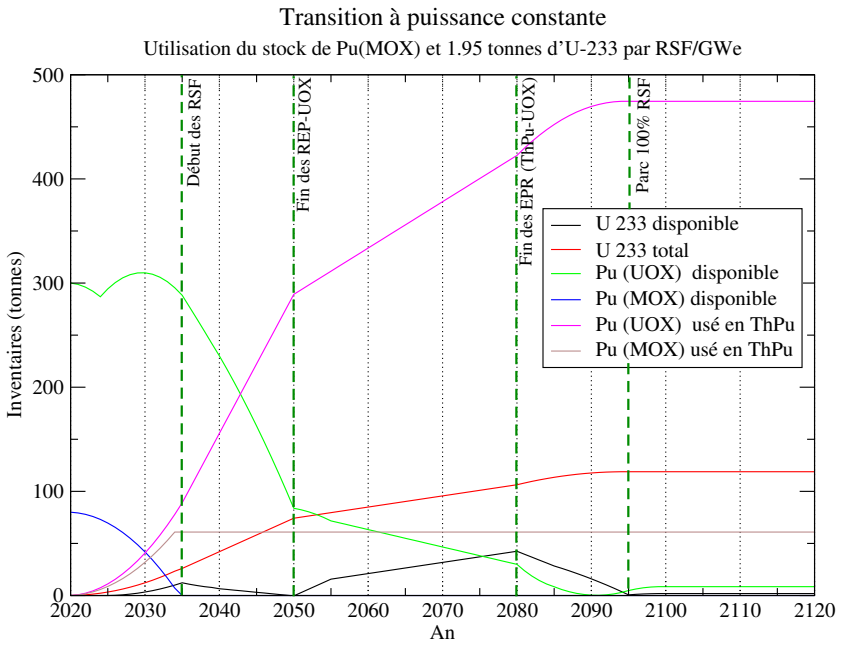


(a) Scénario A sans utilisation du stock de Pu_{mox}

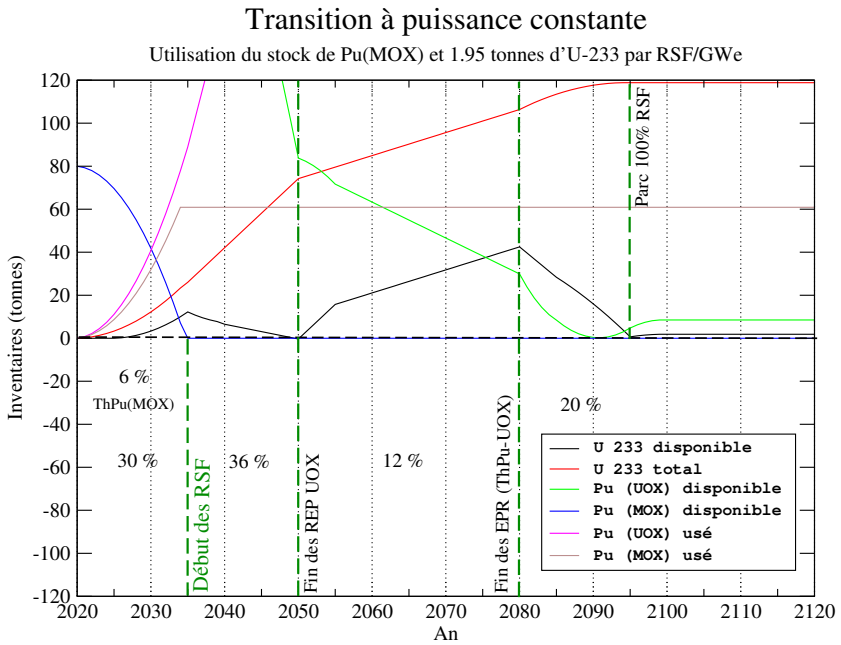


(b) Scénario A sans utilisation du stock de Pu_{mox}

FIG. 6.3 – *Scénario A : inventaires disponibles pour un inventaire initial par RSF de 1.9 tonnes. Scénario de transition à puissance constante pour un parc de 60 GWe installés et introduction du concept RSF à la date de 2035 en utilisant uniquement le stock de* Pu_{uox} *. Sur la figure (b) sont représentées les valeurs prises pour F, le pourcentage de combustible MOX ThPu utilisé dans les réacteurs EPR, le reste étant du combustible* UOX *.*

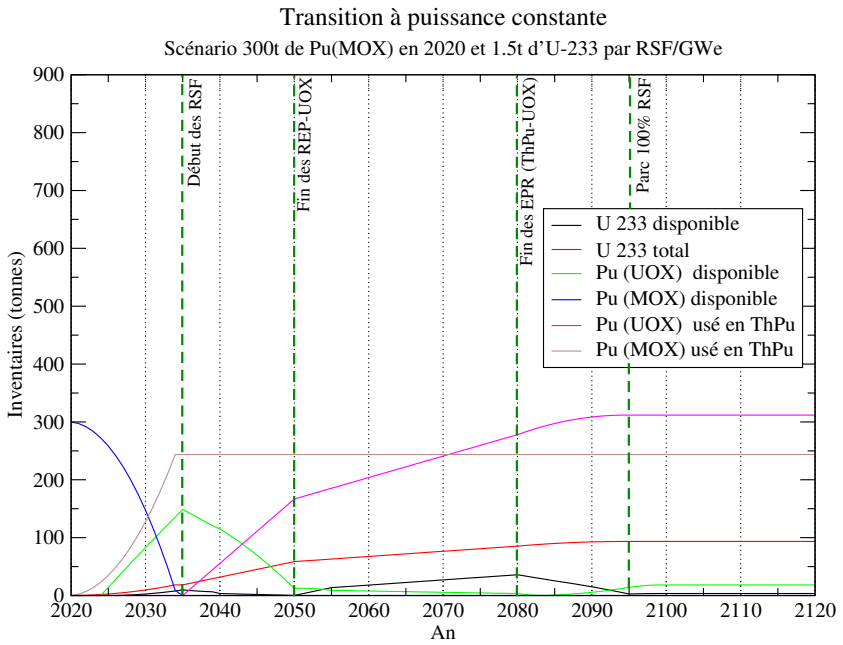


(a) Scénario A avec utilisation du stock de Pu_{mox}

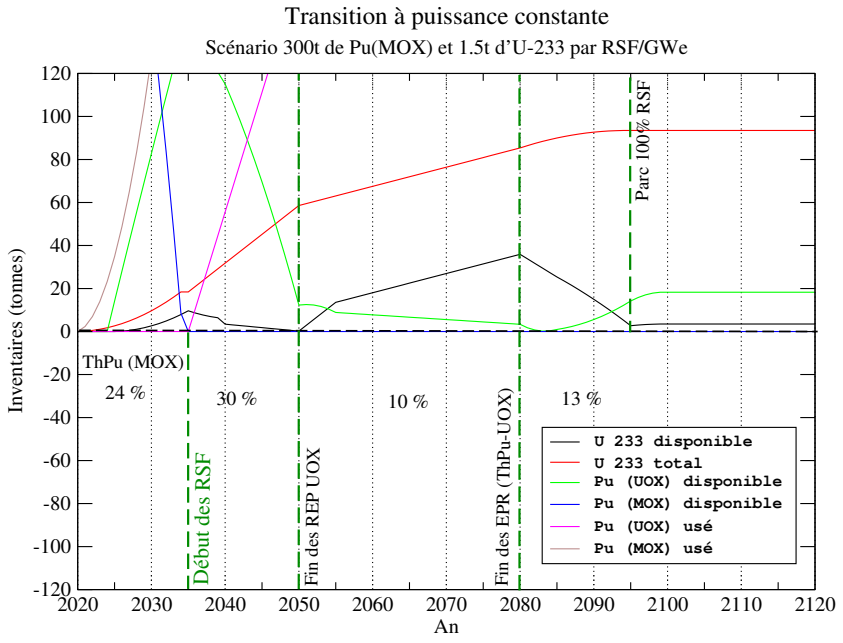


(b) Scénario A avec utilisation du stock de Pu_{mox}

FIG. 6.4 – *Scénario A : inventaires disponibles pour un inventaire initial par RSF de 1.95 tonnes. Scénario de transition à puissance constante pour un parc de 60 GWe installés et introduction du concept RSF à la date de 2035 en utilisant tous les stocks de plutonium, de type* Pu_{uox} *et* Pu_{mox} *. Sur la figure (b) sont représentées les valeurs prises pour F, le pourcentage de combustible MOX ThPu utilisé dans les réacteurs EPR, le reste étant du combustible* UOX *.*



(a) Scénario A avec un stock initial de Pu_{mox} uniquement



(b) Scénario A avec un stock initial de Pu_{mox} uniquement

FIG. 6.5 – *Scénario A : inventaires disponible pour un inventaire de 1.5t d'^{233}U par* RSF. *Cas où l'on ne dispose initialement que d'un inventaire de plutonium de qualité Pu_{mox} en 2020. . Sur la figure (b) sont représentées les valeurs de F en pourcentage d'utilisation du combustible MOX ThPu en cœur.*

6.5 Scénario B : Introduction du concept RSF en 2080

De manière complètement analogue à l'analyse faite sur le scénario précédent, nous regardons maintenant un autre scénario de transition à puissance constante, où le concept RSF est cette fois ci introduit en 2080, lorsque la décroissance du parc 100% EPR aura commencé. La figure 6.6 illustre la participation à la puissance des trois types de réacteurs dans ce nouveau scénario.

Les figures 6.8, 6.9 et 6.10, qui illustrent les inventaires de matière disponible pour ce scénario, sont données en fin de chapitre.

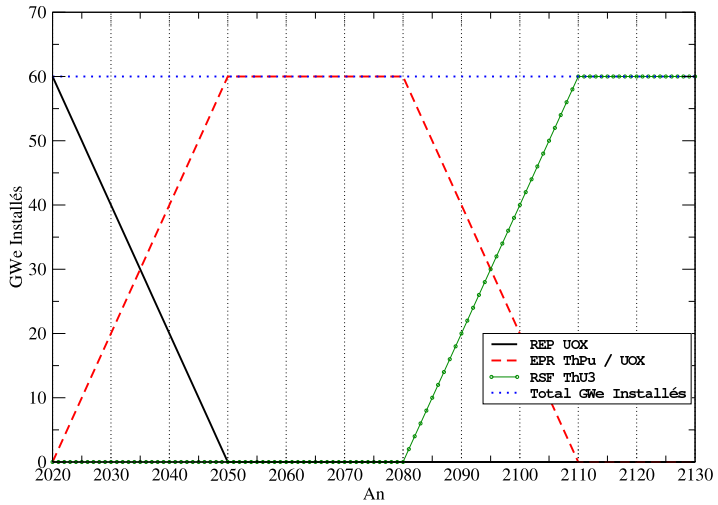


FIG. 6.6 – *Scénario B : Scénario de transition à puissance constante pour un parc de 60 GWe installés et introduction du concept RSF à la date de 2080.*

Repousser la date d'apparition des RSF en 2080 va nous permettre de considérer des inventaires initiaux par RSF plus élevés. D'une part on aura eu plus de temps pour produire l'^{233}U avant l'apparition des RSF, d'autre part le parc de EPR dans lequel on peut utiliser du combustible MOX ThPu est deux fois plus important que dans le scénario A, puisque les EPR doivent à eux seuls satisfaire, dès 2050, une puissance installée de 60GWe. On pourra donc utiliser du combustible MOX ThPu en moindre proportion dans les EPR, tout en validant un inventaire d'^{233}U par RSF plus important.

