



HAL
open science

Cycles uranium et thorium en réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium. Aspects neutroniques et déchets associés.

Julie Brizi

► **To cite this version:**

Julie Brizi. Cycles uranium et thorium en réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium. Aspects neutroniques et déchets associés.. Physique Nucléaire Théorique [nucl-th]. Université Paris Sud - Paris XI, 2010. Français. NNT: . tel-00545616

HAL Id: tel-00545616

<https://theses.hal.science/tel-00545616>

Submitted on 10 Dec 2010

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.

THÈSE

présentée par

Julie Brizi

en vue d’obtenir le grade de

Docteur en sciences de l’Université Paris XI – Orsay

Cycles uranium et thorium en réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium. Aspects neutroniques et déchets associés.

Date de soutenance : 12 Octobre 2010

Composition du jury :

Président du jury :	Bernard Berthier	Université Paris XI
Rapporteurs :	Gérard Rudolf	CNRS/IPHC Strasbourg
	David Lecarpentier	EDF R&D Clamart
Examineur :	Eric Dumonteil	CEA Saclay
Co-directeurs de thèse :	Sylvain David	CNRS/IPN Orsay
	Olivier Meplan	UJF/LPSC Grenoble

Remerciements

Je voudrais tout d'abord remercier Madame Dominique Guillemaud-Mueller, directrice de l'IPN d'Orsay à mon arrivée, et son successeur Fayçal Azaiez, pour m'avoir accueillie au sein de leur laboratoire durant ma thèse.

Je remercie également Monsieur Bernard Berthier, non seulement pour avoir présidé mon jury de thèse, mais aussi pour avoir accepté d'être mon directeur de thèse administratif. Je remercie aussi Messieurs Gérard Rudolf et David Lecarpentier d'avoir accepté d'être les rapporteurs de ce mémoire, et pour les corrections et les remarques pertinentes qu'ils ont pu y apporter. Je remercie également Eric Dumonteil d'avoir accepté de faire partie de mon jury de soutenance.

Naturellement, mes remerciements vont à Sylvain David et Olivier Meplan pour m'avoir proposé ce sujet de thèse et pour m'avoir encadrée durant ces trois années. Je remercie Sylvain pour toutes nos discussions et ses avis éclairés, ainsi que pour toutes ses relectures des diverses et nombreuses versions de ce mémoire, et pour son soutien, en particulier durant la délicate période de rédaction et de pré-soutenance (et merci aussi pour la crème de marron « maison »). Je remercie Olive pour toute l'aide qu'il m'a apportée, notamment concernant le développement du code, aide sans laquelle je ne serais sans doute jamais parvenue au bout des nombreux problèmes informatiques qui ont jalonné la première moitié de la thèse, et pour la patience dont il a fait preuve avec moi pour la prise en main de MURE.

Je remercie également les membres du SPRC du CEA Cadarache pour m'avoir fourni les données nécessaires pour l'implémentation du RNR dans MURE.

Je remercie ici l'ensemble des membres du groupe PACS pour leur gentillesse au cours de ces trois ans. Je pense notamment à Jon et son aide pour l'amélioration de ma prononciation anglaise (« desperate »), à COB et ses péripéties informatiques quotidiennes qui ont égayé nos cafés (mais aussi et surtout, à son stock de chocolat dissimulé dans son bureau), à Laurent « l'ancien » pour les nombreuses discussions de fin de journée et son ravitaillement en biscuits lors de ma rédaction, à Laurent « le plus jeune » et ses conversations « stratosphériques ». Comment ne pas remercier également mon coloc de bureau durant plus de deux ans, avec qui j'ai partagé les affres de la vie de thésard : Nico, merci (en particulier pour les chocolats chauds et les pains au chocolat ;)). Un merci particulier à Jocelyne pour nos papotages du goûter. Merci également à Stevan pour ses éclaircissements avisés sur les RNR lors du démarrage de ma thèse. Merci aussi à Matthieu et Guillaume

du bâtiment 102 C de l'IPN. Merci à mon voisin de bureau occasionnel, Claude, pour sa gentillesse. Merci également à Sylvie, Victor, Baptiste, Matthieu, Lousai, ainsi qu'à la MURE team grenobloise et nantaise : Alex, Adrien, Perrine, Lydie ... et tout ceux que j'oublie.

Enfin et surtout, je tiens à remercier mes parents et ma sœur pour leur soutien indéfectible et la confiance qu'ils placent en moi depuis toutes ces années. Merci à Josselin qui m'a épaulée et aidée durant ces trois années, même dans les moments les moins réjouissants.

Table des matières

RESUME	1
INTRODUCTION	3
1 Contexte énergétique et RNR-Na	7
1.1 Problématique énergétique : amont et aval du cycle	7
1.1.1 Le contexte énergétique mondial	7
1.1.2 La production d'électricité	9
1.1.3 Le nucléaire	12
1.2 Principe de régénération et transmutation	14
1.2.1 Principe de régénération	14
1.2.2 Transmutation des déchets	15
1.3 La quatrième génération	15
1.4 Genèse des RNR-Na	17
1.4.1 Rapsodie	18
1.4.2 Phénix	18
1.4.3 Superphénix	21
1.4.4 Projet EFR	21
1.4.5 ASTRID	22
1.5 Gestion des déchets et recyclage des matières valorisables	22
1.5.1 Classification des déchets radioactifs	23
1.5.2 Retraitement des combustibles usés : le cas français	25
1.5.3 Stratégie pour la gestion des déchets	26
2 Code de simulation	29
2.1 Introduction	29
2.2 Transport des neutrons : le code MCNP	29
2.2.1 Description	29
2.2.2 Principe du Monte Carlo	30
2.2.3 Grandeurs utiles	32
2.3 Méthodes et évolution standard dans MURE	34
2.3.1 Equations de Bateman	34

2.3.2	Schéma général d'une évolution	35
2.3.3	Différentes discrétisation du temps dans MURE	36
2.3.4	Contrôle de l'évolution	37
2.4	Optimisation de l'évolution dans MURE	38
2.4.1	Propagation de l'erreur statistique sur un assemblage	38
2.4.2	Accélération du calcul Monte Carlo	40
2.4.3	La méthode prédicteur-correcteur	44
2.4.4	Récapitulation de l'optimisation du temps de calcul	47
3	Cadre de l'étude	49
3.1	Description du réacteur à neutrons rapides refroidi au sodium étudié	49
3.2	Paramètres de sûreté	52
3.2.1	Réactivité de vidange	52
3.2.2	Coefficient Doppler	53
3.2.3	Autres coefficients de température	54
3.2.4	Indicateur	56
3.3	Neutrons retardés	56
3.3.1	Fractions de neutrons retardés	57
3.3.2	Réglage du nombre de particules et du nombre de cycles actifs	61
3.4	Caractérisation des déchets	62
3.4.1	Radiotoxicité	62
3.4.2	Chaleur résiduelle	66
4	Cycle U/Pu	69
4.1	Illustration du couplage neutronique/cycle	69
4.1.1	Problématique	70
4.1.2	Calcul de la masse de ^{239}Pu et de ^{240}Pu	70
4.1.3	Cas du ^{241}Pu	71
4.1.4	Cas du ^{241}Am	73
4.1.5	Etude paramétrique	74
4.1.6	Conclusion	79
4.2	Cas de référence avec rechargement du combustible en cœur	80
4.2.1	Gestion du rechargement	80
4.2.2	Inventaires et proportions de fission	82
4.2.3	Spectre à l'équilibre	85
4.2.4	Isogénération et surgénération	86
4.2.5	Influence de deux zones d'enrichissement sur le k_{eff}	87
4.3	Cas de transmutation homogène des actinides mineurs	90
4.3.1	Gestion du rechargement	90
4.3.2	Comparaison de l'inventaire dans les cas avec et sans transmutation	90
4.4	Cas de transmutation hétérogène des AM en couverture radiale	92
4.4.1	Gestion du rechargement : cœur et couverture	92

4.4.2	Transmutation des AM dans la couverture	93
4.5	Comparaison de quelques paramètres de sûreté	95
4.5.1	Vidange du sodium	95
4.5.2	Coefficient Doppler	98
4.5.3	Indicateur de tendance	99
4.5.4	Conclusion	99
5	Cycle Th/U	101
5.1	Spécificité du thorium	101
5.1.1	Bilan neutronique	101
5.1.2	Effet protactinium	103
5.1.3	Le cas spécifique de l' ^{232}U	104
5.1.4	Spectre en combustible Th/U	105
5.2	Cas de référence avec rechargement du combustible en cœur	106
5.2.1	Description du cœur	106
5.2.2	Gestion du rechargement	107
5.2.3	Inventaires	108
5.2.4	Evolution du k_{eff}	110
5.3	Cas de transmutation homogène en cycle thorium	112
5.3.1	Description du cœur et gestion du rechargement	112
5.3.2	Inventaires	112
5.4	Comparaison de quelques paramètres de sûreté	113
5.4.1	Vidange du sodium	114
5.4.2	Coefficient Doppler	116
5.4.3	Indicateur de tendance	117
6	Comparaison des déchets	119
6.1	Radiotoxicité et chaleur résiduelle des déchets en cycles U/Pu et Th/U	119
6.1.1	Comparaison inter gestion de la radiotoxicité des déchets	120
6.1.2	Comparaison inter cycle des radiotoxicités	125
6.1.3	Chaleur résiduelle des différentes configurations	127
6.1.4	Radiotoxicité des déchets d'un RNR MOX et des colis vitrifiés	128
6.1.5	Conclusion	130
6.2	Radiotoxicité du cœur pour les cycles U/Pu et Th/U	131
6.2.1	Cycle U/Pu	132
6.2.2	Cycle Th/U	134
6.2.3	Conclusion	135
6.3	Apport de la transmutation homogène en cycle U/Pu et Th/U	136
6.3.1	Masse des AM en cœur et aux déchets	136
6.3.2	Gain sur la radiotoxicité obtenu selon la gestion	139
6.3.3	Gain sur la radiotoxicité obtenu selon le cycle	144
6.3.4	Conclusion	146

CONCLUSION	149
ANNEXES	155
A Détails des zones géographiques	155
B Production d'électricité	157
C Loi du 28 juin 2006	159
D Données pour le calcul de la fraction de neutrons retardés	161
E Le projet CAPRA	165
E.1 Introduction	165
E.2 Choix de conception	165
E.3 Description d'un cœur sous générateur	166
E.3.1 Inventaire et description géométrique	166
E.3.2 Réversibilité	167
E.4 Conclusion	167
F Sections efficaces par cycle et par gestion	169
G Pertes de réactivité par cycle	171
H Facteurs de dose et de chaleur	173
I Production d'uranium 233	175
I.1 Configuration RNR Th/ ²³⁵ U enrichi	175
I.1.1 Teneurs	175
I.1.2 Inventaires des Th/ ²³⁵ U enrichi	177
I.1.3 Paramètres de sûreté	177
I.1.4 Déchets issus des Th/ ²³⁵ U enrichi	179
I.1.5 Radiotoxicité des Th/ ²³⁵ U enrichi et du Th/U Ref	180
I.2 Configuration RNR Th/Pu	181
I.2.1 Inventaires	182
I.2.2 Paramètres de sûreté	182
I.2.3 Déchets issus du Th/Pu	184
I.2.4 Radiotoxicité du Th/Pu, de l'U/Pu Ref et du Th/U Ref	187
I.3 Conclusion sur les déchets	187
BIBLIOGRAPHIE	193

Table des figures

1.1	Schéma du RNR-Na	17
1.2	RNR U/Pu Ref : Radiotoxicité du combustible (Sv/GWe)	27
1.3	REP UOX : Radiotoxicité du combustible (Sv/GWe.an)	27
2.1	Schéma d'un calcul d'évolution dans MURE	36
2.2	Découpage temporel dans MURE	37
2.3	50 évolutions de la masse du ^{239}Pu avec 50 germes aléatoires différents	39
2.4	Zoom de la masse des 50 évolutions de la masse du ^{239}Pu	39
2.5	Propagation de l'erreur statistique	39
2.6	Dispersion de l'inventaire à $t = 5$ ans pour un assemblage RNR-Na	40
2.7	Zoom de la dispersion de l'inventaire pour un assemblage RNR-Na	40
2.8	Dispersion des sections efficaces de fission pour un assemblage RNR-Na	40
2.9	Dispersion des sections efficaces de capture pour un assemblage RNR-Na	40
2.10	Découpage énergétique sur $^{238}_{92}\sigma^{tot}$	41
2.11	Dispersion en méthodes <i>standard</i> et <i>multigroupe</i>	42
2.12	Evolution de la masse du ^{239}Pu avec différentes méthodes	44
3.1	Coupes radiale et axiale du cœur RNR-Na	50
3.2	Détails du cœur	51
3.3	Sections efficaces : seuil de fission	52
4.1	Evolution du ^{241}Pu , du ^{242}Pu et de l' ^{241}Am avec $(T_{irr}, T_{cool}, T_{fab})=(5,5,2)$	74
4.2	Evolution du ^{241}Pu et de l' ^{241}Am avec $(T_{irr}, T_{cool})=(5,5)$	75
4.3	Evolution du ^{242}Pu en faisant varier T_{fab} avec $(T_{irr}, T_{cool})=(5,5)$	76
4.4	Evolution du ^{241}Pu et de l' ^{241}Am avec $(T_{irr}, T_{fab})=(5,2)$	77
4.5	Evolution du ^{242}Pu en faisant varier T_{cool} avec $(T_{irr}, T_{fab})=(5,2)$	77
4.6	Evolution de l' ^{241}Am mise au déchets en fonction de T_{cool}	78
4.7	Evolution de l' ^{241}Am mise au déchets en fonction de T_{fab}	78
4.8	Evolution du k_{∞} en fonction du temps	79
4.9	RNR U/Pu Ref - Gestion du rechargement	82
4.10	RNR U/Pu Ref - Inventaires Pu	83
4.11	Zoom du ^{239}Pu à l'équilibre	83
4.12	Zoom du ^{241}Pu à l'équilibre	83

4.13	RNR U/Pu Ref - Bilan des fissions	84
4.14	RNR U/Pu Ref - Bilan des captures	84
4.15	RNR U/Pu Ref - Spectres plein et vidangé	85
4.16	Rapport du spectre du cœur plein de sodium sur cœur vidangé	86
4.17	RNR U/Pu Ref - Détail du spectre	86
4.18	RNR U/Pu Ref 90 % - k_{eff}	87
4.19	RNR U/Pu Ref 90 % - Evolution du vecteur Pu	87
4.20	Variation de la réactivité en fonction du couple (C_1, C_2)	89
4.21	Gestion du rechargement dans le cas de transmutation homogène	90
4.22	Description de la gestion des assemblages du cœur et de la couverture	92
5.1	Sections efficaces de fission de ^{238}U et de ^{232}Th	104
5.2	Comparaison des spectres en cycle U/Pu et Th/U	106
5.3	Division des spectres : cycle U/Pu sur cycle Th/U	106
5.4	Coupe axiale du réacteur Th/U avec couvertures axiales	107
5.5	Evolution du vecteur U dans le réacteur	108
5.6	Evolution masse totale d' ^{233}U	108
5.7	Evolution masse totale d' ^{234}U	109
5.8	Evolution masse totale d' ^{235}U et d' ^{236}U	109
5.9	Comparaison du η du combustible en cycle U/Pu et Th/U	115
6.1	RNR U/Pu Ref - Contributions à la radiotoxicité	121
6.2	RNR U/Pu Hom - Contributions à la radiotoxicité	122
6.3	Cycle U/Pu : Radiotoxicités des déchets	123
6.4	RNR Th/U Ref - Contributions à la radiotoxicité	124
6.5	RNR Th/U Hom - Contributions à la radiotoxicité	124
6.6	Cycle Th/U : Radiotoxicités des déchets	125
6.7	Radiotoxicités des déchets pour les 4 configurations	126
6.8	Comparaison des PF	127
6.9	Chaleurs des déchets pour les 4 configurations	128
6.10	Radiotoxicités totale et des PF pour un RNR U/Pu Ref et un CSD-V	129
6.11	Détails des radiotoxicités des PF pour un RNR U/Pu Ref et un CSD-V	129
6.12	Radiotoxicités détaillées pour un RNR U/Pu Ref et un CSD-V	130
6.13	Radiotoxicité des AM en RNR U/Pu Ref et dans un CSD-V	130
6.14	Radiotoxicités des déchets pour les 5 configurations	131
6.15	RNR U/Pu Ref - Contributions à la radiotoxicité du cœur	132
6.16	RNR U/Pu Hom - Contributions à la radiotoxicité du cœur	132
6.17	RNR U/Pu - Contributions des AM à la radiotoxicité du cœur	134
6.18	RNR Th/U Hom - Contributions du Pu à la radiotoxicité du cœur	134
6.19	RNR Th/U Ref - Contributions à la radiotoxicité du cœur	134
6.20	RNR Th/U Hom - Contributions à la radiotoxicité du cœur	134
6.21	RNR U/Pu - Contributions des AM à la radiotoxicité du cœur	136

6.22	RNR Th/U Hom - Contributions des U à la radiotoxicité du cœur	136
6.23	RNR U/Pu : Masse des AM en cœur et cumulée aux déchets	137
6.24	RNR U/Pu : Zoom masse des AM en cœur et cumulée aux déchets	137
6.25	RNR Th/U : Masse des AM en cœur et cumulée aux déchets	138
6.26	RNR Th/U : Zoom masse des AM en cœur et cumulée aux déchets	138
6.27	Cycle U/Pu - Radiotoxicités du cœur et des déchets en cas Ref et Hom . . .	141
6.28	Cycle U/Pu - Gain en radiotoxicité	141
6.29	Cycle Th/U - Radiotoxicités du cœur et des déchets en cas Ref et Hom . . .	143
6.30	Cycle Th/U - Gain en radiotoxicité	143
6.31	Cycle Th/U et U/Pu Ref - Radiotoxicités du cœur et des déchets	145
6.32	Gain en cycle Th/U sans transmutation	145
6.33	Cycle Th/U et U/Pu Hom - Radiotoxicités du cœur et des déchets	146
6.34	Gain en cycle Th/U avec transmutation	146
I.1	Inventaire total pour le cas Th/ ²³⁵ U « 40 »	177
I.2	Inventaire total pour le cas Th/ ²³⁵ U « 90 »	177
I.3	Radiotoxicité des déchets sortis à 10 ans dans le cas Th/ ²³⁵ U « 40 »	179
I.4	Radiotoxicité des déchets sortis à 10 ans dans le cas Th/ ²³⁵ U « 90 »	179
I.5	Radiotoxicité des déchets sortis à 50 ans dans le cas Th/ ²³⁵ U « 40 »	180
I.6	Radiotoxicité des déchets sortis à 50 ans dans le cas Th/ ²³⁵ U « 90 »	180
I.7	Radiotoxicité des déchets sortis à 100 ans dans le cas Th/ ²³⁵ U « 40 »	180
I.8	Radiotoxicité des déchets sortis à 100 ans dans le cas Th/ ²³⁵ U « 90 »	180
I.9	Radiotoxicité à 100 ans pour Th/ ²³⁵ U « 40 » et « 90 », et Th/U Ref	181
I.10	Radiotoxicité des déchets dans le cas Th/ ²³⁵ U « 40 » et Th/U Ref	181
I.11	Radiotoxicité des déchets dans le cas Th/ ²³⁵ U « 90 » et Th/U Ref	181
I.12	Inventaire total pour le cas Th/Pu	183
I.13	Radiotoxicité des déchets sortis à 10 ans dans le cas Th/Pu	185
I.14	Radiotoxicité des déchets sortis à 50 ans dans le cas Th/Pu	185
I.15	Radiotoxicité des déchets sortis à 100 ans dans le cas Th/Pu	186
I.16	Radiotoxicités des RNR U/Pu Ref, Th/U Ref et Th/Pu	187
I.17	Radiotoxicité totale des déchets sortis à 10 ans	188
I.18	Radiotoxicité totale des déchets sortis à 50 ans	188
I.19	Radiotoxicité totale des déchets sortis à 100 ans	189
I.20	Radiotoxicité pour Th/Pu Th/ ²³⁵ U, Th/U Ref et U/Pu Ref	189

Liste des tableaux

1.1	Consommation annuelle mondiale par type d'énergie en 2009	7
1.2	Consommation annuelle mondiale en 2009 (sans les renouvelables)	8
1.3	Consommation annuelle mondiale d'électricité en 2007	9
1.4	Production d'électricité en 2007 (Europe)	10
1.5	Production d'électricité en 2007 (hors Europe)	11
1.6	Production d'électricité totale en 2007	11
1.7	Potentiel de production	13
1.8	Principaux produits de fission à vie longue	25
2.1	Nombre de bins par décade du flux en fonction des groupes d'énergie	42
2.2	Inventaires - dispersion et écart <i>multigroupe</i> vs <i>standard</i>	43
2.3	Section efficaces - dispersion et écart <i>multigroupe</i> vs <i>standard</i>	43
2.4	Inventaire ^{239}Pu : écart pour différentes méthodes	45
2.5	Inventaires : dispersion avec et sans PCE	46
2.6	Sections efficaces : dispersion avec et sans PCE	46
2.7	Temps de calcul	47
3.1	Vecteur Pu-MOX 30 ans	50
3.2	Caractéristiques du cœur et des assemblages	51
3.3	Valeurs des β_0 et du β_{eff}	60
3.4	Incertitudes sur la réactivité du vide	61
4.1	RNR U/Pu Ref - Inventaires	84
4.2	RNR U/Pu Ref - Inventaires Pu	84
4.3	Variation de la réactivité en fonction du couple (C_1, C_2)	88
4.4	Inventaires en cœur dans le cas U/Pu Ref et le cas U/Pu Hom à $t_{\text{éq}}$	91
4.5	Inventaire du Pu en cœur dans le cas U/Pu Ref et le cas U/Pu Hom à $t_{\text{éq}}$	91
4.6	Principaux AM dans la couverture en début et fin de cycle	94
4.7	RNR U/Pu Het - Inventaire Pu couverture	94
4.8	RNR U/Pu - Réactivité du vide (pcm)	95
4.9	RNR U/Pu - Réactivité du vide (\$)	95
4.10	RNR U/Pu Ref - Dérivée du Δk_∞	97
4.11	RNR U/Pu - Fraction de neutrons retardés (pcm)	97

4.12	Valeurs de ν et ν_d et β par noyaux	98
4.13	RNR U/Pu - Coefficient Doppler	99
4.14	RNR U/Pu - Indicateur de tendance	99
5.1	Bilan neutronique pour les cycles U/Pu et Th/U	103
5.2	Vecteur isotopique de l'uranium	107
5.3	RNR Th/U Ref - Inventaires	109
5.4	Masse des produits de fission	109
5.5	Energie dégagée par fission	110
5.6	Comparaison des PF	111
5.7	RNR Th/U Hom - Inventaires	112
5.8	Comparaison des inventaires en cœur inter cycle et inter gestion	113
5.9	RNR Th/U - Réactivité du vide (pcm)	114
5.10	RNR Th/U - Réactivité du vide (\$)	114
5.11	RNR Th/U - Fraction de neutrons retardés (pcm)	114
5.12	Différences de réactivité du vide	115
5.13	Valeurs de ν , ν_d et β par noyaux	116
5.14	RNR Th/U - Coefficient Doppler	116
5.15	RNR Th/U - Indicateur de tendance	117
6.1	Comparaison des masses d'AM en cycles U/Pu et Th/U à $t = 140$ ans . . .	138
6.2	Comparaison des masses d'AM en cœur pour les cycles U/Pu et Th/U . . .	139
6.3	Comparaison des masses des AM en cœur en cycle U/Pu à $t = 140$ ans . . .	139
6.4	Comparaison des masses des AM en cœur en cycle Th/U à $t = 140$ ans . . .	139
6.5	Cycle U/Pu : radiotoxicités à différents temps géologiques	141
6.6	Cycle Th/U : radiotoxicités à différents temps géologiques	143
B.1	Production d'électricité en 2007 (Europe)	157
B.2	Production d'électricité en 2007 (hors Europe)	158
D.1	Valeurs des ν_d , des ν_{tot} et des β issues de ENDFB7 et de [41]	161
D.2	Valeurs des ν_p , des ν_{tot} , des ν_d et des β issues du calcul MCNP	162
D.3	Valeurs des ν_d , des ν_{tot} et des β issues de ENDFB7	163
F.1	RNR U/Pu Ref et Hom - Sections efficaces	169
F.2	RNR Th/U Ref et Hom - Sections efficaces	170
G.1	Pertes de réactivité	171
H.1	Facteur de chaleur et facteur de dose	173
H.2	Facteur de chaleur et facteur de dose	174
I.1	RNR Th/ ²³⁵ U « 40 » et « 90 » - Réactivité de vidange	178
I.2	Proportions de fission au démarrage	178

I.3	RNR Th/ ²³⁵ U « 40 » et Th/ ²³⁵ U « 90 » - Coefficient Doppler	178
I.4	RNR Th/Pu - Réactivité de vidange dans zone fissile	183
I.5	Proportions de fission au démarrage	183
I.6	RNR Th/Pu - Coefficient Doppler	184

Résumé

Les réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium à cycle uranium 238/plutonium 239, dont la faisabilité technique a déjà été éprouvée, permettent de s'affranchir du problème des ressources d'uranium naturel en réalisant la régénération de l'élément fissile du combustible. En outre, une gestion des déchets visant à réduire la production et la radiotoxicité des actinides mineurs produits par le réacteur peut être mise en oeuvre en transmutant les AM en coeur (transmutation homogène). Une autre alternative pour minimiser les déchets est l'utilisation d'un autre couple fertile-fissile : le thorium 232 et l'uranium 233 (Th/U). La comparaison des deux cycles est menée sur les aspects neutroniques et la sûreté et sur la production de déchets, en utilisant un Monte Carlo évolutif. Concernant la radiotoxicité des déchets, même si on ne dégage pas véritablement d'avantages clairs pour un cycle ou l'autre, le cycle Th/U réduit la radiotoxicité durant les périodes où elle est la plus élevée. La transmutation homogène réduit significativement, pour les deux cycles, la radiotoxicité des déchets, de facteurs variables selon la période de temps considéré. Toutefois, elle se fait au détriment d'une augmentation importante de l'inventaire des AM dans le coeur. Si l'on considère la fin de jeu, l'inventaire du coeur du réacteur devient alors un déchet. Le gain apporté par la transmutation, en prenant en compte à la fois la radiotoxicité du coeur et des déchets cumulés, sera quantifié, et montre que la transmutation n'offre pas de gain considérable si l'incinération des éléments fissiles principaux (Pu ou U selon le cycle) n'est pas mise en oeuvre lors de l'arrêt de la filière.

Sodium fast reactors (SFR-Na) with uranium 238/plutonium 239(U/Pu) cycle, its technical feasibility has already proven, allow to overcome the problem of natural uranium resources in achieving the regeneration of the fuel fissile element. In addition, a waste management can be performed to reduce the radiotoxicity of actinides produced by the reactor in transmuting the AM in the core (homogeneous transmutation). Another alternative to minimize waste is to use another couple fertile-fissile : the thorium 232 and the uranium 233 (Th/U). The comparison is performed on neutronic and safety aspects and on waste production, in using an evolutive Monte Carlo. Although one does not disclose real clear advantages concerning the radiotoxicity of wastes for a particular cycle, the Th/U cycle reduces the radiotoxicity during periods when it is the highest. The homogeneous transmutation minimizes significantly for both cycles, radiotoxicity of wastes, with different factors depending on the considered time period. However, it is done to the detriment of an important increase of AM in the core. If we consider the nuclear stop, the inventory

of the reactor core becomes a waste. The gain provided by the transmutation, taking into account both the core and accumulated waste radiotoxicities, will be quantified, and shows the transmutation does not provide a significant gain if the burning of main fissile elements is not considered when the nuclear is stopped.

Introduction

Dans le contexte énergétique actuel, le nucléaire apparaît comme une alternative aux combustibles fossiles, permettant de répondre à la fois à une demande énergétique en constante augmentation, du fait de l'émergence de nouvelles puissances économiques telles que la Chine ou l'Inde, et aux restrictions sur les émissions des gaz à effet de serre, dont une diminution par 2 est recommandée par les climatologues d'ici 2050.

Néanmoins, le nucléaire, tel qu'il est pratiqué aujourd'hui, n'est pas durable. En effet, les réacteurs à eau légère type REP n'utilisent que 0.5 % du potentiel énergétique de l'uranium, et un développement massif de cette filière pourrait conduire à une pénurie des ressources dans les décennies à venir.

Par conséquent, pour envisager un essor considérable et durable du nucléaire, un développement de réacteurs ayant recours à la régénération de la matière fissile à partir de l'élément fertile qu'est l' ^{238}U , permettrait d'utiliser plus complètement le minerai d'uranium et de s'affranchir ainsi du problème des ressources. Ce type de système nécessite de changer d'élément fissile et d'utiliser du ^{239}Pu à la place de l' ^{235}U . Le ^{239}Pu est un isotope artificiel et n'existe donc pas à l'état naturel. Il est produit dans les réacteurs nucléaires par capture sur l' ^{238}U , et au cours des 60 dernières années d'exploitation de la filière nucléaire, dans les pays qui ont exploité des REP, une quantité suffisante de ^{239}Pu a été produite pour pouvoir envisager le démarrage d'une filière de réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium (RNR-Na) à combustible $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ (U/Pu).

L'intérêt de développer des réacteurs à neutrons rapides (RNR) réside dans la possibilité de mettre en œuvre plus facilement la régénération grâce à une économie de neutrons bien meilleure qu'en spectre thermique. En effet, si l'on compare le nombre ν de neutrons émis par fission, ainsi que le facteur $\eta = \frac{\nu\sigma_{fis}}{\sigma_{fis} + \sigma_{cap}}$, qui est le nombre de neutrons émis pour un neutron absorbé par le noyau, on constate que pour le ^{239}Pu , ces nombres sont plus élevés en spectre rapide que thermique, ce qui permet d'atteindre la régénération.

La question des ressources résolue via la régénération, un certain nombre de problèmes demeure, et plus particulièrement, la gestion des déchets produits, notamment dans l'optique d'un recours massif au nucléaire. En effet, l'un des principaux inconvénients du cycle U/Pu est la production importante d'actinides mineurs (AM) radiotoxiques, même si, en spectre rapide, cette production par capture est contrecarrée par une probabilité de fission plus grande de ces noyaux lourds. La capture sur l' ^{238}U entraîne la formation du ^{239}Pu qui fissionne et permet de produire de l'énergie. Néanmoins, une partie de ce ^{239}Pu subit

des réactions (n,γ) qui conduisent, en 2 captures neutroniques et une désintégration β , à l' ^{241}Am . L' ^{243}Am , quant à lui, est atteint après deux captures successives sur le ^{241}Pu et une émission β . Des réactions de captures sur ces deux isotopes d'américium, mènent, après une décroissance β , aux isotopes 242 et 244 du curium, qui peuvent former à leur tour par capture les isotopes 243 et 245 du curium. Tous ces isotopes d'américium et de curium sont radioactifs α à durée de vie moyenne ou longue.

Une première solution envisagée consiste à mettre en œuvre la transmutation des déchets, c'est-à-dire, éliminer les radionucléides à vie longue en les transformant sous flux neutronique en noyaux non radioactifs ou à durée de vie plus courte. Dans ce mémoire, nous étudions une configuration dans laquelle les AM produits dans un RNR-Na à combustible U/Pu sont remis en cœur en même temps que les éléments fissile et fertile, pour utiliser le flux élevé régnant au sein du réacteur et faire fissionner les AM : il s'agit de transmutation homogène. Une comparaison de la radiotoxicité et de la chaleur des déchets est établie entre le cas de référence, gestion dans laquelle seuls les éléments fissile et fertile sont remis en cœur et les AM et les produits de fission (PF) sont eux mis aux déchets, et le cas de transmutation homogène. Un cas de transmutation hétérogène est également étudié, gestion dans laquelle les AM sont transmutés non plus dans le cœur mais dans une couverture radiale fertile placée en périphérie de la zone fissile.

Une autre alternative pour réduire la production des AM et limiter leur quantité dans les déchets est l'utilisation d'un autre couple fertile-fissile : le ^{232}Th et l' ^{233}U . En effet, à partir du ^{232}Th , les captures successives de cinq neutrons ainsi qu'une décroissance β sont nécessaires pour parvenir au premier AM à vie longue, le ^{237}Np . La probabilité de former d'autres AM à partir de ce dernier est donc beaucoup plus faible que dans le cas du cycle U/Pu. Toutefois, un autre AM, qui n'est pas produit par captures successives mais par réaction $(n,2n)$ sur le ^{232}Th doit être considéré : il s'agit du ^{231}Pa . Même si la probabilité de la réaction $(n,2n)$ est très faible par rapport à celle de la réaction (n,γ) , son facteur de dose très élevé et sa formation en une seule réaction sur l'isotope le plus présent dans le combustible rend le ^{231}Pa responsable d'une part importante de la radiotoxicité des déchets en cycle Th/U.

L'utilisation d'un cycle Th/U devrait produire une quantité moindre d'AM, et par conséquent, une radiotoxicité des déchets réduite par rapport au cycle U/Pu, au moins sur une période de temps donnée. La radiotoxicité et la chaleur des déchets produits en cycle Th/U dans les cas de référence et de transmutation homogène sont également étudiées et comparées à celles obtenues pour les déchets produits en cycle U/Pu, pour permettre de quantifier les avantages et les inconvénients de chacune des deux filières.

Toutefois, la transmutation conduit à un inventaire important des AM en cœur, qui peut poser des difficultés au niveau de la manipulation des assemblages usés. Nous étudions alors l'apport réel de la transmutation en prenant en compte la radiotoxicité de l'inventaire du cœur, qui devient un déchet quand l'arrêt de la filière est envisagée (« fin de jeu »). Après une description détaillée de la radiotoxicité du cœur du réacteur dans chacune des configurations étudiées, nous définissons une fonction « gain », qui permet de comparer les différentes stratégies de transmutation pour un cycle donné, ou de mener des comparaisons

entre les cycles U/Pu et Th/U. Cette fonction gain prend en compte l'ensemble des déchets générés (déchets cumulés tous les ans jusqu'à l'arrêt de la filière et inventaire du cœur en « fin de jeu »), en fonction de la date d'arrêt du nucléaire envisagée.

Les études de neutroniques sont menées avec le code d'évolution MURE, basé sur MCNP, qui est un code Monte Carlo bien adapté à la simulation de systèmes innovants pour lesquels peu de retours d'expérience sont disponibles. Des outils spécifiques au rechargement du combustible ont été développés dans MURE et sont présentés au Chapitre 4.

Les systèmes étudiés en cycle U/Pu et Th/U, ainsi que les principaux paramètres de sûreté, tels que la réactivité de vidange ou le coefficient Doppler, sont présentés aux Chapitres 4 et 5.

L'ensemble des résultats sur les déchets et la fonction gain sont quant à eux présentés dans le Chapitre 6.

Enfin, il est à noter que l' ^{233}U , tout comme le ^{239}Pu , sont des isotopes artificiels. Pour démarrer une filière Th/U, une étape de transition est nécessaire pour fabriquer de l' ^{233}U . Dans ce mémoire, une annexe présente des RNR-Na avec différents combustibles susceptibles de converger vers un RNR Th/U et quantifie pour chacun les inventaires initiaux en matière fissile nécessaires, ainsi que l'évolution de la radiotoxicité des déchets au cours de la transition.

Chapitre 1

Contexte énergétique et réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium (RNR-Na)

1.1 Problématique énergétique : des réserves de combustible à la gestion des déchets

1.1.1 Le contexte énergétique mondial [1]

A l'échelle mondiale, les besoins en énergie sont actuellement couverts à 80 % par les combustibles fossiles. En 2009, la consommation annuelle mondiale atteint 12.5 GTep/an et se répartit comme indiqué dans le tableau 1.1 [1, 2]. 1 MTeP représente une méga tonne équivalent pétrole.

Energie	MTeP	%
Pétrole	3 844	30.8
Gaz	2 653	21.2
Charbon	3 278	26.2
Nucléaire	611	4.9
Hydraulique	740	5.9
Renouvelables (géothermie, solaire, éolien, bioéthanol)	161 (81,17,24,38)	1.3
Biomasse traditionnelle	1 120	9.6
Total	12 493	100

TAB. 1.1: Consommation annuelle mondiale par type d'énergie (Source [1], sauf pour Biomasse [2]) (pour la production électrique, notamment nucléaire et hydraulique, par convention 1MWh = 0.22 TeP)

Après le charbon, le pétrole et le gaz, on constate que la biomasse traditionnelle représente une part importante des ressources énergétiques ; il s'agit essentiellement de bois de chauffage, qui est utilisé massivement dans les pays en voie de développement. Ce bois est généralement « gratuit », donc les données pour comptabiliser cette ressource sont délicates à valider [3].

La part des nouvelles énergies renouvelables est encore négligeable au niveau mondial, même si localement, elles peuvent avoir une part significative : au Brésil, en 2009, le bioéthanol est produit à hauteur de 13 MTeP/an sur les 38 MTeP/an mondiaux, soit plus d'un tiers de la production planétaire [1] ; en Allemagne, l'éolien représente un sixième de la production mondiale et le photovoltaïque plus de 40 %.

Les énergies nucléaire et hydraulique sont quasiment au même niveau (respectivement 5 % et 6 %), et sont dédiées à la production d'électricité.

Par ailleurs, la consommation d'énergie dans le monde est très inégalement répartie. Le détail de la consommation des énergies en fonction de la zone géographique est présenté dans le tableau 1.2. Les zones géographiques sont détaillées dans l'Annexe A. Dans le pétrole sont compris les biocarburants (bio-éthanol et bio-diesel).

Energie MTeP	Amérique du Nord	Amérique Centrale et du Sud	Europe et Eurasie	Moyen Orient	Afrique	Asie du Pacifique	Total	%
Pétrole	1 026	256	914	336	144	1 206	3 882	34.8
Gaz	737	121	953	311	85	447	2 653	23.8
Charbon	531	23	456	9	107	2 152	3 278	29.4
Nucléaire	213	5	265	/	3	125	611	5.5
Hydraulique	158	158	182	2	22	217	740	6.6
Total	26 64	563	2 770	659	361	4 147	11 164	100

TAB. 1.2: Consommation annuelle mondiale en 2009 par type d'énergie et par zone géographique (sans la biomasse ni les nouvelles énergies renouvelables) [1]

La population des pays riches, qui ne représente que 20 % de la population mondiale, consomme plus de la moitié de l'énergie totale produite [4]. En effet, la consommation énergétique des pays de l'OCDE représente 47 % de la consommation totale, avec 20 % pour les Etat-Unis et 15 % pour l'Union Européenne¹ ; pour le détail des pays de l'OCDE et de l'Union Européenne voir l'Annexe A).

Néanmoins, le développement économique de nouvelles puissances émergentes, telles que la Chine ou l'Inde, entraîne une élévation du niveau de vie d'une partie de leur population, ce qui se traduit par une augmentation importante de leur consommation d'énergie. En 2009, la Chine représentait 19 % de la consommation mondiale¹. En outre, les popu-

¹Ces chiffres ne prennent pas en compte ni la biomasse, ni les nouvelles énergies renouvelables, cf tableau 1.2.

lations des pays émergents ne vont cesser de croître au moins jusqu'en 2050.

1.1.2 La production d'électricité

L'électricité est un moteur du développement économique : sa consommation augmente toujours plus vite que la consommation globale d'énergie [3]. La production d'électricité peut être un indicateur du développement économique d'un pays. Dans le tableau 1.3, on présente la quantité d'électricité consommée par habitant¹ [5].

	Population (millions d'habitants)	Population (%)	Electricité consommée par habitant en kWh/an
Monde	6 609	100	2 752
OCDE	1 185	17.9	8 477
Moyen Orient	193	2.9	3 252
Ancienne Union Soviétique	284	4.3	4 608
Europe non OCDE	53	0.8	3 302
Chine	1 327	201	2 346
Asie	2 148	32.5	705
Amérique latine	461	7	1 838
Afrique	958	14.5	578
Etat-Unis	302	4.6	13 616
Emirats Arabes Unis	4	0.1	16 161
Inde	1 128	17	543
France	64	1	7 573

TAB. 1.3: Consommation annuelle mondiale d'électricité en 2007 par zone géographique [5])

Un Américain consomme 23 fois plus d'électricité qu'un Africain. Un Français consomme trois fois plus que la moyenne mondiale, qui s'élève à 2752 kWh par an et par habitant. Un Chinois consomme trois fois plus d'électricité qu'un autre habitant d'Asie, ce qui illustre le développement économique plus avancé de la Chine par rapport aux autres pays de cette région.

La France, avec 60 réacteurs nucléaires, représentant 63 GWe installés pour une production de 420 TWh/an, a la plus forte production d'électricité d'origine nucléaire parmi les pays européens présentés dans le tableau 1.4, avec 77 % de ses besoins électriques couverts par cette énergie. Avec 45 % d'électricité nucléaire, la Suède a une production considérable de ce type d'énergie. L'autre moitié de l'électricité suédoise est produite par des centrales hydroélectriques.

¹La Chine n'est pas comptabilisée dans l'Asie. Les trois pays mentionnés après la double barre eux sont déjà compris dans les groupes géographiques, mais sont détaillés à titre d'exemple

A l'opposé, le Danemark n'utilise pas le nucléaire et produit 23 % de son électricité avec des énergies renouvelables, dont 18 % sont issues des éoliennes. Cependant, plus de 75 % de son électricité est produite à partir du charbon. L'Allemagne est le deuxième producteur européen d'électricité d'origine renouvelable avec 8.1 %. Ce pays a fait le choix de ne pas renouveler son parc de centrales nucléaires, mais encore 22 % [6] de l'électricité allemande est produite par ce biais. Le reste de son électricité, soit 60 %, est produite par du gaz et du charbon.

50 % de l'électricité des pays européens présentés dans le tableau 1.4 est produite à partir de combustibles fossiles. La liste des pays européens présentés dans ce tableau est non exhaustive, mais permet de donner une bonne représentation de la production électrique en Europe. La part du nucléaire est de 34 %. Le reste est essentiellement produit par des centrales hydroélectriques (environ 10 %). Exceptées la Suède et la France (respectivement 2.4 % et 10 %), tous les autres pays européens produisent plus de 60 % de leur électricité avec des combustibles fossiles, y compris les pays souvent présentés comme « verts », tels que l'Allemagne ou le Danemark (respectivement 62 % et 72 %).

Electricité en % produite par	France	Allemagne	Italie	Suède	UK	Danemark	Total
Charbon	4.9	48.7	15.8	1.1	34.9	50.8	26.1
Pétrole	1.1	1.7	11.3	0.7	1.2	3.3	2.8
Gaz	3.9	11.4	55.0	0.6	41.5	17.7	20.9
Biomasse	0.4	3.4	1.2	5.9	2.0	5.4	2.2
Déchets	0.6	1.4	1.0	1.3	0.8	4.5	1.1
Nucléaire	77.2	22.1	0.0	45.0	15.9	0.0	33.7
Hydro	11.2	4.5	12.3	44.5	2.3	0.1	9.8
Géothermie	0.0	0.0	1.8	0.0	0.0	0.0	0.3
Photovoltaïque	0.0	0.5	0.0	0.0	0.0	0.0	0.1
Eolien	0.7	6.2	1.3	1.0	1.3	18.3	2.9
Autres sources	0.1	0.0	0.3	0.0	0.0	0.5	0.1
Production totale	100	100	100	100	100	100	100

TAB. 1.4: Production d'électricité en 2007 pour quelques pays européens [6])

Concernant le reste du monde, la production d'électricité nucléaire est sensiblement la même pour le Japon et les Etats-Unis (cf tableau 1.5). Le Canada est le plus gros producteur d'électricité hydraulique, qui couvre plus de la moitié de ses besoins électriques en 2007, et seulement un quart de son électricité est assurée par des combustibles fossiles (pétrole, gaz et charbon). L'essentiel de la production d'électricité chinoise provient du charbon (à plus de 80 %), le reste étant produit par des centrales hydroélectriques (15 %). L'Inde, quant à elle, produit près de 70 % de son électricité avec du charbon. Plus de 70 % de l'électricité des Etats-Unis provient de combustibles fossiles.

Electricité en % produite par	Etats-Unis	Canada	Japon	Chine	Inde	Total
Charbon	48.7	18.1	27.4	81.0	68.4	47.1
Pétrole	1.8	1.5	13.8	1.0	4.1	4.0
Gaz	21.0	6.4	25.6	0.9	8.3	17.8
Biomasse	1.1	1.3	1.4	0.1	0.2	1.0
Déchets	0.5	0.0	0.6	0	0	0.4
Nucléaire	19.2	14.6	23.3	1.9	2.1	15.9
Hydro	6.3	57.6	7.4	14.8	15.4	12.6
Géothermie	0.4	0.0	0.3	0	0	0.3
Photovoltaïque	0.0	0.0	0.0	0	0	0.0
Eolien	0.8	0.5	0.2	0.3	1.5	0.8
Autres sources	0.0	0.0	0.0	0	0	0.0
Production totale	100.0	100.0	100.0	100	100	100.0

TAB. 1.5: Production d'électricité en 2007 pour quelques pays non européens [6])

Globalement, les pays européens utilisent 20 % de moins d'électricité produite à partir de combustibles fossiles que les pays développés ou émergents des autres zones géographiques (cf tableau 1.6). Les pays européens produisent deux fois plus d'électricité d'origine nucléaire que ceux hors Europe, et on trouve un facteur 2.5 sur la production d'électricité d'origine renouvelable.

Electricité en % produite par	Total Europe	Total hors Europe	Total
Charbon	25.6	47.1	42.5
Pétrole	2.7	4.0	3.7
Gaz	20.7	17.8	18.5
Biomasse	2.5	1.0	1.3
Déchets	1.0	0.4	0.5
Nucléaire	34.2	15.9	19.9
Hydro	10.2	12.6	12.1
Géothermie	0.3	0.3	0.3
Photovoltaïque	0.1	0.0	0.0
Eolien	2.5	0.8	1.2
Autres sources	0.1	0.0	0.0
Production totale	100	100	100

TAB. 1.6: Production d'électricité totale en 2007 [6])

Les valeurs en TWh de la production électrique pour les pays mentionnés dans les tableaux 1.4, 1.5 et 1.6 sont fournies dans l'Annexe B.

1.1.3 Le nucléaire

La consommation d'énergie dans le futur risque d'augmenter considérablement. En effet, les scénarios démographiques prévoient environ 9 milliards d'habitants à l'horizon 2050, et on peut envisager une consommation d'énergie au niveau mondial de l'ordre de 20 GTeP/an² [4], dans la mesure où, si la consommation d'énergie par habitant reste la même qu'aujourd'hui, alors la consommation d'énergie annuelle serait déjà en 2050 de 15 GTeP/an.

Cette augmentation de la consommation sera possible si les ressources énergétiques le permettent. La quantification précise des réserves de combustibles fossiles est un exercice difficile, dans la mesure où plusieurs paramètres, qui dépendent notamment du contexte socio-économique, interviennent, comme par exemple le prix que l'on est prêt à engager pour extraire un baril de pétrole. Néanmoins, au rythme actuel, il semble que les réserves de combustibles fossiles arriveront à leur terme d'ici la fin du 21^{ème} siècle [3]. Le pic de production du pétrole devrait apparaître avant 2025, suivi par le pic du gaz. En ce qui concerne le charbon, les réserves sont plus abondantes, mais pourraient être rapidement consommées, si le déficit en pétrole et en gaz se reporte sur le charbon.

Outre le problème des réserves, se pose celui du climat et de la nécessité de réduire les émissions des gaz à effet de serre. Les climatologues préconisent une diminution par 2 des émissions de ces gaz d'ici 2050 [3], afin de stabiliser l'augmentation de température à environ 2.5°C par rapport à l'ère pré-industrielle. Pour atteindre cet objectif, il faudra réduire drastiquement l'utilisation des combustibles fossiles et mettre en place des systèmes de captage et de stockage de CO₂ à très grande échelle.

Nous sommes donc face à un véritable « casse-tête » énergétique : en effet, il apparaît nécessaire de diminuer la consommation des combustibles fossiles à cause, d'une part, des changements climatiques, et, d'autre part de la limitation des réserves de ces combustibles (pétrole, gaz, charbon), et parallèlement, d'augmenter significativement la production d'énergie dans les pays pauvres et émergents pour leur permettre d'atteindre un niveau de vie plus élevé.

Une partie de la réponse pourrait être un déploiement significatif du nucléaire. Cependant, tel qu'il est pratiqué aujourd'hui, le nucléaire n'est pas durable car le taux d'utilisation actuel du combustible est trop faible, ce qui peut conduire à un épuisement des ressources en uranium d'ici 2100.

En effet, une énergie de 1 GWe.an nécessite de faire fissionner 1 tonne d'²³⁵U (chaque fission libérant environ 200 MeV, soit 3.2×10^{-11} J). Pour cela, il faut compter environ 30 tonnes d'uranium enrichi à 3 % d'²³⁵U ou 200 tonnes d'uranium naturel U_{nat} (0.7 %

²Cette valeur semble très sous-estimée, du fait de la croissance économique très forte des pays émergents, qui ne consomment que très peu d'énergie actuellement, alors que la population des pays riches, qui utilise la plus grande partie des ressources aujourd'hui, restera, semble-t-il, relativement stable.

d' ^{235}U). Cela étant, la consommation d'uranium peut être réduite dans les réacteurs standards sans modification majeure [7] (réduction des ressources variant de 20% à 40%), en réduisant les rejets d' ^{235}U dans l'uranium appauvri, en augmentant le taux de combustion (le fractionnement du cœur pour le rechargement est augmenté), en retraitant et ré-enrichissant de l'uranium irradié, ou bien en étendant l'utilisation de combustible MOX³ à un plus grand nombre de REP. Néanmoins, si un scénario de multiplication par 10 du nucléaire est envisagé, les réserves en uranium connues (c'est-à-dire extrait pour un coût limite de 400 \$/kg), seront à peine suffisantes pour couvrir les besoins du 21^e siècle [7] (cf tableau 1.7). Les réserves en uranium sont estimées, avec cette limite de coût, à environ 16 millions de tonnes selon l'AIEA (Agence Internationale de l'Energie Atomique⁴).

Production nucléaire mondiale actuelle	285 GWe
Consommation mondiale d' U_{nat}	60000 t/an
Réserves uranium estimées	16 millions de tonnes
Potentiel de production	Temps (ans)
Au taux d'utilisation actuel de l'uranium	280-400 ans
Scénario « nucléaire $\times 10$ » et optimisation de l'utilisation de l' U_{nat} en REP	50-80 ans

TAB. 1.7: Potentiel de production [7, 8]

C'est dans ce contexte que s'inscrit l'intérêt du développement des réacteurs à neutrons rapides. Le concept autorise un taux d'utilisation bien meilleur de l'uranium en convertissant l'uranium 238 (^{238}U) en plutonium 239 (^{239}Pu) avec un taux supérieur à la disparition des noyaux fissiles : c'est le principe de régénération. Ainsi, la consommation de l' U_{nat} est diminuée d'un facteur 100 environ entre les réacteurs régénérateurs et les REP « ultra » optimisés et le coût de l'énergie produite ne dépend plus que faiblement du coût des matières premières. Les 16 millions de tonnes estimées représentent alors un potentiel de production de près de 10 000 ans dans le cas où le nucléaire serait multiplié par 10 au niveau mondial (soit environ 25 % du mix énergétique). En outre, dans un ordre de grandeur plus faible, les RNR au sodium (RNR-Na) permettent de produire de la vapeur à haute température⁵, et ainsi d'obtenir un rendement thermodynamique plus élevé que pour les réacteurs thermiques (gain de quelques %, assez négligeable par rapport au gain obtenu par la régénération).

³Recyclage du Pu dans les REP : Mixed OXide

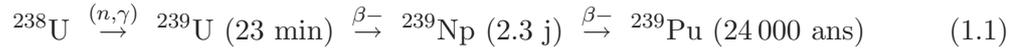
⁴<http://www.iaea.org/>

⁵Dans un REP, la température de la vapeur à la sortie du générateur de vapeur est de l'ordre de 280°C, dans les RNR, elle est de l'ordre de 490°C.

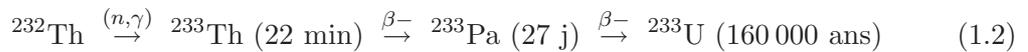
1.2 Principe de régénération et transmutation

1.2.1 Principe de régénération

Le principe de régénération consiste à produire un noyau fissile par capture d'un neutron sur un noyau fertile. En cycle U/Pu (uranium/plutonium), la capture d'un neutron sur l' ^{238}U , qui est l'élément fertile, permet de produire du ^{239}Pu , l'élément fissile (cf équation 1.1).



De même en cycle Th/U (thorium/uranium), il est possible de régénérer, à partir du ^{232}Th (élément fertile), de l' ^{233}U (élément fissile) (cf équation 1.2).



Seuls l' ^{238}U et le ^{232}Th sont présents dans la nature, le ^{239}Pu et l' ^{233}U étant des isotopes artificiels. On notera que malgré la similarité des deux transformations, il y a une différence qui a un impact important sur la production de l'élément fissile : il s'agit de la période radioactive de l'élément précédent la formation du fissile. Dans le cas du cycle U/Pu, le ^{239}Np décroît en 2 jours sur le ^{239}Pu , tandis qu'en cycle Th/U, le ^{233}Pa décroît en 27 jours. Des réactions concurrentes à celle de la formation du fissile auront une probabilité plus grande de se produire dans le cas du cycle Th/U. En outre, cela entraînera des variations de réactivité différentes selon le cycle considéré (ces questions seront abordées au chapitre 5).

La régénération permet de remplacer chaque noyau de ^{239}Pu (^{233}U) consommé par un noyau de ^{239}Pu (^{233}U) produit par la capture d'un neutron (fourni par la réaction de fission) sur l' ^{238}U (^{232}Th). Ainsi tout le minerai d'uranium (thorium) pourrait être utilisé. Cependant, la régénération est très gourmande en neutrons, et du fait des rapports de sections efficaces de capture et de fission, les pertes par captures neutroniques sont trop importantes en spectre thermique : le nombre de neutrons disponibles n'est pas suffisant pour maintenir l'équilibre (voir chapitre 5, paragraphe 5.1.1). D'où la nécessité d'utiliser des réacteurs à neutrons rapides, dans lesquels le nombre de neutrons disponibles est suffisant pour envisager la régénération.

En pratique, s'il y a suffisamment de neutrons disponibles, il suffit de démarrer le réacteur avec une certaine masse de matière fertile et de matière fissile. Le réacteur consomme uniquement de la matière fertile et la matière fissile reste constante. Le combustible est régulièrement retraité (rechargement) pour remplacer la matière fertile consommée et pour retirer les produits de fission. En outre, si le réacteur est surgénérateur, une fois démarré, il produit plus de matière fissile qu'il n'en consomme. Cette matière fissile en excès peut être retirée du cœur, entreposée puis utilisée pour démarrer un nouveau réacteur régénérateur, au bout d'un certain temps, appelé temps de doublement.

Le recours à la surgénération permet d'utiliser tout le minerai d'uranium : en filière REP, lorsque 1 t/GWe.an de matière fissionne, 200 t/GWe.an d'uranium naturel environ

sont nécessaires si on utilise un combustible à base d' ^{235}U enrichi à 3.7 %. Grâce à la régénération, le potentiel énergétique est alors multiplié par 200 par rapport aux réacteurs actuels basés sur l'utilisation de ^{235}U et non sur ^{238}U . Mais la surgénération en cycle U/Pu nécessite de changer de technologie et de passer de réacteurs thermiques à des réacteurs rapides⁶.

1.2.2 Transmutation des déchets

Dans les réacteurs surgénérateurs, l'U et le Pu doivent être recyclés et ne constituent donc pas des déchets. Les déchets sont composés des produits de fission (PF) et des autres actinides (Np, Am, Cm, ...), appelés actinides mineurs (AM).

La transmutation consiste à éliminer les radionucléides à vie longue en les transformant sous flux neutronique en noyaux non radioactifs ou à durée de vie plus courte. La transmutation se focalise aujourd'hui sur les AM, qui dominent la chaleur résiduelle et la radiotoxicité des déchets à partir de quelques centaines d'années. Cela permet de réduire le risque potentiel à long terme, de diminuer la chaleur des déchets, et par la même, de diminuer le nombre de sites de stockage.

Néanmoins, ce processus est lent et consommateur de neutrons. De plus, la transmutation influe, en général de manière négative, sur la sûreté du réacteur (coefficient de vide, coefficient Doppler, fraction de neutrons retardés). En outre, elle va compliquer la gestion des opérations du cycle du combustible nucléaire : il faudra gérer un inventaire d'actinides mineurs important en cœur (dans le cas de transmutation homogène) et prévoir de nouvelles usines de fabrication de combustible capables de gérer ces actinides mineurs.

Cela étant, la transmutation semble plus facilement réalisable en spectre rapide que thermique du fait de plusieurs paramètres : la teneur admissible des AM en cœur est plus élevée dans le cas rapide que dans le cas thermique (2.5 % pour les RNR-Na grands cœurs et 5 % pour les RNR-Na de petites tailles [9] contre 1 % pour les réacteurs à eau sous pression REP [10]) et les neutrons disponibles sont plus nombreux dans le cas rapide pour réaliser la transmutation. Au final, la mise en œuvre ou non de la transmutation résultera d'un choix politique, qui devra arbitrer entre l'amélioration de la gestion des déchets et la simplification au maximum du cycle combustible.

La potentialité de transmutation des réacteurs rapides peut être un argument supplémentaire pour les déployer relativement rapidement, sans attendre la crise majeure des ressources en uranium.

1.3 La quatrième génération

Le contexte actuel a donc remis en perspective le développement de l'énergie nucléaire et des études prospectives [11] montrent que même si toutes les sources d'énergie sont utilisées avec des hypothèses optimistes sur leur contribution à l'horizon 2050, le nucléaire sera

⁶En cycle Th/U, la régénération est possible en spectre thermique, mais en raison d'un bilan neutronique tendu, il est plus simple de la réaliser en spectre rapide.

indispensable pour résoudre le « casse-tête » énergétique et climatique. Plusieurs cadres de réflexion autour de la question du développement d'une quatrième génération de réacteurs qui pourraient être déployés vers 2040 et qui seraient capables de couvrir significativement les besoins énergétiques, ont vu le jour. Parmi ces groupes de réflexion, le Forum International Generation IV (GIF), lancé en 2000 par le ministère américain de l'énergie, comprend 13 pays membres dont la France. GIF a spécifié les objectifs de ces réacteurs de quatrième génération : le nucléaire du futur doit poursuivre les progrès en sûreté de la troisième génération et doit être capable d'économiser les ressources en uranium et de réduire la production des déchets nucléaires, ce qui conduit à envisager le recours aux neutrons rapides et au retraitement du combustible [12]. Six critères ont été retenus pour définir ces nouveaux systèmes nucléaires :

- l'économie : compétitivité financière de l'électricité produite ;
- la sûreté : poursuivre la réduction de la probabilité et de l'impact des accidents graves ;
- la gestion des déchets : mise en place d'un cycle fermé et réduction des déchets par transmutation ;
- l'utilisation optimale des ressources : utilisation de système régénérateur ;
- la sécurité : lutte contre les risques de prolifération.

Un autre élément considéré par le GIF est l'emploi du nucléaire dans d'autres secteurs que celui de l'électricité, tels que le dessalement d'eau de mer ou le chauffage collectif en utilisant directement la chaleur, ou pour les transports en produisant massivement de l'hydrogène ou de la chaleur industrielle dédiée à la production de carburants de synthèse [12].

Dans le cadre du respect des ces différents objectifs, six systèmes nucléaires ont été retenus :

- Réacteur rapide refroidi au sodium (RNR-Na) ;
- Réacteur rapide refroidi au gaz (RNR-G) ;
- Réacteur à très haute température (RTHT) ;
- Réacteur refroidi à l'eau supercritique (RESC) ;
- Réacteur rapide refroidi au plomb (RNR-Pb) ;
- Réacteurs à sels fondus (RSF).

Tous les RNR et l'une des versions du RESC sont des systèmes à neutrons rapides. Le RSF est un système qui peut fonctionner soit avec des neutrons thermiques soit avec des neutrons rapides, l'autre version du RESC et le RTHT sont à spectre thermique, l'intérêt de ce dernier résidant dans la production de chaleur à très haute température.

Les axes majeurs étudiés en France au niveau industriel sont les systèmes RNR-Na, RNR-G et RTHT. Le CNRS et les Universités sont également engagés dans des études liées aux réacteurs à sels fondus basés sur le cycle thorium. Le système RNR-Na, qui est l'objet de notre étude, bénéficie d'un retour d'expérience considérable comparé aux cinq autres systèmes, notamment avec Phénix et Superphénix, et permet la mise en œuvre de la surgénération et de la transmutation des AM.

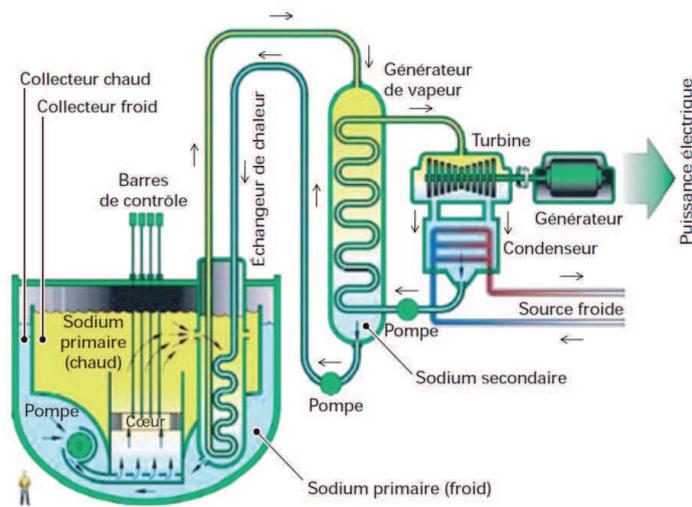


FIG. 1.1: Schéma du RNR-Na de référence en version intégrée [12]

1.4 Genèse des réacteurs à neutrons rapides refroidi au sodium [13, 14]

Les premiers pays à travailler sur la filière rapide furent les Etats-Unis, la Grande Bretagne et l'Union Soviétique. Le premier réacteur rapide au monde, baptisé Clementine, a été réalisé à Los Alamos aux Etats-Unis en 1946 : il s'agissait d'un « jouet de laboratoire » [13], et le peu de chaleur qu'il dégageait était évacuée par un circuit de refroidissement au mercure. Le combustible utilisé était constitué de plutonium, ce qui était une première à l'époque.

Il faut attendre 1951 pour que la première machine au monde à spectre rapide à produire de l'électricité voit le jour à Idaho Falls aux Etats-Unis : il s'agit de l'Experimental Breeder 1 (EBR1). Ce réacteur fournissait une puissance de 1 000 kW, et évacuait la chaleur dégagée via un mélange de potassium et de sodium, liquide à la température ambiante. Au départ, le combustible était un uranium très enrichi sous forme métallique, et à la fin, un alliage à base de plutonium. EBR2, lui, atteignit sa pleine puissance en 1965 avec 20 MWe, et fonctionna pendant 30 ans : le concept de son circuit primaire de type intégré était original.

Parallèlement, les Russes fabriquèrent dans les années 50, dans leur centre d'Obninsk, un petit RNR, appelé successivement BR2, BR5, BR10, au fur et à mesure que sa puissance thermique augmentait, pour atteindre finalement une dizaine de milliers de kW. Le combustible utilisé a été tout du long de l'uranium très enrichi.

Les Britanniques, eux, entreprirent dès 1954, à Dounreay (Ecosse), la construction d'un RNR rapide expérimental, le Dounreay Fast Reactor (DFR), mis en service en 1959,

et qui fonctionna jusqu'en 1977. Il fournissait une puissance électrique de 15 MWe et le combustible utilisé était comme pour les américains, un alliage d'uranium très enrichi.

1.4.1 Rapsodie

En France, il faut attendre 1958, pour qu'un avant projet sommaire de Rapsodie soit établi. Rapsodie fut la première étape du programme français des RNR. Un contrat d'association entre le CEA et Euratom fut signé pour couvrir la construction et l'exploitation de Rapsodie, qui incluait également la réalisation de deux RNR à puissance nulle destinés à des études physiques :

- Harmonie, qui fut mis en service durant l'été 1965 et arrêté en 1996, servait de source intense de neutrons rapides afin d'étudier des matériaux et des enceintes de protection contre les rayonnements ;
- Masurca (maquette de surgénérateur à Cadarache) fut mis en marche en 1966 et sert encore de dispositif expérimental pour l'étude détaillée de caractéristiques physiques diverses des RNR.

En 1967, eut lieu la divergence de Rapsodie avec une puissance de 20 MWth : le combustible utilisé est novateur pour l'époque puisqu'il s'agit d'un mélange d'oxydes de Pu et d'U.

En 1970, une refonte du cœur permit de porter la puissance de Rapsodie à 40 MWth, ce qui rendit possible la réalisation de nombreux essais d'irradiation indispensables pour concevoir les combustibles des réacteurs suivants. La puissance du réacteur doit être diminuée de presque de moitié à partir de 1980, à cause de l'apparition intermittente d'aérosols de sodium radioactifs dans la double enveloppe entourant le circuit primaire.

En 1982, le réacteur fut définitivement arrêté après avoir réalisé des essais pour étudier son comportement lors de situations accidentelles délibérément provoquées. Il est à noter que Rapsodie fut un réacteur de recherche et qu'il n'a jamais servi à produire de l'électricité, mais il a néanmoins rempli tous les objectifs qu'on lui avait fixés. Rapsodie servit de modèle aux Indiens et aux Japonais quand ils démarrèrent le programme de RNR.

1.4.2 Phénix

Les objectifs de Rapsodie ayant été pleinement remplis, l'étape suivante était la construction d'une centrale de démonstration. Les projets concurrents étrangers étaient nombreux, et les succès d'EBR2 aux Etats-Unis et de DFR au Royaume-Uni firent penser que les débouchés industriels pour la filière à neutrons rapides étaient proches. Dans ce contexte de compétition, chaque pays décida de faire cavalier seul. Rappelons qu'à cette époque, le déploiement du nucléaire s'annonçait rapide et les ressources en uranium étaient encore sous-estimées. La régénération était un enjeu industriel et stratégique majeur et urgent.

Au milieu des années 60, les Etats-Unis étaient toujours en tête de la course de la filière rapide, avec notamment EBR2 et le réacteur Enrico Fermi qui commençait à fonctionner. D'autres projets plus ambitieux étaient envisagés, comme par exemple le réacteur Fast Flux Test Facility (FFTF), exclusivement dédié à la recherche, avec une puissance de 400

MWth, dont la construction débuta en 1970 et le démarrage en 1980. D'autres projets avaient été envisagés (RNR avec une puissance de 400 MWe), mais ne virent jamais le jour.

En URSS, le développement des RNR connaissait un essor important. En 1964, la construction d'un réacteur d'essai à neutrons rapides, BOR60, avec des performances similaires à celles d'EBR2, débuta. La même année, le chantier de BN350 démarra au Kazakhstan. Sa puissance thermique s'élevait à 750 MWth : il fut utilisé non seulement pour produire de l'électricité, mais aussi pour dessaler de l'eau provenant de la mer Caspienne (120 000 m³ d'eau dessalée par jour [15]). En 1967, la réalisation d'un démonstrateur de RNR fut entreprise, BN600, d'une puissance de 600 MWe. BN350 a cessé de fonctionner en 1999 et BN600 devrait être remplacé par son successeur BN800 prochainement.

Les Anglais lancèrent le chantier d'une centrale de démonstration de neutrons rapides de 250 MWe, le PFR, en 1966. Son premier fonctionnement en puissance nominale eut lieu en février 1977. PFR connut des difficultés persistantes avec ses générateurs de vapeur, mais parvint à fonctionner néanmoins pendant 20 ans. En outre, du fait de la similarité de PFR avec Phénix, cela permit de confirmer sur de nombreux points l'expérience de Phénix.

Les Allemands, quant à eux, transformèrent, dans le courant des années 60, un réacteur expérimental à neutrons lents, qui utilisait des circuits de refroidissement au sodium, en réacteur à neutrons rapides, en remplaçant le cœur existant, par un nouveau contenant un mélange d'oxydes de Pu et d'U. Ils élaborèrent le projet SNR300, qui consistait à concevoir un réacteur de démonstration, mais dont le destin fut abrégé pour diverses raisons politiques.

L'avant projet de Phénix fut établi en 1967 : la puissance fut fixée à 250 MWe. Le choix du combustible se porta sur le même type que celui utilisé pour Rapsodie : mélange d'oxydes de Pu et d'U appauvri. Après 5 ans de construction, la première divergence du réacteur eut lieu en août 1973. La pleine puissance fut atteinte en mars 1974. Le bilan d'ensemble du fonctionnement de Phénix a été très positif de 1974 à 1989, la centrale ayant été couplée au réseau durant les deux tiers du temps.

En outre, la surgénération a été validée, ainsi que la faisabilité industrielle du retraitement d'un combustible usé contenant une forte teneur en Pu. Par la suite, Phénix a été utilisé de plus en plus comme moyen d'irradiation expérimental. Jusqu'à la fin des années 80, les deux principaux programmes expérimentaux menés à Phénix furent la qualification de combustibles à taux de combustion de plus en plus élevé pour améliorer l'économie des RNR futurs, et l'essai d'autres configurations de cœur afin d'allonger les campagnes entre deux rechargements et optimiser la surgénération (cœurs hétérogènes). Ces deux programmes étaient menés pour le projet European Fast Reactor (EFR).

En 1990, deux nouveaux programmes furent lancés : le projet CAPRA pour consommation accrue du plutonium dans les réacteurs avancés et le projet SPIN pour Séparation et Incinération d'isotopes radioactifs, qui traitent de la faisabilité de la transmutation (ho-

mogène et hétérogène) des actinides mineurs et des produits de fission à vie longue⁷. Ce deuxième projet devient l'axe 1 de la loi du 30 décembre 1991 (« loi Bataille »)⁸ [14]. En 1990, des arrêts d'urgence par réactivité négative entraînent l'interruption de la centrale⁹. Commence alors une période, entre 1992 et 1998, où les arrêts de production dominent. A partir d'octobre 1991, le réacteur est utilisé fréquemment à puissance nulle (en fait, à puissance inférieure à 20 MWth) pour mener différentes mesures neutroniques pour caractériser les paramètres du cœur et des tests de sûreté (passage d'une bulle de gaz dans le cœur, déclenchement d'arrêts automatiques). Cela permet aussi, outre de réaliser des études, de maintenir la compétence du personnel de conduite du réacteur.

En 1993 a lieu le 49^e cycle d'irradiation, mais il faudra attendre 1998 pour la réalisation du 50^e cycle. Cependant, la découverte d'une fuite de sodium dans le circuit secondaire entraîne un arrêt anticipé du réacteur sur celui prévu par le CEA, pour permettre la rénovation du réacteur.

L'installation redémarre en 2003, avec une puissance de 145 MWe. Son arrêt définitif a eu lieu fin 2009. Le début du démantèlement est prévu pour fin 2011 et s'échelonne sur 15 ans [17]. Phénix a été un puissant outil d'irradiation, le flux régnant dans le réacteur étant 10 à 20 fois plus important que dans les REP, et des vitesses élevées d'endommagement des matériaux furent atteintes. En outre, Phénix a apporté son concours à la qualification des codes de neutronique permettant d'approfondir la connaissance des réactions nucléaires dans le cœur d'un RNR-Na, avec un programme expérimental d'irradiation de faibles quantités d'isotopes purs (actinides, produits de fission) entre 2003 et 2005. L'analyse de ces échantillons après irradiation permettra de mieux connaître les chaînes de filiation, et donc d'améliorer la précision des codes de calcul [16].

Dans la course aux démonstrateurs, les Etats-Unis et l'Allemagne n'aboutirent pas pour diverses raisons politico-techniques, malgré le fait que les centrales aient été conçues et en grande partie construites. Les Anglais, les Russes et les Français parvinrent à la réalisation d'un démonstrateur rapide fonctionnel.

⁷L'expérience Superfact a permis d'étudier le comportement de combustibles oxydes (U,Pu)O₂ et de matrices UO₂ contenant 2 % et entre 20 % à 45 % d'actinides mineurs. Des irradiations de cibles renfermant de l'américium ont été réalisées. Ces études sur la faisabilité de la transmutation sont menées conjointement avec l'ATelier Alpha et Laboratoires pour ANalyses, Transuraniens et Études de retraitement (ATALANTE), qui est dédié à la séparation poussée [16].

⁸Les deux autres axes de la loi Bataille sont : l'étude des possibilités de stockage réversible dans les formations géologiques profondes (axe 2) et l'étude des procédés de conditionnement et d'entreposage de longue durée en surface ou en sub-surface de ces déchets (axe 3). Cette loi stipule que des recherches sur la gestion des déchets doivent être réalisées dans un laps de temps fixé (15 ans) pour pouvoir fournir en 2006, « une palette de choix de gestion aux décideurs politiques » [14]. Pour des précisions sur la loi du 28 juin 2006 se référer à l'Annexe C.

⁹Le phénomène initiateur de ces anomalies n'est pas clairement identifié (octobre 2009). Cela étant, il y a une forte présomption que cela soit dû à une expansion radiale des assemblages, sous l'effet d'une impulsion localisée dans le cœur, suivie d'un retour vers le centre (gerbage). Cela semble être le seul phénomène physique cohérent avec l'amplitude et la rapidité de la transitoire du cœur.

1.4.3 Superphénix

Les études préliminaires de Superphénix débutèrent dès 1971. La puissance fut fixée à 1 200 MWe, ce qui était un saut important par rapport à celle de Phénix (250 MWe). Ce choix a été expliqué comme un moyen de disposer dans un avenir proche de RNR de puissance comparable à celle des futurs REP, qui allaient être mis en service par EDF.

Un consortium européen, comprenant la France, l'Allemagne, l'Italie, la Belgique et les Pays-Bas, fut monté. La première marche à pleine puissance de Superphénix eut lieu fin 1986. Le fonctionnement de Superphénix dura 11 ans et a été ponctué de divers incidents et difficultés techniques, ainsi que de nombreux problèmes d'ordre politico-administratif. Sur les 11 ans de fonctionnement, de janvier 1986 à décembre 1996, le temps a été réparti globalement ainsi :

- pendant 53 mois, la centrale a connu une exploitation normale, avec des périodes de fonctionnement avec production d'électricité, des périodes d'entretien programmé et des périodes d'essai ;
- pendant 25 mois, la centrale a été hors d'état de fonctionnement par suite de travaux de réparation ;
- pendant 54 mois, la centrale, quoique techniquement en état de fonctionner, a été en arrêt par l'absence d'autorisation de fonctionner du fait de procédures en cours.

En juin 1997, la décision d'abandonner Superphénix fut prise par le gouvernement, et entraîna par conséquent l'abandon de la validation industrielle prévue à l'échelle de la centrale. Néanmoins, l'expérience acquise pour Phénix et Superphénix montre que la conduite d'une centrale nucléaire est totalement réalisable. L'exposition des travailleurs aux rayonnements y est inférieure à celles des centrales à eau. Du fait de son rendement thermodynamique plus élevé que celui d'un REP, les rejets thermiques à la source froide y sont réduits de 30 %, et la quantité des produits de fission formés est diminuée de 20 % (cf chapitre 6). En outre, l'expérience industrielle acquise sur le plutonium en tant que combustible de RNR est considérable. Ces assemblages de combustible ont supporté des irradiations deux fois plus importantes que celles soumises aux assemblages de REP. Enfin, la possibilité de les retraiter et de les recycler a été démontrée.

1.4.4 Projet European Fast Reactor (EFR)

Le programme EFR consacré pendant 10 ans à l'étude d'une centrale à neutrons rapides prototype d'un modèle industriel est l'aboutissement de plus de 30 ans d'expérience. Il visait la réalisation d'un réacteur à neutrons rapides refroidi au sodium d'une puissance de 1500 MWe. Ce projet intégrait diverses améliorations par rapport à Superphénix¹⁰. Il fut lancé à la demande d'un groupement d'électriciens regroupant essentiellement la France, le Royaume-Uni et l'Allemagne, avec l'appui de partenaires en Belgique, en Italie et en Espagne. L'ingénierie était assurée par un groupe d'industriels rassemblant Framatome (France), NNC (Royaume-Uni) et Siemens (Allemagne). La phase d'étude s'est déroulée

¹⁰L'amélioration de lutte contre les feux de sodium, la diminution de la hauteur du crayon combustible pour réduire la réactivité du vide, la modification des pompes primaires et des générateurs de vapeur [18].

entre 1988 et 1998, et a bénéficié de l'appui d'un important programme de R&D coordonné entre les centres de recherche des pays participants, mais n'a pas débouché sur une construction, du fait de l'arrêt prématuré de Superphénix [18].

Il faut noter également qu'à cette époque, le programme nucléaire mondial s'est essouffé suite aux accidents de Three Mile Island et de Tchernobyl. De plus, de nouvelles ressources en uranium ont été découvertes. Le déploiement des surgénérateurs n'est plus une urgence industrielle, ce qui ajouté au contexte politique, peut expliquer en grande partie la fermeture de Superphénix et l'abandon des RNR en tant que filière industrielle.