Nous avons, dans ce scénario, considéré des valeurs de F qui sont en moyenne plus faibles que dans le scénario A : on commence par utiliser le MOX ThPu à hauteur d'environ 25% (40%)

du cœur EPR pour finir la transition avec une valeur de F d'environ 12% (24%).

L'inventaire maximal en ^{233}U par RSF est de 2.8t (3.6t) dans le cas où l'on dispose d'un stock de Pu_{uox} et de Pu_{mox} qu'on utilise. Comme précédemment, nous retrouvons que l'utilisation du stock de Pu_{mox} ne fait pas gagner grand chose en terme de production d'^{233}U, puisque l'inventaire validé sans utiliser ce stock est de 2.75t (3.5t). Par ailleurs, partant d'un stock de 300t uniquement constitué de Pu_{mox}, l'inventaire d'^{233}U maximal par RSF tombe à 2.4 (3) tonnes.

Les tableaux 6.7 et 6.8 donnent les inventaires à la fin de la transition pour ce scénario. Soulignons que dans ce scénario on a commencé l'utilisation du MOX ThPu dès 2020, alors que les RSF n'entrent en scène qu'en 2080, soit 60 ans après. Cela donne beaucoup de marge sur la production d'^{233}U par rapport à la valeur minimale de 1 tonne par RSF. Cela peut paraître prématuré de commencer à préparer la production d'^{233}U avec une telle avance (60 ans). Ne perdons toutefois pas de vue que l'utilisation du combustible MOX ThPu permet non seulement de recycler le plutonium et de stabiliser l'inventaire à environ 680t (404t) en fin de transition, tout en le rendant moins intéressant, du point de vue neutronique, à une utilisation proliférante, mais également de faire moins de Pu_{uox} dans les EPR, dont la production par réacteur est proportionnelle à (1-F).

Utilisation d'un stock initial de :	Pu_{uox} (300t)	Pu_{uox} (300t) + Pu_{mox} (80t)	Pu_{mox} (300t)
Inventaire ^{233}U/ RSF	2.75t	2.80t	2.40t
Masse d'^{233}U (dans le cycle Th/^{233}U)	165t	168t	144t
Inventaire de Pu_{uox} (après passage en MOX ThPu)	680t	680t	530t
Inventaire de Pu_{mox} (après passage en MOX ThPu)	0t	60t	250t
Inventaire de Pu_{uox} disponible	25t	24t	20t
Inventaire de Pu_{mox} disponible	80t	0t	0t

TAB. 6.7 – *Scénario B : Inventaires de Pu et ^{233}U dans le cycle et hors cycle à la fin de la transition.*

Nous illustrons maintenant les contraintes qu'on peut attendre d'une augmentation de la puissance totale installé.

Utilisation d'un stock initial de :	Pu_{uox} (300t)	Pu_{uox} (300t) + Pu_{mox} (80t)	Pu_{mox} (300t)
Inventaire ^{233}U/RSF	3.5t	3.6t	3t
Inventaire ^{233}U (dans le cycle Th/^{233}U)	210t	216t	180t
Inventaire Pu_{uox} (après passage en MOX ThPu)	404t	401t	304t
Inventaire Pu_{mox} (après passage en MOX ThPu)	0t	52t	208t
Inventaire Pu_{uox} disponible	15t	20t	27t
Inventaire Pu_{mox} disponible	80t	0t	0t

TAB. 6.8 – *Scénario B* "optimiste" *: Inventaires de Pu et ^{233}U dans le cycle et hors cycle à la fin de la transition.*

6.6 Scénario C : Introduction des RSF en 2050 et doublement de puissance en 2100

Nous considérons maintenant un scénario de doublement de puissance avec comme objectif, d'atteindre ce doublement en 2100. Nous choisissons la date de 2050 comme date d'introduction des RSF, date à laquelle le parc actuel de réacteurs REP aura totalement disparu.

Les tableaux 6.9 et 6.10 donnent les bilans des matières disponibles et irradiés à la fin de la transition. Comme précédemment, les figures 6.11, 6.12 et 6.13 qui illustrent l'évolution de ces bilans peuvent être trouvées à la fin de ce chapitre. Les inventaires validés par le scénario C vont d'environ 1.5 t à 1.7 t (de 1.9 t à 2.2 t) selon les diverses hypothèses de stock initial de plutonium dont on dispose, et que nous avons déjà détaillées dans les deux scénarios précédents. Les valeurs de F d'utilisation de MOX $ThPu_{uox}$ en EPR dans ce scénario vont de 20% à 11% (de 33% a 14%) et on retrouve les mêmes conclusions quant au peu de pertinence qu'a, en terme de gain en inventaire d'^{233}U par RSF, l'utilisation du stock de Pu_{mox}.

6.7 Conclusion sur ces scénarios

Nous venons de considérer divers scénarios de transition du parc actuel français vers une filière Th/^{233}U isogénératrice de RSF. Ces scénarios illustrent la grande souplesse de déploiement qu'a la filière Th/^{233}U grâce au faible inventaire requis par les RSF en spectre de neutrons thermiques : ils sont en effet tous compatibles, et avec une marge confortable dans tous les cas, avec un inventaire d'une tonne d'^{233}U par réacteur isogénérateur. Cette souplesse est mise en évidence dans les situations suivantes :

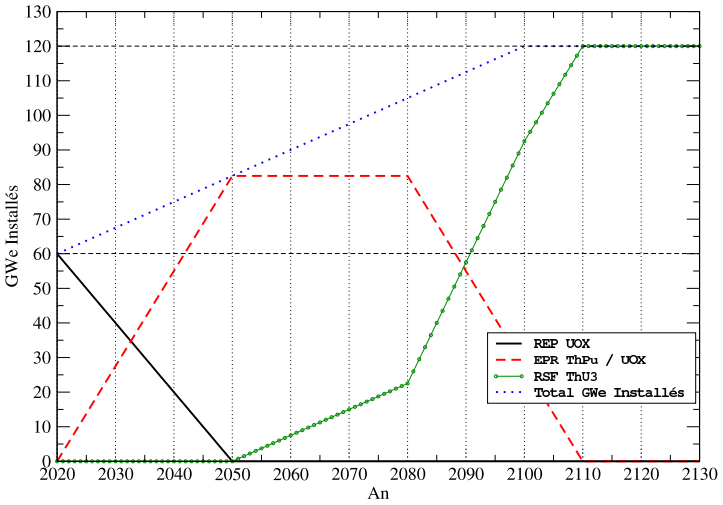


FIG. 6.7 – *Scénario C : Scénario de transition avec doublement de puissance en 2100 et introduction des RSF à la date de 2050. La transition s'achève en 2110, quand le parc est entièrement constitué de réacteurs isogénérateurs.*

Utilisation d'un stock initial de :	Pu_{uox} (300t)	Pu_{uox} (300t) + Pu_{mox} (80t)	Pu_{mox} (300t)
Inventaire ^{233}U/ RSF	1.65t	1.70t	1.50t
Masse d'^{233}U (dans le cycle Th/^{233}U)	198t	204t	180t
Inventaire de Pu_{uox} (après passage en MOX ThPu)	835t	840	690
Inventaire de Pu_{mox} (après passage en MOX ThPu)	0t	60t	250t
Inventaire de Pu_{uox} disponible	55t	30t	30t
Inventaire de Pu_{mox} disponible	80t	0t	0t

TAB. 6.9 – *Scénario C : Inventaires de Pu et ^{233}U dans le cycle et hors cycle à la fin de la transition.*

- **Par rapport à des conditions non optimales de départ en termes de stock de Pu :** nous avons vu que le cas le plus restrictif était celui où l'on ne disposait que d'un stock initial de plutonium de faible qualité (hypothèse de 300t de Pu_{mox} uniquement), et que même dans ce cas on pouvait trouver des configurations de F qui validaient les trois scénarios ici considérés.

Utilisation d'un stock initial de :	Pu_{uox} (300t)	Pu_{uox} (300t) + Pu_{mox} (80t)	Pu_{mox} (300t)
Inventaire ^{233}U/RSF	2.15t	2.2t	1.9t
Inventaire ^{233}U (dans le cycle Th/^{233}U)	258t	264t	228t
Inventaire Pu_{uox} disponible	56t	40t	61t
Inventaire Pu_{mox} disponible	80t	0t	0t
Inventaire Pu_{uox} (après passage en MOX ThPu)	487t	490t	389t
Inventaire Pu_{mox} (après passage en MOX ThPu)	0t	53t	208t

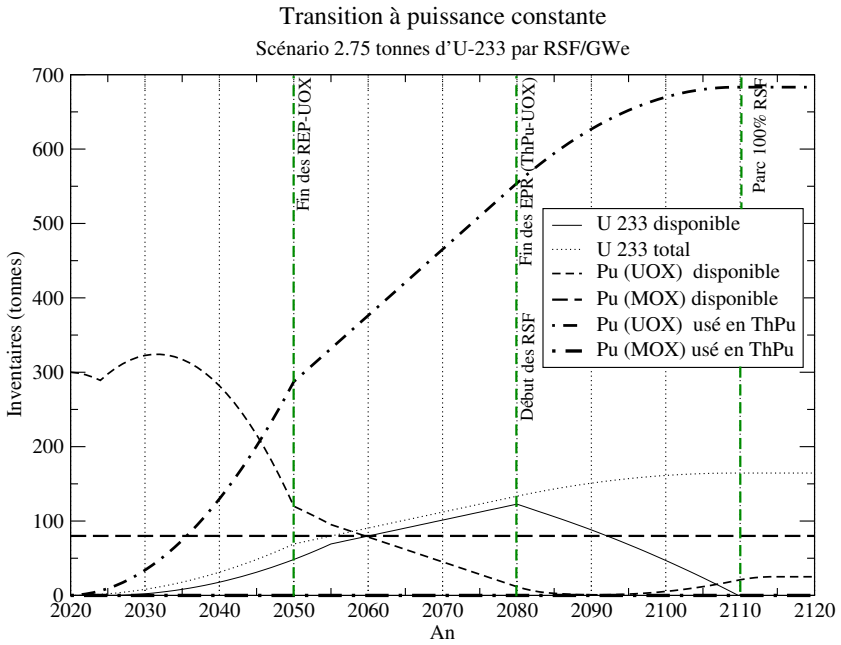
TAB. 6.10 – *Scénario C* "optimiste" *: Inventaires de Pu et ^{233}U dans le cycle et hors cycle à la fin de la transition.*

- **Par rapport à un début prompt des RSF :** nous avons illustré (exemple du scénario A) qu'une transition à puissance constante, même assez prompte (15 ans après le déclin du parc actuel, en 2035) était possible et satisfaisait le critère d'inventaire minimal d'^{233}U par RSF.
- **Par rapport à une augmentation de la puissance installée :** dans le cas d'une demande croissante en énergie d'origine nucléaire, la possibilité d'une transition vers des RSF avec doublement de puissance est également concevable (cas du scénario C) par rapport à l'inventaire d'^{233}U requis.
- **Par rapport à l'importance de l'inventaire en ^{233}U requis par RSF :** si l'inventaire minimal requis par RSF se trouvait être plus important, repousser la date de déploiement des RSF permet de satisfaire des critères plus restrictifs en inventaires d'^{233}U (dans le cas du scénario B, on gagne plus de 40% sur l'inventaire maximal d'^{233}U/RSF).