1.4.5 Advanced Sodium Technological Reactor for Industrial Demonstration (ASTRID)[20, 19]

Depuis quelques années, le contexte énergétique et climatique laisse présager un retour du nucléaire au niveau mondial. La question de ressource en uranium peut à nouveau se poser dans les décennies à venir, et compte tenu des délais importants que nécessite le développement d'une nouvelle filière nucléaire (R&D, dossiers de sûreté, ...), la France tente de relancer un programme ambitieux sur les RNR-Na, répondant aux exigences de Génération IV.

ASTRID est le prototype français de réacteur de quatrième génération qui devrait être mis en exploitation en 2020. Ce futur réacteur à neutrons rapides refroidi au sodium permettra de régénérer la matière fissile et de transmuter les déchets radioactifs. Ces techniques, dont la faisabilité est prouvée en laboratoire, seront confrontées à l'échelle industrielle avec ASTRID. Ce démonstrateur industriel, de 600 MWe, qui devrait se situer à Marcoule, s'inscrit dans la loi du 28 juin 2006 et pourrait précéder la tête de série d'un futur réacteur commercial. Le projet, mené par le CEA, repose sur différentes collaborations en France (Areva, EDF, et GDF Suez), ainsi qu'à l'international (notamment avec le Japon), et bénéficie d'un financement de 650 millions d'euros pour la période 2010–2017, l'objectif étant une construction à partir de 2017, pour un chargement du combustible en réacteur en 2020. La filière sodium a été privilégiée pour la construction de ce prototype car la faisabilité technique de cette filière est déjà acquise et elle est donc la technologie la plus mature pour envisager un déploiement industriel à l'horizon 2040.

1.5 Gestion des déchets et recyclage des matières valorisables

Un des objectifs du GIF est la mise au point de systèmes qui permettent de réduire les déchets radioactifs. Pour atteindre cet objectif, on peut envisager de transmuter dans le cœur même du réacteur les éléments les plus radiotoxiques et utiliser ainsi le flux important qui y règne pour les faire fissionner. La transmutation est un sujet clé des lois de 1991 et 2006 relatives à la gestion des déchets nucléaires.

1.5.1 Classification des déchets radioactifs

Les déchets radioactifs sont classés en fonction de leur niveau de radioactivité et de la période radioactive des radionucléides qu'ils contiennent. Ils sont dits à « vie longue » quand la période radioactive ou celle d'un de leurs produits de décroissance est supérieure à 30 ans. En fait, on peut définir les déchets à vie courte comme des déchets qui n'auront plus d'influence radiotoxique après le temps de refroidissement des assemblages usés, les déchets à vie moyenne, comme ceux qui n'auront un impact que durant la période de stockage en surface, et les déchets à vie longue, ceux qui auront une contribution majeure à la radiotoxicité durant des milliers voir des millions d'années, et donc lors du stockage en couches géologiques profondes. La législation française classe les déchets nucléaires en cinq catégories [21] :

- les déchets de **très faible activité (TFA)** qui contiennent une activité de radionucléides de l'ordre de 10 à 100 Bq.g⁻¹ ;
- les déchets de **faible et moyenne activité à vie courte (FAMA-VC)** dont l'activité est située entre quelques centaines et un million de Bq.g⁻¹. Leur radioactivité devient comparable à la radioactivité naturelle en moins de 300 ans ;
- les déchets de **faible activité à vie longue (FA-VL)** issus des déchets radifères et graphites ;
- les déchets de **moyenne activité à vie longue (MA-VL)** principalement issus des structures de combustibles usés. La plus grande partie de ces déchets dégagent peu de chaleur mais certains d'entre eux sont susceptibles de relâcher des gaz ;
- les déchets de **haute activité (HA)** qui contiennent les produits de fission (PF) et les actinides mineurs (AM) séparés lors du traitement des combustibles usés et incorporés à chaud dans une matrice vitreuse. Ils contiennent l'essentiel de la radioactivité (plus de 95 %).

En pratique, les déchets radioactifs conditionnés en France représentent moins de 1 kg par an et par habitant. Ce kilogramme est composé à 90 % de déchets FAMA-VC ne contenant que 5 % de la radioactivité totale, de 9 % de déchets MA-VL, de moins de 1 % de déchets HA, qui concentrent cependant 95 % de la radioactivité des déchets, et pratiquement pas de déchets FA-VL [21].

Dans le combustible UOX irradié, les radionucléides à vie longue sont responsables de la radiotoxicité potentielle à long terme¹¹. Dans le cas d'un cycle U/Pu, il s'agit de l'uranium (U), du plutonium (Pu), des actinides mineurs (AM), principalement du neptunium (Np), de l'americium (Am) et du curium (Cm), ainsi qu'une partie des produits de fission (PF) et des produits d'activation (PA) [21]. Dans certains pays, les combustibles usés actuels sont considérés comme un déchet. En France, ce combustible UOX usé est retraité pour en extraire l'U et le Pu, réutilisés une fois en réacteurs. Dans le cas des RNR régénérateurs, l'U et le Pu devront être multirecyclés et ne pourront en aucun cas être considérés comme des déchets. En se basant donc sur une stratégie où l'U et le Pu sont séparés du combustible

¹¹Le qualificatif potentiel désigne une période de temps dans le futur, durant laquelle nous sommes capables actuellement de concevoir l'évolution de la société, c'est-à-dire quelques milliers d'années.

usé et constituent une matière valorisable, on peut distinguer alors quatre catégories de déchets :

- les PF à durée de vie courte ou moyenne sont principalement le ^{90}Sr (30 ans) et le ^{137}Cs (29 ans). Ces déchets sont principalement des émetteurs β très actifs à cause de leur courte période de décroissance. Leur stockage est par conséquent délicat, mais restreint dans le temps (quelques dizaines à quelques centaines d'années). Leur transmutation éventuelle n'est pas facilement envisageable car leur haute activité les rend difficile à manipuler et nécessite une séparation isotopique qui n'est pas envisageable ;
- les PF à vie longue, tels que l' ^{129}I ou le ^{99}Tc , (cf tableau 1.8) sont aussi majoritairement des émetteurs β . Leur durée de vie peut aller jusqu'à plusieurs millions d'années, mais leur radiotoxicité potentielle est largement inférieure à celle des AM (variant jusqu'à quatre ordres de grandeurs pour les RNR). Cependant, ces noyaux sont très labiles dans l'argile, qui serait la roche majoritaire qui constituerait les sites de stockage profond envisagés en France, et constituent donc un problème en termes de risque résiduel (retour de traces de radionucléides à la surface). Une solution pourrait être la transmutation par capture neutronique vers des noyaux stables. Néanmoins, même si elle est théoriquement possible, la transmutation des PF-VL rencontre différents types de problèmes techniques [22]. Pour certains PF, il est nécessaire d'effectuer préalablement une séparation isotopique pour éviter de régénérer l'isotope à éliminer (cas du césium), ce qui est difficile à réaliser aussi bien sur un plan technique que financier. De plus, ces éléments sont de purs consommateurs de neutrons et leurs faibles sections efficaces de capture (inférieures à 0.5 barns en spectre rapide et quelques barns en spectre thermique [23]) impliquent une faible vitesse de transmutation. Concernant l'iode, aucun matériau incorporant cet élément stable et pouvant fonctionner en réacteur n'a été identifié [22]. Enfin, le technétium n'est pas un élément aussi labile que ce que l'on aurait pu présager, et sa transmutation n'est plus envisagée. Pour toutes ces raisons, la mise en œuvre de cette option sur le plan industriel a été écartée [22]. Par conséquent, dans la suite de notre étude, nous n'envisagerons que la transmutation des AM, les PF étant pour leur part vitrifiés au moment du retraitement du combustible, comme c'est le cas aujourd'hui ;
- les AM (Np, Am, Cm). Ces noyaux lourds représentent une radiotoxicité élevée : ce sont principalement des émetteurs α et leur durée de vie peut aller jusqu'à plusieurs centaines de milliers d'années. De manière générale, dans les sites envisagés en France, ces noyaux sont beaucoup moins labiles que les PF (aux Etats-Unis, à Yucca Mountain, le ^{237}Np est l'élément le plus labile), et par conséquent, ils auront une incidence uniquement d'un point de vue d'un risque potentiel. Toutefois, la radioactivité α est une source de chaleur importante qui peut influencer le conditionnement de ces éléments avec les PF, ainsi que le dimensionnement des zones de stockage des déchets [25] ;
- dans le cas d'un multirecyclage, le combustible lui-même n'est pas un déchet à pro-

prement parler. Mais lors de l'arrêt de la filière, l'inventaire du cœur devient alors un déchet (cf chapitre 6).

Noyau	⁷⁹ Se	⁹⁰ Zr	⁹⁹ Tc	¹⁰⁷ Pd	¹²⁶ Sn	¹²⁹ I	¹³⁵ Cs
Périodes (années)	7×10^4	1.5×10^6	2.1×10^5	6.5×10^6	1×10^5	1.6×10^7	2×10^6
REP : Production (kg/an)	0.11	15.5	17.7	4.4	0.44	3.9	7.7
RNR : Production (kg/an)	0.16	0.33	20.3	11.0	1.12	6.6	37.5

TAB. 1.8: Principaux produits de fission à vie longue avec périodes de décroissance radioactive et taux de production associés pour un REP [25] et un RNR U/Pu de 1 GWe

Enfin, il faut noter que les déchets contiennent des traces des matières valorisables séparées, qui dans certains cas où la transmutation est envisagée, peuvent jouer un rôle significatif du point de vue de la radiotoxicité.

1.5.2 Retraitement des combustibles usés : le cas français

A l'heure actuelle, en France, le combustible utilisé issu des Réacteurs à Eau sous Pression (REP) est retraité (usine de La Hague). En effet, le Pu contenu dans le combustible utilisé est récupéré, via le procédé PUREX, pour être recyclé et utilisé dans les combustibles MOX¹². L'U est également séparé. Il contient encore environ 1 % d'²³⁵U. Il peut alors être réenrichi. Actuellement, 30 % de l'U de retraitement est réenrichi, ce qui permet de faire fonctionner deux tranches.

Le plutonium créé et l'uranium appauvri ne sont donc pas considérés comme des déchets, car le Pu issu des combustibles UOX¹³ peut être retraité pour fabriquer du combustible MOX, et le Pu issu des combustibles MOX ainsi que l'U appauvri issu des UOX et des MOX peuvent être utilisés comme combustible pour les RNR-Na. Les MOX usés ne sont pas retraités et sont considérés comme matière valorisable : ils constituent l'essentiel des ressources en Pu civil, qui sera nécessaire pour le déploiement éventuel des réacteurs régénérateurs.

Les PF et les AM, issus des combustibles usés des REP, sont considérés comme des déchets. Ils sont incorporés dans une matrice de verre, puis conditionnés dans des conteneurs en inox : ce sont les colis CSD-V (Colis Standard de Déchets Vitriifiés). La plupart de ces déchets de haute activité sont actuellement entreposés sur les sites des usines de traitement des combustibles usés et dans les centres de recherche du CEA.

Une gestion sûre et efficace de tous ces déchets, et en particulier des déchets HA et MA-VL, est essentielle pour pouvoir envisager le développement d'un nucléaire sur le long terme. Une des options pour la gestion des déchets HA et MA-VL est le stockage en couches géologiques profondes des matières et déchets radioactifs, qui est l'option de référence

¹² Mixed OXides, composé d'uranium appauvri et de Pu à 7 %.

¹³ Uranium OXide.

retenue par la loi du 28 juin 2006. L'Agence Nationale des déchets radioactifs (ANDRA) a été chargée par cette loi de concevoir et d'implanter un centre de stockage de ces déchets, qui soit réversible pendant une durée d'au moins cent ans. Les installations souterraines seront situées à environ 500 mètres de profondeur et se composeront de zones de stockage pour les déchets HA et pour les déchets MA-VL, de galeries de liaison et d'installations techniques. Les installations s'étendront sur 15 km² environ. La zone de stockage HA comprendra environ 5 000 alvéoles de stockage et la zone MA-VL en comportera une quarantaine. La construction de ce site est prévue à l'horizon 2020 [27].

La radiotoxicité par ingestion semble alors un critère approprié pour évaluer la dangerosité potentielle des déchets nucléaires à long terme. En effet, dans le cas d'un stockage profond et au bout de quelques siècles, l'irradiation externe ne constitue plus le risque potentiel majeur. C'est un risque d'incorporation d'éléments radioactifs, présents à l'état de traces dans l'eau ou des aliments issus de l'agriculture, au terme d'un très lent processus de solubilisation et de migration, qui serait à redouter [21].

Nous nous intéressons également à la chaleur dégagée par les déchets pendant quelques centaines d'années car c'est ce paramètre qui permet de dimensionner les sites de stockage.

1.5.3 Stratégie pour la gestion des déchets

Dans le cas des REP aussi bien que dans celui des RNR, le Pu domine largement la radiotoxicité du combustible usé entre 300 ans et 1 millions d'années (cf figures 1.2 et 1.3). Mais, en France, ce Pu n'est pas considéré comme un déchet, ni aujourd'hui (MOX usé), ni dans le cas des régénérateurs, puisqu'il représente la matière fissile de ces systèmes¹⁴.

Dans l'étude que nous menons sur les RNR-Na, le Pu est recyclé dans le même cœur. Une fois le Pu retiré, ce sont les AM qui dominent largement la radiotoxicité après 300 ans, alors que jusqu'à 300 ans, les PF à vie moyenne (¹³⁷Cs et ⁹⁰Sr) sont plus radiotoxiques. Par conséquent, pour diminuer la radiotoxicité potentielle des déchets à long terme, il faut jouer sur la réduction de la quantité des AM dans les colis vitrifiés en utilisant, par exemple, des techniques de transmutation (voir chapitre 6).

¹⁴Sauf en fin de vie du parc nucléaire, l'importance du Pu diminuant avec la durée d'exploitation du parc.

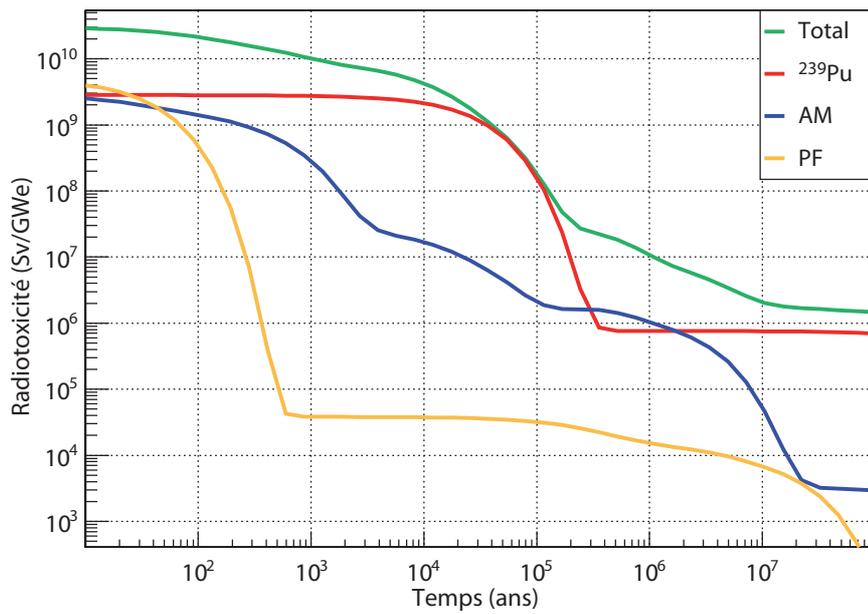


FIG. 1.2: Radiotoxicité d'un cœur RNR U/Pu à l'équilibre en Sv/GWe : le Pu et l'U sont recyclés en cœur, les PF et les AM étant mis aux déchets

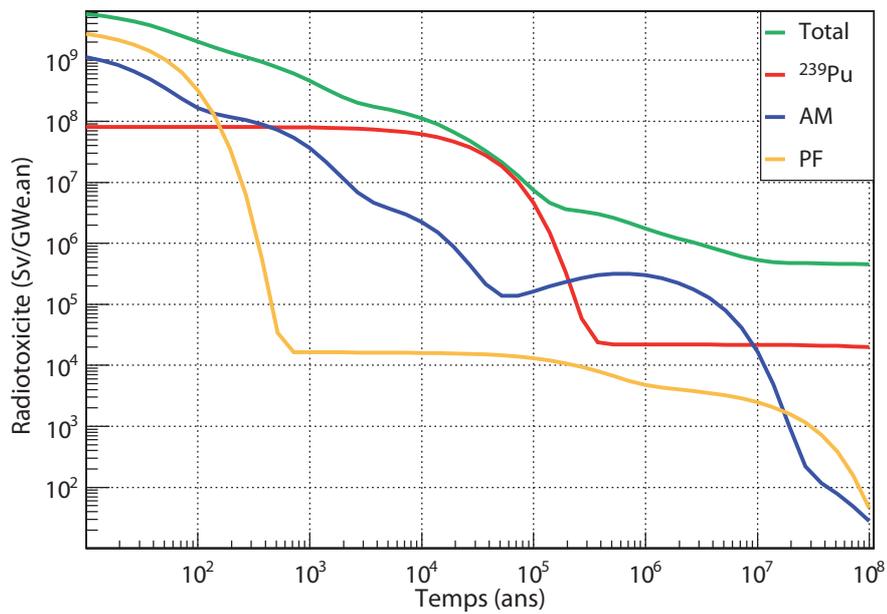


FIG. 1.3: Radiotoxicité d'un cœur REP UOX actuel en Sv/GWe.an

Chapitre 2

Calcul Monte Carlo évoluant : l’outil MURE et les méthodes associées

2.1 Introduction

MURE, pour *MCNP Utility for Reactor Evolution* [28], est un code d’évolution écrit en C++, qui réalise le calcul de l’évolution du combustible de réacteurs nucléaires au cours du temps, en faisant des appels successifs au code de transport Monte Carlo de particules MCNP [29]. Ce code d’évolution permet aussi un couplage de la neutronique avec la thermohydraulique, en utilisant un code sous canal 3D, COBRA [30, 31]. Il est né de la volonté de réaliser des études d’évolution combustible à partir de calculs de taux de réaction issus d’un code Monte Carlo. Même s’il contient des méthodes spécifiquement conçues pour l’évolution du combustible des réacteurs, MURE peut également être utilisé uniquement comme interface du code MCNP, en calcul statique, pour construire des géométries et obtenir leur transcription en langage MCNP. Il dispose également d’une interface graphique conviviale pour l’exploitation des résultats. MURE est développé essentiellement à l’Institut de Physique Nucléaire d’Orsay (IPNO) et au Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie (LPSC) de Grenoble, et est disponible à la NEA depuis Mars 2009 [32].

2.2 Transport des neutrons : le code MCNP

2.2.1 Description

Le code MCNP (Monte Carlo N Particles) [29] est un code de transport probabiliste de particules. Les particules traitées dans MCNP sont le neutron, l’électron et le photon. Pour notre étude, nous ne considérons que les neutrons. MCNP est développé au LANL (Laboratoire National de Los Alamos). La gamme d’énergie pour les neutrons dépend des

données nucléaires, qui pour certains isotopes, va jusqu'à 150 MeV. Pour tous les isotopes, elle s'étend de 10^{-11} eV à 20 MeV, gamme adaptée aux calculs de systèmes critiques. Le transport des particules s'effectue à énergie continue et peut être réalisé dans toute configuration tridimensionnelle, ce qui permet la simulation de géométries exactes. MCNP effectue un transport statique des particules, c'est-à-dire que le combustible n'évolue pas durant le transport. C'est pourquoi le code MURE a été créé.

MCNP permet le calcul du flux et des taux de réaction à chaque position du système, du coefficient multiplicateur (k_{eff})... Pour ce faire, l'utilisateur doit fournir un fichier d'entrée qui est lu par MCNP et qui comporte des informations concernant la configuration à étudier, telles que la définition de la géométrie, la description des matériaux, la localisation et les caractéristiques de la source de neutrons, les types de grandeurs à calculer (appelées tallies) et un autre fichier (« xsdir ») qui contient les chemins d'accès des différentes sections efficaces d'interaction des matériaux simulés en fonction de l'énergie des neutrons et de la température. Le fichier d'entrée MCNP peut être généré directement par MURE via un programme C++, qui fait appel aux différentes fonctions de MURE pour définir le système. Chaque matériau occupe une forme géométrique donnée : cette association est appelée cellule. Chaque cellule peut être divisée en plusieurs cellules pour obtenir plus de détails lors du calcul de l'évolution.

2.2.2 Principe du Monte Carlo [29]

Le principe de base est de suivre la propagation d'une particule dans les cellules en appliquant les lois caractéristiques de ce mouvement. Une grande diversité d'histoires de neutrons dans une géométrie est simulée afin de remonter aux valeurs moyennes des grandeurs physiques utiles. Le comportement moyen des particules dans le système physique réel est ensuite déduit du comportement moyen des particules simulées, en utilisant le théorème de la limite centrale. Chaque particule est suivie de sa naissance à sa mort, et chaque étape de son transport, c'est-à-dire ses interactions avec la matière, est calculée. Pour ce faire, il faut savoir :

- si le neutron interagit ou non avec le milieu ;
- si oui, avec quel noyau du milieu il interagit ;
- quel type de réaction a lieu ;
- quelles sont les particules secondaires éventuellement émises.

La propagation d'une particule se décompose en plusieurs opérations successives, réalisées par MCNP pour chaque neutron suivi.

A une énergie donnée E , la première étape consiste à effectuer le calcul du libre parcours moyen $\lambda(E)$, défini par :

$$\lambda(E) = \frac{1}{\Sigma^{tot}(E)} \quad (2.1)$$

où $\Sigma^{tot}(E)$ est la section efficace macrosocopique du milieu, qui s'exprime comme :

$$\Sigma^{tot}(E) = \sum_{\text{noyaux } i} N_i \sigma_i^{tot}(E) \quad (2.2)$$

avec N_i le nombre de noyaux i par cm^3 et $\sigma_i^{tot}(E)$ la section efficace microscopique totale d'interaction du noyau i en cm^2 .

La connaissance de $\lambda(E)$ permet de réaliser le tirage aléatoire de la distance parcourue $l(E)$ avant la première interaction selon la loi :

$$l(E) = -\lambda(E) \ln(1 - p) \quad (2.3)$$

où p est un nombre aléatoire tiré uniformément dans $[0;1[$.

Si le point d'interaction n'est pas dans la même cellule (c'est-à-dire si $l(E)$ est plus grande que la distance entre le point d'émission du neutron et le bord de la cellule), le neutron est placé à la frontière des deux cellules et les calculs précédents sur $\lambda(E)$ et $l(E)$ sont refaits en considérant la section efficace totale $\Sigma^{tot}(E)$ de la cellule dans laquelle le neutron entre. Si le neutron n'a pas changé de cellule, le noyau k sur lequel a lieu la réaction est déterminé en tirant un nombre p uniformément dans l'intervalle $[0;1[$; le noyau k est alors sélectionné par le test :

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

où N est le nombre total de noyaux présents, $\Sigma_i^{tot}(E)$ la section efficace macroscopique totale du noyau i . La quantité au centre de l'inégalité 2.4 est toujours la même à matériau et énergie donnés : en la multipliant par p , on construit une quantité qui lui est inférieure. Comme on conserve toujours le même ordre dans la liste des noyaux qui composent le matériau, il existe un seul indice k dans cette liste telle que l'inégalité 2.4 soit vérifiée. Comme l'intervalle entre les sommes partielles est proportionnel à la section efficace macroscopique $\Sigma_k^{tot}(E)$, plus cette section est grande, plus l'intervalle s'élargit, et plus le nombre de valeurs de p qui sélectionnent le noyau k augmente .

Une fois le noyau k défini, le type de réaction r qu'il subit est déterminé de manière analogue :

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

où $\sigma_i(E)$ est la section efficace microscopique de réaction i pour le noyau k précédemment déterminé, R le nombre de réactions possibles pour le noyau k , et p un nouveau nombre aléatoire tiré uniformément dans $[0;1[$.

L'histoire du neutron peut suivre différentes voies : dans le cas d'une capture radiative, le neutron est définitivement absorbé et l'histoire s'arrête là ; dans la plupart des autres réactions (diffusion, fission, réaction $(n,2n)$...), le neutron survit, ou, un ou plusieurs neutrons sont réémis. Leur énergie et leur direction sont tirées au hasard selon des lois dépendant du type de réaction qui les a créés.

Lors d'un calcul de transport, le neutron est suivi de sa naissance à sa mort. Dans le cas d'un système critique, les réactions de fission sont considérées comme une mort pour les neutrons. Ainsi les neutrons sont suivis génération par génération, la source de chaque génération étant formée par les sites de fission de la génération précédente. Dans un calcul de criticité (KCODE dans MCNP), un cycle correspond au suivi de N neutrons appartenant à la même génération. Le passage au calcul du cycle suivant n'est entrepris par MCNP qu'une fois que tous les neutrons de la génération en cours ont disparu. Un grand nombre de neutrons est propagé à chaque cycle, et plusieurs cycles inactifs sont nécessaires pour obtenir une convergence de la source de fission, ainsi que plusieurs cycles actifs pour avoir une précision acceptable. Les cycles inactifs sont des cycles au cours desquels les neutrons sont propagés dans la géométrie, mais aucun des résultats obtenus pour effectuer le transport n'est utilisé pour le calcul des tallies. Ils servent à sauter les premiers « états » qui ne sont pas assez convergés et qui introduiraient des biais dans le calcul. Dès que la source de fission a suffisamment convergé, alors on peut, sans risque, utiliser les neutrons pour calculer les tallies (flux,...).

2.2.3 Grandeurs utiles

Flux

Entre deux interactions, un neutron a une énergie constante E et sa contribution au flux moyen de la cellule est $\frac{l(E)}{V}$, où l est la distance parcourue par le neutron entre deux interactions et V le volume de la cellule où ont lieu les interactions. Dans chaque cellule ou élément de volume V, MCNP estime le flux moyen dans la cellule, intégré sur l'énergie et normalisé par neutrons source simulés N_S^1 (dans un calcul de criticité, il s'agit des neutrons issus des fissions), avec k le numéro de la trace considérée qui a une énergie E_k , comme :

$$\Phi_c = \frac{1}{N_S} \frac{\sum_k l(E_k)}{V} \quad (2.6)$$

Il est à noter que l'on peut attribuer un poids à la particule MCNP pour pouvoir explorer des zones plus éloignées de la source de neutrons, et par conséquent qui risquent d'être moins peuplées de neutrons. Par exemple, on peut définir, que lors d'une réaction absorbante, au lieu que la particule disparaisse, elle continue à être propagée mais avec un poids, inférieur à 1, qui correspond à la probabilité que la particule n'ait pas été absorbée : si x est la probabilité de la particule à être absorbée, alors la particule continue à se déplacer avec une probabilité de 1-x, et ainsi de suite pour toutes les réactions qui sont censées conduire à la disparition de la particule. Si on prend en compte le poids ω de la particule, le flux s'écrit comme :

$$\Phi_c = \frac{1}{N_S} \frac{\sum_k l(E_k)\omega}{V}$$

¹Le flux MCNP est normalisé par neutrons sources : pour avoir un flux par seconde, il faut normaliser le flux MCNP en prenant en compte la puissance du réacteur, c'est-à-dire le nombre de fissions par seconde (cf paragraphe 2.3.4) : cela est fait en dehors de MCNP par le code MURE.

Cette définition est équivalente à celle de l'équation 2.6 dans laquelle le poids est pris égal à 1.

Taux de réaction moyen

Les calculs des taux de réaction sont indispensables pour résoudre les équations de Bateman, et ainsi, réaliser l'évolution du combustible. Ce calcul est réalisé par MCNP sur demande de l'utilisateur (tally multiplicateur). Dans une cellule donnée, le taux de réaction microscopique induit par ce neutron d'énergie E est $\frac{\sigma(E)l(E)}{V}$ pour une réaction et un isotope considérés. Le taux de réaction microscopique moyen dans une cellule donnée s'exprime comme :

$$\langle \sigma \Phi \rangle_c^{i,j} = \frac{1}{N_S} \frac{\sum_k \sigma_i^j(E_k) l(E_k)}{V} \quad (2.7)$$

avec $\langle \sigma \Phi \rangle_i^j$ le taux de réaction microscopique moyen du noyau i pour la réaction j dans une cellule et $\sigma_i^j(E_k)$ la section efficace de la réaction j du noyau i , cette section efficace étant traitée de manière continue. Le taux de réaction s'obtient en multipliant le taux de réaction microscopique par N_i qui est le nombre de noyaux i par cm^3 . Il est à noter qu'avec MCNP, le calcul de taux de réaction peut être réalisé sur des matériaux qui ne sont pas présents dans la géométrie (matériaux perturbatifs). Cette caractéristique de MCNP permet de mettre en place le calcul d'évolution du combustible. En effet, il est nécessaire de connaître les taux de réaction des noyaux qui vont apparaître lors de l'évolution, même s'ils ne sont pas tous présents dans la géométrie initialement. De ceci, il découle que l'erreur statistique sur le taux de réaction d'un noyau donné dépend peu de sa concentration en première approximation, puisque chaque trace contribue au calcul du taux de réaction de chaque noyau.

Section efficace moyenne

La section efficace moyenne (ou section efficace à 1 groupe) peut être extraite de MCNP en faisant le rapport des quantités décrites précédemment dans les équations 2.6 et 2.7.

$$\langle \sigma \rangle_i^j = \frac{\langle \sigma \Phi \rangle_c^{i,j}}{\Phi_c} \quad (2.8)$$

Il est à noter que pour simuler le transport des neutrons, MCNP calcule la valeur de la section efficace macroscopique totale du matériau à une énergie donnée. Les valeurs des sections efficaces moyennées pour chaque noyau, dans chaque matériau et pour chaque cellule sont extraites de MCNP à la demande de l'utilisateur (demande de tally).

Désormais, dans ce chapitre, lorsque nous parlerons de sections efficaces, il s'agira de sections efficaces moyennes, qui pourront varier avec le temps, le spectre en énergie évoluant lui-même avec le temps.

2.3 Méthodes et évolution standard dans MURE

2.3.1 Equations de Bateman

Différentes voies sont possibles pour créer ou faire disparaître un noyau sous irradiation d'un flux neutronique. Il s'agit essentiellement de captures neutroniques, de fissions, de désintégrations radioactives et de réactions (n,2n). Les équations de Bateman traduisent la variation du nombre de noyaux d'un isotope donné², en fonction de ce qui est produit et de ce qui est détruit. Ce sont des équations différentielles du premier ordre, de la forme suivante, dans une cellule donnée :

$$\frac{dN_i}{dt} = \underbrace{-\sigma_i^{abs}\Phi N_i + \sum_{j \neq i} \sigma_{j \rightarrow i} \Phi N_j}_{\text{réaction}} - \underbrace{\lambda_i N_i + \sum_j \lambda_{j \rightarrow i} N_j}_{\text{décroissance}} \quad (2.9)$$

où :

- N_i est le nombre de noyaux i ;
- $\Phi \sigma_i^{abs}$ est le taux de réaction moyen d'absorption du noyau i ;
- $\Phi \sigma_{j \rightarrow i}$ est le taux de réaction moyen du noyau j de la réaction produisant i ;
- λ_i est la constante de décroissance totale du noyau i ;
- $\lambda_{j \rightarrow i}$ est la constante de décroissance du noyau j sur le noyau i .

Les deux premiers termes correspondent aux réactions neutroniques (capture, fission, ...) et les deux derniers aux décroissances naturelles des noyaux. L'approche générale pour la résolution de ces équations, représentant l'évolution d'un ensemble N_i de noyaux, implique la définition d'une matrice d'évolution pour chaque cellule évoluant. Pour simuler l'évolution du combustible, il faut résoudre numériquement le système d'équations de Bateman dans chaque cellule évoluant. Une méthode Runge-Kutta d'ordre 4 à pas variable a été choisie pour son efficacité.

Ces équations peuvent s'écrire sous forme matricielle, comme une matrice carrée A de dimension n , où n est le nombre de noyaux qui évoluent dans la cellule [28] :

$$\frac{d\vec{N}(t)}{dt} = A\vec{N}(t) \quad (2.10)$$

avec $\vec{N}(t)$ le vecteur des nombres de noyaux dans la cellule :

$$\vec{N}(t) = \begin{pmatrix} N_1(t) \\ \dots \\ N_j(t) \\ \dots \\ N_{n-1}(t) \\ N_n(t) \end{pmatrix} \quad (2.11)$$

²Les isomères sont aussi pris en compte.

Les éléments de la matrice sont :

$$A_{ii} = -\lambda_i - \sigma_i^{abs}\Phi \quad (2.12)$$

$$A_{ij} = \sigma_{j \rightarrow i}\Phi + \lambda_{j \rightarrow i} \quad (2.13)$$

où A_{ii} représente la disparition du noyau i et A_{ij} la création du noyau i par réaction nucléaire sur j ($\sigma_{j \rightarrow i}\Phi$) et par décroissance naturelle ($\lambda_{j \rightarrow i}$) [33].

Du fait de l'évolution du combustible, la forme du spectre va être modifiée, et par conséquent les sections efficaces moyennes vont aussi changer. Au cours du temps, la distribution spatiale du flux va également varier. σ et Φ ne sont donc pas des constantes en fonction du temps et l'équation 2.9 s'écrit en fait :

$$\frac{dN_i}{dt} = \underbrace{-\sigma_i^{abs}(t)\Phi(t)N_i + \sum_{j \neq i} \sigma_{j \rightarrow i}(t)\Phi(t)N_j}_{\text{réaction}} - \underbrace{\lambda_i N_i + \sum_j \lambda_{j \rightarrow i} N_j}_{\text{décroissance}} \quad (2.14)$$

On obtient un système non linéaire. Pour pouvoir résoudre cette équation, le code MCNP est couplé à l'évolution. En effet, MCNP fournit à chaque nouvelle composition du système, la valeur du flux et des sections efficaces associée. Pour une composition du système donnée, MCNP calcule le flux et les sections efficaces. Ces deux données sont supposées constantes pendant l'intervalle de temps d'évolution sur lequel les équations de Bateman décrites par 2.9 sont résolues³. Une nouvelle composition du système est alors obtenue. De nouveau, un calcul MCNP permet de déterminer le flux et les sections efficaces prenant en compte les nouvelles concentrations des matériaux du système. Et ainsi de suite, les calculs MCNP, qui donnent $\langle \sigma \phi \rangle$ pour chaque nouvelle concentration, alternent successivement avec les intégrations des équations de Bateman, calculées avec les taux de réaction obtenus par MCNP, qui fournissent les nouvelles compositions du combustible nécessaires au calcul suivant de MCNP.

2.3.2 Schéma général d'une évolution

Un calcul d'évolution dans MURE est une succession de calculs MCNP et d'intégrations des équations de Bateman sur un intervalle de temps donné. Ce processus itératif se déroule comme suit (cf figure 2.1) :

- une fois que tous les matériaux initialement présents dans la géométrie sont définis, la liste des noyaux qui vont apparaître durant l'évolution est construite une fois pour toute au début de l'évolution : c'est ce qu'on appelle l'arbre des noyaux. Cet arbre prend en compte les différentes relations de filiation, de descendance et d'ascendance, soit par réaction nucléaire, soit par désintégration, qui peuvent exister entre les

³En réalité, si on maintient la puissance du réacteur constante, seule la section efficace est constante sur l'intervalle Δt_i , qui sépare deux calculs MCNP. Le flux, lui, est constant sur une subdivision de cet intervalle Δt_i , car Φ est renormalisé pour avoir une puissance constante (cf paragraphes 2.3.3 et 2.3.4).

différents noyaux du système. Des hypothèses simplificatrices peuvent être faites pour réduire le nombre de noyaux⁴, et par conséquent le temps de calcul [33].

- le fichier d’entrée MCNP avec la composition au temps initial t_i est construit et un calcul MCNP est exécuté (tous les tallies nécessaires pour le calcul des flux moyens et des taux de réaction dans les cellules évoluant sont construits automatiquement) ;
- les équations de Bateman sont résolues sur l’intervalle Δt_i , avec une méthode Runge-Kutta à l’ordre 4 et en utilisant les flux et les taux de réaction calculés par MCNP ;
- un nouveau fichier MCNP, avec les nouvelles compositions à $t_{i+1} = t_i + \Delta t_i$, est réalisé.

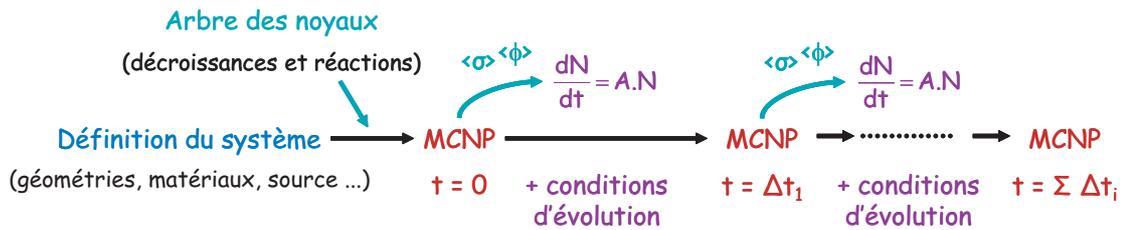


FIG. 2.1: Schéma d’un calcul d’évolution dans MURE [28]

2.3.3 Différentes discrétisation du temps dans MURE

Dans MURE, il y a trois niveaux de discrétisation du temps [28] (cf figure 2.2). Le premier définit les temps auxquels ont lieu les calculs MCNP. Le deuxième, qui est une subdivision régulière du premier niveau, permet de déterminer des instants communs à toutes les cellules pour appliquer les méthodes de contrôle de l’évolution. Le troisième est invisible à l’utilisateur et est utilisé pour l’intégration de l’équation de Bateman. Ces différents niveaux sont détaillés ci-dessous :

- Δt_i , le pas de temps MCNP : tous les Δt_i , un calcul MCNP est exécuté. Ces pas de temps sont déterminés par l’utilisateur et peuvent ne pas être constants. Durant ces intervalles, les sections efficaces σ sont considérées constantes ;
- $\delta t_i = \frac{\Delta t_i}{N_{RK}}$, la discrétisation de l’intervalle Δt_i : chaque Δt_i est divisé en N_{RK} pas de temps égaux (pas RK). Par défaut, le nombre de pas N_{RK} est fixé à 10 . A chaque temps $t_i = \delta t_i \times i$, les équations de Bateman sont construites avec des taux de réaction donnés. Les méthodes de contrôle de l’évolution peuvent être appelées à ces temps. Les taux de réaction donnés seront fonction de la méthode de contrôle choisie : si on opte pour un contrôle de l’évolution à puissance constante, le flux moyen sera renormalisé à chaque δt_i . Le flux est considéré comme constant sur l’intervalle δt_i ;
- dt_i , une subdivision de l’intervalle δt_i qui est automatiquement construite par la méthode d’évolution Runge-Kutta d’ordre 4 à pas variable. Durant cet intervalle, les

⁴Simplification par temps de demi-vie minimum (par défaut dans MURE : 1 h), simplification des réactions dont la section efficace est jugée trop peu significative, simplification par absence de données.

sections efficaces microscopiques et les flux sont gardés constants. Ces intervalles δt_i ne sont pas nécessairement les mêmes selon les cellules considérées.