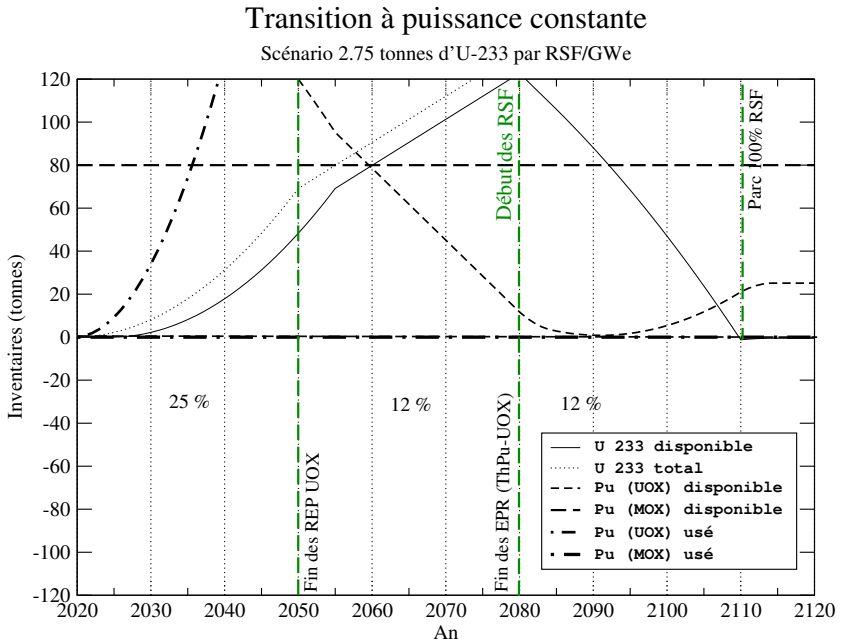
Nous avons verifié que la sensibilité de l'inventaire maximal d'^{233}U par RSF à nos données d'entrée (bilans matière effectués à deux taux de combustion différents systématiquement) reste acceptable ; elle est de 20% à 30% selon le scénario étudié.

Dans tous les cas considérés, nous avons supposé une utilisation d'un combustible MOX ThPu à des valeurs de F qui variaient entre 10% et 36% (entre 14% et 50%). Ces valeurs sont compatibles avec l'expérience aujourd'hui acquise dans l'utilisation des combustibles au plutonium en cœur REP et sont, en ce sens, réalistes. Elles nécessitent néanmoins des calculs cœur MOX ThPu - UOX complets afin d'être validées et optimisées. Par ailleurs nous avons mis en évidence le peu d'impact qu'a en termes de production d'^{233}U, l'utilisation du plutonium irradié en MOX U-Pu et qu'il est sans doute plus intéressant de laisser celui-ci dans les combustibles MOX U-Pu irradiés. Dans tous les cas l'inventaire validé d'^{233}U par RSF est supérieur à 1.5t. Ceci peut permettre de relâcher des contraintes sur le retraitement du combustible liquide envisagé

dans les RSF, ce qui faciliterait leur conception et donc leur déploiement.

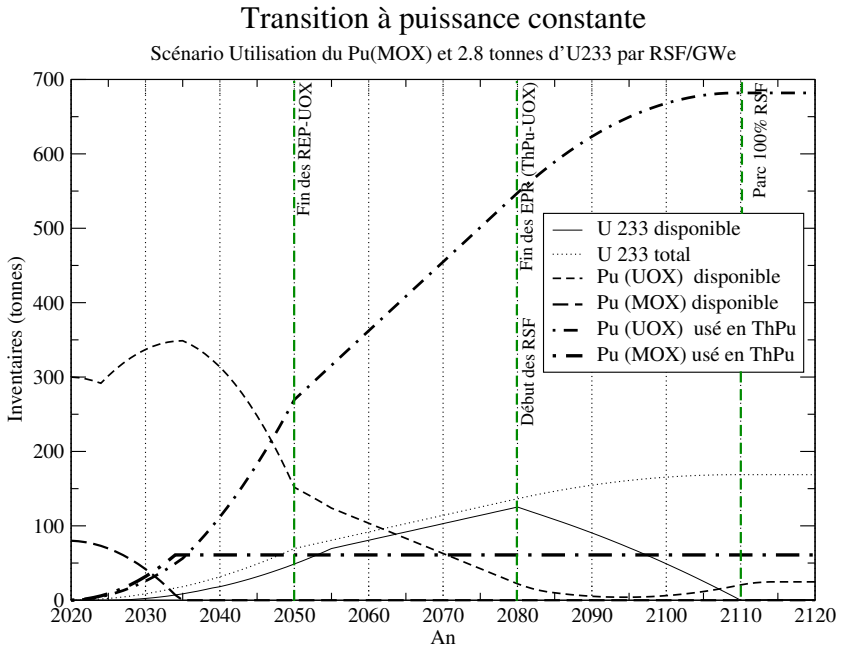


(a) Scénario B sans utilisation du stock de Pu_{mox}

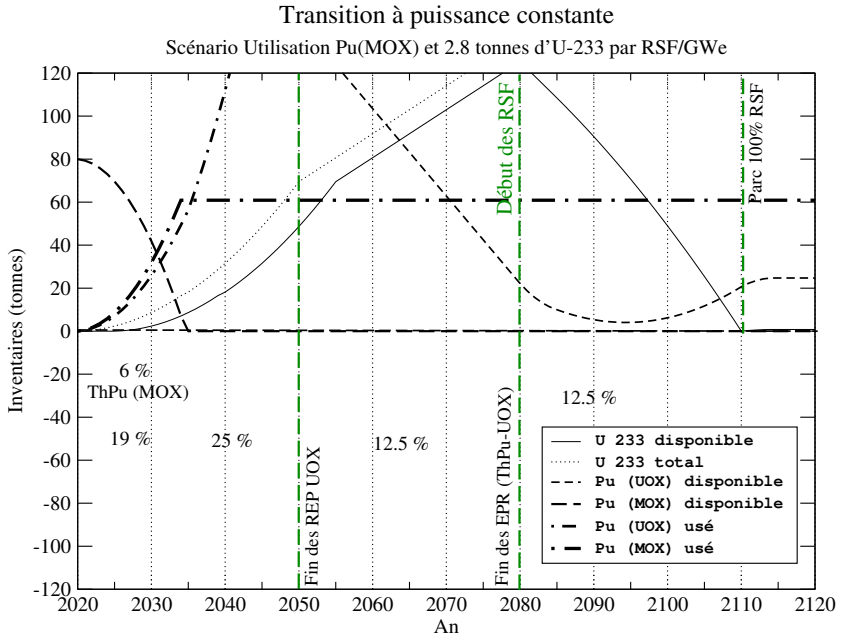


(b) Scénario B sans utilisation du stock de Pu_{mox}

FIG. 6.8 – *Scénario B : inventaires disponibles. Cas $ThPu_{uox}$ et Inventaire initial d'un RSF de 2.75 tonnes. Scénario de transition à puissance constante pour un parc de 60 GWe installés et introduction du concept RSF à la date de 2080.*

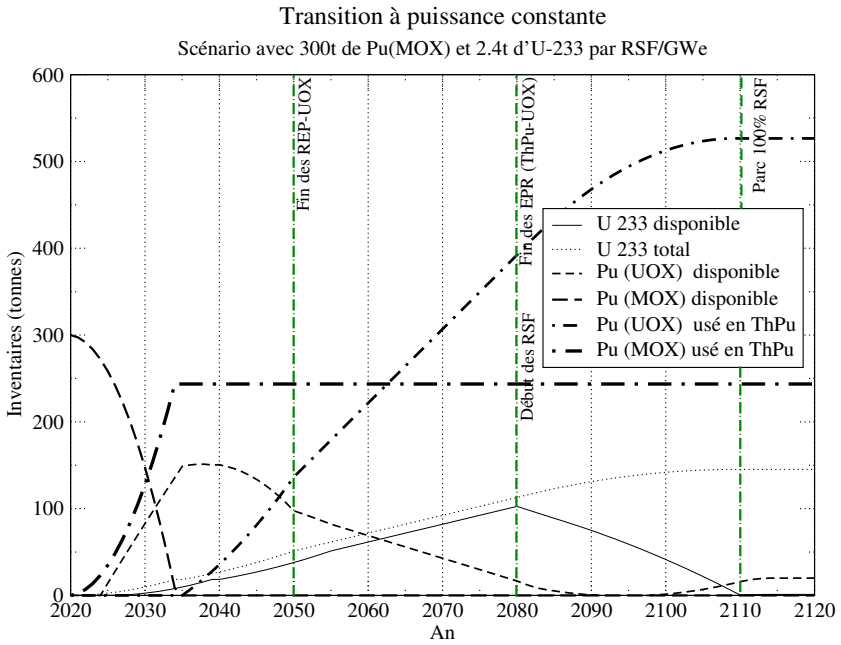


(a) Scénario B avec utilisation du stock de Pu_{mox}

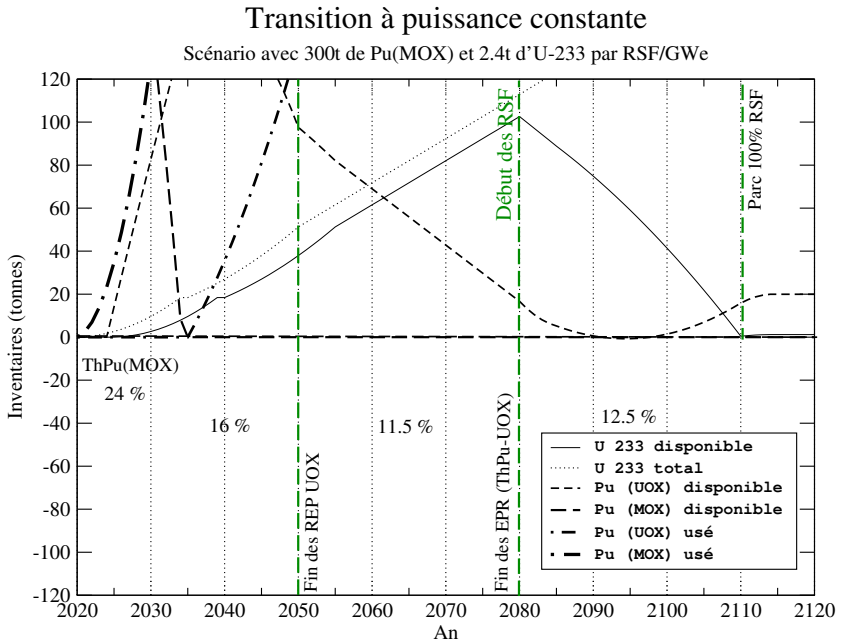


(b) Scénario B avec utilisation du stock de Pu_{mox}

FIG. 6.9 – *Scénario B : inventaires disponibles en utilisant le stock de pu mox. Inventaire initial d'un RSF de 2.8 tonnes. Scénario de transition à puissance constante pour un parc de 60 GWe installés et introduction du concept RSF à la date de 2080.*

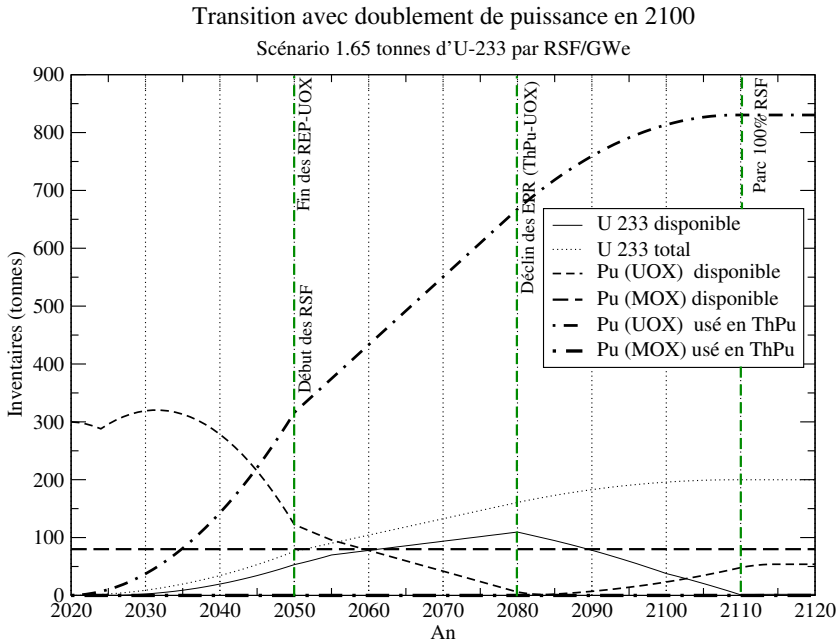


(a) Scénario B avec un stock initial de Pu_{mox} uniquement

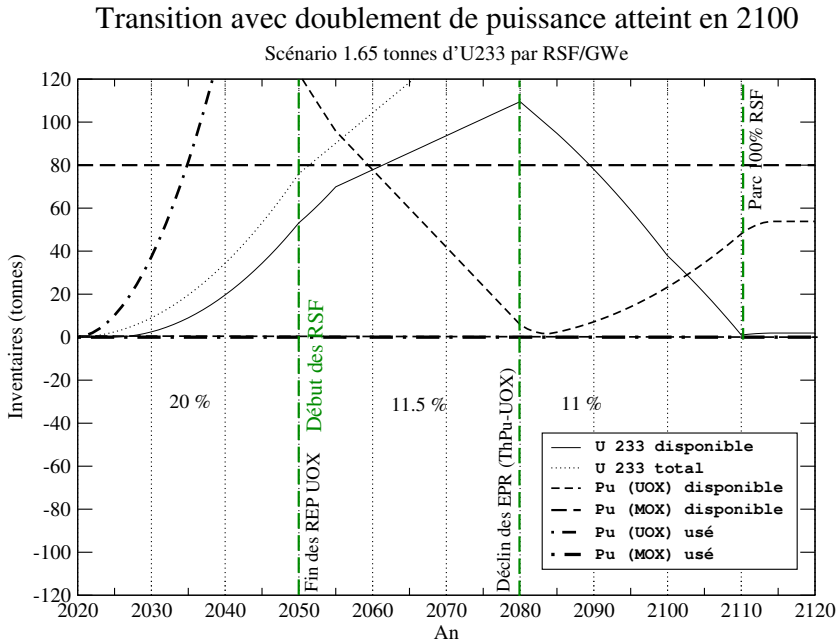


(b) Scénario B avec un stock initial de Pu_{mox} uniquement

FIG. 6.10 – *Scénario B : Cas où l'on ne dispose initialement que d'un inventaire de plutonium de qualité Pu_{mox} en 2020. Le scénario B peut être validé en considérant un inventaire par* RSF *de 2.4 tonnes d'^{233}U.*

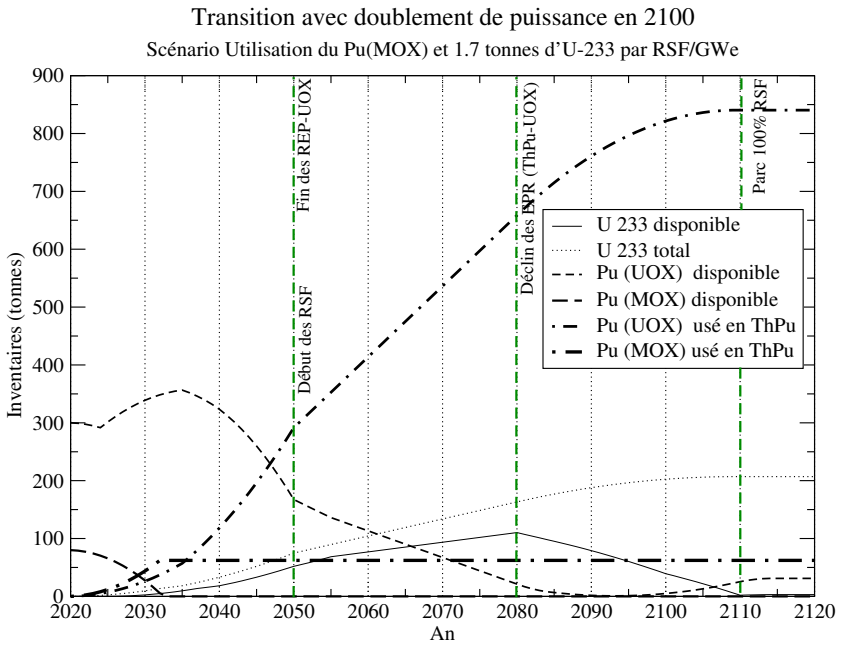


(a) Scénario C sans utilisation du stock de Pu_{mox}

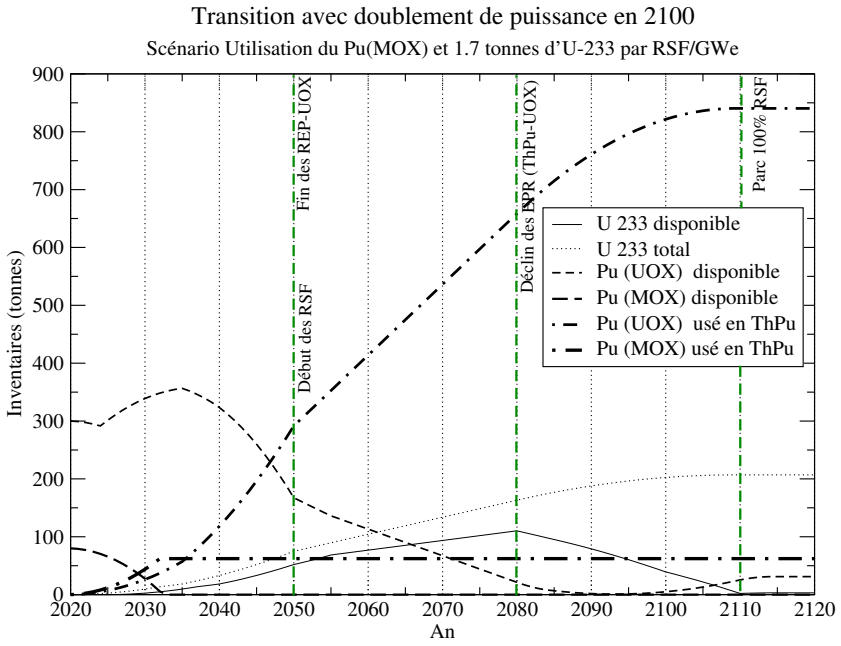


(b) Scénario C sans utilisation du stock de Pu_{mox}

FIG. 6.11 – *Scénario de transition avec doublement de puissance en 2100 et introduction des RSF à la date de 2050. Inventaires disponibles en utilisant uniquement le stock de Pu_{uox} initial et en considérant un inventaire par* RSF *de 1.65 tonnes d'^{233}U.*

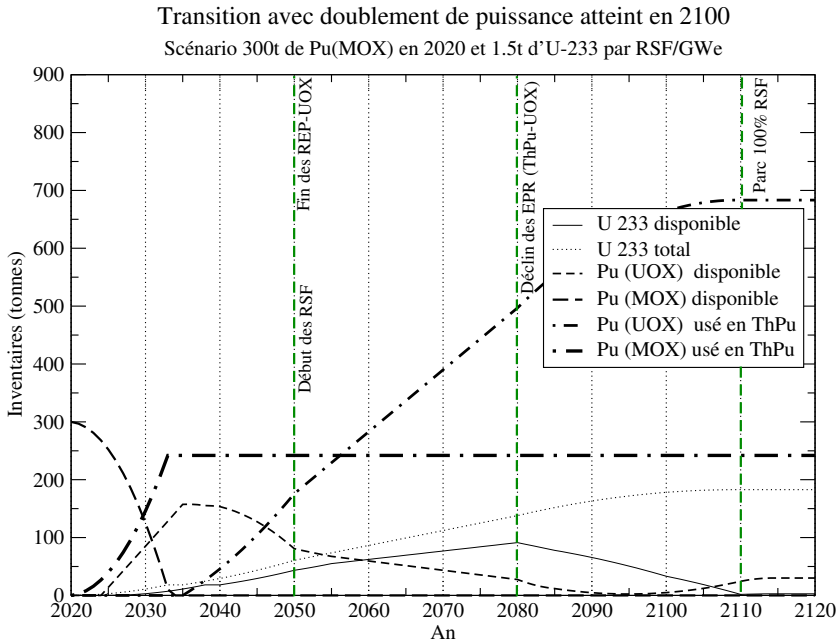


(a) Scénario C avec utilisation du stock de Pu_{mox}

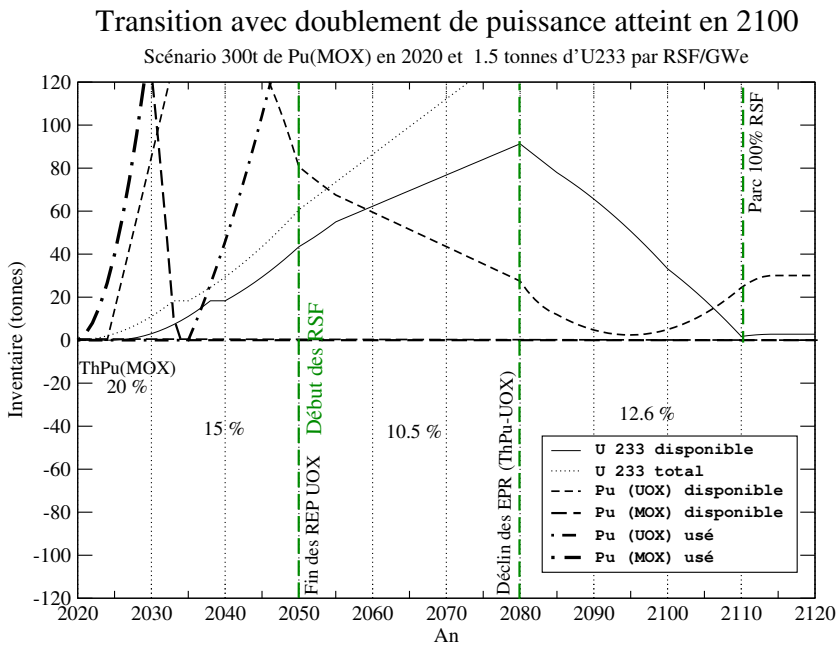


(b) Scénario C avec utilisation du stock de Pu_{mox}

FIG. 6.12 – *Scénario de transition avec doublement de puissance en 2100 et introduction des RSF à la date de 2050. Inventaires disponibles en utilisant le stock de Pu_{mox} initial et en considérant un inventaire par* RSF *de 1.7 tonnes d'^{233}U.*



(a) Scénario C avec un stock initial de Pu_{mox} uniquement



(b) Scénario C avec un stock initial de Pu_{mox} uniquement

FIG. 6.13 – *Scénario de transition avec doublement de puissance en 2100 et introduction des RSF à la date de 2050. Inventaires disponibles en utilisant le stock de Pu_{mox} initial et en considérant un inventaire par* RSF *de 1.5 tonnes d'^{233}U.*

Conclusion et perspectives

Ce travail présente une étude allant de la simulation neutronique d'un assemblage combustible jusqu'à l'application à un scénario de déploiement global. Il s'inscrit dans les études menées au CNRS sur le cycle du thorium en collaboration avec d'autres organismes français et notamment le département R&D d'EdF.