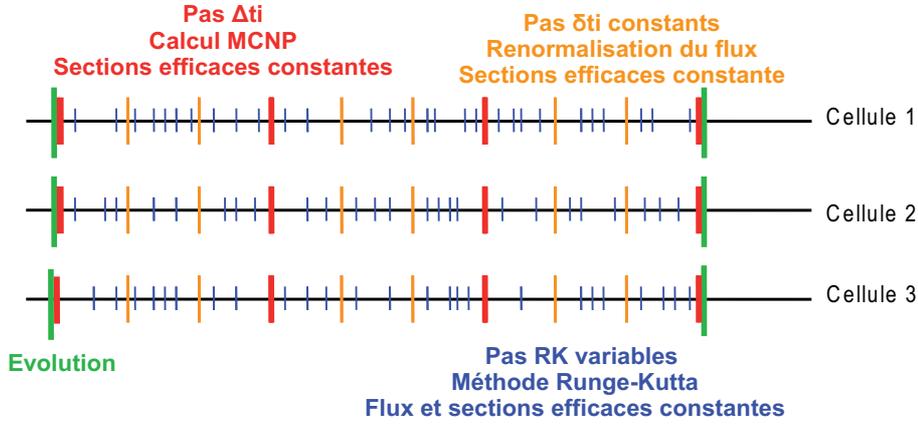


FIG. 2.2: Découpage temporel dans MURE

2.3.4 Contrôle de l'évolution

L'évolution dans MURE peut se faire avec différents paramètres de contrôle définis par l'utilisateur, comme l'ajustement régulier de la valeur du flux à intervalles de temps égaux choisis suffisamment petits (pas RK : δt_i) pour maintenir la puissance du réacteur constante, ou la mise en œuvre d'un rechargement combustible avec des temps de rechargement et de refroidissement associés (voir chapitre 3), etc ...

Tous les calculs d'évolution présentés ici seront effectués à puissance constante. Entre deux calculs MCNP, la concentration des noyaux varie, ce qui entraîne une évolution de la puissance sur l'intervalle Δt_i . Par conséquent, pour maintenir une puissance constante, le flux moyen doit être renormalisé. Les instants auxquels a lieu cette renormalisation sont les pas de temps δt_i , qui sont définis précisément pour pouvoir recalculer le flux dans toutes les cellules à des instants communs. Les sections efficaces sont constantes sur l'intervalle de temps Δt_i , le flux est constant sur l'intervalle de temps δt_i : les taux de réaction sont donc constants sur δt_i .

Pour ramener les grandeurs utiles à leurs valeurs correspondantes à la puissance souhaitée, il faut les normaliser par un facteur α_{norm} correspondant à cette puissance. MCNP calcule des flux neutroniques normalisés par neutron source ϕ_{mcnp} . A chacun de ces pas δt_i , le taux global de fissions par neutron source est calculé, en sommant les taux partiels de fission par neutron source pour tous les noyaux de toutes les cellules. Cela revient à calculer une puissance par neutron source P_{mcnp} :

$$P_{mcnp} = \sum_i \sum_j \sigma_i^{j, fis} N_i^j Q_i \phi_{mcnp}^j \quad (2.15)$$

où $\sigma_i^{j, fis}$ est la section efficace de fission de l'isotope i dans la cellule j , N_i^j le nombre d'atomes de l'isotope i dans la cellule j , Q_i la chaleur dégagée par la réaction de fission de l'isotope i et Φ^j le flux dans la cellule j . Le facteur de normalisation α_{norm} à la puissance thermique P souhaitée s'exprime alors comme :

$$\alpha_{norm} = \frac{P}{P_{mcnp}} \quad (2.16)$$

Par conséquent, à chacun des pas RK, la matrice d'évolution (cf paragraphe 2.10) est réécrite et résolue en considérant la nouvelle normalisation du flux.

2.4 Optimisation de l'évolution dans MURE

Les calculs Monte Carlo permettent de simuler des géométries complexes de systèmes nucléaires de façon exacte, mais sont très gourmands en temps de calcul. En outre, la connaissance de la propagation des erreurs statistiques est un point essentiel lors de couplage de différents codes de calcul (c'est le cas du code MURE qui associe un code Monte Carlo et un code d'évolution). Dans cette section, nous nous efforçons de quantifier la propagation de l'erreur statistique sur les taux de réaction intrinsèques à la méthode Monte Carlo lors de l'évolution d'un assemblage ; nous détaillons la mise en place d'une méthode permettant de réduire le temps de calcul (méthode *multigroupe* [34]) et nous étudions la sensibilité de cette méthode sur une évolution cœur ; enfin, nous présentons une comparaison d'évolutions cœur réalisées avec et sans l'utilisation d'une méthode prédicteur-correcteur pour quantifier le gain de précision apporté par ce procédé. Le but de ces méthodes est de trouver un compromis acceptable entre le temps de calcul et la précision des résultats recherchée.

2.4.1 Propagation de l'erreur statistique sur un assemblage

Dans MURE, comme nous venons de le voir, une évolution *standard* est une succession d'exécutions de calculs MCNP et d'intégrations des équations de Bateman sur un intervalle de temps donné. Dans le but d'évaluer la propagation de l'erreur statistique, une évolution de 5 ans sur le même assemblage combustible de RNR-Na, à combustible U/Pu (Pu-MOX refroidi 30 ans) sans actinides mineurs au démarrage⁵, avec les mêmes conditions initiales, est réalisée 50 fois avec 50 germes aléatoires différents. L'évolution est réalisée avec 10000 particules par cycle, 100 cycles inactifs et 200 cycles actifs. Une source de fission stabilisée est utilisée comme source initiale⁶. La dispersion sur les inventaires (cf figures 2.6 et 2.7) et les sections efficaces microscopiques moyennes (cf figures 2.9 et 2.8) a été calculée à la fin de l'évolution. Par exemple, pour calculer la dispersion sur la masse de ²³⁹Pu en fin d'évolution, la valeur de la masse du ²³⁹Pu (cf figure 2.6), à ce temps et pour chaque

⁵Voir caractéristiques de l'assemblage dans le chapitre 3.

⁶Cette source a été calculée avec 2000 cycles actifs, 300 cycles inactifs et 5000 particules par cycle : trois calculs MCNP ont été effectués en prenant à chaque fois la nouvelle source obtenue.

évolution, est placée dans un histogramme. Pour chaque noyau, la valeur moyenne (μ) et l'écart type (σ) de l'histogramme sont récupérés. La dispersion est alors calculée comme $\frac{\sigma \times 100}{\mu}$. Elle est ensuite placée dans la figure 2.6, en fonction de la masse atomique.

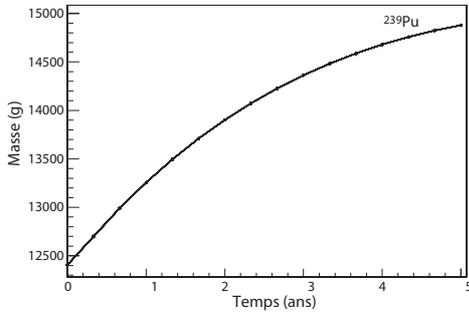


FIG. 2.3: 50 évolutions de la masse du ^{239}Pu avec 50 germes aléatoires différents

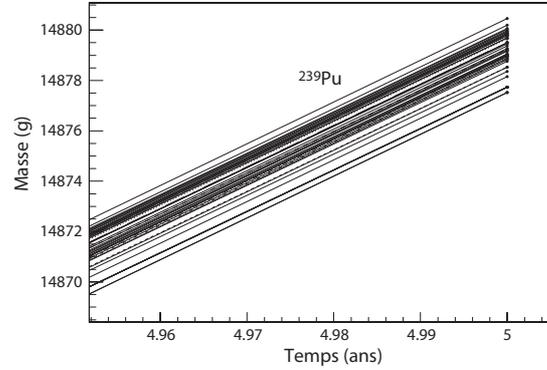


FIG. 2.4: Zoom de la masse des 50 évolutions de la masse du ^{239}Pu

FIG. 2.5: Propagation de l'erreur statistique

La première observation que l'on peut faire est que l'erreur statistique est inférieure à 1 % (cf figure 2.6) pour quasiment tous les noyaux. Parmi les noyaux les plus abondants, la dispersion du ^{237}Np fait partie des plus élevées du fait que ce noyau est produit par réaction (n,2n), qui est une réaction à seuil (autour de 5 MeV), et donc, par des neutrons de très haute énergie. Ces neutrons sont peu produits par les fissions, et de plus, survivent très peu de temps au-dessus du seuil (n,2n), puisqu'ils perdent beaucoup d'énergie lors des premières diffusions inélastiques qui dominent dans cette gamme d'énergie. Du fait du nombre plus réduit des neutrons à haute énergie, l'erreur statistique sur le taux de réaction (n,2n) est plus grande.

La seconde observation est que la dispersion augmente avec le nombre de masse A, du fait de l'accumulation des erreurs statistiques avec les captures neutroniques successives. Cela s'observe à partir du ^{242}Pu jusqu'aux isotopes du californium (cf figure 2.7). Néanmoins, les erreurs observées restent raisonnables (inférieures à 0.2 % pour les noyaux les plus abondants, cf figure 2.7) et des évolutions avec plus de statistiques peuvent être réalisées. Seuls le ^{247}Cf et le ^{247}Bk ont respectivement des dispersions de l'ordre de 9 % et 3 % (cf figure 2.6). Cela provient de l'accumulation des erreurs lors des captures successives pour arriver à la formation de ces noyaux. Il est à noter que pour un assemblage de REP [33], la dispersion relative après une évolution est légèrement plus élevée que pour le cas de notre assemblage RNR, ce qui est sans doute dû aux effets d'auto-absorption et aux variations du spectre, moins importants en spectre rapide. Enfin, les incertitudes statistiques restent en général largement inférieures aux erreurs provenant des incertitudes sur les données nucléaires, notamment les sections efficaces [35].

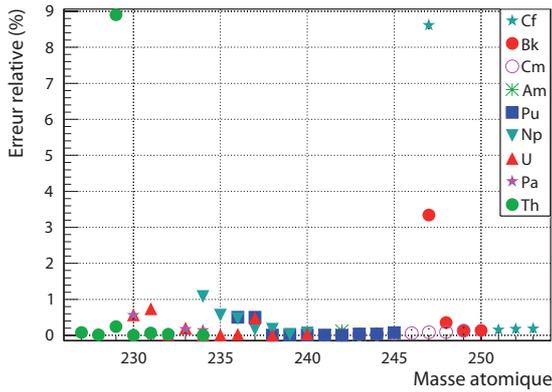


FIG. 2.6: Dispersion de l'inventaire en masse des principaux noyaux en fonction de la masse atomique à $t = 5$ ans pour un assemblage RNR-Na

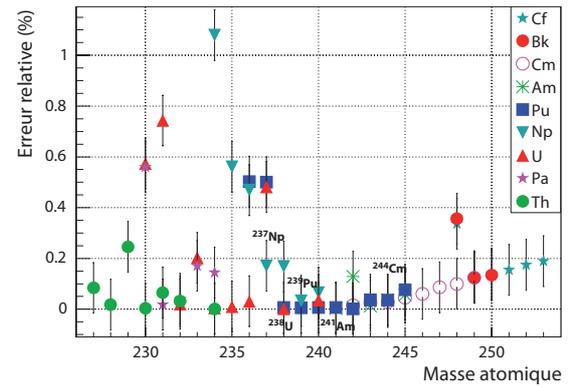


FIG. 2.7: Zoom de la dispersion de l'inventaire des principaux noyaux à $t = 5$ ans en fonction de la masse atomique

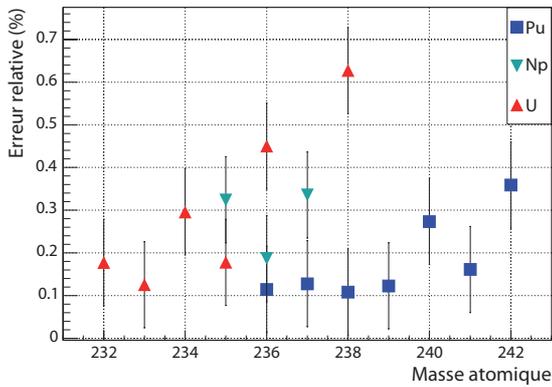


FIG. 2.8: Dispersion des sections efficaces de fission en fonction de la masse atomique à $t = 5$ ans pour un assemblage RNR-Na

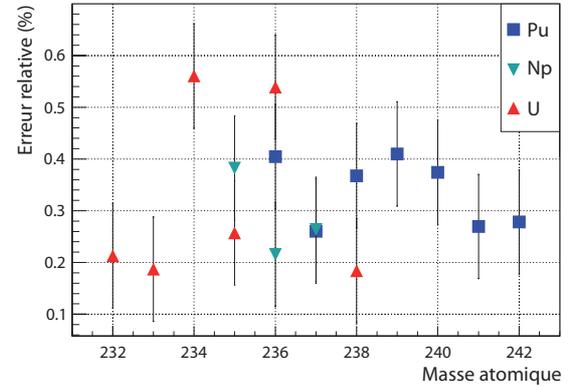


FIG. 2.9: Zoom de la dispersion des sections efficaces de capture à $t = 5$ ans en fonction de la masse atomique

2.4.2 Accélération du calcul Monte Carlo

Principe de l'approche multigroupe

Lors d'une évolution *standard*, MCNP calcule à chaque collision de chaque neutron dans chaque cycle actif le flux et les taux de réaction nécessaires à la résolution des équations de Bateman. Le nombre très important de tallies nécessaires pour extraire ces taux de réaction (1 tally de flux associé à 1 tally multiplicateur) est très coûteux en temps de calcul, et ce d'autant plus qu'il faut rechercher les sections efficaces de chaque noyau évoluant sur l'intervalle d'énergie considéré et les interpoler pour les obtenir à l'énergie voulue.

Pour réduire ce temps de calcul, une des solutions est d'optimiser le processus du calcul

du taux de réaction en réduisant le nombre de recherche de sections efficaces à l'énergie adéquate. Au lieu d'incrémenter les tallies précédents pour le calcul des taux de réaction à chaque interaction, on construit seulement un spectre en énergie pour chaque cellule dans MCNP, ce qui impose un découpage énergétique explicite : on travaille alors sur des groupes d'énergie et non plus en ponctuel, c'est la méthode *multigroupe*. Ainsi, on s'affranchit à la fois du tally multiplicateur, de la recherche de la section efficace et de son interpolation à chaque collision de chaque neutron dans chaque cycle actif. Les taux de réactions sont alors calculés en dehors de MCNP par MURE, une fois la simulation neutronique terminée. Pour chaque cellule, on calcule le taux de réaction une seule fois, et non plus à chaque collision qui a lieu dans la cellule, pour chaque cycle actif et pour chaque neutron qui traverse la cellule. Le nombre de recherches de la section efficace à l'énergie E est au plus égale au nombre de bins du découpage, pour une cellule donnée, quelque soit le nombre de particules injectées dans le système, le nombre de cycles actifs, et le nombre collisions qui a pu avoir lieu dans la cellule. Il faut bien noter que le transport des particules reste le même qu'en méthode standard, et que le k_{eff} est toujours calculé en énergie continue : seule la manière de calculer le flux et les taux de réaction intervenant dans les équations de Bateman sont approximés.

Le choix des frontières des groupes et du nombre de groupes est important : un nombre suffisant de groupes doit être choisi pour représenter correctement les effets d'auto-protection. Du fait du grand nombre de ses résonances et de ses variations d'amplitude importantes, la section efficace de capture de ^{238}U (cf figure 2.10) a été choisie pour définir le découpage en énergie, qui est représenté dans le tableau 2.1. Par défaut, 17 900 groupes d'énergie sont définis. Ce nombre peut être augmenté pour améliorer la précision du calcul.

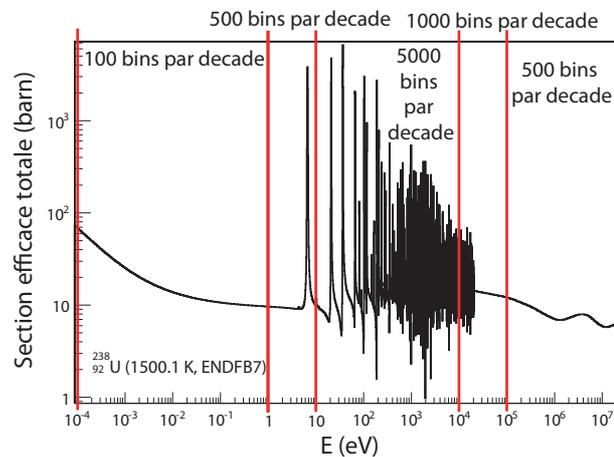


FIG. 2.10: Découpage énergétique sur la section efficace totale de ^{238}U (1500 K, base ENDFB-7)

Le principal avantage de cette méthode est le gain en temps CPU : un gain d'un facteur 20 environ (cf tableau 2.7). La précision des résultats est satisfaisante pour les systèmes

Energie	10^{-4} eV-1 eV	1 eV-10 eV	10 eV-10 keV	10 keV-0.1 MeV	0.1 MeV-20 MeV
Bins par décade	100	500	5 000	1 000	500

TAB. 2.1: Nombre de bins par décade du flux en fonction des groupes d'énergie [28]

thermiques, l'erreur relative étant d'environ de 1 % comparée à une évolution standard [36], et une étude de sensibilité de cette erreur pour les réacteurs rapides est présentée dans le paragraphe suivant.

Etude de sensibilité sur un calcul cœur en méthode multigroupe

Idéalement, il serait intéressant de calculer la dispersion sur un grand nombre d'évolutions *standards* et de voir si la dispersion *multigroupe* obtenue par l'évolution cœur multigroupe est cohérente avec la dispersion *standard*. Cependant, le temps nécessaire pour réaliser 50 évolutions *standards* pour un cœur complet est trop long. Pour ces raisons pratiques, le processus a été inversé.

Niveau assemblage

L'équivalence entre la dispersion *standard* et la dispersion *multigroupe* est d'abord vérifiée au niveau assemblage. La figure 2.11 montre que l'erreur statistique pour les noyaux les plus abondants est inférieure à 0.2 % avec les deux méthodes. Pour ces noyaux, la dispersion est plus faible dans le cas *multigroupe* (cf figure 2.11). La dispersion de ces noyaux sera donc moins étalée et la contrainte sera plus sévère sur le calcul d'écart entre les 50 évolutions cœur *multigroupe* et l'évolution *standard*.

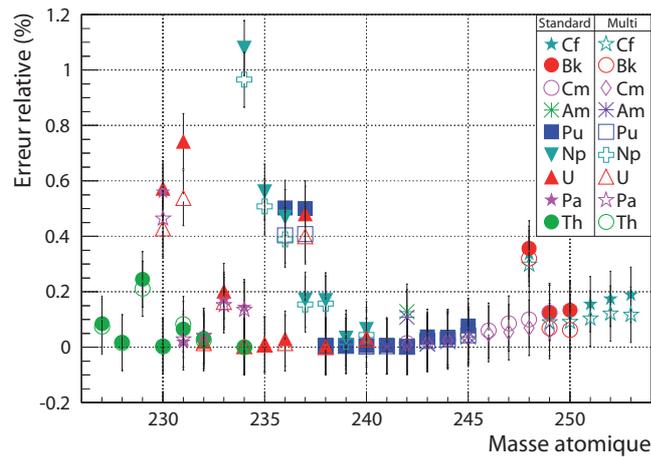


FIG. 2.11: Comparaison de la dispersion pour un assemblage RNR-Na en méthodes *standard* (plein) et *multigroupe* (vide)

Niveau cœur

Pour étudier la compatibilité de la dispersion statistique de l'évolution cœur *multigroupe* avec l'écart entre les deux méthodes, le réacteur à neutrons rapides à caloporteur sodium (RNR-Na) décrit dans le chapitre 3 est considéré. 50 évolutions indépendantes avec la méthode *multigroupe* (17900 groupes) sont réalisées, permettant ainsi le calcul de la dispersion. Une évolution cœur *standard* est réalisée pour fournir une estimation de l'écart entre les deux méthodes. Pour voir si l'erreur est compatible avec la dispersion, l'écart entre l'inventaire moyen d'un noyau calculé d'après le résultat des 50 évolutions *multigroupes* et l'inventaire du même noyau en évolution *standard* est calculé en fin d'évolution (tableau 4.1). Le même procédé est mis en œuvre pour les sections efficaces (tableau 2.3).

Noyaux	Dispersion (%)	Ecart (%)
^{238}U	0.002	-0.048
^{238}Pu	0.026	0.501
^{239}Pu	0.022	0.401
^{240}Pu	0.006	-0.021
^{241}Pu	0.022	-0.001
^{242}Pu	0.007	0.013
^{241}Am	0.056	0.103
^{243}Am	0.100	-0.142
^{244}Cm	0.062	0.571
^{237}Np	0.273	0.509

TAB. 2.2: Dispersion statistique à $t = 5$ ans des 50 évolutions cœur en *multigroupe* sur l'inventaire en masse et écart avec l'évolution *standard* pour les principaux noyaux

Noyaux	Dispersion (%)	Ecart (%)
^{238}U (n, γ)	0.095	0.468
^{239}Pu (n,fis)	0.033	-0.1190
^{240}Pu (n, γ)	0.064	-0.107
^{241}Pu (n,fis)	0.069	-0.069

TAB. 2.3: Dispersion statistique à $t = 5$ ans des 50 évolutions cœur en *multigroupe* sur les sections efficaces microscopiques et écart avec l'évolution *standard* pour les principaux noyaux

Même si l'écart entre les 50 calculs d'évolution *multigroupe* et le calcul *standard* est plus important que la dispersion statistique (cf tableaux 2.2 et 2.3), il reste néanmoins inférieur à 1 %. Les écarts les plus importants se retrouvent sur les noyaux produits par des réactions à seuil (^{237}Np , plus faible statistique de neutrons) et les noyaux produits par

captures successives ce qui entraîne une accumulation de l'erreur (^{244}Cm et ^{238}Pu produit par décroissance α du ^{242}Cm en 163 jours).

En outre, si le nombre de groupes est doublé (augmenté de 17 900 groupes à 35 800 groupes), l'écart est diminué de plus d'un facteur 2 (cf figure 2.12) sur l'inventaire du ^{239}Pu en fin d'évolution. Cependant, si le nombre de groupes est de nouveau multiplié par deux (de 35 800 groupes à 71 600 groupes), le gain obtenu sur l'écart est alors seulement de 0.1 % : il n'est donc pas nécessaire d'augmenter le nombre de groupes initial plus de deux ou trois fois. De plus, l'écart sur la valeur de l'inventaire du ^{239}Pu en fin d'évolution, entre la méthode *standard* et les méthodes *multigroupes* (17 900, 35 800 et 71 600 groupes), même s'il n'est pas compris dans la dispersion statistique, reste inférieur au pourcent (cf tableau 2.4).

Les écarts entre les méthodes *standard* et *multigroupe* sont principalement dus au fait que dans la méthode *multigroupe*, les traitements par MCNP des résonances non résolues (au-delà de 2 keV, le seuil dépendant des noyaux⁷) via les tables de probabilité ne sont plus utilisés pour le calcul des taux de réaction (du fait de l'implémentation de la méthode) : cela a un impact plus grand pour les réacteurs rapides (cf Chapitre 4, paragraphe 4.2.3), mais dans le cas des réacteurs thermiques, des écarts entre les méthodes *standard* et *multigroupe* peuvent aussi apparaître, provenant eux, du traitement de l'autoprotection pour le calcul des taux de réaction, utilisés dans les équations de Bateman⁸.

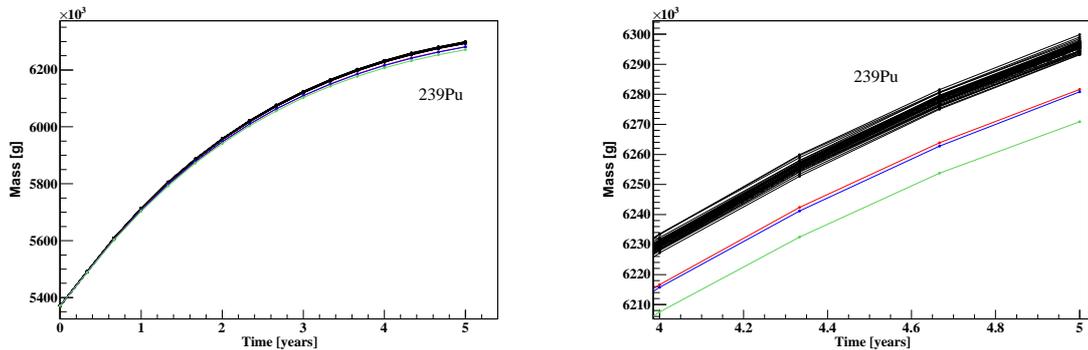


FIG. 2.12: Evolution de la masse du ^{239}Pu pour 50 évolutions à 17 900 groupes (noir), 1 évolution à 35 800 groupes (rouge), 1 évolution à 71 600 groupes (bleu) et 1 évolution standard (vert)

2.4.3 La méthode prédicteur-correcteur

Désormais, tous les calculs effectués, cœur ou assemblage, seront réalisés avec la méthode *multigroupe* avec 17 900 groupes.

⁷Pour ENDFB-VI : [2.25 keV ; 25 keV] pour l' ^{235}U , [10 keV ; 149.03 keV] pour l' ^{238}U et [2.5 keV ; 30 keV] pour le ^{239}Pu [29].

⁸Le transport est effectué en continu et l'autoprotection est donc prise en compte pour le calcul du k_{eff} .

Nombre de groupes	Masse (kg)	Ecart (%)
17 900 (50 évolutions)	6 296	0.40
35 800	6 282	0.17
71 600	6 281	0.16
Standard	6 271	/

TAB. 2.4: Ecart sur l'inventaire du ^{239}Pu en fin d'évolution pour différents nombre de groupes

Principe de la méthode prédicteur-correcteur

Pour améliorer la résolution de l'équation non linéaire 2.14, une approche avec une méthode prédicteur-correcteur peut être utilisée [37]. Dans MURE, l'évolution est réalisée par défaut en utilisant des sections efficaces moyennes constantes entre deux calculs MCNP aux temps T_N et T_{N+1} . Les méthodes prédicteur-correcteur (PC) permettent en théorie d'améliorer la précision ou d'augmenter l'intervalle de temps entre deux calculs MCNP pour une même précision et ainsi de diminuer le temps de calcul. Plusieurs types de méthodes PC sont implémentées dans MURE ; cependant, cette étude concerne uniquement la méthode PC en fin de pas (PCE), qui s'est avérée la moins coûteuse en terme de mémoire [37]. Le principe général est le suivant :

- le calcul MCNP au temps T_N est réalisé et conduit au taux de réaction $(\sigma\Phi)_N^P$;
- l'évolution est réalisée jusqu'à T_{N+1} en gardant constant les taux de réaction⁹ $(\sigma\Phi)_N^P$ pour résoudre les équations de Bateman : c'est le *calcul prédicteur*. Cela nous conduit à une composition C_{N+1}^P . Avec cette composition, on réalise un calcul MCNP qui conduit à un nouveau taux de réaction $(\sigma\Phi)_{N+1}^C$ au temps T_{N+1} : c'est le *calcul correcteur* ;
- une évolution est de nouveau réalisée entre T_N et T_{N+1} , en démarrant avec la composition de T_N et les taux de réaction $(\sigma\Phi)_{N+1}^C$, et qui conduit à une composition C_{N+1}^C ; la composition utilisée pour calculer le *prédicteur* suivant (entre T_{N+1} et T_{N+2}) est :

$$C_{N+1} = \frac{C_{N+1}^P + C_{N+1}^C}{2} \quad (2.17)$$

Gain de la méthode PCE

On se propose d'évaluer le gain apporté par cette méthode, et s'il est suffisant pour envisager son emploi qui peut s'avérer coûteuse en temps, dans la mesure où deux calculs MCNP sont nécessaires à chaque temps, au lieu d'un seul dans les évolutions sans méthode PC. Pour l'étude, on utilise la même géométrie de RNR que dans le paragraphe 2.4.2. 50 évolutions indépendantes avec la méthode PCE sont réalisées permettant ainsi le calcul de la dispersion. Par conséquent, la dispersion obtenue avec la méthode PCE peut être

⁹En fait, en gardant la section efficace constante, le flux étant renormalisé tous les δ_i .

comparée à celle calculée sans méthode PCE (les 50 évolutions indépendantes faites dans le paragraphe précédent).

Noyaux	Dispersion (%) sans PCE	Dispersion (%) avec PCE	Ecart (%)
^{238}U	0.002	0.001	0
^{238}Pu	0.026	0.010	-0.011
^{239}Pu	0.022	0.009	0.037
^{240}Pu	0.006	0.002	-0.042
^{241}Pu	0.022	0.012	-0.089
^{242}Pu	0.007	0.004	-0.014
^{241}Am	0.056	0.023	-0.073
^{243}Am	0.100	0.035	0.016
^{244}Cm	0.062	0.028	-0.315
^{237}Np	0.273	0.185	0.335

TAB. 2.5: Comparaison de la dispersion statistique à $t = 5$ ans de l'inventaire des principaux noyaux avec et sans PCE

Noyaux	Dispersion (%) sans PCE	Dispersion (%) avec PCE	Ecart (%)
^{238}U (n, γ)	0.095	0.073	-0.049
^{239}Pu (n,fis)	0.033	0.017	0.013
^{240}Pu (n, γ)	0.064	0.110	0.021
^{241}Pu (n,fis)	0.069	0.063	-0.049

TAB. 2.6: Comparaison de la dispersion statistique à $t = 5$ ans des sections efficaces moyennes des principaux noyaux avec et sans PCE

La comparaison de la dispersion statistique de l'inventaire des principaux noyaux (cf tableau 2.5) montre une diminution de l'erreur statistique d'un facteur 3 au maximum. La comparaison de la dispersion statistique des sections efficaces des principaux noyaux (cf tableau 2.6) montre une diminution de l'erreur statistique d'au plus un facteur 2 pour presque tous les noyaux, excepté pour la section efficace de capture du ^{240}Pu . Le gain sur la dispersion en utilisant la méthode PCE existe, mais l'écart entre les deux méthodes (cf tableaux 2.5 et 2.6) reste inférieur à 1 % pour quasiment tous les noyaux principaux. Du fait de l'augmentation notable du temps de calcul avec la méthode PCE (un facteur 2 car un calcul MCNP prédicteur et un calcul MCNP correcteur sont nécessaires pour chaque point), cette méthode ne sera pas utilisée pour les évolutions cœur présentées dans les chapitres suivants.

2.4.4 Récapitulation de l'optimisation du temps de calcul

Dans le tableau 2.7 sont présentés les différents temps de calcul selon la méthode utilisée pour réaliser un calcul MCNP sur un assemblage avec 5 000 particules, 100 cycles actifs et 50 cycles inactifs, et en utilisant une source de fission stabilisée. Les temps sont fournis par MCNP en ctm (computer time minute). Les calculs ont été réalisés à la ferme du Centre de Calcul de l'IN2P3 de Lyon, sur 128 processeurs.

	Temps (ctm)	Rapport
Standard	41 860	1
17 900 groupes	1 922	22
35 800 groupes	1 927	22
71 600 groupes	1 942	21

TAB. 2.7: Temps de calcul selon la méthode employée

Chapitre 3

Cadre de l'étude

Dans ce chapitre, nous précisons les caractéristiques du réacteur à neutrons rapides refroidi au sodium (RNR-Na) utilisé pour les études présentées dans ce rapport. Puis, nous définissons les paramètres de sûreté et les techniques employées pour les calculer. Enfin, nous explicitons les différentes grandeurs utiles pour la quantification des déchets et leur comparaison interfilière.

3.1 Description du réacteur à neutrons rapides à caloporteur sodium étudié (RNR-Na)

Le réacteur rapide étudié est le SFR V0 du CEA, avec une puissance thermique de 3 600 MW, correspondant à une puissance électrique de 1 450 MW. Ce cœur a été conçu pour répondre aux spécifications du cahier des charges formulé par le Forum International Génération IV (GIF). Les critères majeurs de ce consortium peuvent se résumer à cinq grands enjeux : le coût, la sûreté, la gestion des déchets, l'utilisation optimale des ressources et la sécurité, incluant la protection des installations et la lutte contre les risques de prolifération [12] (cf chapitre 1).

Pour prendre en compte ces exigences, le dessin du cœur par rapport à celui du projet EFR a évolué. En effet, pour améliorer la sûreté, des modifications ont été apportées pour réduire la réactivité de vidange : le volume du sodium en cœur a été réduit et un grand volume de sodium (plenum) en sortie du circuit sodium a été mis en place pour accroître les fuites des neutrons si cette zone entrait en ébullition. Le plenum est placé au-dessus de la zone fissile et mesure 30 cm de hauteur (cf figure 3.1). Pour lutter contre la prolifération de la matière fissile, les couvertures fertiles présentes sur l'EFR ont été supprimées.

Pour la simulation, le cœur est divisée en 5 zones radiales et une zone axiale (voir figure 3.1). Dans chaque zone radiale, il y a le même nombre d'assemblages (86). Il est à noter que MURE ne permet pas encore de procéder à un rechargement avec un découpage axial du cœur. En outre, le nombre de zones d'évolution, qu'il s'agisse d'un découpage axial ou radial, est limité par le temps CPU et la mémoire. Toutes les températures sont gardées constantes durant l'évolution. La température du combustible est de 1500 K, et celle du

sodium, des gaines et des barres de contrôle et de commande est de 743 K (cf figure 3.2). Le combustible choisi pour l'étude est composé d'uranium appauvri et de plutonium issu d'un MOX qui a refroidi 30 ans (voir tableau 3.1). Une seule zone d'enrichissement est simulée pour des raisons de gestion du rechargement : la fraction volumique du Pu est de 15.09 %. Les caractéristiques des assemblages et du cœur sont données dans le tableau 3.2.

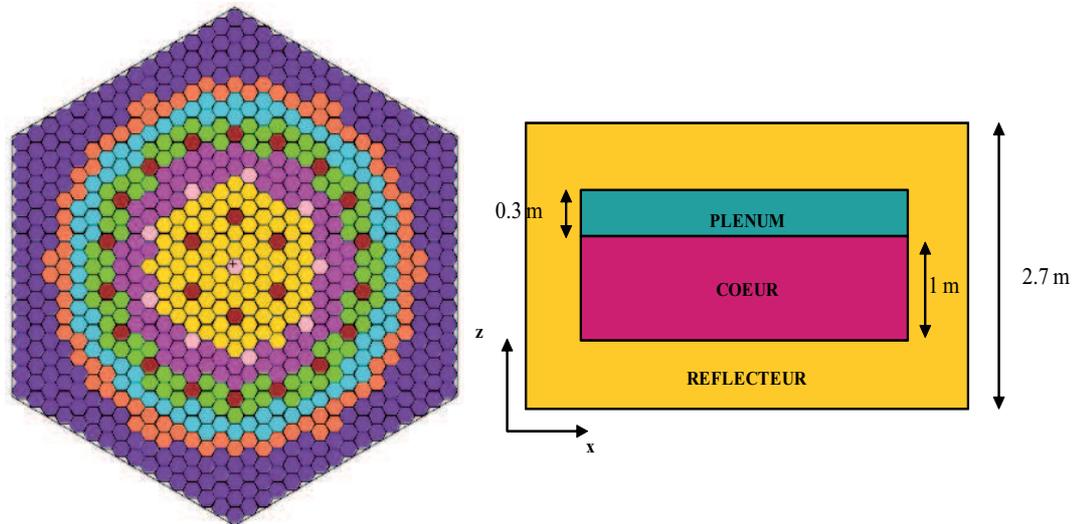


FIG. 3.1: Cœur divisé en 5 zones radiales pour rechargement du combustible (à gauche) et coupe axiale du cœur (à droite)

Noyaux	% massique
^{238}Pu	3.57
^{239}Pu	47.39
^{240}Pu	29.66
^{241}Pu	8.23
^{242}Pu	10.38
^{241}Am	0.78

TAB. 3.1: Vecteur isotopique du Pu issu d'un MOX et refroidi 30 ans

Dans les RNR-Na, l'espacement des aiguilles est assuré par la présence d'un fil en acier enroulé en hélice sur l'aiguille et soudé aux extrémités. Cela permet d'éviter que les aiguilles se touchent si la gaine se dilate et garantit également la circulation du sodium entre les aiguilles pour évacuer la chaleur. Ce fil n'est pas simulé réellement dans notre étude, mais il est pris en compte par une augmentation du rayon externe de la gaine de l'aiguille combustible.

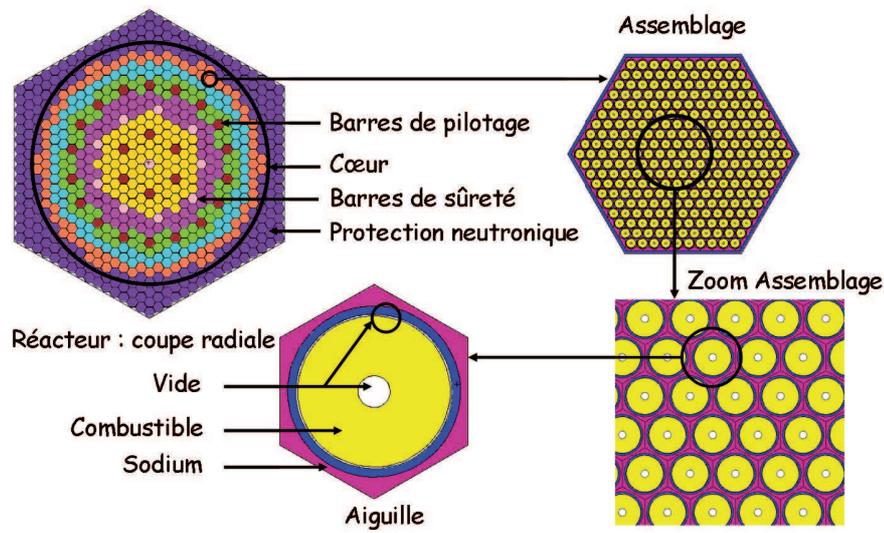


FIG. 3.2: Détails du cœur : du réacteur à l'aiguille

Puissance thermique totale (MWth)	3 600
Puissance électrique totale (MWe)	1 450
Diamètre de la pastille (mm)	9.5
Diamètre du trou central (mm)	2
Diamètre du fil espaceur (mm)	1
Nombre d'aiguilles par assemblage	271
Pas de l'assemblage (grid pitch) (mm)	206.7
Hauteur fissile (mm)	1 000
Hauteur du plénum (mm)	300
Nombre d'assemblages	430
Volume de la zone combustible (m ³)	16.12
Densité de puissance linéaire (W/cm)	306.4
Densité moyenne de puissance volumique du cœur (W/cm ³ de cœur)	221.5

TAB. 3.2: Caractéristiques du cœur et des assemblages

3.2 Paramètres de sûreté

3.2.1 Réactivité de vidange

Contrairement aux réacteurs à eau sous pression, en conditions nominales d'utilisation, les RNR ne sont pas dans leur configuration la plus réactive, et la disparition du sodium (par vidange ou ébullition) ou la compaction du cœur (par écrasement des plaquettes¹ ou par fusion et relocalisation du combustible) pourraient provoquer une brève excursion de puissance [38]. La réactivité du vide étant donc l'un des points clé à améliorer en ce qui concerne la sûreté intrinsèque des RNR, nous nous intéressons ici à quantifier cet effet.