Nous avons spécifiquement développé le code MURE d'évolution Monte Carlo pour effectuer des calculs d'évolution du combustible. Ce code est aujourd'hui opérationnel. Durant ce travail de thèse nous avons pris en charge le module traitant l'évolution du combustible et du contrôle en ligne de la réactivité. Nous avons également effectué les premiers calculs d'évolution et avons défini les paramètres avec soin : les pas de temps entre chaque calcul Monte Carlo ainsi que la propagation des erreurs statistiques sur les inventaires ont notamment pu être quantifiées dans notre étude du combustible ThPu. Une première comparaison a été faite avec le code de transport déterministe Apollo sur un calcul cellule ; il a montré le bon accord entre méthodes déterministes et Monte Carlo pour la simulation du combustible ThPu. Compte tenu de la puissance de calcul dont on dispose aujourd'hui, cela confirme qu'il est pertinent de mener des études complètes de neutronique basées sur des simulations Monte Carlo évoluantes.

Nous avons développé des modèles Assemblage et Cœur de REP qui rendront la continuité de cette étude et l'étude d'optimisation de ces systèmes plus aisée. Cette voie est aujourd'hui engagée dans le groupe PACS de l'IPN d'Orsay qui étudie la possibilité de réduire le rapport de modération afin d'augmenter le taux de conversion du réacteur tout en gardant des paramètres de sûreté favorables. La modélisation du cœur a soulevé cependant des obstacles informatiques qui sont encore à résoudre. Parmi ceux-ci, la gestion de la migration des assemblages lors du rechargement est encore à optimiser pour rendre l'utilisation de notre modèle cœur possible dans les machines du centre de calcul parallèlisé de l'IN2P3, qui imposent des limites en temps de calcul et en mémoire qui sont franchies et nous obligent à fractionner le calcul d'évolution du cœur entier en plusieurs calculs.

Néanmoins, ce calcul cœur représentera une avancée importante et permettra d'utiliser tout le potentiel des méthodes de contrôle en ligne développées dans cette thèse. Le calcul cœur s'avère

tout à fait pertinent pour l'étude du combustible ThPu : il faudra par exemple définir, lors de notre étude de scénarios, s'il est préférable de charger une partie des réacteurs à 100% en ThPu ou de *"diluer"* ces assemblages dans la totalité des réacteurs, contenant alors des assemblages MOX ThPu et UOX. Ces deux stratégies ont un impact différent sur la neutronique que seul le calcul du cœur entier permet de déterminer avec précision. C'est à ce stade que toute la complémentarité des codes Monte Carlo et déterministes doit, à nos yeux, entrer en jeu : un plan de chargement réaliste et convaincant pour l'industriel ne peut aujourd'hui être optimisé par les calculs MC : cette optimisation passe en effet par une exploration exhaustive des millions de combinaisons possibles d'arrangements des assemblages en cœur qui est hors de portée des méthodes MC. Sachant que les effets d'interface entre différents assemblages ThPu ou UOX devront être pris en compte dans une étude fine, ceci soulève tout l'intérêt d'étudier, par des calculs Monte Carlo, un plan de chargement du cœur ThPu optimisé préalablement par des méthodes déterministes.

Nous avons utilisé les premiers résultats de MURE en calcul assemblage pour décrire divers scénarios de transition du parc français actuel vers un parc de RSF isogénérateurs Th/^{233}U, démarrés à l'aide de l'^{233}U produit en REP dans un combustible ThPu.

Les études de neutronique menées avec MURE ont permis de définir des configurations de combustible compatibles avec la sûreté (coefficients de vide et de température négatifs). Une fois ces combustibles définis et l'évolution d'un tel assemblage calculée avec MURE, les données ont été introduites dans un code de simulation de scénarios de transition que nous avons écrit. Nous avons montré que les stocks de plutonium (issu d'un combustible UOX ou d'un combustible MOX irradié) produit dans les réacteurs actuels étaient suffisants pour assurer une transition, à puissance constante ou avec un doublement de puissance installée, vers des RSF Th/^{233}U à spectre thermique. Ce résultat mérite certes d'être approfondi avec un code plus complet d'étude de scénarios, mais nous avons pris le soin d'encadrer les résultats sur la performance des REP à produire de l'^{233}U, ce qui confère à notre étude originale de scénarios un caractère tout à fait réaliste.

La poursuite de ce travail doit concerner la résolution des problèmes rencontrés lors de la mise en place du calcul cœur, ainsi que le couplage des résultats de l'évolution à un code de scénario complet tel que le code COSI, développé au CEA. Celui-ci permettra de mieux prendre en compte les differentes qualités de plutonium utilisées et de quantifier les masses et volumes de déchets ultimes produits, ainsi que de dimensionner les usines de retraitement associées.

Annexe A : Benchmark MURE - Apollo2

Calcul ThPu

Ecarts observées dans les inventaires des principaux actinides couronne par couronne du crayon combustible.

Pu 238

GWj/tMLI	Cell. 1	Cell. 2	Cell. 3	Cell. 4	Cell. 5	Cell. 6
0	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%
0.150	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%
0.500	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%
1	0.00%	-0.01%	-0.01%	-0.01%	-0.01%	-0.01%
2	-0.04%	-0.04%	-0.04%	-0.04%	-0.04%	-0.03%
4	-0.17%	-0.16%	-0.16%	-0.16%	-0.17%	-0.13%
6	-0.39%	-0.36%	-0.36%	-0.35%	-0.35%	-0.29%
10	-1.05%	-0.98%	-0.93%	-0.89%	-0.85%	-0.73%
15	-2.11%	-1.97%	-1.88%	-1.79%	-1.71%	-1.49%
20	-3.50%	-3.23%	-3.06%	-2.92%	-2.73%	-2.46%
25	-5.17%	-4.74%	-4.46%	-4.23%	-3.95%	-3.62%
30	-7.03%	-6.42%	-5.99%	-5.67%	-5.28%	-4.87%
33	-8.25%	-7.52%	-6.97%	-6.59%	-6.13%	-5.65%
40	-11.33%	-10.34%	-9.46%	-8.92%	-8.23%	-7.54%

TAB. 6.11 – ^{238}Pu – *Ecarts observés en inventaires, couronne par couronne. Comparaison calcul MURE/Apollo.*

Pu 239

GWj/tMLI	Cell. 1	Cell. 2	Cell. 3	Cell. 4	Cell. 5	Cell. 6
0	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%
0.150	0.01%	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%	0.01%
0.500	0.01%	0.01%	0.01%	0.02%	0.02%	0.02%
1	0.02%	0.02%	0.03%	0.04%	0.04%	0.03%
2	0.03%	0.04%	0.05%	0.07%	0.07%	0.08%
4	0.03%	0.04%	0.07%	0.10%	0.13%	0.15%
6	0.00%	0.00%	0.06%	0.14%	0.18%	0.24%
10	-0.04%	-0.10%	0.16%	0.24%	0.27%	0.44%
15	-0.08%	0.04%	0.26%	0.30%	0.30%	0.63%
20	-0.01%	0.20%	0.25%	0.25%	0.40%	0.85%
25	0.02%	0.31%	0.26%	0.23%	0.51%	1.00%
30	0.03%	0.26%	0.20%	0.24%	0.59%	1.17%
33	0.02%	0.19%	0.18%	0.29%	0.60%	1.29%
40	-0.06%	-0.07%	0.17%	0.35%	0.61%	1.58%

TAB. 6.12 – ^{239}Pu – *Ecarts observés en inventaires, couronne par couronne. Comparaison calcul MURE/Apollo.*

Pu 240

GWj/tMLI	Cell. 1	Cell. 2	Cell. 3	Cell. 4	Cell. 5	Cell. 6
0	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%
0.150	0.01%	0.00%	0.01%	0.01%	0.00%	0.00%
0.500	0.00%	0.04%	0.02%	0.01%	0.01%	0.01%
1	-0.06%	0.04%	0.01%	-0.01%	0.01%	0.01%
2	0.03%	0.08%	0.05%	0.01%	0.03%	0.02%
4	0.38%	0.13%	0.06%	0.05%	0.05%	0.05%
6	0.57%	0.26%	0.16%	0.08%	0.08%	0.09%
10	1.13%	0.71%	0.32%	0.16%	0.12%	0.05%
15	1.30%	0.92%	0.46%	0.39%	0.32%	0.12%
20	1.05%	1.06%	0.62%	0.61%	0.59%	0.21%
25	1.18%	1.28%	0.93%	0.99%	0.90%	0.54%
30	1.71%	1.79%	1.27%	1.25%	1.15%	0.76%
33	1.99%	2.09%	1.40%	1.28%	1.17%	0.81%
40	2.16%	2.86%	1.80%	1.49%	1.24%	0.91%

TAB. 6.13 – ^{240}Pu – *Ecarts observés en inventaires, couronne par couronne. Comparaison calcul MURE/Apollo.*

Pu 241

GWj/tMLI	Cell. 1	Cell. 2	Cell. 3	Cell. 4	Cell. 5	Cell. 6
0	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%
0.150	-0.04%	-0.04%	-0.03%	-0.02%	-0.02%	0.00%
0.500	0.00%	-0.17%	-0.09%	-0.05%	-0.07%	-0.05%
1	0.18%	-0.15%	-0.07%	-0.03%	-0.11%	-0.11%
2	-0.07%	-0.29%	-0.22%	-0.13%	-0.22%	-0.18%
4	-0.76%	-0.33%	-0.18%	-0.17%	-0.28%	-0.40%
6	-0.83%	-0.42%	-0.24%	-0.19%	-0.36%	-0.57%
10	-1.23%	-0.99%	-0.53%	-0.35%	-0.44%	-0.49%
15	-0.76%	-0.89%	-0.57%	-0.67%	-0.75%	-0.61%
20	-0.12%	-0.80%	-0.68%	-0.96%	-1.24%	-0.85%
25	-0.05%	-0.76%	-1.00%	-1.48%	-1.69%	-1.55%
30	-0.25%	-0.95%	-1.11%	-1.56%	-1.87%	-1.83%
33	-0.28%	-1.04%	-1.06%	-1.34%	-1.65%	-1.76%
40	0.00%	-1.18%	-1.00%	-1.15%	-1.21%	-1.43%

TAB. 6.14 – ^{241}Pu – *Ecarts observés en inventaires, couronne par couronne. Comparaison calcul MURE/Apollo.*

Pu 242

GWj/tMLI	Cell. 1	Cell. 2	Cell. 3	Cell. 4	Cell. 5	Cell. 6
0	0.98%	0.97%	0.98%	0.98%	0.98%	0.98%
0.150	0.98%	0.97%	0.98%	0.98%	0.98%	0.98%
0.500	0.95%	0.96%	0.97%	0.97%	0.98%	0.98%
1	0.95%	0.96%	0.99%	0.99%	1.01%	1.00%
2	0.92%	0.94%	0.94%	0.94%	1.00%	0.98%
4	0.75%	0.78%	0.79%	0.86%	0.89%	0.91%
6	0.61%	0.67%	0.72%	0.82%	0.85%	0.89%
10	0.45%	0.43%	0.53%	0.63%	0.85%	0.99%
15	0.22%	0.07%	0.36%	0.49%	0.72%	0.90%
20	-0.26%	-0.33%	0.18%	0.35%	0.50%	0.67%
25	-0.18%	-0.33%	0.23%	0.33%	0.41%	0.59%
30	-0.22%	-0.46%	0.03%	0.03%	0.30%	0.47%
33	-0.34%	-0.70%	-0.18%	-0.23%	0.20%	0.36%
40	-0.44%	-1.01%	-0.51%	-0.59%	0.03%	0.08%

TAB. 6.15 – ^{242}Pu – *Ecarts observés en inventaires, couronne par couronne. Comparaison calcul MURE/Apollo.*

Am 241

GWj/tMLI	Cell. 1	Cell. 2	Cell. 3	Cell. 4	Cell. 5	Cell. 6
0	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%
0.150	-0.03%	-0.04%	-0.03%	-0.02%	-0.02%	-0.01%
0.500	-0.12%	-0.11%	-0.09%	-0.08%	-0.06%	-0.04%
1	-0.26%	-0.23%	-0.19%	-0.17%	-0.14%	-0.10%
2	-0.53%	-0.49%	-0.43%	-0.35%	-0.26%	-0.19%
4	-1.07%	-0.99%	-0.92%	-0.64%	-0.51%	-0.47%
6	-1.60%	-1.44%	-1.26%	-0.90%	-0.77%	-0.69%
10	-2.36%	-2.22%	-1.63%	-1.41%	-1.09%	-0.81%
15	-3.25%	-2.96%	-2.33%	-2.19%	-1.68%	-1.28%
20	-3.78%	-3.55%	-3.12%	-3.05%	-2.33%	-1.71%
25	-4.14%	-4.01%	-3.72%	-3.65%	-2.89%	-2.12%
30	-4.56%	-4.63%	-4.43%	-4.20%	-3.47%	-2.54%
33	-4.93%	-5.04%	-4.80%	-4.54%	-3.90%	-2.90%
40	-5.71%	-6.04%	-5.64%	-5.32%	-4.69%	-3.47%

TAB. 6.16 – ^{241}Am – *Ecarts observés en inventaires, couronne par couronne. Comparaison calcul MURE/Apollo.*

Am 242 ^{m}

GWj/tMLI	Cell. 1	Cell. 2	Cell. 3	Cell. 4	Cell. 5	Cell. 6
0	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%
0.15	-7.46%	-7.70%	-8.70%	-9.34%	-10.81%	-11.49%
0.5	-5.36%	-6.21%	-7.03%	-7.72%	-9.01%	-10.26%
1	-2.73%	-4.01%	-4.78%	-5.49%	-6.70%	-8.20%
2	1.23%	0.24%	-0.57%	-2.02%	-3.95%	-5.84%
4	8.25%	7.21%	6.33%	3.77%	1.61%	-0.21%
6	14.19%	12.99%	11.55%	9.04%	6.70%	4.11%
10	23.03%	22.19%	19.89%	18.23%	14.88%	10.76%
15	31.52%	30.64%	28.98%	27.48%	23.91%	19.46%
20	37.45%	36.80%	35.77%	34.41%	31.00%	26.38%
25	41.83%	41.33%	40.61%	39.39%	36.42%	31.98%
30	45.26%	44.91%	44.44%	43.21%	40.73%	36.64%
33	47.12%	46.69%	46.30%	45.20%	43.01%	39.20%
40	50.82%	50.17%	49.91%	49.06%	47.38%	44.13%

TAB. 6.17 – ^{242}Am^{m} – *Ecarts observés en inventaires, couronne par couronne. Comparaison calcul MURE/Apollo.*

Am 243

GWj/tMLI	Cell. 1	Cell. 2	Cell. 3	Cell. 4	Cell. 5	Cell. 6
0	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%
0.150	-7.63%	-6.11%	-8.51%	-8.15%	-9.53%	-12.81%
0.500	1.93%	-0.01%	-1.51%	-1.91%	-5.42%	-5.33%
1	0.58%	-1.21%	-2.81%	-3.10%	-6.05%	-6.19%
2	1.57%	0.13%	0.53%	0.15%	-3.52%	-2.89%
4	4.01%	3.22%	2.79%	1.12%	0.12%	-0.61%
6	4.27%	3.49%	2.22%	0.71%	0.02%	-1.18%
10	3.72%	3.88%	2.44%	1.72%	-0.80%	-3.89%
15	3.89%	4.05%	2.18%	1.47%	-0.35%	-2.85%
20	5.52%	5.04%	2.71%	2.01%	1.10%	-0.62%
25	4.15%	4.04%	1.82%	1.49%	0.99%	-0.25%
30	3.45%	3.40%	1.70%	1.78%	0.43%	-0.61%
33	3.38%	3.79%	2.05%	2.22%	0.37%	-0.46%
40	2.88%	3.78%	2.17%	2.37%	0.40%	-0.12%

TAB. 6.18 – ^{243}Am – *Ecarts observés en inventaires, couronne par couronne. Comparaison calcul MURE/Apollo.*

Cm 242

GWj/tMLI	Cell. 1	Cell. 2	Cell. 3	Cell. 4	Cell. 5	Cell. 6
0	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%
0.150	22.34%	22.19%	21.50%	21.06%	20.05%	19.62%
0.500	22.76%	22.22%	21.72%	21.31%	20.52%	19.81%
1	23.15%	22.37%	21.98%	21.65%	21.07%	20.35%
2	23.14%	22.72%	22.45%	21.72%	20.82%	20.15%
4	23.05%	22.81%	22.76%	21.31%	20.69%	20.73%
6	22.86%	22.59%	22.21%	21.00%	20.66%	20.56%
10	21.81%	21.99%	20.70%	20.74%	19.92%	19.05%
15	21.44%	21.11%	20.63%	20.95%	20.11%	19.51%
20	20.98%	20.60%	20.87%	21.12%	20.16%	19.50%
25	20.60%	20.16%	20.46%	20.41%	19.72%	19.21%
30	20.34%	20.17%	20.38%	19.79%	19.40%	18.85%
33	20.36%	20.18%	20.18%	19.59%	19.51%	18.99%
40	20.08%	20.01%	19.84%	19.38%	19.30%	18.62%

TAB. 6.19 – ^{242}Cm – *Ecarts observés en inventaires, couronne par couronne. Comparaison calcul MURE/Apollo.*

Cm 243

GWj/tMLI	Cell. 1	Cell. 2	Cell. 3	Cell. 4	Cell. 5	Cell. 6
0	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%
0.15	17.52%	17.07%	17.32%	18.04%	17.03%	16.46%
0.5	17.26%	17.20%	16.83%	16.36%	16.28%	14.05%
1	19.15%	18.29%	16.97%	16.55%	17.21%	14.76%
2	19.02%	17.03%	16.36%	15.60%	15.30%	15.04%
4	20.65%	20.16%	18.79%	17.55%	17.04%	17.39%
6	19.06%	19.73%	19.17%	18.35%	17.22%	18.39%
10	18.73%	19.57%	19.66%	18.34%	17.17%	17.23%
15	21.21%	21.20%	21.16%	19.59%	18.66%	17.82%
20	20.64%	20.81%	20.79%	20.37%	19.38%	17.99%
25	19.61%	20.32%	20.71%	21.13%	19.94%	19.11%
30	19.24%	19.80%	20.20%	20.64%	19.85%	19.12%
33	19.42%	19.60%	20.00%	20.34%	19.80%	19.02%
40	19.01%	18.83%	19.09%	19.15%	18.72%	18.63%

TAB. 6.20 – ^{243}Cm – *Ecarts observés en inventaires, couronne par couronne. Comparaison calcul MURE/Apollo.*

Cm 244

GWj/t	Cell 2	Cell 3	Cell 4	Cell 5	Cell 6	Cell 7
0	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%
0.150	-62.95%	-60.14%	-64.56%	-65.22%	-66.94%	-75.07%
0.500	-14.64%	-16.96%	-19.45%	-18.38%	-20.98%	-22.03%
1	-4.38%	-6.03%	-8.41%	-8.28%	-11.53%	-12.78%
2	-1.30%	-3.90%	-5.08%	-5.30%	-9.37%	-8.79%
4	0.47%	-0.88%	-0.54%	-2.08%	-5.34%	-4.20%
6	2.09%	0.66%	0.06%	-1.07%	-3.11%	-4.08%
10	1.95%	2.19%	0.03%	-0.02%	-3.07%	-6.00%
15	1.06%	2.01%	1.20%	0.32%	-2.26%	-5.29%
20	1.12%	1.70%	0.89%	0.23%	-2.82%	-5.22%
25	2.59%	1.97%	0.77%	0.19%	-2.30%	-5.01%
30	3.54%	3.34%	1.87%	1.21%	-0.67%	-3.22%
33	3.55%	3.58%	2.04%	1.53%	-0.30%	-2.65%
40	2.89%	3.41%	2.06%	1.74%	-0.51%	-2.36%

TAB. 6.21 – ^{244}Cm – *Ecarts observés en inventaires, couronne par couronne. Comparaison calcul MURE/Apollo.*

Les figures 6.14 et 6.15 illustrent ces écarts pour les couronnes intérieures et extérieures sur quelques exemples d'actinides à vie longue.

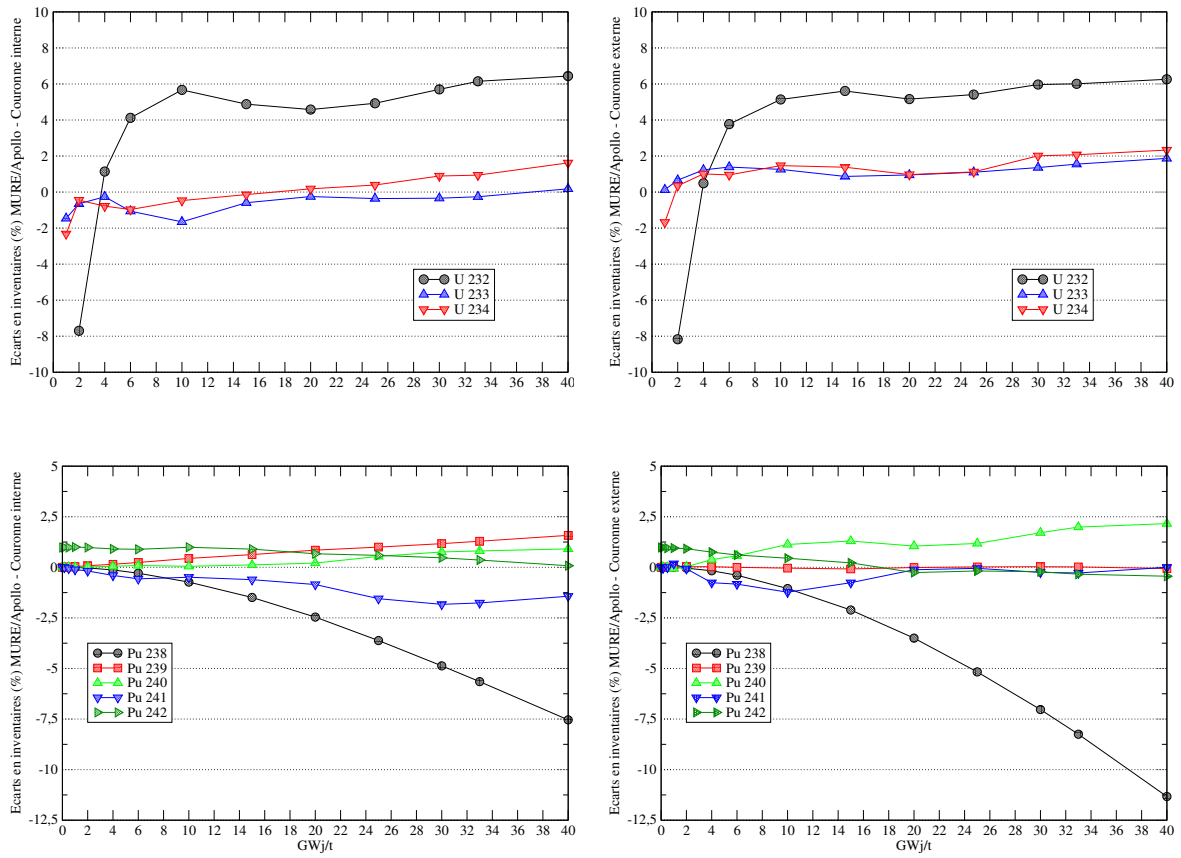


FIG. 6.14 – *Calcul ThPu – Comparaison des calculs* MURE *(JEFF 3.1) et Apollo : Evolution des écarts observés sur l'estimation des inventaires de U et Pu pour les couronnes internes et externes du crayon. JEFF 3.1*