La réactivité de vidange peut se décomposer sommairement en deux effets antagonistes. D'une part, le sodium a un pouvoir modérateur par diffusion élastique et inélastique : la perte du sodium dans le cœur va donc modifier le spectre des neutrons, qui va se durcir. Les contributions des différents noyaux vont changer. Principalement, les fissions à seuil des noyaux pairs vont augmenter (^{238}U et ^{240}Pu) et les captures diminuer (cf figure 3.3). De même, les $\nu\sigma_f$ du ^{239}Pu et du ^{241}Pu croissent fortement avec l'énergie des neutrons (cet effet est important car il est absent pour les noyaux d' ^{233}U et d' ^{235}U). En outre, la perte du sodium entraîne la disparition de son léger pouvoir capturant. Ces effets, ajoutés à la composante spectrale, donnent une contribution positive à la réactivité de vidange.

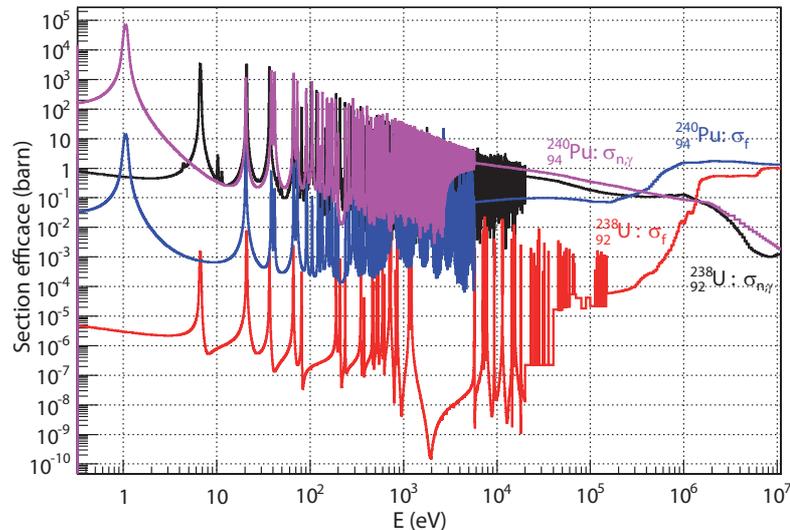


FIG. 3.3: Sections efficaces de capture et fission du ^{240}Pu et de l' ^{238}U

D'autre part, le sodium occupe une fraction importante du volume dans le cœur (plus de 26 % dans notre cas). Sa disparition rend le milieu plus transparent aux neutrons et

¹ Les assemblages du cœur possèdent sur chacune de leurs faces des plaquettes d'acier en sur-épaisseur pour réduire le « jeu inter-assemblage » au-dessus de la zone fissile pour obtenir un cœur compact.

augmente les fuites neutroniques hors du cœur. Cet effet donne une contribution négative à la réactivité de vidange.

Finalement, la réactivité du vide résulte donc de la compétition entre la composante spectrale et la composante de fuite. La première a un effet positif important, tandis que la seconde a un effet négatif, dont l'amplitude va varier selon la taille du cœur. Dans les cas de petits cœurs à faible puissance, les fuites étant considérables, la composante de fuites peut compenser celle spectrale (dans Phénix, la composante de fuite est de 2 000 pcm [39]). Cependant, dans les grands cœurs, la composante de fuites est faible (dans Superphénix, la composante de fuite n'est plus que de 1 000 pcm [39]) et la réactivité de vidange est alors positive car dominée par l'effet spectral de l'ordre de 3 500 pcm.

Dans la conception des grands cœurs isogénérateurs, une des voies pour augmenter la composante de fuites est la réduction de la hauteur du cœur (cœur galette, qui est le concept du réacteur que nous étudions) ou la réalisation de cœurs hétérogènes (cœurs modulaires par exemple [39]). L'ajout d'un plenum rempli de sodium au-dessus de la zone fissile permet aussi de favoriser les fuites neutroniques, quand ce dernier est vidangé. Il faut néanmoins garder à l'esprit qu'augmenter la composante de fuites permet certes de réduire la réactivité de vidange, mais détériore aussi le bilan neutronique.

Dans notre étude, la réactivité du vide est calculée dans le cas le plus défavorable, c'est-à-dire la situation où seule la zone fissile est vidangée. En effet, dans un tel cas, les fuites neutroniques ne sont pas augmentées par la vidange du plenum.

La réactivité de vidange est définie comme :

$$\Delta\rho = \rho_{vidange}(t) - \rho_{reference}(t) \quad (3.1)$$

où, $\rho_{vidange}(t)$ est la réactivité à l'instant t quand la zone fissile est vide de sodium et $\rho_{reference}(t)$ est la réactivité à l'instant t quand la zone fissile est remplie de sodium.

La réactivité du vide exprimé en \$, $\rho(\$)$, est aussi calculée. Cette grandeur correspond au ratio entre la réactivité du vide en pcm, explicitée ci-dessus, divisée par la fraction effective des neutrons retardés β_{eff} explicitée au paragraphe 3.3. L'effet des neutrons retardés consiste à ralentir le taux de changement de puissance de manière suffisamment lente lors de l'ajout de petites variations de réactivité, pour permettre le pilotage du réacteur. Il faut veiller à ne pas introduire une réactivité excessive dans le cœur, parce qu'au-delà de 1 \$, le réacteur se comporte comme s'il n'y avait pas de neutrons retardés.

3.2.2 Coefficient Doppler

Ce coefficient de contre-réaction élémentaire, qui est une résultante directe de la variation de température du combustible et de l'élargissement Doppler des résonances aux basses énergies, est moins important dans les réacteurs rapides (aux alentours de -1 pcm/°C) que dans les réacteurs thermiques (-3 pcm/°C) [40], puisque seule une proportion assez faible des neutrons atteint le domaine des résonances à basse énergie (quelques eV). La contribution majeure à l'effet Doppler dans les RNR à combustible oxyde provient de la capture sur l' ^{238}U , ce qui conduit à un coefficient Doppler négatif. La fission du ^{239}Pu

et les captures sur le ^{239}Pu et le ^{240}Pu ont aussi un impact mais de moindre importance [41]. Il est à noter que l'effet positif de la fission du ^{239}Pu l'emporte sur la capture de ce même noyau [40]. Pour les combustibles oxyde et nitrure, on observe que la variation $\frac{d\rho}{dT}$ se comporte comme $\frac{1}{T}$; on définit alors la constante Doppler K_D comme [41] :

$$\frac{d\rho}{dT} = \frac{K_D}{T} \quad (3.2)$$

où T est la température du combustible. Lors d'un changement de température uniforme du combustible de T_0 à T_1 , l'effet de réactivité Doppler peut être calculé comme :

$$\rho_1 - \rho_0 = \int_{T_0}^{T_1} \frac{K_D}{T} dT = K_D \ln\left(\frac{T_1}{T_0}\right) \quad (3.3)$$

La constante Doppler se calcule pour un couple de températures données (T_0 et T_1) et son expression, donnée en pcm, est :

$$K_D = \frac{\rho_1 - \rho_0}{\ln\left(\frac{T_1}{T_0}\right)} \quad (3.4)$$

Le coefficient Doppler est obtenu en linéarisant l'équation 4.25 autour d'une température donnée ; il est donné en pcm/K :

$$\alpha_D(T) = \frac{K_D}{T} \quad (3.5)$$

3.2.3 Autres coefficients de température

Les détails des expressions de ces contre-réactions sont décrits dans les références [38, 42, 43], le but de ce paragraphe étant seulement d'éclairer le lecteur sur l'ensemble des contre-réactions thermiques susceptibles de se produire au sein d'un RNR.

D'autres effets de température, en dehors du coefficient Doppler (cf paragraphe 3.2.2), existent dans un réacteur. Toutefois, le coefficient Doppler est le seul à être une résultante directe de la variation de température : la modification de la température influence directement les sections efficaces moyennes dans le combustible.

Ces autres coefficients de contre-réaction thermique, eux, résultent indirectement de la variation de température par effet de dilatation, qui va entraîner des modifications de la géométrie et des compositions volumiques des milieux et des structures. Ces effets peuvent être classés en deux catégories : les effets locaux et les effets globaux.

Effets locaux

- effet de dilatation volumique du sodium : les phénomènes physiques en jeu sont les mêmes que pour l'effet de vidange du sodium, car dilater un matériau (un liquide en particulier) est une façon de créer du vide. Toutefois, cet effet est beaucoup plus faible en valeur absolue que celui de la vidange complète ;

- effet de dilatation radiale des gaines et des tubes hexagonaux : par échauffement, le volume d’acier va se dilater et va chasser du sodium hors du cœur, ce qui diminue la concentration d’atomes de sodium en cœur, le volume du sodium diminuant (la densité du sodium reste la même) ;
- effet de dilatation axiale des gaines et des tubes hexagonaux : cela diminue l’inventaire d’acier en cœur, ce qui a un impact sur le spectre, les captures et les fuites ;
- effet de dilatation axiale du combustible : l’inventaire en combustible, et par conséquent en matière fissile, est diminué. Cet effet peut être traité dans deux cas, qui encadrent les différentes situations que l’on peut rencontrer au cours de l’irradiation :
 - combustible libre : en début d’irradiation, le combustible peut se dilater librement à l’intérieur de sa gaine, et sa dilatation est fonction de sa propre température ;
 - combustible lié à la gaine : au cours de l’irradiation, le combustible se dilate et rattrape le « jeu de fabrication », c’est-à-dire remplit l’interstice libre entre la pastille combustible et la gaine : la dilatation du combustible suit alors la dilatation de la gaine qui est fonction de sa température, elle-même pilotée par la température du sodium.

Les trois premiers effets, qui se rapportent tous à la température du sodium, ont un effet global positif sur les grands cœurs. Le dernier effet a une contribution négative quelle que soit la taille du cœur considéré.

Effets globaux

Ces effets sont dus aux déformations globales du cœur. Les assemblages sont mécaniquement liés entre eux à deux niveaux : au niveau du sommier, sur lequel ils sont posés, et au niveau des plaquettes, qui maintiennent l’écartement des assemblages dans leur partie haute. Il existe un troisième effet qui lui ne dépend pas seulement des températures du cœur, mais aussi des températures de la cuve principale et des barres de contrôle (tiges des barres comprises).

- effet sommier : sa dilatation écarte les assemblages les uns des autres. L’espace supplémentaire introduit est occupé par du sodium. Cela entraîne une augmentation du volume du cœur, une diminution de la concentration du combustible et de l’acier, et une augmentation de la masse de caloporteur contenue dans le cœur. Cet effet est piloté par la température d’entrée du sodium et apporte une forte contribution négative ;
- effet plaquettes : le retour d’expérience de Superphénix tend à considérer cet effet comme négligeable ;
- effet de dilatation différentielle cœur-cuve-barres de commandes : il résulte de la variation de l’enfoncement des barres de commande dans le cœur quand les trois structures se dilatent. Par exemple, si le sodium s’échauffe à l’intérieur du cœur, mais que sa température d’entrée reste constante, la cuve conserve ses dimensions, alors que la dilatation des tiges des barres de commandes entraîne une augmentation de l’enfoncement des barres ce qui provoque une baisse de réactivité. Cet effet

intervient tardivement par rapport aux autres contre-réactions car un certain temps est nécessaire pour que le sodium chauffé arrive jusqu'aux tiges [38]. Si le cœur se dilate axialement, l'enfoncement relatif des barres varie et entraîne une insertion négative de réactivité. Quand la température à l'entrée du cœur, qui gouverne la dilatation de la cuve, augmente, la côte du cœur mesurée par rapport au point d'accroche de la cuve augmente aussi, ce qui entraîne une diminution de l'enfoncement relatif des barres, et donc un effet de réactivité positif.

3.2.4 Indicateur

Comme dit précédemment, l'idéal serait d'obtenir un effet de vidange inférieur à 1 \$ afin d'avoir le temps d'intervenir en cas de perte du sodium. Pour atteindre ce but, l'effet Doppler, qui est la contre-réaction associée à l'augmentation de température du combustible, peut être utilisé. L'effet Doppler peut être considéré comme suivant presque immédiatement l'augmentation de puissance, et par conséquent, permet de contrer la réactivité relative à la vidange. Un indicateur supplémentaire du niveau de sûreté du cœur peut par conséquent être défini : la capacité du cœur à éliminer l'effet positif de la réactivité due à la vidange via l'effet Doppler [39] :

$$I = \text{réactivité de vidange} - \text{réactivité Doppler} (T_{fusion} - T_{operation}) \quad (3.6)$$

Le but est d'obtenir une valeur de I la plus proche de 0 possible. Ce paramètre est uniquement un indicateur de tendance car le comportement des transitoires est un processus complexe, mettant en compétition plusieurs paramètres qui ont chacun des amplitudes et des comportements cinétiques différents. Grossièrement, si I est négatif, le réacteur redevient sous critique avant d'avoir fondu le combustible, mais il ne s'agit pas du tout d'une assurance de la sûreté du réacteur.

Il est à noter que l'ensemble de ces paramètres décrits dans le paragraphe 3.2 permettent d'obtenir des indications sur les tendances du comportement des RNR-Na dans des situations anormales de fonctionnement. Cela étant, pour quantifier correctement les aspects de sûreté des RNR-Na, il faut mener des études de transitoires complètes et évaluer leur probabilité d'occurrence, ce qui n'est pas l'objet de ce rapport.

3.3 Neutrons retardés

La plupart des neutrons émis par fission le sont quasiment instantanément (10^{-14} s) : ce sont les neutrons dits prompts. Néanmoins, il existe une faible proportion de neutrons, dits retardés, qui sont émis avec un certain délai après la fission. Ce retard d'émission est dû au comportement particulier de certains produits de fission. En effet, parmi les fragments de fission, qui sont pour la plupart instables, un certain nombre sont des précurseurs de neutrons retardés car ils peuvent émettre des neutrons à la suite d'une désintégration β^- . Le délai entre la fission et l'apparition du neutron est alors de l'ordre de la période de

désintégration β^- , qui peut varier entre quelques millisecondes et quelques secondes, voire quelques minutes.

Les processus d'émission de neutrons retardés sont tous du même type : un fragment de fission riche en neutrons, appelé précurseur, décroît par radioactivité β^- , produit également un noyau excédentaire en neutrons, qui est dans un état suffisamment excité, pour émettre immédiatement un neutron, au lieu de se désexciter par l'émission d'un gamma. Ce nouveau noyau est alors appelé émetteur. En pratique, ces processus sont répartis en six groupes de neutrons retardés, selon la proportion des neutrons retardés et la constante de décroissance radioactive du précurseur.

Les neutrons retardés sont émis à une énergie plus faible, entre 0.2 et 0.6 MeV, que les neutrons prompts, autour de 2 MeV. Comme la distribution des produits de fission varie selon l'isotope fissile, chacun des isotopes fissiles est caractérisé par un ensemble de précurseurs de neutrons retardés. Pour chaque isotope fissile, un certain nombre de neutrons retardés sont émis en moyenne par fission, noté ν_d . Bien que la proportion des neutrons retardés soit faible, ils jouent un rôle fondamental dans la cinétique du réacteur et rendent un réacteur critique pilotable.

Pour que le système soit pilotable, le réacteur doit être sous critique avec la proportion des neutrons prompts, et c'est l'apport de la fraction de neutrons retardés qui doit rendre le système critique. Si β_{eff} est la fraction effective de neutrons retardés, le k_{eff} d'un système critique s'écrit comme :

$$k_{eff} = \beta_{eff}k_{eff} + (1 - \beta_{eff})k_{eff} = k_{retarde} + k_{prompt}$$

La condition de pilotage du réacteur est alors :

$$k_{prompt} = (1 - \beta_{eff})k_{eff} < 1, \text{ c'est-à-dire } k_{eff} < \frac{1}{1 - \beta_{eff}}$$

Comme $k_{eff} = \frac{1}{1-\rho}$, la condition de pilotage se résume à :

$$\rho < \beta_{eff}$$

3.3.1 Fractions de neutrons retardés

Deux valeurs de fractions de neutrons retardés peuvent être définies. La première, notée β_0 , est la fraction de neutrons retardés estimée en pondérant la fraction de neutrons retardés de chaque isotope fissile avec le nombre de neutrons total émis par fission de chaque isotope. Cette définition ne prend pas en compte l'efficacité des neutrons retardés à induire de nouvelles fissions. Le nombre de fissions induites par les neutrons retardés doit donc être calculé pour tenir compte de l'efficacité. C'est ce qui est fait dans la deuxième définition, notée β_{eff} , qui représente le rapport entre le nombre de neutrons issus de fissions induites par des neutrons retardés sur le nombre de neutrons issus de fissions induites par tous les neutrons (retardés ou prompts). C'est ce paramètre β_{eff} qui intervient dans l'équation de la cinétique du réacteur.

Calcul du β_0

En général, le taux de production total de neutrons par fission pour un réacteur dans un état stable et sans source externe s'écrit [44, 45] :

$$P = \int \nu(E) \Sigma_f(\vec{r}, E) \phi(\vec{r}, E, \Omega) dE d\Omega d\vec{r} \quad (3.7)$$

où E est l'énergie des neutrons incidents, Ω l'angle solide des neutrons, \vec{r} la position des neutrons, ϕ le flux de neutrons, Σ_f la section efficace macroscopique de fission du matériau à la position \vec{r} et à l'énergie E , et ν le nombre moyen de neutrons produits pour une fission. Pour la production P^d de neutrons retardés, le facteur $\nu(E)$ est remplacé par le facteur $\nu^d(E)$, qui est le nombre moyen de neutrons retardés produits pour une fission. Les différents groupes de neutrons retardés ne sont pas pris en compte ici pour ne pas alourdir l'écriture.

Le rapport $\frac{P^d}{P}$ représente la définition de la fraction de neutrons retardés, appelée β_0 [46] :

$$\beta_0 = \frac{P^d}{P} = \frac{\int \nu^d(E) \Sigma_f(\vec{r}, E) \phi(\vec{r}, E, \Omega) dE d\Omega d\vec{r}}{\int \nu(E) \Sigma_f(\vec{r}, E) \phi(\vec{r}, E, \Omega) dE d\Omega d\vec{r}} \quad (3.8)$$

Dans cette approche, β_0 a été calculé de la manière suivante (équation 3.9) sur notre système. Le flux est considéré comme moyen et donc sorti de l'intégrale et simplifié.

$$\beta_0 = \sum_i \frac{\beta_i \nu_i N_i \sigma_i^f}{\sum_j \nu_j N_j \sigma_j^f} \quad (3.9)$$

où i est le noyau considéré, $\beta_i = \frac{\nu_i^d}{\nu_i}$, la fraction de neutrons retardés du noyau i , σ_i^f la section efficace microscopique de fission du noyau i , et N_i le nombre de noyaux i . Ce calcul est effectué en relisant le fichier DATA créé par MURE au temps considéré, et en fournissant les valeurs de β_i et de ν_i pour les noyaux considérés.

Différents calculs de β_0 ont été menés avec différentes valeurs de β_i et de ν_i sur le réacteur à neutrons rapides décrit dans le premier paragraphe de ce chapitre :

- calcul 1 : les valeurs proviennent de la base ENDFB7 et le calcul est réalisé avec 34 noyaux (cf tableau D.3 de l'Annexe D) ;
- calcul 2 : les valeurs proviennent de la base ENDFB7 et le calcul est réalisé avec les 8 noyaux présentés dans le tableau de l'Annexe D et utilisés dans le calcul 3 ;
- calcul 3 : les valeurs proviennent de la référence [41] et le calcul est réalisé avec les 8 mêmes noyaux que dans le calcul 2 (cf tableau D.1 de l'Annexe D) ;
- calcul 4 : les valeurs sont calculées avec MCNP sur notre système à un temps donné, sur 16 noyaux (cf tableau D.2 de l'Annexe D).

Dans le calcul 4, deux calculs MCNP sont nécessaires pour extraire les valeurs recherchées :

- l'un en mode TOTNU, qui calcule k_{eff} en tenant compte des neutrons retardés et des neutrons prompts ;

- l'autre en mode TOTNU NO, qui calcule k_{eff}^p , le k_{eff} obtenu uniquement avec les neutrons prompts.

En mode TOTNU, la valeur du nombre de neutrons (prompts et retardés) émis par une fission, ν^{tot} , est calculée en faisant le rapport $\frac{\langle \nu^{tot} \sigma_f \phi \rangle}{\langle \sigma_f \phi \rangle}$, obtenus par MCNP, avec σ_f la section efficace de fission et ϕ le flux. De même, en mode TOTNU NO, la valeur du nombre de neutrons prompts émis par une fission, ν^p , est calculée en faisant le rapport $\frac{\langle \nu^{prompt} \sigma_f \phi \rangle}{\langle \sigma_f \phi \rangle}$, obtenus par MCNP.

On peut ainsi en déduire la valeur du nombre de neutrons retardés émis par une fission, $\nu^d = \nu^{tot} - \nu^p$, et la valeur de la fraction de neutrons retardés du noyau considéré, $\beta = \frac{\nu^d}{\nu^{tot}}$. Les valeurs des ν^{tot} sont calculées pour la couronne la plus interne du cœur et sont présentées dans le tableau 3 de l'Annexe A.

Les différentes valeurs de β_0 obtenues selon les différentes données initiales (fournies dans les tableaux D.3, D.1 et D.2 de l'Annexe D) sont présentées dans le tableau 3.3.

Fraction effective β_{eff}

L'intérêt du β_0 réside dans la facilité qu'il a à être calculé avec MCNP. Néanmoins, cette quantité ne permet pas d'évaluer l'efficacité des neutrons, ce qui rend difficile une détermination précise des paramètres cinétiques du réacteur. Pour un calcul rigoureux de cinétique, il faut tenir compte de la différence de nature entre les neutrons retardés et les neutrons prompts. Outre leur durée de vie, ces neutrons se différencient par leur spectre en énergie : les neutrons retardés sont émis à une énergie plus faible, centrée sur 400 keV, alors que les neutrons prompts sont émis à 2 MeV, ce qui a un impact sur leur efficacité à induire une fission. Si l'on considère un réacteur à neutrons thermiques, les neutrons retardés ont moins de chance d'être capturés dans la zone de ralentissement, et sont donc plus susceptibles d'atteindre la zone thermique où les fissions sont favorisées : de ce point de vue, ils sont plus efficaces que les neutrons prompts. Cela n'est plus le cas dans un réacteur à neutrons rapides, car les neutrons retardés ne provoqueront pas de fission rapide, ce qui a tendance de diminuer leur efficacité.

La définition exacte du β_{eff} , pour un groupe de précurseurs et un noyau fissile, est donnée par l'équation suivante [46] :

$$\beta_{eff} = \frac{P_{eff}^d}{P_{eff}} = \frac{\int \psi(\vec{r}, E', \Omega') \chi^d(E') \nu^d(E) \Sigma_f(\vec{r}, E) \phi(\vec{r}, E, \Omega) dE d\Omega dE' d\Omega' d\vec{r}}{\int \psi(\vec{r}, E', \Omega') \chi(E') \nu(E) \Sigma_f(\vec{r}, E) \phi(\vec{r}, E, \Omega) dE d\Omega dE' d\Omega' d\vec{r}} \quad (3.10)$$

où $\chi(E')$ est le spectre énergétique des neutrons prompts, $\chi^d(E')$ est le spectre énergétique des neutrons retardés, et $\psi(\vec{r}, E', \Omega')$ le flux adjoint. Les autres notations sont similaires à celles de l'équation 3.8.

La détermination du β_{eff} nécessite donc la connaissance du flux adjoint et des spectres d'énergie des neutrons émis ($\chi(E')$ et $\chi^d(E')$).

La difficulté majeure pour la détermination du β_{eff} en Monte-Carlo est de calculer par des techniques probabilistes un flux adjoint approximé convenablement. Les calculs de perturbation réalisés par de nombreux codes déterministes ne peuvent être reproduits

systématiquement par des méthodes stochastiques. Cependant, le flux adjoint peut être vu comme l'importance d'un neutron avec les propriétés (\vec{r}, E', Ω') pour produire une fission. Dans le cadre de cette interprétation, plusieurs développements ont été mis en œuvre dans le but de donner une définition correcte du β_{eff} [45].

Une approche approximative, qui ne nécessite aucun changement dans le code source de MCNP, existe : il s'agit de la « méthode prompte » [45].

En notant l'intégrale $\int \dots dE d\Omega dE' d\Omega' d\vec{r} = \langle \dots \rangle$ et en utilisant le fait que l'intégrale est linéaire, l'expression de β_{eff} peut se réécrire comme :

$$\beta_{eff} = \frac{\langle \psi \chi^d \nu^d \Sigma_f \phi \rangle}{\langle \psi \chi \nu \Sigma_f \phi \rangle}$$

$$\beta_{eff} = \frac{\langle \chi^d \nu^d \rangle}{\langle \chi \nu \rangle} = 1 - \frac{\langle \chi \nu \rangle - \langle \chi^d \nu^d \rangle}{\langle \chi \nu \rangle} = 1 - \frac{\langle \chi \nu^p \rangle - \langle \chi^d - \chi \rangle \nu^d}{\langle \chi \nu \rangle}$$

$$\beta_{eff} = 1 - \frac{\langle \chi \nu^p \rangle - \langle \chi^d - \chi \rangle \nu^d}{\langle \chi \nu \rangle} \approx 1 - \frac{\langle \chi \nu^p \rangle}{\langle \chi \nu \rangle} \approx 1 - \frac{\langle \chi^p \nu^p \rangle}{\langle \chi \nu \rangle}$$

sachant que $\nu^p = \nu - \nu^d$. L'approximation de la dernière ligne repose tout d'abord sur le fait que le terme $(\chi^d - \chi)\nu^d$ est de deux ordres de grandeurs plus petit que le terme $\chi^p \nu^p$ car ν^d est de 2 ordres de grandeurs plus petit que ν^p , et ensuite pour la même raison qu'évoquée précédemment, la forme de χ est presque égale à celle de χ^p . On peut alors écrire dans cette approximation que :

$$\beta_{eff} \approx 1 - \frac{k_p}{k}$$

Ecrire que $\frac{\langle \chi^p \nu^p \rangle}{\langle \chi \nu \rangle} = \frac{k_p}{k}$ est vrai pour le dénominateur car k est proportionnel à ν . Pour le numérateur, il s'agit d'une approximation car k_p est seulement proportionnel à $(\nu - \nu^d \bar{E}) = \nu(1 - \beta_{eff})$ [47], avec \bar{E} l'efficacité moyenne des neutrons retardés. En effet, dans le système où $\nu = \nu^p$ et $\chi = \chi^p$, les formes du flux ϕ et du flux adjoint ψ ne sont pas les mêmes que pour le système où l'on considère la totalité des neutrons.

En pratique, pour obtenir β_{eff} par la « méthode prompte », cela revient à faire tourner deux calculs MCNP : un calcul classique en KCODE pour avoir le coefficient de multiplication total k puis un calcul où l'on ajoute l'option TOTNU NO, qui permet d'avoir le coefficient de multiplication prompt k_p .

Tous les résultats obtenus pour β_0 et β_{eff} sont résumés dans le tableau 3.3. Dans le cas du β_{eff} , sa valeur est obtenue à $t=0$, avec 10000 particules, 1200 cycles, dont 600 actifs.

	Noyaux	β_0 calcul 1	β_0 calcul 2	β_0 calcul 3	β_0 calcul 4	β_{eff}
Temps						
t = 0		505	516	488	476	373

TAB. 3.3: Valeurs des différents β_0 selon les données initiales et du β_{eff} (DDC : début de cycle et FDC = fin de cycle)

On voit apparaître des différences entre les β_0 et le β_{eff} (cf tableau 3.3), qui témoignent d'une moindre efficacité des neutrons retardés à induire des fissions car ces neutrons sont émis sous les seuils de fission des noyaux pairs en neutrons, qui participent significativement aux fissions dans un réacteur rapide (11.4 % des fissions).

Dans la suite du rapport, les fractions de neutrons retardés effectives β_{eff} seront calculées selon cette méthode prompte.

3.3.2 Réglage du nombre de particules et du nombre de cycles actifs

La méthode permettant de calculer la fraction de neutrons retardés effective β_{eff} a l'inconvénient de soustraire deux nombres très proches l'un de l'autre. En effet, on rappelle que $\beta_{eff} = \frac{k-k_p}{k}$, avec k et k_p , deux nombres dont la différence est très petite (k étant le coefficient de multiplication calculé avec tous les neutrons, prompts et retardés, et k_p le coefficient de multiplication calculé avec seulement les neutrons prompts). Selon la statistique utilisée, cela entraîne des incertitudes importantes sur le β_{eff} , mais surtout sur la réactivité du vide en \$, qui est calculée comme étant le rapport entre la réactivité du vide en pcm et la fraction de neutrons retardés effective.

Après différents tests réalisés sur le RNR décrit au début de ce chapitre à l'instant $t = 0$, le nombre de cycles actifs est fixé à 2 500, avec 40 000 particules par cycle pour tous les calculs de réactivité du vide, de fraction de neutrons retardés effective et de coefficient Doppler. Les résultats obtenus sont présentés dans le tableau 3.4.

Si la réactivité du vide est $\Delta\rho$, alors la variation de la réactivité du vide est $\sigma(\Delta\rho) = \rho^+ - \rho^-$, où ρ^+ et ρ^- sont $\Delta\rho$ plus ou moins la déviation standard fournie par MCNP.

Réactivité du vide $\Delta\rho$ (pcm)	1 752
std dev ($\Delta\rho$) (pcm)	16
$\frac{\Delta\rho}{\rho}$ (%)	0.9
$\Delta\rho$ (\$)	4.56
std dev ($\Delta\rho$) (\$)	0.23
$\frac{stddev(\Delta\rho)}{\Delta\rho}$ (%)	5.0

TAB. 3.4: Réactivité du vide et incertitudes avec 2500 cycles actifs et 40000 particules par cycle

Dans la suite de l'étude, une source stabilisée sera utilisée pour effectuer les calculs cœur et diminuer le nombre de cycles inactifs². On rappelle que durant les cycles inactifs aucun résultat n'est calculé. Une source stabilisée est obtenue en faisant un ou plusieurs calculs MCNP avec la même géométrie et un grand nombre de cycles inactifs, pour propager de manière homogène les neutrons dans toute la géométrie.

²Définis dans le paragraphe 2.2.2 du Chapitre 2.

3.4 Caractérisation des déchets

3.4.1 Radiotoxicité

Quelques définitions [48]

La radioactivité se manifeste par une désintégration spontanée de noyaux atomiques instables en d'autres noyaux, accompagnée d'un dégagement d'énergie sous forme de divers rayonnement. Cette *activité* (unité Becquerel ou Bq) quantifie l'intensité d'une source de rayonnement, donc un risque potentiel, si l'on ne s'en protège pas. L'irradiation d'un organisme engendre des lésions plus ou moins importantes. La *dose* quantifie ce qui a été effectivement reçu par un individu qui a été exposé à des rayonnements (provenant d'une source externe) ou contaminé par des produits radioactifs (externe ou interne). Il existe différentes notions de doses.

La *dose absorbée* correspond à la quantité d'énergie déposée par unité de masse dans un tissu par des rayonnements. Elle s'exprime en Gray (Gy), ce qui correspond à une énergie de 1 joule cédée dans un kilogramme de matière ($1 \text{ Gy} = 1 \text{ J.kg}^{-1}$).

La *dose équivalente* prend en compte le type de rayonnements, car ils ne produisent pas tous le même effet à faible dose. Les rayonnements α , lors d'une ingestion, sont les plus nocifs car le dépôt d'énergie d'une particule α est très localisé : une seule particule peut induire plusieurs brisures d'une même chaîne d'ADN que les mécanismes naturels ne parviennent pas à réparer. On définit alors la dose équivalente à l'organe $H_{T,R}$, dans un tissu T irradié par le rayonnement R comme :

$$H_{T,R} = \sum_R W_R D_{T,R} \quad (3.11)$$

où $D_{T,R}$ est la dose absorbée par l'organe T lors de son irradiation par le rayonnement R, et W_R est le facteur de pondération lié à la nature du rayonnement R. La dose équivalente totale H_T est la somme des $H_{T,R}$ pour tous les types de rayonnements. Le facteur de pondération W_R est sans dimension, l'unité de la dose équivalente est le J.kg^{-1} , mais son nom spécifique est le sievert (Sv). Les coefficients de pondération sont des estimations faites par des experts comparant la toxicité biologique relative des différents rayonnements pour produire des cancers dans un organe. Ces coefficients n'ont a priori de signification que pour de faibles doses de rayonnements.

La *dose efficace* permet d'estimer le risque d'induction de cancers dans l'organisme entier en prenant en compte la radiosensibilité des différents tissus. En effet, le risque de cancer éventuel n'est pas le même selon les différents tissus (d'une manière générale, ceux dans lesquels la multiplication cellulaire est rapide sont les plus sensibles). Elle se définit comme :

$$E = \sum_T W_T H_T \quad (3.12)$$

où H_T est la dose équivalente totale et W_T le coefficient de pondération dépendant de la sensibilité du tissu aux rayonnements. W_T est sans dimension et la dose efficace s'exprime également en Sv.

Ces facteurs de pondération, W_R et W_T , peuvent varier avec l'avancement des connaissances sur les effets biologiques des rayonnements.

La **dose engagée** concerne le cas particulier de l'irradiation interne. En cas d'absorption d'un produit radioactif, la dose sera délivrée à l'organisme tant que ce produit sera présent ; le cumul sur ce laps de temps constitue la dose engagée. Il s'agit de la dose équivalente à l'organe ou la dose efficace à l'organisme entier qui est engagée, dès lors que des radionucléides sont ingérés ou inhalés, et ce au cours des années qui suivent son incorporation (50 ans pour les adultes et 70 ans pour les enfants). Le calcul de la dose engagée fait intervenir la période effective, qui est le laps de temps au bout duquel la dose déposée par unité de temps sera atténuée d'un facteur 2, compte tenu de la période de décroissance nucléaire et du métabolisme susceptible d'éliminer le produit (cf equation 3.13).

$$\frac{1}{T_{eff}} = \frac{1}{T_{radioactive}} + \frac{1}{T_{biologique}} \quad (3.13)$$

La **radiotoxicité** est une mesure du risque potentiel auquel serait soumise une personne dans une situation extrême sans aucune mesure de protection. Cette manière de calculer la radiotoxicité n'a pas vraiment d'application pratique, puisqu'elle suppose qu'un individu a ingéré tout le stock de matériaux radioactifs considérés. Néanmoins, elle permet de comparer entre elles chacune des filières étudiées. La radiotoxicité se définit en fait en termes de dose efficace engagée que recevra un individu, suite à l'ingestion d'un ensemble de radionucléide.

Pour pouvoir convertir l'activité d'un noyau en radiotoxicité en cas d'ingestion ou d'inhalation de radionucléides, on introduit le **facteur de dose**. Il diffère selon que la personne exposée est un adulte ou un enfant. Il regroupe tous les paramètres dont dépend la radiotoxicité : nature du rayonnement (dose équivalente), sensibilité de l'organe touché au rayonnement (dose efficace), ... Il s'exprime en Sv/Bq et permet de relier la radiotoxicité et l'activité :

$$R = F_d \times A \quad (3.14)$$

où F_d est le facteur de dose ou dose par unité d'incorporation (DPUI) [48], R est la radiotoxicité ou la dose et A l'activité. Plus la DPUI est élevée, plus le noyau est considéré comme toxique. Le facteur de dose permet de calculer une dose efficace délivrée à l'homme correspondant à l'ingestion ou à l'inhalation d'une activité de 1 Bq d'un radionucléide donné. En réalité, le terme de facteur de dose est générique, et sa définition peut varier suivant qu'il s'agit d'une exposition interne ou externe, et suivant le type d'exposition externe [49].

Calcul de la radiotoxicité d'un stock de noyaux

Comme on l'a vu avec l'équation 3.14, la radiotoxicité potentielle pour un temps géologique t s'exprime en fonction de l'activité et du facteur de dose, et s'exprime en Sv :

$$R(t) = \sum_i f_i \lambda_i N_i(t) \quad (3.15)$$

avec f_i le facteur de dose du noyau i et λ_i la constante de décroissance du noyau i , et $N_i(t)$ le nombre de noyaux i . L'origine est la séparation des éléments considérés comme déchets et ceux considérés comme matières valorisables issus du combustible. Les temps considérés pour le calcul de l'évolution de la radiotoxicité s'étendent jusqu'aux millions d'années. Sur de telles échelles de temps, la méthode de Runge-Kutta ne peut être utilisée pour résoudre les équations de Bateman (équation 2.9) ; en effet, pour être stable, cette méthode implique que le dt permettant d'obtenir $N(t+dt)$ connaissant $N(t)$ soit de l'ordre du temps de demi-vie minimal ; par exemple, dans la chaîne de désintégration de ^{238}U , le temps de demi-vie minimal est de l'ordre de 10^{-4} s. Par conséquent, cela nécessite $\frac{3.15 \times 10^7 \times 10^6}{10^{-4}}$ opérations à réaliser, ce qui est trop coûteux en temps, et qui en plus entraîne une accumulation d'erreur trop importante. Les équations de Bateman présentées sous forme matricielle dans le premier chapitre sont alors résolues par diagonalisation de la matrice d'évolution A .

$$\frac{d\vec{N}(t)}{dt} = A\vec{N}(t) \quad (3.16)$$

La matrice est diagonalisée³ en calculant les matrices de passage P et P^{-1} telles que :

$$A = P^{-1}\Delta P \quad (3.17)$$

P est la matrice de passage de A à Δ et Δ une matrice diagonale constituées des valeurs propres de A . Le système peut s'écrire alors comme :

$$\frac{d\vec{N}(t)}{dt} = P^{-1}\Delta P\vec{N}(t) \quad (3.18)$$

En posant $\vec{\tilde{N}} = P\vec{N}$ et en multipliant à gauche 3.18 par P , on a alors :

$$\frac{d\vec{\tilde{N}}(t)}{dt} = \Delta\vec{\tilde{N}}(t) \quad (3.19)$$

Ce système s'intègre facilement (du fait que Δ est diagonale) :

$$\vec{\tilde{N}}(t) = e^{\Delta t}\vec{\tilde{N}}^0(t) \quad (3.20)$$

La solution en fonction de $\vec{N}(t)$ est alors :

$$\vec{N}(t) = P^{-1}e^{\Delta t}\vec{\tilde{N}}^0(t) = P^{-1}e^{\Delta t}P\vec{N}^0(t) \quad (3.21)$$

³En utilisant la librairie d'algèbre linéaire LAPACK.

En notant :

$$\Gamma(t) = P^{-1}e^{\Delta t}P \quad (3.22)$$

On a alors :

$$\vec{N}(t) = \Gamma(t)\vec{N}^0 \quad (3.23)$$

Par conséquent, $N_i(t)$ dans l'équation 3.15 s'écrit comme :

$$\vec{N}_i(t) = \sum_j \Gamma_{i,j}(t)\vec{N}_j^0 \quad (3.24)$$

L'équation 3.15 s'écrit alors comme :

$$R(t) = \sum_i \sum_j f_i \lambda_i \Gamma_{i,j}(t)\vec{N}_j^0 \quad (3.25)$$

La somme sur l'indice j correspond à une somme sur les noyaux initialement présents dans le stock dont on calcule la radiotoxicité. La somme sur l'indice i , elle, correspond à la somme de tous les noyaux présents à l'instant t auquel on calcule la radiotoxicité. Cela conduit à deux descriptions physiques différentes lorsque l'on regarde les contributions de chaque élément à la radiotoxicité. Si l'on veut déterminer la contribution de chacun des éléments présents à l'instant t de l'évolution, on utilisera la notation :

$$R(t) = \sum_i R_i(t) \quad (3.26)$$

où :

$$R_i(t) = f_i \lambda_i \vec{N}_i(t) = f_i \lambda_i \sum_j \Gamma_{i,j}(t)\vec{N}_j^0(t) \quad (3.27)$$

Dans ce cas, $R_i(t)$ représente la radiotoxicité induite par les noyaux i présents à l'instant t .

Si l'on veut déterminer quels sont les noyaux présents à l'instant initial responsables de la radiotoxicité à l'instant t , même si ceux-ci ont disparu depuis longtemps, on utilise une représentation par noyau père. Si on étudie la radiotoxicité induite par le noyau j présent à l'instant t initial, on peut écrire :

$$\vec{N}^0 = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ \dots \\ N_j \\ \dots \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (3.28)$$

On a alors :

$$\vec{N}_i(t) = \Gamma_{i,j}(t)\vec{N}_j^0 \quad (3.29)$$

La radiotoxicité induite à l'instant t par le noyau j présent à l'instant $t = 0$ est :

$$\widetilde{R}_j(t) = \sum_i f_i \lambda_i \Gamma_{i,j}(t) \overrightarrow{N}_j^0 \quad (3.30)$$

La radiotoxicité induite à l'instant t par plusieurs noyaux j présents initialement est :

$$R(t) = \sum_j \widetilde{R}_j(t) \quad (3.31)$$

Dans la suite de notre étude, nous utiliserons essentiellement la radiotoxicité par père pour calculer les contributions particulières de chaque noyau, pour déterminer les éléments initialement présents responsables de la radiotoxicité à long terme et sélectionner les noyaux intéressants à transmuter.

3.4.2 Chaleur résiduelle

Définition et contexte

En raison de leur radioactivité élevée, les déchets HA issus du combustible usé dégagent de la chaleur, et ce pendant plusieurs centaines d'années. Des particules α et β sont émises lors de ces désintégrations au sein de la matière. Comme elles sont freinées dans la matière, ce mouvement (énergie cinétique des particules) se transforme en chaleur. Cette chaleur résiduelle issue des déchets nécessite des dispositions particulières. Actuellement, en France, les PF et les AM issus des combustibles usés des REP sont calcinés et incorporés dans une matrice de verre puis coulés dans un conteneur en acier réfractaire [50]. Ces colis de déchets, ou verres, ainsi conditionnés, sont entreposés sur leur lieu de conditionnement à La Hague dans des puits ventilés qui permettent d'évacuer la chaleur dégagée. L'option envisagée dans l'avenir est le stockage en couche géologique profonde. Ce stockage consiste disposer les colis de déchets dans des ouvrages souterrains adaptés. Le dimensionnement de ces sites de stockage est fortement lié à la chaleur résiduelle produite par les déchets. En effet, comme il n'y a pas d'évacuation de chaleur par convection de l'air, la température a tendance à augmenter, et il est nécessaire que le maximum de température atteinte dans la formation d'argilite ne dépasse pas 90 °C [51]⁴. Pour donner un ordre de grandeur, la superficie nécessaire pour enfouir 1 ha de colis de déchets entreposés en surface est de 500 ha environ sous terre [53].

⁴Pour garantir la stabilité thermique du verre, la température au cœur du colis en entreposage ne doit pas dépasser sa température de transition vitreuse. De nouvelles formulations de verres borosilicatés enrichis en terres rares sont étudiées et permettent une augmentation des températures de transition vitreuse d'environ 50 °C, ce qui permettrait une augmentation de la charge thermique de 15 % par rapport à la limite maximale actuelle [52]. Il est à noter qu'un colis de déchet vitrifié dégage environ 500 W après 60 ans d'entreposage [51].

Evaluation de la chaleur résiduelle

Le calcul de la chaleur résiduelle dans MURE se fait d'après le calcul de l'activité. On rappelle que l'activité d'un mélange de noyaux i se définit comme :

$$A(t) = \sum_i A_i = \sum_i \lambda_i N_i(t) \quad (3.32)$$

A un facteur près en moins, l'évolution de l'activité se calcule de la même manière que celle de la radiotoxicité (équation 3.15). Pour calculer la chaleur résiduelle, on utilise des facteurs de chaleurs (cf Annexe H) par noyaux, qui s'expriment en Watt par Curie (W/Ci). Pour obtenir la contribution à la chaleur résiduelle de chacun des noyaux, une fois l'activité calculée, que ce soit en mode par père ou par noyau, il suffit de multiplier la valeur de l'activité par le facteur de chaleur. On obtient alors la chaleur résiduelle en Watt. La méthode de résolution de $N(t)$ est exactement la même que celle décrite précédemment pour le calcul de la radiotoxicité. Les échelles de temps sont cependant différentes : alors que la radiotoxicité est décrite sur des périodes géologiques qui peuvent atteindre plusieurs millions d'années, la chaleur des déchets a un impact sur le dimensionnement du site de stockage souterrain pendant quelques centaines d'années seulement.

Chapitre 4

Réacteurs à neutrons rapides avec combustible U/Pu

Nous présentons tout d'abord un modèle simplifié, qui a pour but de mettre en évidence l'influence des temps d'irradiation, de refroidissement et de fabrication sur l'inventaire du ^{241}Pu et de l' ^{241}Am et donc sur la neutronique du réacteur, pour tenter de clarifier la notion « d'équilibre » dans le cas d'un réacteur régénérateur U/Pu. Puis, nous examinons trois types de gestion du rechargement pour un RNR U/Pu, prenant en compte justement les temps d'irradiation, de refroidissement et de fabrication : un cas de référence où seuls les éléments fissile et fertile sont remis en cœur, un cas de transmutation homogène des AM où, non seulement, les éléments fissile et fertile, mais aussi les AM produits par le cœur, sont remis dans la zone fissile, et un cas de transmutation hétérogène dans lequel les éléments fissile et fertile sont remis dans le cœur et les AM, quant à eux, sont placés dans une couverture fertile radiale en périphérie du cœur. Nous précisons dans les trois cas les inventaires ainsi que certains paramètres de sûreté.

4.1 Illustration du couplage neutronique/cycle

Nous considérons ici un RNR isogénérateur basé sur le cycle U/Pu à l'équilibre. Le cœur du réacteur est irradié pendant un temps T_{irr} . Au bout de ce laps de temps, une partie ou tous les assemblages du cœur sont remplacés par des assemblages frais. Les assemblages sortis du cœur sont refroidis durant un temps T_{cool} . Une fois que les assemblages ont refroidi, ils sont retraités : les éléments fissile et fertile, tels que l'uranium et le plutonium sont séparés puis réutilisés pour fabriquer les assemblages frais. Le temps de fabrication des assemblages frais est noté T_{fab} . On ne considère pas ici le recyclage des AM. Dans ce modèle, le temps T_{irr} varie entre 3 et 7 ans, le temps T_{cool} entre 2 et 7 ans, et le temps T_{fab} entre 2 et 7 ans également. Les valeurs de référence communément admises dans les études de scénarios sont $(T_{irr}, T_{cool}, T_{fab})$ égales à (5,5,2) [54]. La densité de puissance est représentative d'un RNR, soit 221 W/cm^3 de cœur (437 W/cm^3 de combustible), 5 ans d'irradiation correspond donc à un burn-up de 90 000 MWj/tNL.

4.1.1 Problématique

Dans un RNR avec combustible U/Pu, le combustible contient du ^{241}Pu . Le ^{241}Pu a une période de demi-vie de l'ordre de 14.4 ans et décroît vers l' ^{241}Am pendant la phase de refroidissement et de fabrication. La période de l' ^{241}Am étant de 432 ans, cet isotope s'accumule au fur et à mesure que le ^{241}Pu se désintègre. Aux échelles de temps considérées pour le cycle (fonctionnement du réacteur, refroidissement des assemblages usés et fabrication des assemblages frais), ce phénomène va impacter la neutronique, et notamment la réactivité, ainsi que la quantité d'américium envoyée aux déchets.

Le réacteur considéré est un réacteur à neutrons rapides isogénérateur, refroidi par du sodium. La puissance du réacteur est de 3600 MWth. La masse d' ^{238}U est supposée à peu près constante sur le cycle (environ 50 t) : en fait, la masse de fertile dans un concept isogénérateur diminue au cours de l'irradiation et un apport de fertile est réalisé à chaque cycle pour compenser sa consommation. Cela étant, cette variation sur la masse totale d' ^{238}U en cœur est négligée dans les calculs simplifiés présentés dans ce paragraphe. Tous les isotopes du Pu sont pris en compte. On suppose le flux et les sections efficaces constants au cours de l'irradiation. Tous les isotopes sont considérés à l'équilibre durant le cycle (irradiation + refroidissement + fabrication). La masse d' ^{241}Am est mise aux déchets au moment de la séparation, c'est-à-dire au temps $T_{irr} + T_{cool}$. Les pertes dues au retraitement chimique pour séparer les isotopes sont négligées.

4.1.2 Calcul de la masse de ^{239}Pu et de ^{240}Pu

L'équilibre d'un système isogénérateur se définit en général par l'égalité entre production et consommation d'un noyau donné pendant l'irradiation (pour le noyau père fertile, la production correspond à l'alimentation en minerai). On en déduit en général que chaque isotope multi-recyclé, et en particulier les isotopes du Pu, sont constants pendant l'irradiation. Cela est correct pour les isotopes 239 et 240 du plutonium car ils ont des durées de vie longue, respectivement 24 000 ans et 65 000 ans, et ne décroissent donc pas pendant le refroidissement et la fabrication du combustible. Pour le ^{241}Pu , en revanche, sa période est de 14.4 ans, et sa décroissance hors cœur ne peut être négligée. L'équilibre ne se définit donc plus par la constance de la quantité de Pu sur la durée de l'irradiation pour n'importe quel isotope du plutonium, mais par $N(0) = N(T_{irr} + T_{cool} + T_{fab})$, (et pour les isotopes ^{239}Pu et ^{240}Pu , cette équation se traduit par $N(0) = (T_{irr})$).

Les équations d'évolution du ^{239}Pu et du ^{240}Pu s'écrivent :

$$\frac{dN_{239}\text{Pu}}{dt} = N_{238}\text{U}\sigma_{238}\text{U}^{cap} - N_{239}\text{Pu}\sigma_{239}\text{Pu}^{abs}\phi \quad (4.1)$$

$$\frac{dN_{240}\text{Pu}}{dt} = N_{239}\text{Pu}\sigma_{239}\text{Pu}^{cap} - N_{240}\text{Pu}\sigma_{240}\text{Pu}^{abs}\phi \quad (4.2)$$

A l'équilibre, on a alors :

$$N_{239Pu} = \frac{N_{238U} \sigma_{238U}^{cap}}{\sigma_{239Pu}^{abs}} \quad (4.3)$$

$$N_{240Pu} = \frac{N_{239Pu} \sigma_{239Pu}^{cap}}{\sigma_{240Pu}^{abs}} \quad (4.4)$$

Comme la masse d' ^{238}U est supposée constante au cours du cycle celle du ^{239}Pu l'est également. La masse d' ^{238}U à l'équilibre est d'environ 50 tonnes. On en déduit la masse du ^{239}Pu et celle du ^{240}Pu : $M_{239Pu} = 6.17$ t et $M_{240Pu} = 3.57$ t.

4.1.3 Cas du ^{241}Pu

Condition d'isogénération

Comme cela a été dit, l'isogénération ne signifie pas que la masse du ^{241}Pu est constante sur $[0 ; T_{irr}]$ à cause de la décroissance de ce dernier sur l' ^{241}Am sur $[T_{irr} ; T_{irr} + T_{cool} + T_{fab}]$. En effet, si le ^{241}Pu est constant pendant l'irradiation, il décroît pendant $T_{cool} + T_{fab}$, et la masse de ^{241}Pu est différente entre les cycles i et $i+1$, et l'équilibre n'est plus assuré. La condition d'isogénération s'écrit donc :

$$N_{241Pu}(0) = N_{241Pu}(T_{irr} + T_{cool} + T_{fab}) \quad (4.5)$$

Equation d'évolution du ^{241}Pu

On a deux équations d'évolution : une valable sur l'intervalle $[0 , T_{irr}]$ et l'autre sur l'intervalle $[T_{irr} , T_{irr} + T_{cool} + T_{fab}]$. En effet, sur le deuxième intervalle, on est hors flux ($\phi = 0$).

Intervalle $[0 , T_{irr}]$

$$\frac{dN_{241Pu}}{dt} = N_{240Pu} \sigma_{240Pu}^{cap} \phi - N_{241Pu} (\sigma_{241Pu}^{abs} \phi + \lambda_{241Pu}) \quad (4.6)$$

La solution de cette équation est de la forme :

$$N_{241Pu}(t) = \alpha \exp \left(-(\lambda_{241Pu} + \sigma_{241Pu}^{abs} \phi) t \right) + \frac{N_{240Pu} \sigma_{240Pu}^{cap} \phi}{\lambda_{241Pu} + \sigma_{241Pu}^{abs} \phi} \quad (4.7)$$

α est une constante d'intégration que l'on détermine grâce à la condition d'isogénération 4.5. On note d'ores et déjà que pour remplir la condition 4.5, l'inventaire du ^{241}Pu doit augmenter pendant l'irradiation pour compenser sa diminution pendant le refroidissement et la fabrication, donc α est négatif.

Intervalle $[T_{irr}, T_{irr} + T_{cool} + T_{fab}]$

$$\frac{dN_{241Pu}}{dt} = -\lambda_{241Pu} N_{241Pu} \quad (4.8)$$

La concentration de ^{241}Pu sur cet intervalle est :

$$N_{241Pu}(t) = N_{241Pu}(T_{irr}) \exp(-\lambda_{241Pu}(t - T_{irr})) \quad (4.9)$$

Une fois l'équation d'évolution du ^{241}Pu établie sur l'intervalle $[T_{irr}, T_{irr} + T_{cool} + T_{fab}]$, on peut calculer α avec la condition d'isogénération 4.5, on obtient :

$$\alpha = \frac{\frac{N_{240Pu} \sigma_{240Pu}^{cap} \phi}{\lambda_{241Pu} + \sigma_{241Pu}^{abs} \phi} (\exp(-\lambda_{241Pu}(T_{cool} + T_{fab})) - 1)}{1 - \exp(-[(\lambda_{241Pu} + \sigma_{241Pu}^{abs} \phi) + \lambda_{241Pu}(T_{cool} + T_{fab})])} \quad (4.10)$$

Equation d'évolution du ^{242}Pu

Comme le ^{241}Pu n'est pas constant pendant l'irradiation, il en sera de même pour le ^{242}Pu . L'équation d'évolution du ^{242}Pu s'écrit comme :

$$\frac{dN_{242Pu}}{dt} = -N_{242Pu} \sigma_{242Pu}^{abs} \phi + N_{241Pu} \sigma_{241Pu}^{cap} \phi \quad (4.11)$$

Intervalle $[0, T_{irr}]$

La valeur de N_{241Pu} est donnée par l'équation 4.13. La solution de l'équation 4.11 est de la forme :

$$N_{242Pu} = \beta e^{-\sigma_{242Pu}^{abs} \phi t} + \frac{V}{\sigma_{242Pu}^{abs} \phi - a} e^{-at} + \frac{W}{\sigma_{242Pu}^{abs} \phi} \quad (4.12)$$

avec :

$$\begin{aligned} a &= -\lambda_{241Pu} + \sigma_{241Pu}^{abs} \phi \\ V &= \alpha \sigma_{241Pu}^{cap} \phi \\ W &= K \sigma_{241Pu}^{cap} \phi \\ K &= \frac{N_{240Pu} \sigma_{240Pu}^{cap} \phi}{\lambda_{241Pu} + \sigma_{241Pu}^{abs} \phi} \\ \beta &= N_{242Pu}(0) \end{aligned}$$

Il nous reste à déterminer la valeur initiale de ^{242}Pu à $t = 0$.

Intervalle $[T_{irr}, T_{irr} + T_{cool} + T_{fab}]$

Sur cet intervalle de temps, la durée de vie du ^{242}Pu (375 000 ans) est trop longue pour jouer un rôle, on a donc :

$$N_{242Pu}(t) = \text{constante} \quad (4.13)$$

Pour déterminer, cette constante, on utilise la condition d'isogénération, qui s'écrit comme :

$$N_{242Pu}(0) = N_{242Pu}(T_{irr} + T_{cool} + T_{fab}) \quad (4.14)$$

Comme sur $[T_{irr}, T_{irr} + T_{cool} + T_{fab}]$, N_{242Pu} est constant, on a :

$$N_{242Pu}(0) = N_{242Pu}(T_{irr}) \quad (4.15)$$

Des équations 4.13, 4.12 et 4.15, on peut écrire l'équation 4.16 :

$$\underbrace{\beta + \frac{V}{\sigma_{242Pu}^{abs}\phi - a} + \frac{W}{\sigma_{242Pu}^{abs}\phi}}_{N_{242Pu}(0)} = \underbrace{\beta e^{-\sigma_{242Pu}^{abs}\phi T_{irr}} + \frac{V}{\sigma_{242Pu}^{abs}\phi - a} e^{-aT_{irr}} + \frac{W}{\sigma_{242Pu}^{abs}\phi}}_{N_{242Pu}(T_{irr})} \quad (4.16)$$

On détermine ainsi la valeur de β :

$$\beta = \frac{V}{a - \sigma_{242Pu}^{abs}\phi} \times \frac{1 - e^{-aT_{irr}}}{1 - e^{-a\sigma_{242Pu}^{abs}\phi T_{irr}}} \quad (4.17)$$

4.1.4 Cas du ^{241}Am

Ce noyau étant produit par la décroissance du ^{241}Pu , il n'a aucune raison d'être constant sur l'ensemble du cycle.

Conditions aux limites

On suppose que l'on met aux déchets tout l' ^{241}Am produit entre $T = 0$ et $T = T_{irr} + T_{cool}$; la concentration initiale d' ^{241}Am est alors nulle à $T_{irr} + T_{cool}$ (mais elle ne l'est pas au début de l'irradiation).

Equation d'évolution du ^{241}Am

On a trois équations d'évolution : une valable sur l'intervalle $[0, T_{irr}]$, une valable sur $[T_{irr}, T_{irr} + T_{cool}]$, et l'autre sur l'intervalle $[T_{irr}, T_{irr} + T_{cool} + T_{fab}]$. En effet, sur les deux derniers intervalles, on est hors flux et les conditions initiales ne sont pas les mêmes pour les intervalles $[T_{irr}, T_{irr} + T_{cool}]$ et $[T_{irr}, T_{irr} + T_{cool} + T_{fab}]$.

Intervalle $[0, T_{irr}]$

$$\frac{dN_{241Am}}{dt} = -N_{241Am}\sigma_{241Am}^{abs}\phi + \lambda_{241Pu}N_{241Pu} \quad (4.18)$$

La solution de cette équation est de la forme :

$$N_{241Am}(t) = \gamma \exp(-Gt) + \frac{F}{G} + \frac{\lambda_{241Pu}\alpha}{G - (\lambda_{241Pu} + \sigma_{241Pu}^{abs}\phi)} \exp\left(-(\lambda_{241Pu} + \sigma_{241Pu}^{abs}\phi)t\right) \quad (4.19)$$

où :

$$\begin{aligned} \gamma &= -\frac{F}{G} - \frac{\lambda_{241Pu}\alpha}{G - a} - N_{241Pu}(T_{irr}) (\exp(-\lambda_{241Pu}T_{fab}) - 1) \\ G &= \sigma_{241Am}^{abs}\phi \\ F &= \lambda_{241Pu} \frac{N_{240Pu}\sigma_{240Pu}^{cap}\phi}{\lambda_{241Pu} + \sigma_{241Pu}^{abs}\phi} \end{aligned}$$

Intervalle $[T_{irr}, T_{irr} + T_{cool}]$

$$\frac{dN_{241Am}}{dt} = \lambda_{241Pu} N_{241Pu} \quad (4.20)$$

La concentration de ^{241}Am sur cet intervalle est :

$$N_{241Am}(t) = N_{241Am}(T_{irr}) - N_{241Pu}(T_{irr}) \exp(-\lambda_{241Pu}(t - T_{irr}) - 1) \quad (4.21)$$

Intervalle $[T_{irr} + T_{cool}, T_{irr} + T_{cool} + T_{fab}]$

$$\frac{dN_{241Am}}{dt} = \lambda_{241Pu} N_{241Pu} \quad (4.22)$$

La concentration de ^{241}Am sur cet intervalle est :

$$N_{241Am}(t) = -N_{241Pu}(T_{irr}) (\exp(-\lambda_{241Pu}(t - T_{irr} - T_{cool})) - 1) \quad (4.23)$$

4.1.5 Etude paramétrique

Cas de référence $(T_{irr}, T_{cool}, T_{fab}) = (5, 5, 2)$

La figure 4.1 illustre le cas de référence ($T_{irr} = 5$ ans, $T_{cool} = 5$ ans, $T_{fab} = 2$ ans).

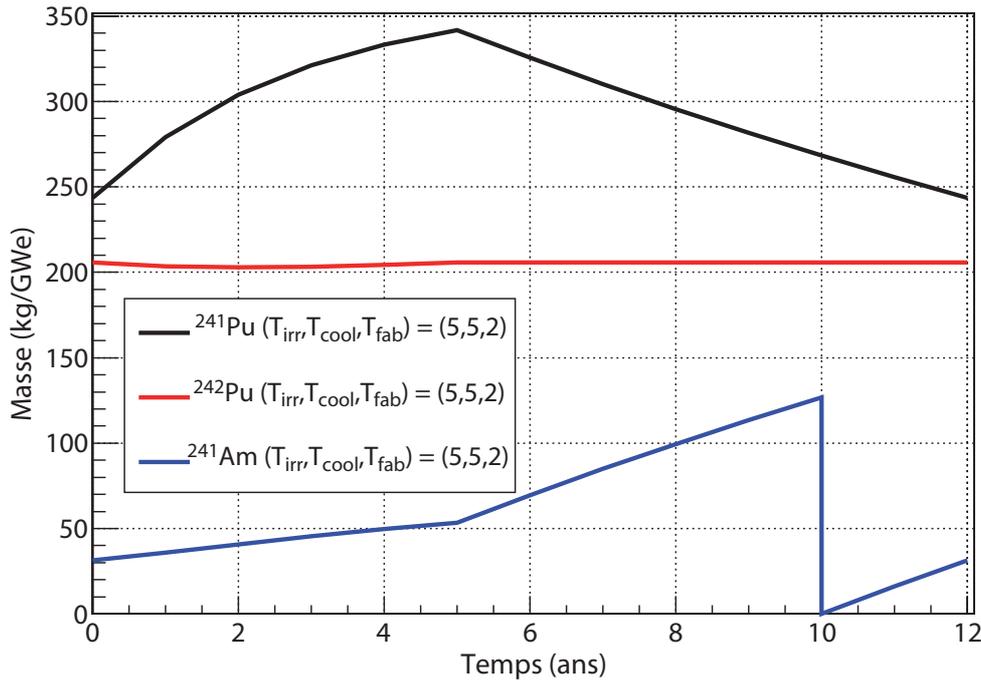


FIG. 4.1: Evolution de la masse de ^{241}Pu , du ^{242}Pu et d' ^{241}Am en fonction du temps avec $(T_{irr}, T_{cool}, T_{fab}) = (5, 5, 2)$

On constate que la masse de ^{241}Pu n'est clairement pas constante au cours de l'irradiation, elle varie de près de 40 %. La masse de ^{242}Pu , elle, est quasiment constante, même

pendant l'irradiation. L' ^{241}Am est produit durant l'irradiation, et sa quantité augmente plus vite au cours du refroidissement, puisqu'il reste alimenté par la décroissance du ^{241}Pu et n'est plus consommé par capture et fission. On s'attend à ce que la masse d' ^{241}Am envoyée aux déchets augmente avec le temps de refroidissement. On s'attend également à une variation du k_{eff} pendant l'irradiation, du fait de l'augmentation du ^{241}Pu durant cette période.

On fait maintenant varier le temps d'irradiation, le temps de refroidissement et le temps de fabrication pour évaluer leur influence sur les inventaires à l'équilibre du ^{241}Pu , du ^{242}Pu et d' ^{241}Am .

Influence du temps de fabrication (T_{fab}) à temps d'irradiation (T_{irr}) et de refroidissement (T_{cool}) fixés

On se place dans le cas ($T_{irr} = 5$ ans, $T_{cool} = 5$ ans) et on fait varier T_{fab} entre 2 et 7 ans. On obtient la figure 4.2.

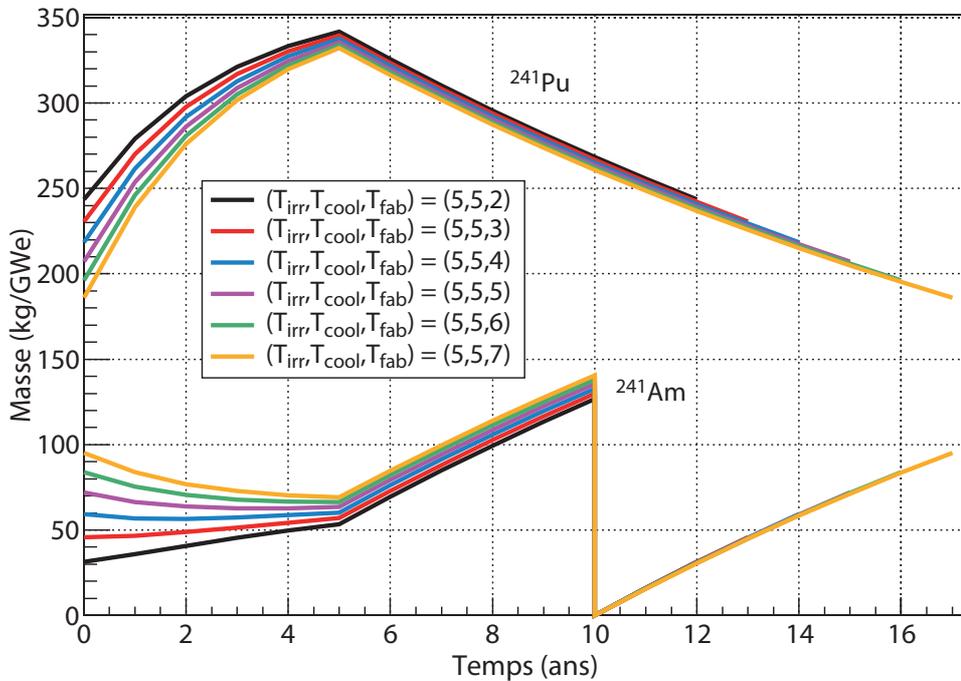


FIG. 4.2: Evolution de la masse de ^{241}Pu et d' ^{241}Am en fonction du temps avec (T_{irr}, T_{cool})=(5,5)

Même si T_{fab} modifie les inventaires de ^{241}Pu et d' ^{241}Am à $t = 0$, cette différence s'amenuise au cours du temps d'irradiation, que ce soit pour le ^{241}Pu ou pour l' ^{241}Am . Pour le ^{241}Pu , cela est dû à la constante qui apparaît dans l'équation 4.7.

Pour l' ^{241}Am , la convergence est plus longue à atteindre dans la mesure où il y a les constantes de temps du ^{241}Pu et de l' ^{241}Am à prendre en compte (cf équation 4.19). Ainsi, les valeurs sont plus étalées en fin d'irradiation dans le cas de l' ^{241}Am . Néanmoins, on

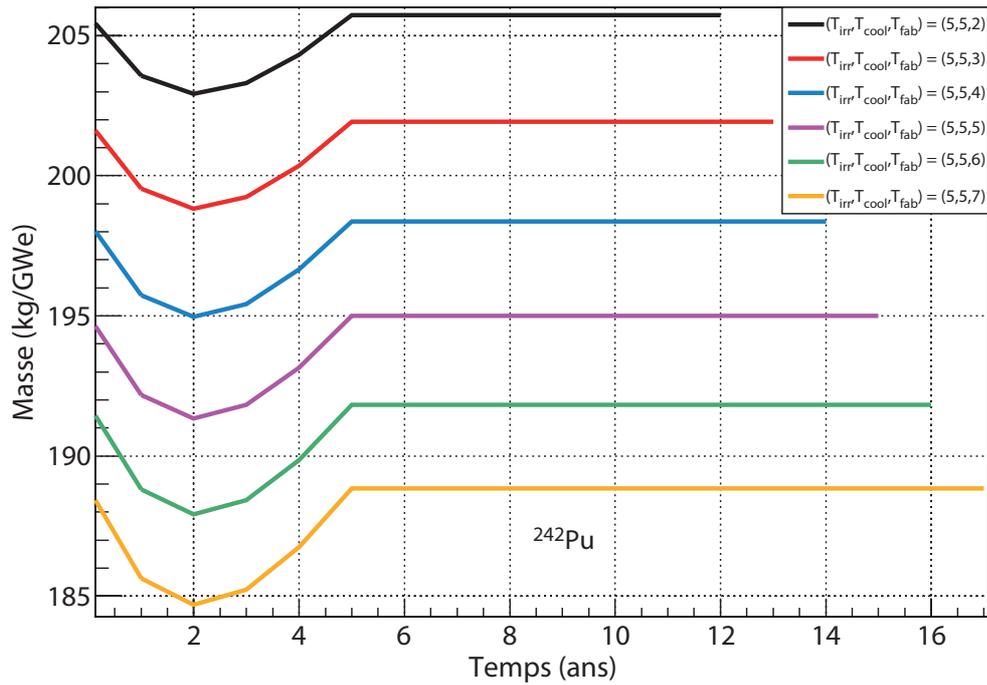


FIG. 4.3: Evolution du ^{242}Pu en faisant varier T_{fab} avec $(T_{irr}, T_{cool}) = (5, 5)$

note que lorsque le temps de fabrication augmente, l' ^{241}Am s'accumule dans le combustible suffisamment pour que sa concentration en début de cycle soit supérieure à $\frac{\lambda_{241}\text{Pu} N_{241}\text{Pu}}{\sigma_{241}\text{Am}^{abs} \times \phi}$ (cf figure 4.2), de telle sorte que l' ^{241}Am est transmuté pendant l'irradiation, contrairement au cas de référence (cf figure 4.1). Par conséquent, la quantité d' ^{241}Am mise aux déchets à $t = T_{irr} + T_{cool}$, est relativement plus indépendante de T_{fab} , que ce à quoi l'on aurait pu s'attendre.

Concernant le ^{242}Pu , son évolution est assez prévisible (cf figure 4.3). La condition d'isogénération impose que la quantité de ^{242}Pu soit constante sur $[T_{irr}, T_{irr} + T_{cool}]$ et égale à la quantité de ^{242}Pu à $t = 0$. Dans l'équation 4.11, qui régit l'évolution du ^{242}Pu sur $[0, T_{irr}]$, le terme de production est dû au ^{241}Pu ; or, sur l'intervalle $[0, T_{irr}]$, le ^{241}Pu augmente. La quantité de ^{242}Pu commence donc par diminuer sur $[0, T_{irr}]$, car le terme de production ^{241}Pu n'est pas encore suffisant pour compenser le terme de perte dû à l'absorption du ^{242}Pu . Puis, la masse de ^{242}Pu passe par un minimum, et augmente ensuite sur $[0, T_{irr}]$, pour retrouver sa valeur initiale en fin d'irradiation.

Influence du temps de refroidissement (T_{cool}) à temps d'irradiation (T_{irr}) et de fabrication (T_{fab}) fixés

On se place dans le cas ($T_{irr} = 5$ ans, $T_{fab} = 2$ ans) et on fait varier T_{cool} entre 2 et 7 ans. On obtient la figure 4.4.

Que l'on fasse varier le temps de refroidissement ou le temps de fabrication, cela a

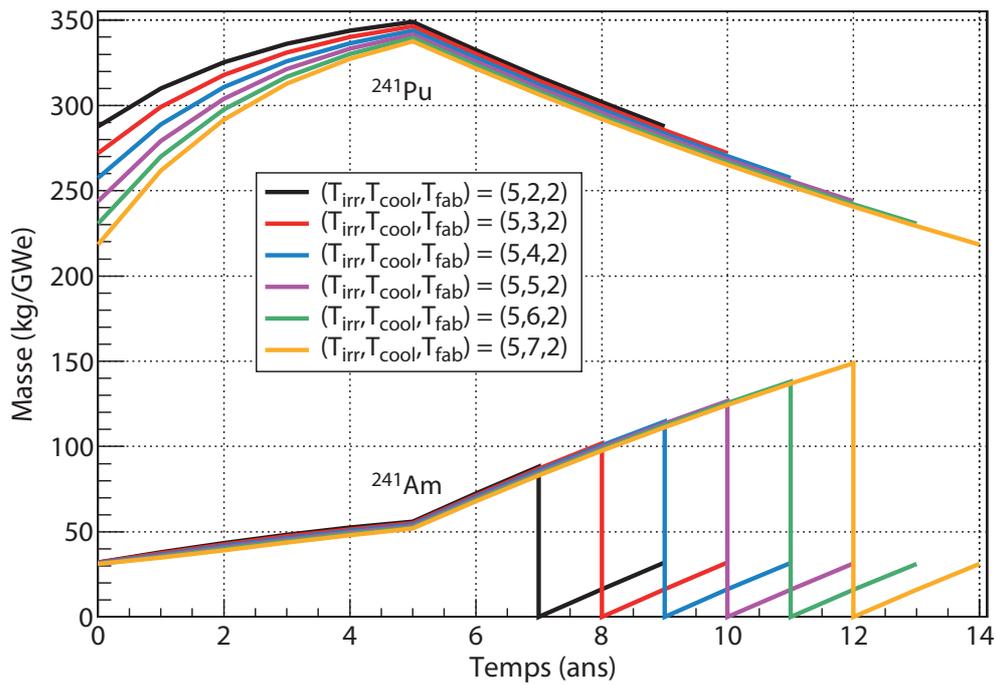


FIG. 4.4: Evolution de la masse de ^{241}Pu et d' ^{241}Am en fonction du temps avec $(T_{irr}, T_{fab}) = (5, 2)$

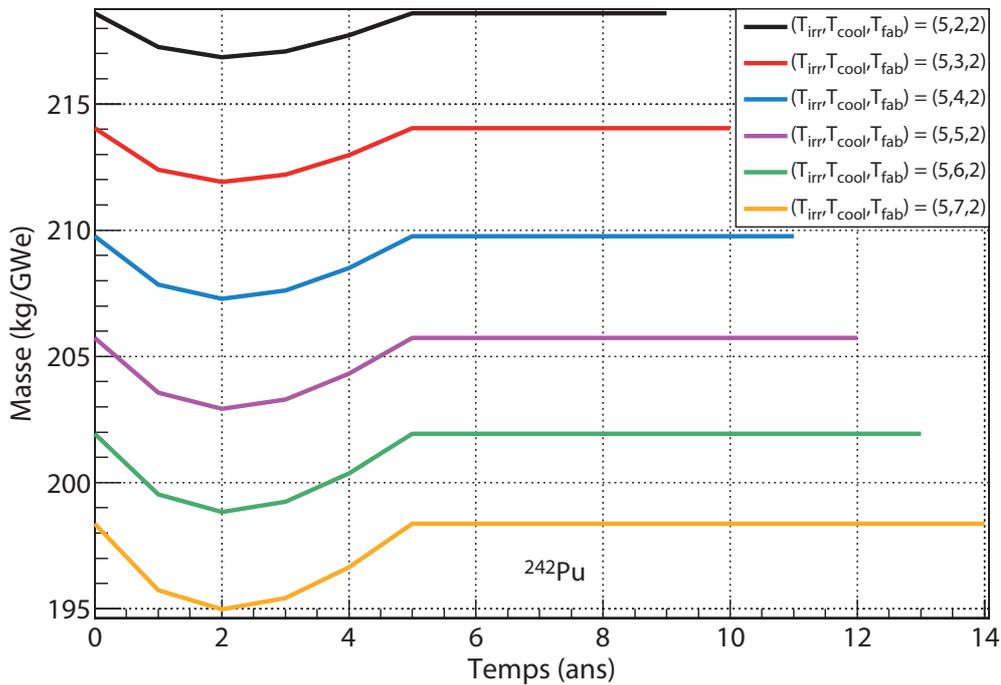


FIG. 4.5: Evolution du ^{242}Pu en faisant varier T_{cool} avec $(T_{irr}, T_{fab}) = (5, 2)$

le même impact sur la masse de ^{241}Pu en début de cycle et à $t = T_{irr}$, dans la mesure où on laisse l'isotope évoluer de la même façon lorsqu'on refroidit ou qu'on refabrique les nouveaux assemblages. Les écarts en masse de ^{241}Pu en début de cycle, suivant que T_{cool} ou T_{fab} varie, sont respectivement de 55 kg et 47 kg. Ces écarts à $t = T_{irr}$, suivant que T_{cool} ou T_{fab} varie, sont respectivement de 12 kg et 8 kg (cf figures 4.4 et 4.2).

Contrairement au cas précédent, la quantité d' ^{241}Am en début de cycle est relativement indépendante du temps de refroidissement, puisque la totalité de l'américium est mise aux déchets avant la fabrication.

La quantité d' ^{241}Am mise aux déchets est plus sensible au temps de refroidissement qu'au temps de fabrication. En effet, dans le deuxième cas, l'accumulation supplémentaire hors cœur ne peut être rattrapée par la transmutation pendant l'irradiation comme vu précédemment.