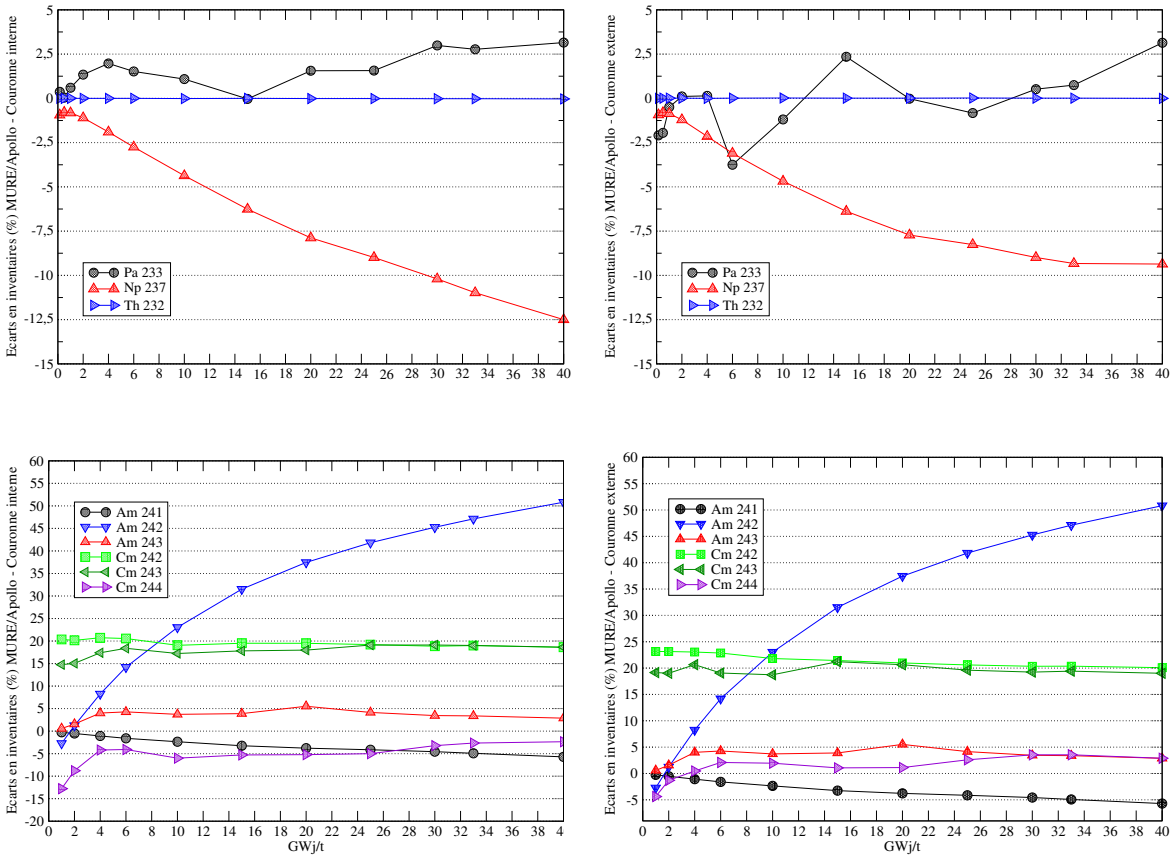


FIG. 6.15 – *Calcul ThPu – Comparaison des calculs* MURE *(JEFF 3.1) et Apollo : Evolution des écarts observés sur l'estimation des inventaires de quelques actinides pour les couronnes internes et externes du crayon.*

Annexe B : Différentes Bases.

Calcul ThPu

Ecarts observées sur les inventaires des principaux actinides en mode assemblage. Influence des bases des données.

MWJ/T	2200	11200	22300	33500	45000
^{245}Cm	3.4%	-2.1%	-7.4%	-11.6%	-18.7%
^{244}Cm	-9.2%	-5.5%	-5.9%	-5.2%	-4.5%
^{243}Cm	-3.7%	-8.8%	-18.8%	-26.5%	-34.4%
^{242}Cm	5.9%	4.2%	3.3%	3.0%	2.1%
^{245}Am	-13.5%	-11.2%	-12.3%	-9.0%	-5.1%
^{244}Am	-9.0%	-6.7%	-7.0%	-4.4%	-0.1%
^{243}Am	-6.5%	-4.7%	-3.7%	-1.8%	-1.2%
^{242}Am^{m}	7.1%	9.5%	12.2%	13.2%	12.3%
^{242}Am	6.9%	10.0%	13.1%	13.4%	12.3%
^{241}Am	-0.3%	-1.3%	-2.4%	-3.5%	-4.6%
^{234}U	-3.8%	-2.1%	-1.8%	-1.6%	-1.3%
^{233}U	-5.8%	-4.4%	-4.2%	-4.3%	-4.3%
^{232}U	-13.5%	-11.3%	-7.4%	-5.7%	-5.7%
^{234}Pa	-4.5%	-2.9%	-0.1%	-0.6%	0.2%
^{233}Pa	-5.8%	-4.4%	-4.4%	-3.5%	-3.2%

TAB. 6.22 – *Ecarts sur l'inventaire total constatés entre différentes bases de données (JENDL/ENDF) pour quelques actinides.*

MWJ/T	2200	11200	22300	33500	45000
^{245}Cm	-5.6%	-13.1%	-17.2%	-21.2%	-27.3%
^{244}Cm	-6.9%	-4.4%	-4.3%	-3.9%	-3.0%
^{243}Cm	2.6%	-3.9%	-15.3%	-24.4%	-32.2%
^{242}Cm	11.4%	9.5%	7.3%	5.5%	4.3%
^{244}Am	-6.9%	-5.0%	-4.6%	-4.2%	-3.3%
^{243}Am	-3.9%	-3.5%	-2.2%	-1.1%	-1.8%
^{242}Am^{m}	18.5%	44.8%	77.7%	108.3%	135.1%
^{242}Am	18.2%	42.7%	72.0%	98.0%	120.3%
^{241}Am	-0.6%	-2.6%	-4.6%	-6.3%	-7.9%
^{242}Pu	0.1%	0.7%	1.2%	1.5%	2.1%
^{241}Pu	-0.2%	-0.9%	-1.1%	-1.4%	-1.4%
^{240}Pu	0.1%	0.4%	0.7%	0.9%	1.1%
^{239}Pu	0.0%	0.0%	-0.1%	-0.1%	0.0%
^{238}Pu	0.0%	0.4%	1.0%	1.6%	2.0%
^{238}Np	-0.6%	-1.1%	-4.2%	-4.2%	-4.4%
^{237}Np	-0.3%	-1.5%	-2.5%	-3.3%	-3.9%
^{236}Np	-5.9%	-3.6%	0.8%	0.0%	0.6%
^{237}U	0.1%	-5.5%	-2.2%	3.7%	3.6%
^{236}U	0.0%	0.2%	-0.4%	-1.1%	-1.7%
^{235}U	-1.5%	-1.3%	-1.6%	-1.4%	-2.2%
^{234}U	-0.3%	1.1%	1.6%	1.7%	2.0%
^{233}U	-0.8%	0.1%	0.3%	0.3%	0.2%
^{232}U	5.4%	3.6%	6.1%	6.0%	4.9%
234Pa	-0.3%	2.7%	1.8%	1.5%	-1.9%
233Pa	-0.7%	1.1%	-0.2%	1.4%	0.1%
232Th	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%

TAB. 6.23 – *Ecarts sur l'inventaire total constatés entre différentes bases de données (JEFF/ENDF).*

Bibliographie

[1] J.F. Briesmeister. *MCNP - A General Monte Carlo N Particle Transport Code*, 1997. LANL, report 12625-M .

[2] Ministère de l'Economie des Finances et de l'Industrie. *Les chiffres clés. L'énergie.* Direction générale de l'Energie et des Matières premières. Observatoire de l'énergie., 2004.

[3] J.M. Jancovici. *L'avenir Climatique, Quel temps ferons-nous ?* Seuil, 2002.

[4] Etheridge et al. Natural and anthropogenic changes in atmospheric CO_2 over the last 1000 years from air in Antartic ice and firn. *Journal of Geophysical Research.*, 1996. 101 :4115-4128.

[5] Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat (GIEC). *Bilan 2001 des changements climatiques : Les éléments scientifiques*, 2001. http ://ipcc.ch.

[6] J. Jouzel. Evolution du Climat : du passé vers le futur. *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences.*, 1999.

[7] World Energy Council. www.worldenergy.org.

[8] Bonche, P. *Le nucléaire expliqué par des physiciens.* EDP Sciences., 2003.

[9] OCDE, AIEA. *Uranium : Ressources, Production et Demande.* Editions OCDE, 2005.

[10] B. Barré, G. Capus. L'uranium de l'eau de mer : véritable ressource énergétique ou mythe ?, 2003. http ://www.mines-energie.org/Dossiers/Nucl200316.pdf.

[11] J. Baumier. *Géopolitique et économie du combustible nucléaire.* Institut National des Sciences et Techniques Nucléaires., 1989.

[12] EDF. Note technique sur les centrales nucleaire PWR. Presentation generale des centrales PWR du palier 900 MWe, 1977.

[13] J. Bussac, P. Reuss. *Traité de neutronique. Physique et calcul des réacteurs nucléaires.* Hermann, 1978.

[14] E.Segrè. *Nuclei and particles.* Benjamin, (1965).

[15] H.Tellier. *Réactions nucléaires induites par les neutrons.* INSTN , (1989).

[16] R. Barjon. *Physique des réacteurs nucléaires.* , 1993.

[17] M. Soutif. *Physique Neutronique.* PUF, 1962.

[18] J.C. Clayton. The Shippingport Pressurised Water Reactor and Light Water Breeder Reactor. *Westinghouse Electric Corporation*, 1993.

[19] L.L. Taylor. Shippingport LWBR (Th/U Oxide) Fuel. Characteristics for disposal criticality analysis. *INEEL / Lockheed Martin Idaho Technologies Company / US.DOE.*, 1999.

[20] P.N. Haubenreich, J.R. Engel. Experience with the Molten Salt Reactor Experiment. *Nuclear Applications and Technology*, 8 :118–136 , 1970.

[21] *Conceptual Design Study of a Single Fluid Molten Salt Breeder Reactor*, juin 1971.

[22] A. Nuttin. *Potentialité du concept de réacteurs à sel fondus pour une production durable d'énergie nucléaire basée sur le cycle Thorium en spectre épithermique.* PhD thesis, Université Joseph Fourier, Grenoble, 2002.

[23] A. Nuttin et al. Potential of Thorium Molten Salt Reactors Detailed Calculations and Concept Evolution with a view to Large Scale Energy Production. *Prog. In Nuc. Ener*, 46(1) :77–99, 2005.

[24] L. Mathieu. *Cycle Thorium et Réacteurs à Sel Fondu. Exploration du champ des Paramètres et des contraintes définissant le "Thorium Molten Salt Reactor".* PhD thesis, Institut National Polytechnique de Grenoble, Septembre 2005.

[25] IAEA. Thorium based fuel options for the generation of electricity : Developments in the 1990s, 2000.