Variation de la masse d' ^{241}Am mise aux déchets en fonction de T_{cool} et T_{fab} à temps d'irradiation (T_{irr}) fixé

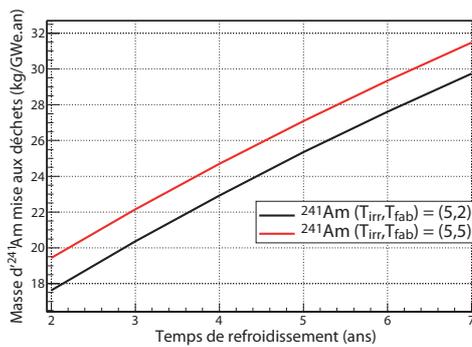


FIG. 4.6: Evolution de la masse d' ^{241}Am mise aux déchets en fonction du temps de refroidissement T_{cool} à T_{irr} et T_{fab} fixés

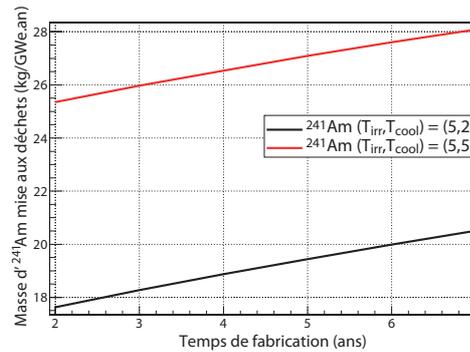


FIG. 4.7: Evolution de la masse d' ^{241}Am mise aux déchets en fonction du temps de fabrication T_{fab} à T_{irr} et T_{cool} fixés

Quand on observe l'évolution de la masse d' ^{241}Am mise aux déchets en fonction du temps de refroidissement (cf figure 4.6) à T_{irr} et T_{fab} fixés ($T_{irr} = 5$ ans et $T_{fab} = 2$ ou 5 ans), la variation de cette masse selon T_{fab} est de l'ordre de 2 kg. Par contre, la variation de la masse d' ^{241}Am mise aux déchets en fonction du temps de fabrication selon la valeur de T_{cool} (cf figure 4.7, $T_{irr} = 5$ ans et $T_{cool} = 2$ ou 5 ans) est quatre fois plus grande : on a une augmentation de l'ordre de 47 % de la masse mise aux déchets entre $T_{cool} = 2$ ans et $T_{cool} = 5$ ans, alors que sur la figure 4.6, l'augmentation entre $T_{fab} = 2$ ans et $T_{fab} = 5$ ans, est de l'ordre de 12 %.

Cela démontre, l'influence non négligeable du temps de refroidissement sur la quantité d' ^{241}Am mise aux déchets. Si on ne tient pas compte de la décroissance du ^{241}Pu lors du temps de refroidissement, on commet une erreur conséquente sur la quantité réelle de ^{241}Pu remis en cœur au cycle suivant, et sur la quantité d'américium mise aux déchets.

D'où la nécessité de créer des méthodes dans MURE permettant de prendre en compte ces temps de refroidissement.

Impact du temps de refroidissement et du temps de fabrication sur le k_∞

Ce modèle très simple permet également d'avoir une évaluation du facteur k_∞ , de son évolution et de sa dépendance aux paramètres T_{irr} , T_{cool} et T_{fab} . Nous présentons la variation du k_∞ en fonction de différents temps de refroidissement. Le k_∞ est calculé comme :

$$k_\infty = \frac{\sum_i N_i \nu_i \sigma_i^{fis}}{\sum_i N_i \sigma_i^{abs}} \quad (4.24)$$

Les isotopes utilisés pour calculer ce k_∞ simplifié sont l' ^{238}U , le plutonium, l' ^{241}Am , ainsi que le sodium et l'acier des gaines.

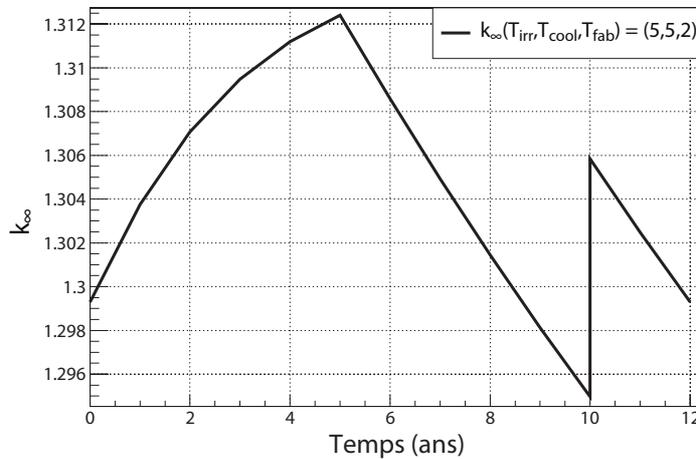


FIG. 4.8: Evolution du k_∞ en fonction du temps avec $(T_{irr}, T_{cool}, T_{fab}) = (5, 5, 2)$

Lorsque l'on ne considère que l'irradiation, on constate que la variation de réactivité est de l'ordre de 1200 pcm du fait de l'augmentation du ^{241}Pu (cf figure 4.8), ce qui n'est absolument pas négligeable. Cela illustre l'intérêt de simuler le cycle dans sa totalité, en prenant en compte l'évolution des matériaux durant les temps de refroidissement et de refabrication. On ne tient pas compte dans ce modèle simple de la disparition de ^{238}U et de l'apparition des PF, qui auront également un impact sur l'évolution du k_∞ au cours de l'irradiation.

4.1.6 Conclusion

En utilisant un modèle simplifié d'évolution que l'on peut résoudre analytiquement, on constate qu'il est nécessaire de simuler le cycle dans sa globalité, du fait notamment de la présence du ^{241}Pu , qui a une durée de vie de 14.4 ans.

D'une part, la réactivité du système change de manière significative : il y a 1200 pcm d'écart entre le début et la fin de l'irradiation, bien que l'on soit à l'équilibre. D'autre

part, d'un point de vue des déchets, cela permet de mieux déterminer les masses d' ^{241}Am , car considérer l'aval du cycle permet de prendre en compte la masse de ^{241}Pu qui décroît sur l' ^{241}Am durant le refroidissement, étant donné que la période de désintégration du ^{241}Pu est du même ordre de grandeur que le temps de refroidissement. L'impact sur les déchets demeure quand même moindre que celui sur la réactivité car même si la variation de la masse d' ^{241}Am est importante au début du cycle (cf figure 4.2), lors de l'irradiation, l'isotope tend vers sa concentration d'équilibre, et l'écart se réduit nettement. Dans le cas où le temps de refroidissement varie, la variation de la masse d' ^{241}Am passe de 64 kg, en début de cycle, à 14 kg en fin d'irradiation : l'écart de masse est réduit de 78 %.

Pour limiter la quantité d' ^{241}Am aux déchets, il est donc préférable de privilégier un temps de refroidissement faible, quitte à garder plus longtemps un combustible frais sur étagère si celui-ci ne peut être réutilisé immédiatement. Cette stratégie permet de transmuter l' ^{241}Am en cœur plutôt que de le vitrifier (dans le cas sans transmutation des AM).

Bien entendu, il faut prendre en compte tous les isotopes du combustible, de l'uranium au californium, ainsi que la dépendance spatiale et temporelle des sections efficaces microscopiques, ce qui nécessite l'utilisation du code MURE qui fournit les résultats présentés ci-après.

4.2 Cas de référence avec rechargement du combustible en cœur

Nous présentons désormais des calculs complets issus de MURE, après la mise en place d'outils permettant de prendre en compte l'ensemble du cycle.

Le cœur étudié est le RNR-Na présenté au début du chapitre 3. Dans ce cas de référence sans transmutation des actinides mineurs, l'évolution est réalisée sur 250 ans avec recyclage de l'uranium (U) et du plutonium (Pu) uniquement. L'équilibre est atteint définitivement au bout de 200 ans ($t_{\text{éq}}$).

Dans la suite, le RNR avec combustible U/Pu sans transmutation est choisi comme référence et sera noté : U/Pu Ref.

4.2.1 Gestion du rechargement

En pratique, chaque année, les assemblages les plus anciens (appelés lot) sont extraits du cœur et remplacés par un lot d'assemblages neufs. Les assemblages sont replacés en cœur selon un plan de rechargement qui prend en compte le maintien d'une nappe de puissance la plus plate possible, ce qui n'est pas le cas dans notre simulation. Néanmoins, la gestion que nous avons mise en place a l'avantage de permettre la simulation d'un cœur en s'assurant que chaque assemblage retraité a subi la même irradiation (même combustion massique).

Notre gestion du cœur est réalisée par un rechargement des assemblages de type OUT-IN et dépend de quatre paramètres : la *longueur du cycle* des assemblages, le *temps de*

refroidissement des assemblages usés avant leur retraitement, le *temps de refabrication* pour réaliser les assemblages neufs, et le *temps d'irradiation total* des assemblages en cœur, qui va déterminer le taux de combustion.

A chaque cycle, le combustible placé dans la zone la plus interne du cœur est retiré du cœur. Les assemblages sont déplacés séquentiellement de la zone la plus externe vers la zone centrale du cœur. Les assemblages frais sont placés dans la zone la plus externe du cœur. Les assemblages usés, une fois sortis du cœur, refroidissent durant T_{cool} . L'uranium et le plutonium recyclés issus de ces assemblages usés refroidis, sont mélangés à de l'oxyde d'uranium appauvri pour fabriquer les assemblages frais. Ce procédé de fabrication dure T_{fab} durant lequel le combustible continue à évoluer par décroissance naturelle. Dans notre étude, les valeurs utilisées pour les différents temps sont les suivantes (cf figure 4.9) :

- la *longueur du cycle* est de 1 an ;
- le *temps d'irradiation total* des assemblages en cœur est de 5 ans ;
- le *temps de refroidissement* T_{cool} des assemblages usés est de 5 ans ;
- le *temps de fabrication* T_{fab} des assemblages frais est de 2 ans.

Nous nous basons sur les valeurs de référence retenues pour les études de scénarios dans le cadre de la loi de 2006 [54]. Durant toutes ces périodes, dans chacun des stocks (storage), le combustible continue à évoluer du fait des décroissances radioactives.

A sa sortie du cœur, tout le combustible utilisé est placé dans un stock intermédiaire durant le temps de refroidissement T_{cool} . Après T_{cool} , les AM et les PF sont séparés de l'uranium et du plutonium. L'U et le Pu sont placés dans un stock dédié aux éléments fissile-fertile. Les AM et les PF sont également séparés et placés respectivement dans un stock dédié aux AM et un stock dédié aux déchets. Les pertes chimiques obtenues lors de la séparation de ces différents éléments sont mises aux déchets. Ces pertes sont fixées à 0.1 %.

Ce type de gestion a un certain nombre de limites. Tout d'abord ce n'est pas ce qui est fait dans la réalité. En pratique, le repositionnement des assemblages neufs et ceux qui n'ont pas atteint leur burn-up maximal se fait de façon homogène, selon une stratégie qui va tenir compte des aspects de sûreté (aplatissement de la nappe de puissance par exemple) et des critères de rentabilité (limitation des fuites radiales des neutrons vers la cuve pour éviter une fragilisation précoce de cette dernière et augmenter ainsi son temps de vie). En outre, l'arrêt du réacteur durant le déchargement du combustible usé et le rechargement du combustible neuf n'est pas pris en compte dans cette étude. MURE continue d'être développé et les moyens de calculs actuels permettent d'envisager une meilleure prise en compte des effets spatiaux dans les mois à venir. Ceci n'est pas très gênant dans le cas du cycle U/Pu, mais cela devient plus sensible en cycle Th/U à cause de l'effet protactinium, qui va entraîner une sous estimation de l' ^{233}U réellement présent en cœur. De plus, cette façon de simuler le rechargement impose une seule zone d'enrichissement (15.09 %). Une amélioration à venir pourrait être de définir deux zones d'enrichissement distinctes et de gérer en parallèle deux séries de stocks, une série pour la zone interne d'enrichissement, et une série pour la zone externe d'enrichissement. Le code MURE ne permet pas pour l'instant de simuler cette façon de procéder.

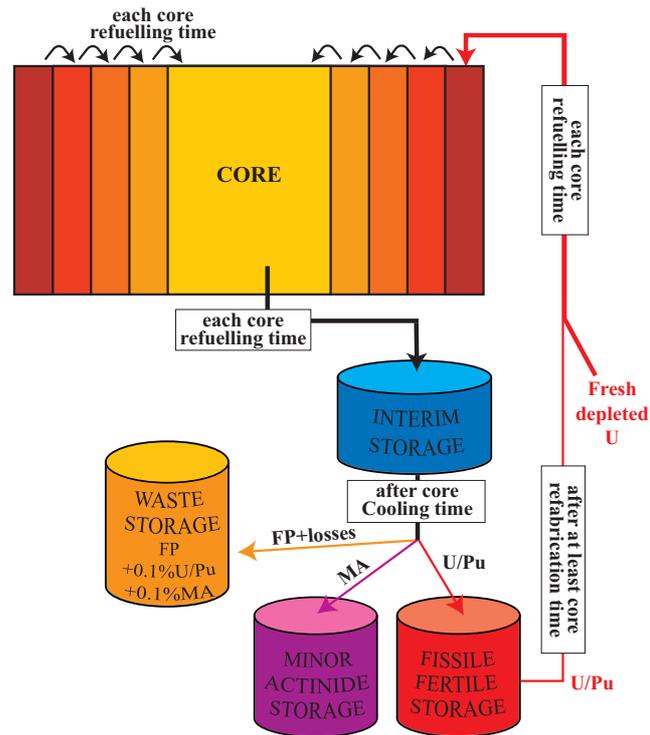


FIG. 4.9: Gestion du rechargement dans le cas de référence

4.2.2 Inventaires et proportions de fission

Les inventaires des isotopes du Pu, de l'U ainsi que des principaux actinides mineurs, à l'équilibre, durant un cycle (1 an), ainsi que la masse des éléments mis aux déchets par an, sont donnés dans le tableau 4.1. Les proportions de fission au démarrage et à l'équilibre en début de cycle (DDC) et en fin de cycle (FDC) sont présentés sur la figure 4.13.

Le vecteur Pu est quasiment à l'équilibre au bout de 100 ans (cf figure 4.10). Durant les 50 premières années, le vecteur Pu s'enrichit en ^{239}Pu (+ 1.7 t) et en ^{240}Pu (+ 700 kg), et s'appauvrit en ^{241}Pu (- 500 kg) et en ^{242}Pu (- 900 kg). Ensuite, la masse fissile se stabilise. Pendant les 8 premières années, les assemblages frais sont chargés avec du Pu MOX refroidi 30 ans, car 7 ans sont nécessaires pour récupérer le premier Pu retraité (5 ans de refroidissement et 2 ans de fabrication). Au bout de 8 ans, le Pu retraité étant disponible, c'est ce dernier qui est utilisé pour constituer les assemblages frais.

La configuration choisie conduit à un système régénératif (l'inventaire en ^{239}Pu est quasiment constant sur la durée d'un cycle, cf tableau 4.1). Par cycle, on produit près de 13.8 kg/GWe.an d'américium, 2.8 kg/GWe.an de curium et 6.9 kg/GWe.an de neptunium.

Sur les figures 4.11 et 4.12, sont présentés des agrandissements de l'évolution du ^{239}Pu et du ^{241}Pu respectivement, à l'équilibre. Concernant le ^{239}Pu , son inventaire est constant entre deux rechargements, aux dispersions statistiques près : la variation est inférieure à 2

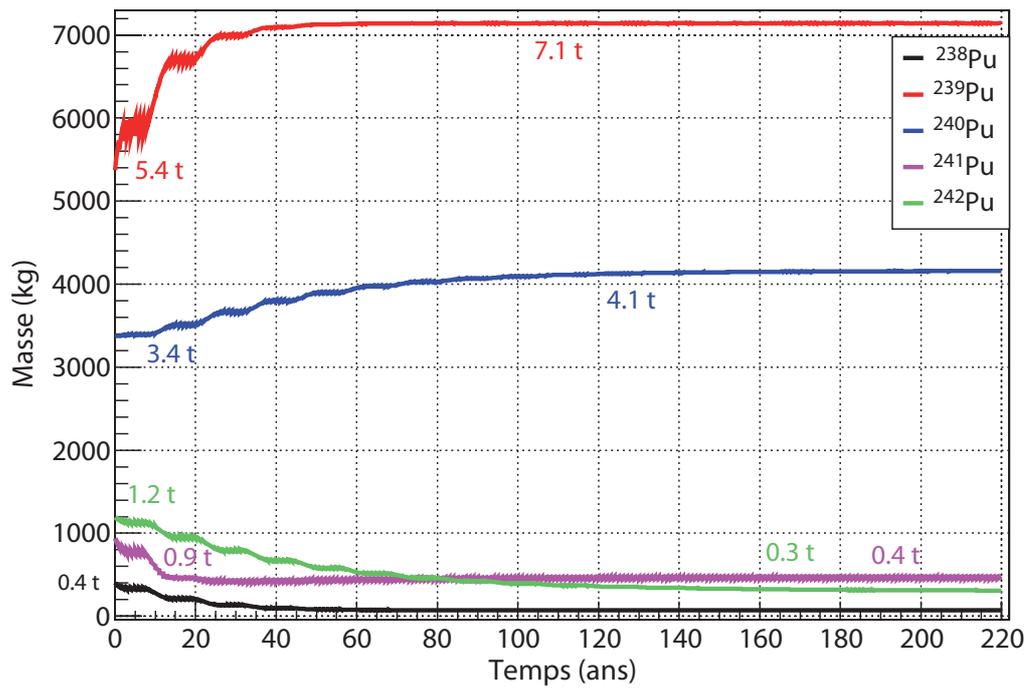
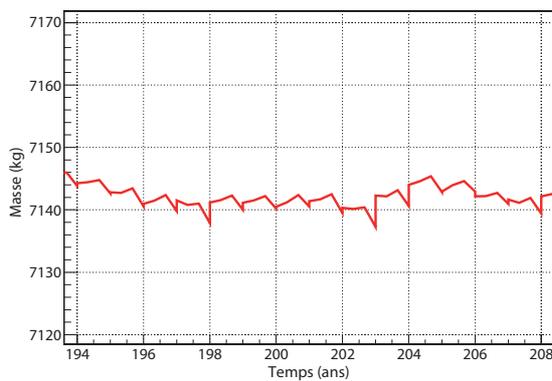
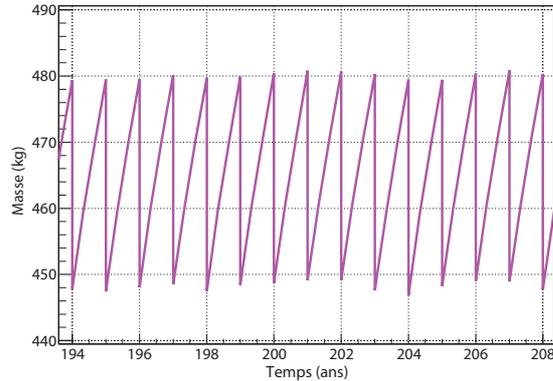


FIG. 4.10: Evolution de la masse des isotopes du Pu au cours du temps

FIG. 4.11: Zoom du ^{239}Pu à l'équilibreFIG. 4.12: Zoom du ^{241}Pu à l'équilibre

kg, soit moins de 0.3 %. Pour le ^{241}Pu , on voit clairement que ce dernier n'est pas constant sur la durée du cycle : sur 1 an, sa masse augmente de 31 kg, soit 7 % d'augmentation. Cela conforte les résultats du modèle simplifié présenté dans le paragraphe 4.1.

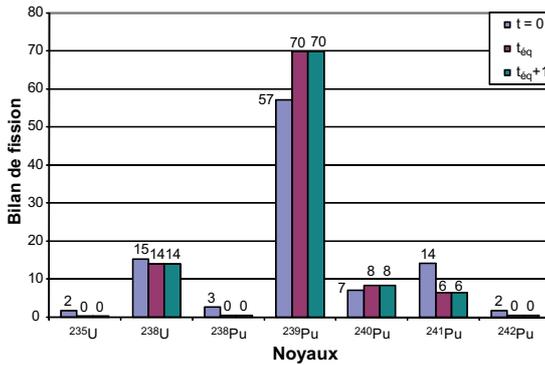
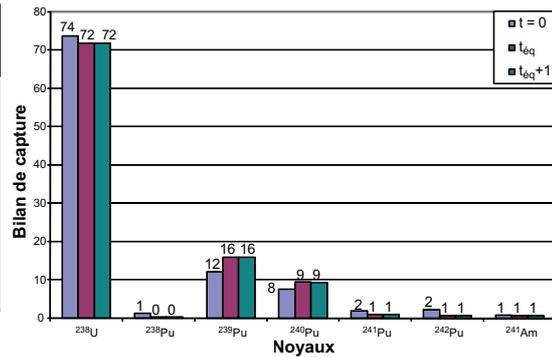
Sur la figure 4.13, qui explicite le bilan des fissions du combustible, une augmentation significative du pourcentage de fission du ^{239}Pu entre $t = 0$ et $t = t_{\text{éq}}$ est observée. On constate également que la part des fissions provenant de l' ^{238}U est relativement importante et se place en deuxième position après le ^{239}Pu . La part de fission du ^{241}Pu est du même ordre de grandeur que celle de l' ^{238}U au démarrage, mais diminue de moitié à l'équilibre

Noyaux	Masse en cœur (kg) ($P_{elec} = 1.45$ GWe)			Masse mise aux déchets (kg/GWe.an)
	démarrage	$t_{\text{éq}}$	$t_{\text{éq}} + 1$ an	A l'équilibre RNR (REP)
^{238}U	61 765	59 015	57 645	7.6
^{238}Pu	403	74	73	0.014
^{239}Pu	5 376	7 141	7 140	0.96
^{240}Pu	3 376	4 146	4 148	0.55
^{241}Pu	941	449	480	0.06
^{242}Pu	1 191	327	326	0.04
^{241}Am	89	66	76	29 (23.9)
^{243}Am	0	14	23	5.6 (13.1)
^{242}Cm	0	4	6	0.01
^{244}Cm	0	2	4	1.2 (4.3)
^{237}Np	0	11	18	4.6 (37.0)
^{239}Np	0	8	11	$< 10^{-6}$

TAB. 4.1: Inventaires du Pu, de l'U et des principaux actinides mineurs

	Masse en cœur (kg)			Masse en cœur (kg/GWe)
	démarrage	$t_{\text{éq}}$	$t_{\text{éq}} + 1$ an	$t_{\text{éq}}$
Total Pu	10096	12137	12167	8370

TAB. 4.2: Inventaire total du Pu

FIG. 4.13: Bilan des fissions par noyau pour $t=0$, $t=DDC$ et $t=FDC$ FIG. 4.14: Bilan des captures par noyau pour $t=0$, $t=DDC$ et $t=FDC$

dans la mesure où son inventaire est diminué de plus de moitié (tableau 4.1).

4.2.3 Spectre à l'équilibre

Ci-dessous sont présentés les spectres en énergie du cœur à $t_{\text{éq}}$ plein de sodium (courbe bleue sur la figure 4.15) et vidangé (courbe rouge sur la figure 4.15). Le spectre est centré aux alentours de 200 keV, et la résonance de diffusion du sodium est très visible aux environs de 3 keV sur la courbe bleue. Elle est absente sur la courbe rouge puisque le cœur est vide de sodium. En dessous de 10 keV, le flux chute rapidement. Cela provient du fait que peu de neutrons survivent à relativement basse énergie dans un cœur rapide. On constate aussi que la courbe rouge (vidange) sur la figure 4.15 est décalée vers les hautes énergies, ce qui met en évidence le durcissement du spectre lors de la vidange, qui est également visible sur la figure 4.16. Cette courbe représente le rapport entre le spectre du cœur plein de sodium sur le spectre du cœur vide de sodium.

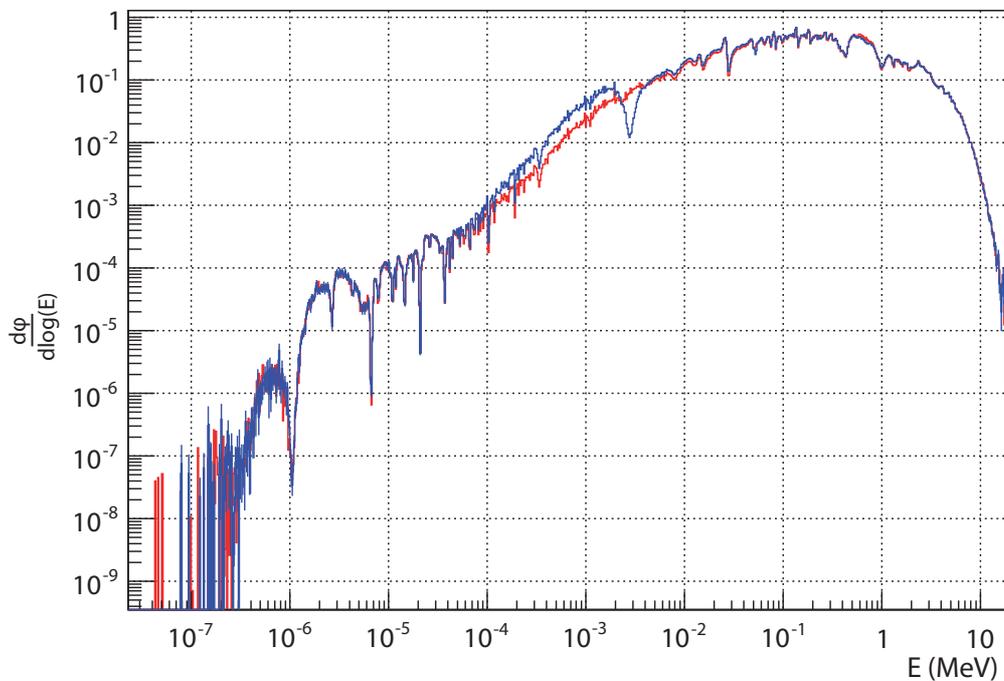


FIG. 4.15: Spectres du cœur plein de sodium (bleu) et vide de sodium (rouge)

Le détail des différentes résonances du spectre est présenté sur la figure 4.17. La structure macroscopique du spectre est largement marquée par les larges résonances de diffusion du sodium, du fer et de l'oxygène, au-dessus de 1 keV. En dessous de 300 eV, les résonances étroites d'absorption des noyaux lourds apparaissent sur le spectre. Ces résonances jouent un rôle dans l'effet Doppler.

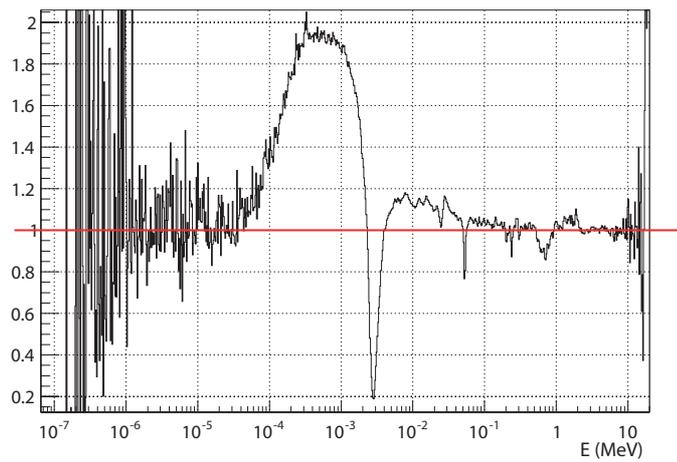


FIG. 4.16: Rapport du spectre du cœur plein de sodium sur le spectre du cœur vidangé

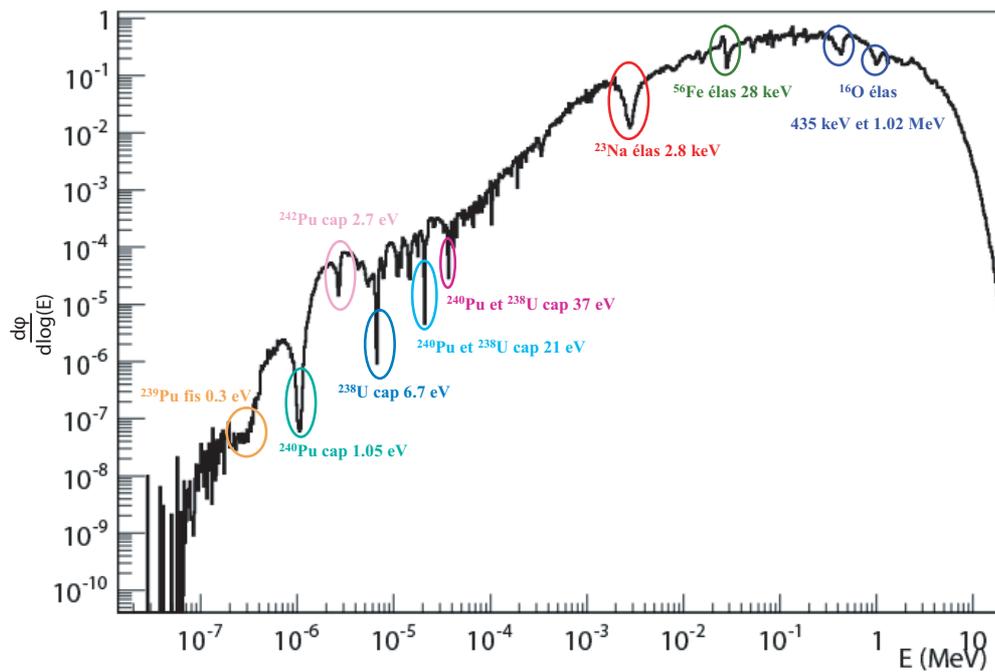


FIG. 4.17: Détail du spectre du cœur plein à $t_{\text{éq}}$

4.2.4 Isogénération et surgénération

La configuration obtenue est largement surgénératrice durant les 50 premières années, alors que les dimensions du cœur et le combustible utilisés, fournis par le CEA, sont an-

noncés comme isogénérateur sur 2050 JEPP. Par conséquent, le k_{eff} devient très élevé à l'équilibre (1.07). Plusieurs raisons peuvent expliquer cela. Deux codes totalement différents sont utilisés (le code déterministe ERANOS pour le CEA et le code probabiliste MURE pour notre étude) avec des bases de données nucléaires difficilement reproductibles (ERANOS utilise des bases de données modifiées, ERALIB, qui s'appuie sur une version modifiée de JEFF-2.2, tandis que MURE utilise, pour ce calcul, la base ENDFB7), le fait de calculer de façon différente la dilatation des longueurs géométriques et la porosité du combustible, sont autant de sources possibles de différences entre les deux résultats.

Ensuite, pour des raisons techniques, qui pourront être réglées par la suite, lorsque l'on simule le rechargement, on ne peut le faire qu'avec un seul enrichissement, alors que dans les données fournies, il y a deux zones d'enrichissement. Une étude est présentée ci-après pour quantifier l'impact de ces deux zones d'enrichissement sur la valeur du k_{eff} .

Pour proposer une configuration avec un k_{eff} acceptable, un calcul de cœur a été réalisé en utilisant le vecteur Pu à l'équilibre de la configuration précédente, et « en mettant de côté » 10 % du Pu sorti du cœur à chaque cycle, au lieu de l'utiliser pour fabriquer des assemblages frais. Les résultats sont satisfaisants, dans la mesure où à l'équilibre, le k_{eff} est stabilisé à 1.01 en moins de 20 ans : le cœur est alors surgénérateur puisque environ 215 kg de Pu sont mis de côté à chaque recyclage (cf figures 4.18 et 4.19), soit une surgénération de 148 kg/GWe.an.

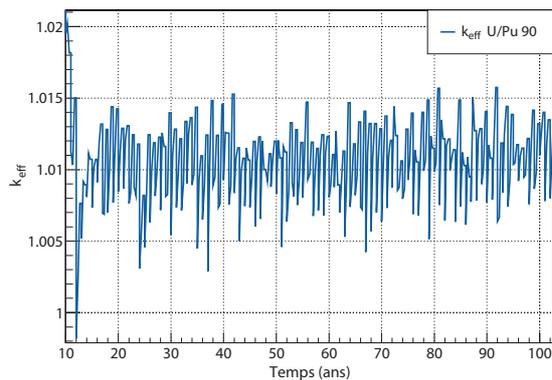


FIG. 4.18: k_{eff} en configuration U/Pu avec mise sur étagère de 10 % du Pu

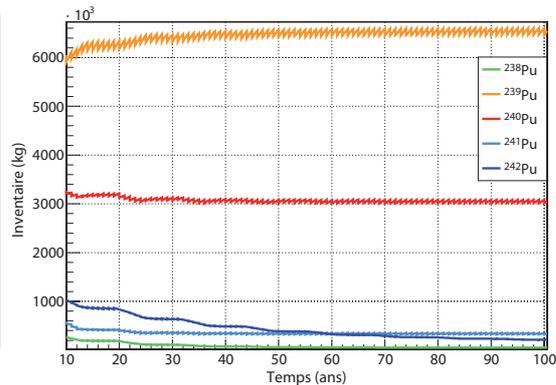


FIG. 4.19: Evolution du vecteur Pu en configuration U/Pu avec mise sur étagère de 10 % du Pu

Concernant l'impact sur les déchets, il est négligeable et les configurations peuvent être considérées comme équivalentes de ce point de vue.

4.2.5 Influence de deux zones d'enrichissement sur le k_{eff}

Nous présentons ici une étude sur un cœur à 6 zones radiales : 3 zones internes et 3 zones externes. Dans la zone interne, la teneur en Pu est C_1 et dans la zone externe, la teneur en Pu est C_2 . La durée d'un cycle est de 2 ans et le temps d'irradiation totale de chaque zone

d'assemblages est de 6 ans. Des calculs assemblages ont été préalablement réalisés avec la composition du vecteur Pu à l'équilibre et des teneurs en Pu variant de 12 % à 18 %, avec des temps d'irradiation allant de 2 à 6 ans pour avoir les différentes compositions de chaque zone du cœur en fonction de leur temps d'irradiation. Le rechargement est toujours de type OUT-IN et se fait indépendamment dans chacune des deux zones, interne ou externe. Un calcul MCNP est réalisé sur le cœur pour déterminer le k_{eff} , selon le couple (C_1, C_2) choisi pour l'enrichissement des deux zones. La teneur interne est toujours plus faible que celle externe. On trace la variation de réactivité cf figure 4.20) entre le cas avec deux zones d'enrichissement distinctes et le cas de référence, en fonction du couple (C_1, C_2) (cf tableau 4.3). Le cas de référence est un cœur avec la même teneur en Pu dans les deux zones d'enrichissement, cette teneur étant de 15 % (C_0).

C_1	C_2	x	$k_{eff}-k_0$ (pcm)
12	18	0.40	1 323
13	17	0.27	-680
13.5	16.5	0.20	-1 420
14	16	0.13	-1 641
14.5	15.5	0.07	-1185
15	15	0	0

TAB. 4.3: Variation de la réactivité en fonction du couple (C_1, C_2) : $x = \frac{C_2 - C_1}{C_0}$ et $C_0 = \frac{C_2 + C_1}{2}$

La courbe 4.20 montre que lorsque l'on utilise deux teneurs différentes, de l'ordre de 14 % et 16 %, afin d'aplatir la nappe de puissance, cela conduit à diminuer la réactivité. Cela s'explique par l'augmentation des fuites radiales. Mais, lorsque l'écart des teneurs est plus important, la réactivité augmente. Cela est dû aux variations significatives du spectre et donc du paramètre η du combustible, qui compense l'effet des fuites. Il apparaît en tout cas que le fait de simuler une seule concentration en Pu explique en partie la valeur importante de k_{eff} que nous obtenons.

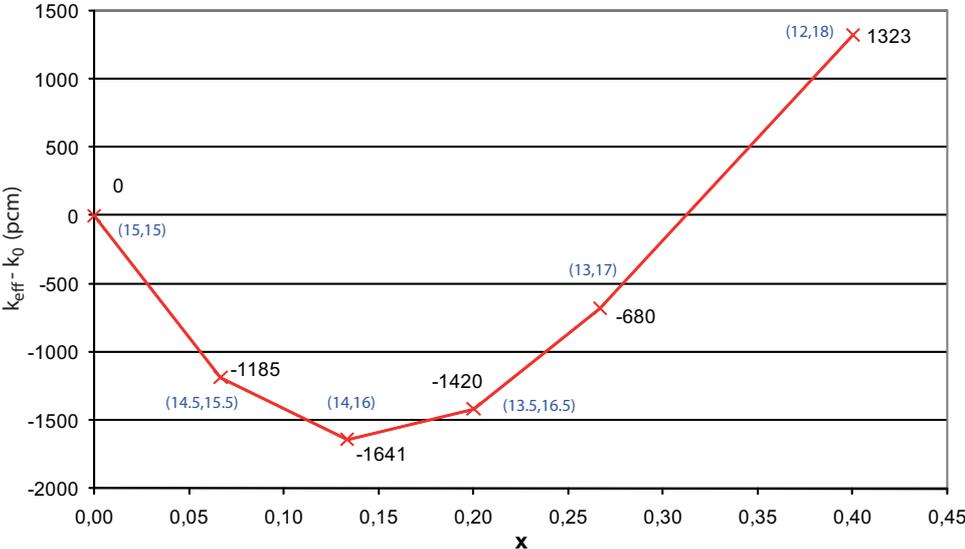


FIG. 4.20: Variation de la réactivité en fonction du couple (C_1, C_2) : $x = \frac{C_2 - C_1}{C_0}$

4.3 Cas de transmutation homogène des actinides mineurs

4.3.1 Gestion du rechargement

La configuration du système est la même, seule la gestion du rechargement diffère. En effet, lors de la refabrication des assemblages neufs, le plutonium et l'uranium sont recyclés, ainsi que les actinides mineurs, issus des assemblages usés (cf figure 4.21). Les pertes au retraitement pour les AM sont les mêmes que pour l'U et le Pu, et sont fixées à 0.1 %. Tous les autres paramètres restent inchangés. Dans la suite, on notera le RNR avec combustible U/Pu en transmutation homogène : U/Pu Hom.