[26] B. Mac Farlane et al. *NJOY 97.0, Code System for Producing Pointwise and Multigroup Neutron and Photon Cross Sections from ENDF/B-VI Data*, 1998. RSICC CODE PACKAGE PSR-368.

[27] Perrot L. *ENDF2ACE User's Guide.* Notes de Postdoctorat à l'IPN.

[28] R.B. Firestone, V.S. Shirley. *Table of Isotopes, 8th edition.* John Wiley & Sons, 1996.

[29] William H. Press et al. *Numerical Recipes in C++ : the art of scientific computing.* Cambridge University Press, 2002.

[30] W.H. Walerk. *Mass balance estimate of energy per fission in reactors.* AECL-3109, 1968.

[31] J. Blachot. Delayed neutron yield for 39 fissile systems., 1991.

[32] S. Salas. *Réduction de la radiotoxicité des déchets nucléaires à vie longue : études théoriques et stratégiques de la transmutation des actinides mineurs et des produits de fission dans les réacteurs électronucléaires.* PhD thesis, Université de Provence Aix-Marseille I, 1995.

[33] H. Schaeffer. *Etude du cycle thorium dans les réacteurs à eau préssurisée.* PhD thesis, Université de Paris-Sud Orsay, 1981.

[34] A. Aktogu. *Contribution à l'étude de l'utilisation du cycle thorium dans un réacteur PWR.* PhD thesis, Université de Paris-Sud Orsay, 1981.

[35] H. Gruppelaar. Thorium cycle as a waste management option. Second Progress Report. 1997.

[36] T.H. Pigford. Thorium Fuel Cycles compared to uranium fuel cycles. *Journal de Physique IV*, pages 73–89, 1999.

[37] G. Gambier, H. Schaeffer. Thorium Cycles compared to uranium fuel cycles.

[38] http ://www.cea.fr/fr/Publications/Clefs46/clefs46fr.html.

[39] H. Golfier et al. Plutonium and Minor Actinides Recycling in PWRs with new APA concepts. *Proceedings of Global 2001, Paris, France.*, 2001.

[40] OECD. Very High Burn-ups in Light Water Reactors, 2006.

[41] Westinghouse. Program for disposition of weapons grade plutonium in a plutonium-thorium cycle. An assessment of the program., 2005.

[42] I. Neuhaus, P.-W. Phlippen. *Comparison of Uranium- and Thorium- based Plutonium Recycling in a pressurized water reactor.* Forschungszentrum Jülich, 1999.

[43] A. Puill. Thorium Utilization in PWRs. Neutronic Studies. *Advisory Group Meeting on Thorium Fuel Cycle Perspectives. Vienna.*, 1997.

[44] T. K. Kim, T. J. Downar. Thorium Fuel Performance in a Tight Pitch LWR Lattice. *School of Nuclear Engineering*, ?

[45] M.S Kazimi et al. *On the use of Thorium in light water reactors.* Massachussetts Institute of Technology. MIT-NFC-TR-016, 1999.

[46] J.P. Schapira. *Le rôle potentiel du cycle du combustible à base de thorium.* . R. Turlay, 1997.

[47] A. Galperin, A.Radkowsky. A Competitive Thorium Fuel Cycle for Pressurized Water Reactors of Current Technology. *Advisory Group Meeting on Thorium Fuel Cycle Perspectives. Vienna.*, 1997.

[48] M. Lung. *A present review of the thorium nuclear fuel cycles.* European Comission, 1997.

[49] O. Méplan et al. MURE : MCNP Utility for Reactor Evolution. http ://lpsc.in2p3.fr/gpr/MURE/html/UserGuide/UserGuide.html.

[50] B. Davidson. *Neutron Transport Theory.* Oxford University Press, 1957.

[51] ANDRA. *Inventaire national des déchets radioactifs et des matières valorisables.* ANDRA, 2004.

[52] P. Reuss. *La Neutronique*, volume 3307. Presses Universitaires de France, 1998. Collection Que-sais-je ?

[53] A. M Weinberg, E.P. Wigner. *The Physical Theory of Neutron Chain Reactors.* Chicago University Press, 1958.

[54] Cross Section Evaluation Working Group. *ENDF-102 Data Formats and Procedures for the Evaluated Nuclear Data File ENDF-6*, Août 1990. BNL-NCS-44945-01/04-Rev.

[55] R. E. Mac Farlane. *New Thermal Neutron Scattering Files for ENDF-BIV Release 2*, Août 1994.

[56] Forum Generation IV. *A Technology Roadmap for the Generation IV Nuclear Energy Systems*, december 2003. http ://gif.inel.gov/roadmap.

[57] S. David. Future Scenarios for Fission Based Reactors. *Nucl. Phys. A*, 751 :429–441, 2005.

[58] L. Boucher et al. Impact on waste production of different transmutation scenarios. *Proceedings of ICONE 14.* icone14-89315.

[59] F. Perdu. *Contribution aux études de sûreté pour les filières innovantes de réacteurs nucléaires.* PhD thesis, Université Joseph Fourier, Grenoble, 2003.

[60] O. Deruelle. *Mise au point d'un système de spectroscopie pour mesurer des sections efficaces neutroniques applicables à un possible développement du nucléaire comme source d'énergie.* PhD thesis, Université Paris XI-Orsay, 2002.

[61] S. Boyer. *Dans le cadre du nouveau cycle de combustible $^{232}Th/^{233}U$, détermination de la section efficace de capture radiative ^{233}Pa (n,γ) pour des énergies de neutrons comprises entre 0 et 1 MeV.* PhD thesis, Université Bordeaux I, 2004.

[62] C.D. Bowman et al. Nuclear energy generation and waste transmutation using an accelerator-driven intense thermal neutron source. *Nuc. Instr. Meth. in Physics Research* , A320 :336–367 , 1992.

[63] Groupe de travail CEA-EDF "cœur". *Synthèse des études réalisées entre 1973 et 1983, dossier "cœur"*, 1983. rapport interne EDF HT/12/75/83.

[64] http ://www.thoriumpower.com.

[65] G. Breit, E. Wigner. Capture of Slow Neutrons. *Phys. Rev.*, 49 :519–531, 1936.

[66] A. Bidaud et al. Sensitivity and Uncertainty Study for Thorium Molten Salt Reactors. In *Advanced Reactors With Innovative Fuel, Oak Ridge, TN, USA*, février 2005.

[67] A. Bidaud, T. Ivanova, V. Mastrangelo. Analyse des incertitudes et des facteurs de sensibilités de données nucléaires sur des concepts de réacteurs à sels fondus. In *Bilan des action soutenues, GDR GEDEPEON, Grenoble*, décembre 2004.

[68] S. Louvière, R. Sanchez, M. Coste, A. Herbert, Z. Stankovski. APOLLO2 Twelve Years Later. In *Int. Conf. on Mathematics and Computation,Madrid , Spain*, 1999.

[69] C. Bataille. *Loi n° 91-1381 du 30/12/1991 relative aux recherches sur la gestion des déchets radioactifs*. Journal Officiel, 1991.

[70] P.R. Bauquis. Un point de vue sur les besoins et les approvisionnements en énergie à l'horizon 2050. *La revue de l'Energie*, 50, 1999.

[71] P.R. Bauquis. Quelles énergie pour le transport au XXIème siècle. *La revue de l'Energie*, 55, 2004.

[72] C. Ngô. Le contexte énergétique mondial actuel et à venir. In *Journées de la division de physique nucléaire de la SFP,IPN Orsay*, Mai 2004.

Resumé

Dans le contexte d'un déploiement massif du nucléaire civil au niveau mondial, le problème de l'approvisionnement en ^{235}U se posera à des échéances humaines. L'industrie nucléaire d'aujourd'hui, sous-génératrice, serait, dans un tel cas de figure, inapte à satisfaire les besoins énergétiques du monde de façon durable. La transition vers des filières iso ou surgénératrices, qui optimisent l'utilisation de la matière fissile, est alors pertinente. Parmi les technologies qui permettent une telle optimisation, le cycle du thorium, Th/^{233}U utilisé en spectre de neutrons thermique, est doublement intéressant ; il permettrait, dans des concepts de type réacteur à sels fondus thermique, l'isogénération de la matière fissile tout en nécessitant de faibles inventaires initiaux en ^{233}U. La production de cette quantité d'^{233}U nécessaire au démarrage de la filière, peut être produite *en amont*, dans des réacteurs d'aujourd'hui (à eau sous pression), utilisant un combustible de type mixte oxyde thorium-plutonium.

Ce travail concerne d'une part le développement d'outils de calcul nécessaires à l'étude neutronique, par simulation Monte Carlo (M.C), des réacteurs nucléaires et de leur combustible. Qu'ils soient de génération future ou de technologie actuelle utilisant un combustible innovant, la simulation des réacteurs par les méthodes M.C. est particulièrement bien adaptée car elle ne repose que sur la connaissance des données nucléaires, et peut traiter des géométries complexes et exactes en effectuant le transport des neutrons à énergie continue.

Le code MURE , qui encapsule le code de transport validé et reconnu MCNP, a été écrit pour simuler l'évolution du combustible sous irradiation. C'est un code modulaire, écrit en C++, qui permet, entre autres, de simuler des évolutions à puissance et à réactivité constantes.

Dans un deuxième temps, nous avons entrepris l'étude du combustible MOX ThPu en REP en vue de détérminer des teneurs en plutonium satisfaisant les critères de sûreté et avons quantifié la production d'uranium-233 en fin de combustion. Ceci nous permet de considèrer et de valider différents scénarios de transition du parc français vers un parc de réacteurs isogénérateurs utilisant le cycle du thorium, où l'^{233}U aura été produit dans des réacteurs à eau sous pression utilisant du MOX thorié.

Mots-clés

évolution du combustible, mixte-oxyde ThPu, Monte-Carlo, MURE, neutronique, réacteur à eau sous pression, scénarios de transition, thorium.

Abstract

If nuclear power is to provide a significant fraction of the growing world energy demand, only through the breeding concept can the development of sustainable nuclear energy become a reality. The study of such a transition, from present-day nuclear technologies to future breeding concepts is therefore pertinent. Among these future concepts, those using the thorium cycle Th/^{233}U in a thermal neutron spectrum are of particular interest ; molten-salt type thermal reactors would allow for breeding while requiring comparatively low initial inventories of ^{233}U. The upstream production of ^{233}U can be obtained through the use of thorium-plutonium mixed oxyde fuel in present-day light water reactors.

This work presents, firstly, the development of the MURE evolution code system, a C++ object-oriented code that allows the study, through Monte Carlo (M.C.) simulation, of nuclear reactors and the evolution of their fuel under neutron irradiation. The M.C. methods are well-suited for the study of any reactor, whether it'd be an existing reactor using a new kind of fuel or a future concept altogether, the simulation is only dependent on nuclear data. Exact and complex geometries can be simulated and continuous energy particle transport is performed. MURE is an interface with MCNP, the well-known and validated transport code, that allows, among other functionalities, to simulate constant power and constant reactivity evolutions.

Secondly, the study of MOX ThPu fuel in a conventional light water reactor (REP) is presented ; it explores different plutonium concentrations and isotopic qualities in order to evaluate their safety characteristics. Simulation of their evolution allows us to quantify the production of ^{233}U at the end of burnup. Last, different french scenarios validating a possible transition towards a park of thermal Th/^{233}U breeders, are presented. In these scenarios, ^{233}U is produced in ThPu moxed light water reactors.

Keywords

fuel evolution, mixed-oxyde ThPu, Monte-Carlo, MURE, neutronics, light water reactors, transition scénarios, thorium.