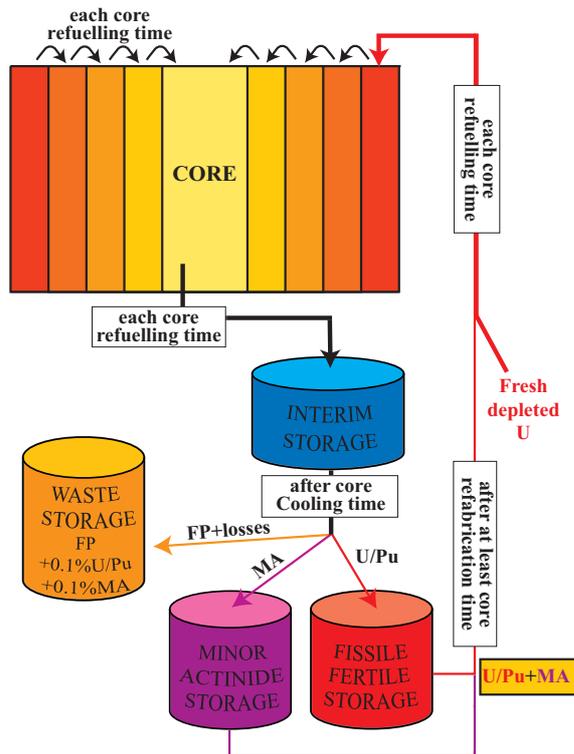


FIG. 4.21: Gestion du rechargement dans le cas de transmutation homogène

4.3.2 Comparaison de l'inventaire dans les cas avec et sans transmutation

Le tableau 4.4 compare les inventaires en cœur des principaux noyaux, dans le cas sans transmutation et dans le cas avec transmutation homogène, une fois l'équilibre atteint.

Le pourcentage d'AM mis en cœur ne dépasse pas la limite des 2.5 % à $t_{\text{éq}}$, fixée pour les grands cœurs pour des considérations de sûreté [9]. Les AM en cœur se répartissent comme :

	Masse (kg)		% massique	
	U/Pu Ref	U/Pu Hom	U/Pu Ref	U/Pu Hom
AM	106	657	0.15	0.9
PF	1913	1888	2.61	2.58
U	59116	58383	80.7	79.7
Pu	12137	12341	16.6	16.8

TAB. 4.4: Inventaires en cœur dans le cas U/Pu Ref et le cas U/Pu Hom à $t_{\text{éq}}$

- américium : 72.32 % ;
- curium : 14.80 % ;
- neptunium : 12.84 % ;
- autres : 0.04 %.

Si le vecteur Pu est comparé dans le cas de référence et le cas homogène à $t_{\text{éq}}$ (cf tableau 4.5), le pourcentage massique du ^{238}Pu est plus grand dans le cas homogène, à cause du recyclage en cœur de l' ^{241}Am , qui produit du ^{242}Cm par capture, qui décroît en 163 jours sur le ^{238}Pu .

	Masse (kg)		% massique	
	U/Pu Ref	U/Pu Hom	U/Pu Ref	U/Pu Hom
^{238}Pu	74	322	0.6	2.6
^{239}Pu	7 141	7 116	58.8	57.7
^{240}Pu	4 146	4 161	34.2	33.7
^{241}Pu	449	441	3.7	3.6
^{242}Pu	327	302	2.7	2.4

TAB. 4.5: Inventaire du Pu en cœur dans le cas U/Pu Ref et le cas U/Pu Hom à $t_{\text{éq}}$

4.4 Cas de transmutation hétérogène des AM en couverture radiale

En transmutation hétérogène, la configuration du système est légèrement différente. En effet, le cœur est toujours divisé en 5 zones radiales et 1 zone axiale, mais une couronne d'assemblages est ajoutée en périphérie du cœur. Cette couverture radiale est composée de 86 assemblages, du même type que les assemblages combustible, mais contenant uniquement de l'uranium appauvri au démarrage du réacteur. On ajoute progressivement dans les couvertures tous les AM créés par le RNR.

Cette stratégie offre l'avantage de concentrer les AM à transmuter dans un nombre réduit d'assemblages, certes plus délicats à manipuler et à retraiter, mais permettant en revanche de simplifier le cycle des assemblages du cœur U/Pu. De plus, la présence d'AM dans des couvertures fertiles les rendent plus résistantes à la prolifération. Il s'agirait donc d'une voie permettant de rendre plus acceptable la surgénération en couverture fertile, tout en transmutant les AM (comparée à l'utilisation d'une couverture fertile sans AM).

4.4.1 Gestion du rechargement : cœur et couverture

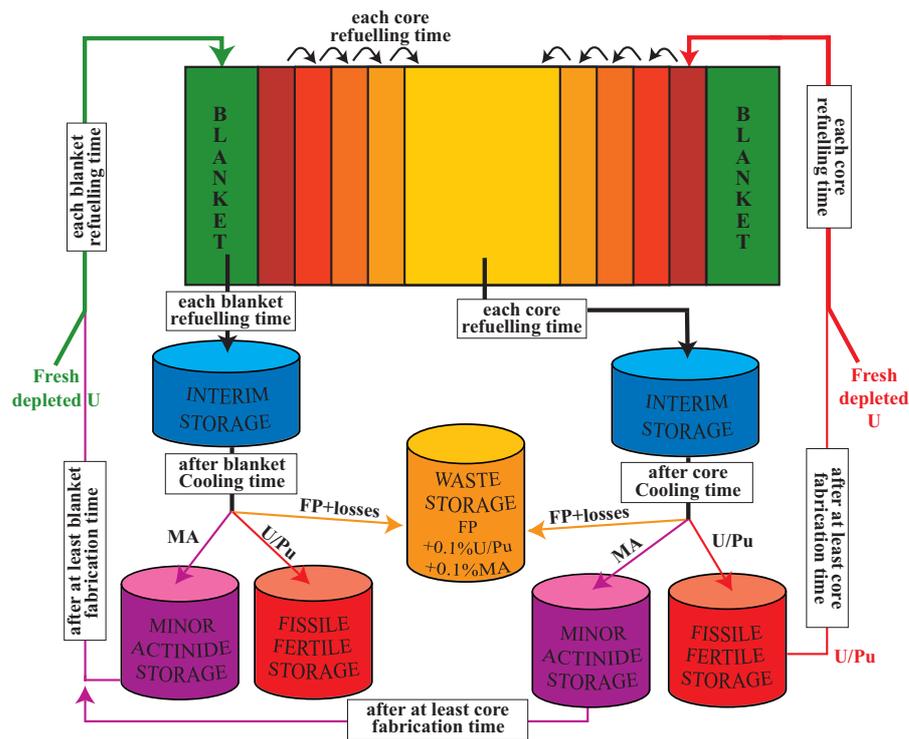


FIG. 4.22: Description de la gestion des assemblages du cœur et de la couverture

La gestion du cœur est la même que celle en cas de référence. Le temps de refroidisse-

ment est de 5 ans, et celui de refabrication est de 2 ans, que ce soit pour les assemblages du cœur ou de la couverture. La longueur du cycle pour les assemblages du cœur est toujours de 1 an, le temps d'irradiation des couvertures est de 10 ans. Le plutonium surgénéré dans la couverture n'est pas recyclé : il est stocké et non comptabilisé dans les déchets. Les AM provenant du cœur et de la couverture sont transmutés dans la couverture, dès qu'ils sont disponibles (après au moins le temps de refroidissement plus le temps de refabrication, c'est-à-dire, après au moins 8 ans). Les différentes étapes de la gestion du cœur et de la couverture sont résumées sur la figure 4.22. Dans notre étude, le Pu surgénéré dans la couverture est « mis sur étagère » : le ^{238}Pu , produit par les captures sur l' ^{241}Am , n'est donc pas recyclé en couverture : une partie du cycle de transmutation des AM est donc amputée. En effet, en transmutation homogène, comme le recyclage des AM se fait en cœur, là où on remet le Pu, le ^{238}Pu issu de l' ^{241}Am peut s'équilibrer.

L'évolution est réalisée sur 300 ans. L'équilibre est atteint après 250 ans. Les temps de début de cycle et de fin de cycle (cœur et couverture), à l'équilibre, sont pris respectivement à 290 ans (DDC cœur), 291 ans (FDC cœur) et 300 ans (FDC couverture).

Dans la suite, on notera le RNR avec combustible U/Pu avec transmutation hétérogène : U/Pu Het.

4.4.2 Transmutation des AM dans la couverture

Les AM retraités sont le neptunium, l'américium, le curium, le berkélium et le californium. Lors du retraitement, l'efficacité supposée de séparation du plutonium, de l'uranium et des AM est toujours de 99.9 %, ce qui conduit à 0.1 % de pertes qui sont envoyées aux déchets avec les produits de fission. Le vecteur des AM dans la couverture à l'équilibre, en début et fin de cycle, est présenté dans le tableau 4.6. Pour le système considéré, à l'équilibre et en début de cycle, la proportion massique d'AM est de 21 % dans la couverture radiale, et se répartit de la manière suivante : 76.8 % d'américium, 19.7 % de neptunium et 3.5 % de curium.

À l'équilibre, durant les 10 ans d'irradiation de la couverture, la production des AM dans le cœur est égale aux AM brûlés dans la couverture. Le taux de transmutation dans la couverture est défini comme :

$$\frac{\text{masse}_{DDC} - \text{masse}_{CDC}}{\text{masse}_{CDC}} \times 100 \text{ (\%)} \quad (4.25)$$

où la masse_{DDC} est la masse déchargée de la couverture et la masse_{CDC} est la masse chargée dans la couverture.

Le taux de transmutation, calculé à l'équilibre sur la période d'irradiation de la couverture, est de 17 % en 10 ans. Mais en fait, comme le Pu produit dans la couverture (essentiellement du ^{239}Pu par capture sur l' ^{238}U), le ^{238}Pu obtenu après deux décroissances sur l' $^{241}\text{Am}^1$ est retiré puis entreposé. On ne peut donc pas considérer que tout l' ^{241}Am consommé a été véritablement transmuté (puisque une partie s'accumule sous forme de ^{238}Pu).

$^{1241}\text{Am} \xrightarrow{(n,\gamma)} ^{242*}\text{Am} \xrightarrow{\beta} ^{242}\text{Cm} \xrightarrow{\alpha} ^{238}\text{Pu}$

En prenant en compte cet aspect, le taux de transmutation est de l'ordre de 6 %. Cela correspond à une consommation de 306 kg/GWe.an dans la couverture pour le premier cas, et à une consommation de 100 kg/GWe.an dans le deuxième cas. Bien entendu, en prenant en compte l'américium produit dans le cœur, la masse globale (cœur et couverture radiale) d'Am est constante puisque l'on est à l'équilibre, ce qui n'est pas le cas du Pu de la couverture car il est sorti tous les 10 ans et mis sur étagère, et contient de fait, du ^{238}Pu issu de la décroissance de l' ^{241}Am .

Il est à noter que le calcul du taux de transmutation hétérogène n'est pas optimal car la nappe de puissance n'est pas suffisamment aplatie du fait d'une unique teneur en cœur. Le flux dans les couvertures est trop faible pour obtenir un taux de transmutation efficace en couverture.

Noyaux	Début De Cycle		Fin De Cycle couverture	
	AM (% mass.)	Masse AM (kg)	AM (% mass.)	Masse AM (kg)
^{242}Cm	0.001	0.16	0.1	16.3
^{243}Cm	0.01	1.7	0.01	1.5
^{244}Cm	0.4	55.9	0.6	91.5
^{245}Cm	0.17	24.2	0.15	22.6
^{246}Cm	0.06	9.2	0.07	9.8
^{247}Cm	0.01	1.3	0.01	1.4
^{248}Cm	0.002	0.3	0.003	0.4
^{241}Am	10.4	1520	8	1180
^{242m}Am	0.4	60.1	0.4	62
^{243}Am	2.9	431	2.4	356
^{237}Np	3.5	515	2.9	433
autres	0.001	0.15	0.002	0.05

TAB. 4.6: Principaux AM dans la couverture en début et fin de cycle

Noyaux	Masse (kg)	% massique
^{238}Pu	2.3	8.6
^{239}Pu	0.73	2.7
^{240}Pu	23.2	86.7
^{241}Pu	0.02	0.1
^{242}Pu	0.52	1.9

TAB. 4.7: Inventaire du Pu dans la couverture à l'équilibre

4.5 Comparaison de quelques paramètres de sûreté

4.5.1 Vidange du sodium

Réactivité de vidange (pcm)

La réactivité de vidange (cf Chapitre 3, paragraphe 3.2.1) dans la zone fissile est calculée au démarrage et à l'équilibre en début de cycle (DDC : $t_{\text{éq}}$) et en fin de cycle (FDC : $t_{\text{éq}} + 1$ an).

	$t = 0$	$t = t_{\text{éq}}$	$t = t_{\text{éq}} + 1$ an
RNR U/Pu - Ref	1752	1929	2002
RNR U/Pu - Hom	1766	2005	2050
RNR U/Pu - Het	1726	1887	1969

TAB. 4.8: Réactivité du vide en pcm pour les trois gestions de cœur

Réactivité de vidange (\$)

	$t = 0$	$t = t_{\text{éq}}$	$t = t_{\text{éq}} + 1$ an
RNR U/Pu - Ref	4.56	5.54	5.89
RNR U/Pu - Hom	4.73	6.06	5.96
RNR U/Pu - Het	4.48	6.31	6.28

TAB. 4.9: Réactivité du vide en \$ pour les trois gestions de cœur

L'écart-type pour le calcul de la réactivité du vide est de l'ordre de 15 pcm, et celui de la réactivité du vide en \$ est de l'ordre de 0.3 \$.

On constate qu'entre le démarrage et l'équilibre, la réactivité de vidange augmente de près de 200 pcm (cf tableau 4.9). Or, entre le démarrage et l'équilibre, la masse de ^{239}Pu a fortement augmenté (cf tableau 4.1). Pour connaître l'influence de cette augmentation du ^{239}Pu sur la réactivité du vide, on calcule le k_{∞} sur un assemblage de RNR. Le k_{∞} de l'assemblage plein de sodium, k_{∞} , est calculé selon l'équation 4.26, où i représente les noyaux ^{238}U , ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu , ^{241}Am , ^{243}Am , ^{244}Cm et ^{237}Np . De même, le k_{∞} de l'assemblage vide de sodium, k_{∞}^* , est calculé selon l'équation 4.27, où i représente les mêmes noyaux que précédemment. Il va de soi que la concentration de sodium dans l'équation 4.27 est nulle.

$$k_{\infty} = \sum_i \frac{\nu_i \sigma_i^{\text{fis}} N_i}{N_i (\sigma_i^{\text{fis}} + \sigma_i^{\text{cap}}) + N_{\text{Na}} \sigma_{\text{Na}}^{\text{cap}} + N_{\text{gaine}} \sigma_{\text{gaine}}^{\text{cap}}} \quad (4.26)$$

$$k_{\infty}^* = \sum_i \frac{\nu_i^* \sigma_i^{*fis} N_i}{N_i(\sigma_i^{*fis} + \sigma_i^{*cap}) + N_{Na} \sigma_{Na}^{*cap} + N_{gain} \sigma_{gain}^{*cap}} \quad (4.27)$$

On calcule la dérivée de $\Delta k_{\infty} = k_{\infty}^* - k_{\infty}$ par rapport à N_{239Pu} . Pour ce faire, on pose, où l'isotope i est le ^{239}Pu :

$$k_{\infty} = \frac{\alpha_1 + \alpha_2 N_i}{\alpha_3 + \alpha_4 N_i}$$

et :

$$k_{\infty}^* = \frac{\beta_1 + \beta_2 N_i}{\beta_3 + \beta_4 N_i}$$

avec :

$$\alpha_1 = \sum_{j \neq i} \nu_j \sigma_j^{fis} N_j ; \alpha_2 = \nu_i \sigma_i^{fis} N_i ; \alpha_3 = \sum_{j \neq i} (\sigma_j^{fis} + \sigma_j^{cap}) N_j ; \alpha_4 = (\sigma_i^{fis} + \sigma_i^{cap}) N_i$$

$$\beta_1 = \sum_{j \neq i} \nu_j^* \sigma_j^{*fis} N_j ; \beta_2 = \nu_i^* \sigma_i^{*fis} N_i ; \beta_3 = \sum_{j \neq i} (\sigma_j^{*fis} + \sigma_j^{*cap}) N_j ; \beta_4 = (\sigma_i^{*fis} + \sigma_i^{*cap}) N_i$$

La dérivée s'écrit comme :

$$\frac{\partial \Delta k_{\infty}}{\partial N_i} = \frac{\beta_2(\beta_3 + \beta_4 \times N_i) - \beta_4(\beta_1 + \beta_2 \times N_i)}{(\beta_3 + \beta_4 \times N_i)^2} - \frac{\alpha_2(\alpha_3 + \alpha_4 \times N_i) - \alpha_4(\alpha_1 + \alpha_2 \times N_i)}{(\alpha_3 + \alpha_4 \times N_i)^2} \quad (4.28)$$

La dérivée de Δk_{∞} par rapport à chaque isotope (N_i) est calculée et on regarde l'impact de l'ajout de 1 % du noyau considéré sur la variation du k_{∞} . En fait, on calcule $\frac{\partial \Delta k_{\infty}}{\partial N_i} \times 1 \% \times N_i \times 10^5$. Ce calcul est réalisé pour tous les isotopes du Pu et l' ^{238}U . Il apparaît que c'est l'augmentation de la masse du ^{239}Pu qui a l'impact positif le plus significatif sur la variation du k_{∞} (cf tableau 4.10).

Entre le démarrage et la mise à l'équilibre, le ^{239}Pu augmente significativement (+ 30 %). De ce fait, dans la mesure où le ^{239}Pu a l'impact positif le plus important sur le Δk_{∞} , alors c'est ce noyau qui est responsable majoritairement de l'augmentation du k_{∞} lorsque le cœur du réacteur est vidangé.

A l'équilibre, une très légère augmentation de la réactivité du vide est observée sur la durée d'un cycle (entre $t_{\text{éq}}$ et $t_{\text{éq}} + 1$ an). Cette augmentation peut s'expliquer par la présence des PF. En effet, les PF constituent une source de captures neutroniques sensibles aux variations du spectre [38]. Le durcissement du spectre provoqué par la vidange du sodium (cf figure 4.15) entraîne une diminution des captures sur les PF et induit une contribution positive à la réactivité de vidange. Au démarrage, il n'y a aucun PF en cœur. A l'équilibre, en début de cycle, seul un cinquième du cœur est vide de PF (la zone la plus externe, et les autres zones ont des quantités de PF proportionnelles à leur état d'irradiation).

Entre le cas RNR U/Pu Ref et le cas RNR U/Pu Hom, la réactivité de vidange augmente légèrement à $t_{\text{éq}}$, à cause de la présence des AM. Du fait de la petite quantité en

Noyaux	démarrage (pcm/ %)	$t_{\text{éq}}$ (pcm/ %)
^{238}U	-8.7	-8.9
^{238}Pu	0.5	0.1
^{239}Pu	3.6	3.5
^{240}Pu	3.0	3.2
^{241}Pu	-1.3	-0.7
^{242}Pu	0.6	0.2
^{241}Am	0.02	0.01
^{243}Am	0	0.01
PF	0	0.4

TAB. 4.10: Dérivée du Δk_{∞} par rapport à la concentration de chaque isotope

cœur de ces AM (0.9 %), l'augmentation des réactivités du vide reste faible.

Entre le cas RNR U/Pu Ref et le cas RNR U/Pu Het, la réactivité de vidange est sensiblement la même (à + 100 pcm près, dû à la présence des AM). Cela peut s'expliquer par la forme du cœur, qui est un cœur galette. Dans un tel cœur, la composante des fuites neutroniques est principalement axiale. Comme la couverture est radiale, l'impact sur l'effet de vidange reste faible. En outre, la production de ^{239}Pu dans la couverture diminue la probabilité de fuite.

Fraction de neutrons retardés effective

	$t = 0$	$t = t_{\text{éq}}$	$t = t_{\text{éq}} + 1 \text{ an}$
RNR U/Pu - Ref	384	348	340
RNR U/Pu - Hom	373	331	344
RNR U/Pu - Het	385	359	314

TAB. 4.11: Fraction de neutrons retardés (pcm) pour les trois gestions de cœur

La fraction de neutrons retardés diminue entre le démarrage et l'équilibre (cf tableau 4.11). La barre d'erreur pour le β_{eff} est de l'ordre de 15 pcm. Dans le cas homogène, la fraction des neutrons retardés diminue plus fortement à l'équilibre. Cela provient de la présence des AM en cœur. En observant le tableau 4.12, on remarque que les AM en général, sauf le ^{237}Np , ont des valeurs très faibles de fraction des neutrons retardés ν_d par rapport à l' ^{238}U .

Noyaux	ν	ν_d (pcm) [55]	β (pcm)
^{238}Pu	3.01	456	151
^{239}Pu	2.95	664	225
^{240}Pu	3.02	960	318
^{241}Pu	2.97	1 630	549
^{242}Pu	3.08	2 280	740
^{238}U	2.77	4 510	1 628
^{241}Am	3.39	194	57
^{243}Am	3.57	870	244
^{244}Cm	3.52	352	100
^{237}Np	2.88	1 220	424

TAB. 4.12: Nombre de neutrons totaux ν et retardés ν_d émis par fission selon le noyau fissionnant et fractions de neutrons retardés β par noyaux

4.5.2 Coefficient Doppler

Les calculs de la constante Doppler et du coefficient Doppler sont réalisés aux mêmes temps que ceux de vidange. La température du combustible varie de 1500 K (T_0) à 3000 K (T_1 , environ la température de fusion du combustible). Le premier paramètre du tableau, $\frac{\Delta\rho}{\Delta T}$, est à utiliser avec prudence, car ici on le calcule sur une zone très large en température, et que $\rho(T)$ n'est pas une fonction linéaire de T mais logarithmique. Ici, on l'utilise plutôt comme moyen d'intercomparaison entre les différentes filières et gestions. Le dernier paramètre du tableau $\Delta\rho$ est utilisé pour le calcul de l'indicateur I, et représente l'effet Doppler entre température nominale et température de fusion du combustible.

Le rapport entre la variation de réactivité et la variation de température est également calculée (équation 4.29).

$$\frac{\rho_1 - \rho_0}{T_1 - T_0} \quad (4.29)$$

Dans les trois cas, le coefficient Doppler diminue en valeur absolue avec le temps. Cela peut s'expliquer par la surgénération du ^{239}Pu entre le démarrage et l'équilibre. Comme la quantité de ^{239}Pu augmente, les fissions du ^{239}Pu augmentent aussi (cf tableau 4.13). Or la fission du ^{239}Pu joue un rôle non négligeable sur l'effet Doppler (cf Chapitre 3) : elle a un impact défavorable sur ce coefficient, et tend à le faire diminuer en valeur absolue.

Concernant le cas de transmutation homogène, le coefficient Doppler ne semble pas détérioré par la présence des AM en cœur. A 1 % près, la proportion d' ^{238}U reste la même (cf tableau 4.4).

En transmutation hétérogène, le comportement du coefficient Doppler est très similaire à celui du cas de référence.

	Configurations	t = 0	t = t _{éq}	T = t _{éq} + 1 an
$\frac{\Delta\rho}{\Delta T}$ (pcm/K)	RNR U/Pu - Ref	-0.51	-0.37	-0.33
	RNR U/Pu - Hom	-0.52	-0.37	-0.32
	RNR U/Pu - Het	-0.52	-0.37	-0.32
K _D (pcm)	RNR U/Pu - Ref	-1 984	-1 450	-1 279
	RNR U/Pu - Hom	-1 961	-1 266	-1 101
	RNR U/Pu - Het	-2 022	-1 450	-1 267
α_D (pcm/K)	RNR U/Pu - Ref	-0.66	-0.48	-0.43
	RNR U/Pu - Hom	-0.65	-0.42	-0.37
	RNR U/Pu - Het	-0.67	-0.48	-0.42
$\Delta\rho$ (pcm)	RNR U/Pu - Ref	-760	-555	-490
	RNR U/Pu - Hom	-751	-485	-422
	RNR U/Pu - Het	-774	-555	-485

TAB. 4.13: RNR U/Pu - Coefficient Doppler pour les trois gestions de cœur

4.5.3 Indicateur de tendance

Grâce à cet indicateur, on évalue la capacité du cœur à éliminer l'effet positif de la réactivité due à la vidange via l'effet Doppler (voir Chapitre 3). Cet indicateur I est défini dans l'équation 3.6. La température d'opération est de 1500 K, et celle de fusion est de 3000 K.

	t = 0	t = t _{éq}	T = t _{éq} + 1 an
RNR U/Pu - Ref	992	1 374	1 512
RNR U/Pu - Hom	1 015	1 520	1 628
RNR U/Pu - Het	952	1 332	1 484

TAB. 4.14: RNR U/Pu - Indicateur de tendance

Dans les trois types de gestion des AM, comme la réactivité du vide est très élevée le coefficient Doppler ne peut contrebalancer cet apport de réactivité.

4.5.4 Conclusion

En transmutation homogène, on observe une légère détérioration de la réactivité de vidange et du coefficient Doppler, mais on reste quasiment dans les barres d'erreur de nos calculs MURE. On s'attendrait à avoir une dégradation plus importante de ces paramètres ; deux raisons peuvent expliquer ce résultat. D'une part, la proportion des AM mis en cœur à l'équilibre est assez faible et son impact n'est pas significatif. D'autre part, la méthode de simulation utilisée pour les calculs ne permet pas de distinguer des différences entre les deux configurations du fait des erreurs statistiques. En transmutation hétérogène, l'impact

de la couverture radiale sur ces paramètres de sûreté du cœur n'est pas très grand. On rappelle que les réactivités du vide et les coefficients Doppler sont calculés sur la zone fissile.

Une étude plus poussée sur ces variations utilisant des calculs cœur Monte Carlo se heurte encore à des problèmes de temps de calcul. Ces résultats permettent néanmoins de vérifier que les configurations choisies pour étudier les déchets produits sont acceptables, dans le sens où elles ont des caractéristiques neutroniques proches de celles des concepts de RNR-Na étudiés actuellement dans le cadre d'un déploiement industriel.

Après la description du concept Th/U retenu dans notre étude, nous présenterons les résultats obtenus sur la production des déchets et leur analyse, qui est le cœur de ce travail.

Chapitre 5

Réacteurs à neutrons rapides avec combustible Th/U

Dans ce chapitre, nous décrivons la simulation d'un RNR avec, à la place d'un combustible U/Pu, un combustible Th/U, pour pouvoir comparer les deux cycles, U/Pu et Th/U, dans les conditions les plus similaires possibles. Le fait de changer totalement de combustible a un certain nombre d'impacts, notamment sur le bilan neutronique qui est plus tendu pour le cycle Th/U, ainsi que sur les paramètres de sûreté qui sont améliorés en utilisant un combustible Th/U.

5.1 Spécificité du thorium

5.1.1 Bilan neutronique

Pour régénérer de la matière fissile, des neutrons doivent être capturés sur de la matière fertile. Par conséquent, les neutrons ne sont plus seulement utilisés pour fissionner la matière fissile, mais aussi pour la régénérer. La régénération consomme donc des neutrons. Considérons le système simplifié à deux types de noyaux, fertile et fissile, le fissile étant produit par capture d'un neutron sur le fertile, après deux décroissances β que nous négligeons ici. Une fission émet ν neutrons avec ν compris entre 2 et 3. Ce nombre de neutrons émis par fission ν varie selon l'isotope qui fissionne. Sur ces ν neutrons, un neutron est utilisé pour la fission pour entretenir la réaction en chaîne. Il reste donc $\nu-1$ neutrons disponibles. Si l'on veut régénérer la matière fissile, un neutron, parmi ces $\nu-1$, doit être utilisé pour être capturé sur l'élément fertile. En outre, avec ou sans régénération, les neutrons peuvent disparaître par capture stérile, au lieu de fissionner. La probabilité de cette occurrence, notée α , est le rapport entre la section efficace de capture du noyau fissile, et sa section efficace de fission : $\alpha = \frac{\sigma^{cap}}{\sigma^{fis}}$ (α dépend du spectre de neutrons et donc du réacteur envisagé). Par conséquent, pour pouvoir faire de la régénération, ce n'est pas 1, mais $1+\alpha$ neutrons qui doivent être capturés sur le fertile. En résumé, pour une fission, il y a :

- production de ν neutrons ;
- consommation de :
 - 1 neutron induisant une nouvelle fission (condition de criticité) ;
 - α neutrons capturés par l'élément fissile sans induire de fission ($\alpha = \frac{\sigma_{fissile}^{cap}}{\sigma_{fissile}^{fis}}$) ;
 - $(1+\alpha)$ neutrons capturés par la matière fertile pour régénérer les $(1+\alpha)$ noyaux fissiles consommés (condition de régénération).

Au total, ν neutrons sont produits et $2(1+\alpha)$ neutrons sont consommés. Trois cas peuvent être alors distingués :

- $\nu-2(1+\alpha) < 0$: la régénération n'est pas possible car le nombre de neutrons disponibles n'est pas suffisant ;
- $\nu-2(1+\alpha) = 0$: le système est isogénérateur, le nombre de neutrons disponibles est juste suffisant pour régénérer la matière fissile et maintenir la réaction en chaîne. Dans la pratique, ce n'est pas suffisant car nous avons négligé ici les fuites et les captures sur le caloporteur ou les structures ;
- $\nu-2(1+\alpha) > 0$: le système est surgénérateur, le nombre de neutrons disponibles est tel que le système produit plus de matière fissile qu'il n'en consomme. Dans la pratique, cette condition est nécessaire pour obtenir un réacteur au moins régénérateur.

Ce bilan neutronique est un bilan simplifié, mais il permet de déterminer assez simplement si un système peut être régénérateur. On note N_d le nombre de neutrons disponibles pour la surgénération, et on calcule ce nombre (cf équation 5.1) pour les cycles U/Pu et Th/U (cf tableau 5.1).

$$N_d = \nu - 2(1 + \alpha) \quad (5.1)$$

On note que cette condition de régénération ne dépend que des caractéristiques du noyau fissile et qu'il néglige les fissions du fertile. Avec cette formulation simplifiée du nombre de neutrons disponibles, le bilan est positif et sensiblement le même pour les deux cycles en spectre rapide (un peu meilleur en cycle U/Pu, cf tableau 5.1). Pour obtenir une expression un peu plus précise du nombre de neutrons disponibles, il faut prendre en compte les fissions du fertile. En effet, si la matière fertile fissionne, elle n'a pas à être régénérée, et cela permet d'économiser un neutron (en réalité $(1+\alpha)$ neutrons), ce qui améliore le bilan neutronique. Pour prendre en compte cet effet, on réécrit un bilan : parmi les fissions qui ont lieu, on note x la part qui provient de la matière fertile ; $(1-x)$ provient donc de la matière fissile. Lors de la fission d'un noyau fertile, $\nu_{fertile}$ neutrons sont émis. Lors de la fission d'un noyau fissile, $\nu_{fissile}$ neutrons sont émis. Pour une fission, il y a :

- production de :
 - $\nu_{fertile}x$ neutrons issus de la fission d'un noyau fertile ;
 - $\nu_{fissile}(1-x)$ neutrons issus de la fission d'un noyau fissile.
- consommation de :
 - x neutrons induisant une nouvelle fission sur l'élément fertile ;
 - $(1-x)$ neutrons induisant une nouvelle fission sur l'élément fissile ;
 - $\alpha(1-x)$ neutrons capturés par l'élément fissile sans induire de fission ;
 - $(1+\alpha)(1-x)$ neutrons capturés par la matière fertile pour régénérer les noyaux

fissiles consommés au nombre de $(1-x)+\alpha(1-x)$ pour une fission totale.

Au total, $\nu_{fertile}x + \nu_{fissile}(1-x)$ neutrons sont produits et $2(1+\alpha)(1-x)+x$ neutrons sont consommés. On note alors N'_d le nombre de neutrons disponibles, qui prend en compte la fission de la matière fertile (cf équation 5.2).

$$N'_d = \nu_{fertile}x + \nu_{fissile}(1-x) - 2(1-x)(1+\alpha) - x \quad (5.2)$$

Le nombre N'_d est calculé également pour les deux cycles et les résultats sont présentés dans la dernière ligne du tableau 5.1¹.

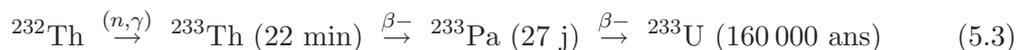
	Combustible U/Pu	Combustible Th/U
Noyau fissile	²³⁹ Pu	²³³ U
$\sigma_{fissile}^{capture}$ (barns)	0.53	0.35
$\sigma_{fissile}^{fission}$ (barns)	1.83	3.00
α	0.29	0.12
$\nu_{fissile}$	2.95	2.54
$\nu_{fertile}$	2.77	2.38
x (%)	14.0	3.1
N_d	0.37	0.30
N'_d	0.58	0.33

TAB. 5.1: Bilan neutronique pour les cycles U/Pu et Th/U

Le nombre de neutrons disponibles, en prenant en compte les fissions fertiles, est nettement meilleur en cycle U/Pu (0.58) qu'en cycle Th/U (0.33) (cf tableau 5.1). Même si N'_d reste positif dans les deux cas, il apparaît que le bilan neutronique sera plus tendu concernant le cycle Th/U, et que des difficultés, qui n'existent pas en cycle U/Pu pour atteindre la régénération, peuvent survenir en cycle Th/U. Cela provient du fait que le pourcentage de fission du noyau fertile en cycle U/Pu est 5 fois plus grand qu'en cycle Th/U. En effet, le seuil de fission est plus élevé pour le ²³²Th que pour l'²³⁸U et la section efficace de fission (au-dessus du seuil) de l'²³⁸U est plus élevée que celle du ²³²Th (cf figure 5.1).

5.1.2 Effet protactinium

La réaction de capture sur le ²³²Th, analogue à celle de l'²³⁸U qui conduit au ²³⁹Pu, passe par le ²³³Pa, de période 27 jours :



La période relativement longue du ²³³Pa par rapport à celle du ²³⁹Np, qui est de 2.3 jours, entraîne un certain nombre de problèmes lors du retraitement du combustible. Il

¹En faisant l'approximation $\nu_{fertile} = \nu_{fissile} = \nu$, on obtient $N'_d = N_d + x(1 + 2\alpha) > N_d$

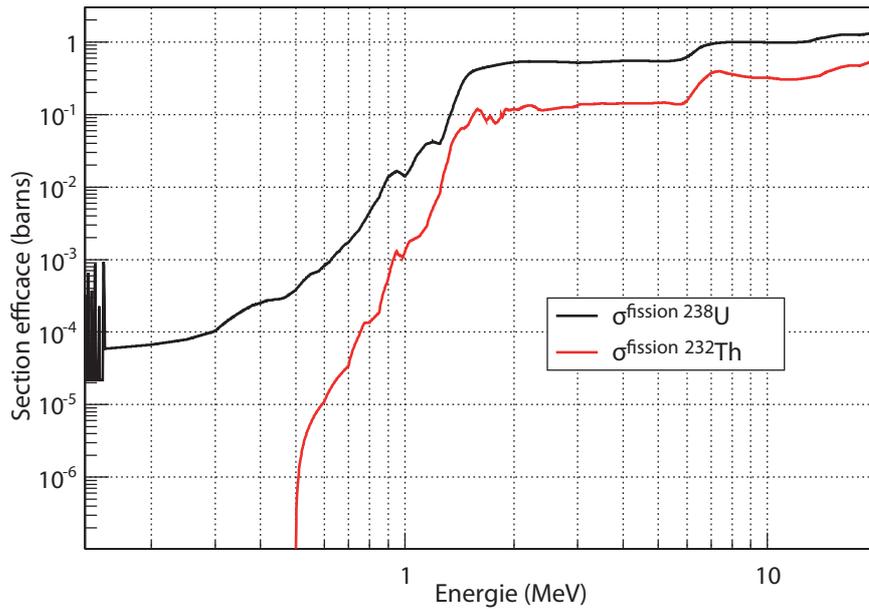


FIG. 5.1: Sections efficaces de fission de l' ^{238}U et du ^{232}Th

faut attendre que le ^{233}Pa décroisse en ^{233}U pour retraiter le combustible, d'une part pour ne pas mettre aux déchets de l' ^{233}U en devenir, qui est l'élément fissile valorisable, et d'autre part, à cause de la radioactivité élevée du ^{233}Pa qui rend difficile sa manipulation. Dans la réalité, le problème ne se pose pas en combustible solide car un refroidissement de plusieurs années du combustible usé est nécessaire avant de pouvoir le retraiter. En outre, à cause de la période plus longue du ^{233}Pa , la réaction de capture sur le ^{233}Pa va se faire au détriment de la conversion $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$. Cela induit également une baisse de la réactivité pendant les premières semaines d'irradiation, due au retard de la régénération de l' ^{233}U . À l'inverse, lors de l'arrêt du réacteur, la réactivité a tendance à augmenter, du fait de la décroissance du ^{233}Pa sur l' ^{233}U . Il est à noter que cela peut rendre le pilotage d'un réacteur Th/U un peu plus complexe : des barres de contrôle plus anti-réactives sont à prévoir, par exemple.

5.1.3 Le cas spécifique de l' ^{232}U

Un autre inconvénient dans le cas du cycle Th/U est la production d' ^{232}U . La présence de cet isotope entraîne un certain nombre de problèmes aux différentes étapes du transport, du retraitement et de la fabrication du combustible. En effet, l' ^{232}U , de période 68.9 ans et d'activité massique 8.1×10^{11} Bq/g, et ses descendants, le ^{228}Th suivi de toute une chaîne de noyaux à vie courte, conduisent par décroissance au ^{208}Pb (stable), en passant par le ^{212}Bi et le ^{208}Tl , deux émetteurs γ de 0.78 MeV et 2.6 MeV respectivement [56].

L' ^{232}U en cycle Th/U, comme le ^{238}Pu en cycle U/Pu ont tous les deux une période radioactive assez proche (respectivement 68.9 ans et 87.7 ans), ainsi qu'une activité

massique relativement élevée par rapport aux autres isotopes de leur vecteur respectif (8.1×10^{11} Bq/g et 6.3×10^{11} Bq/g respectivement). Néanmoins, le descendant direct, par décroissance α , du ^{238}Pu est l' ^{234}U , qui a une période très longue 245 500 ans, ce qui permet de « bloquer » toute la radioactivité de la chaîne [56], au contraire de celle associée à l' ^{232}U , dont les descendants ont tous une faible période (la plus longue est celle du ^{228}Th avec 1.91 an).

Il est à noter que si l'uranium récupéré au retraitement est stocké trop longtemps, le ^{228}Th s'accumule, et ce, malgré la faible proportion de l' ^{232}U (cf tableau 5.3) ; l'uranium retraité devient une source de γ de plus en plus forte avec le temps [57].

Du fait des périodes radioactives des éléments de la chaîne de décroissance de l' ^{232}U , l'activité γ de la chaîne est équivalente à celle du ^{228}Th . Si l'on néglige les captures et que l'on considère uniquement les désintégrations, l'équation d'évolution du ^{228}Th s'écrit :

$$\frac{dN_{228\text{Th}}}{dt} = \lambda_{232\text{U}} N_{232\text{U}} - \lambda_{228\text{Th}} N_{228\text{Th}} \quad (5.4)$$

La solution de cette équation est de la forme, en considérant $N_{232\text{U}}$ constant puisque l'on se place à l'équilibre :

$$N_{228\text{Th}}(t) = \frac{\lambda_{232\text{U}}}{\lambda_{228\text{Th}}} (1 - e^{-\lambda_{228\text{Th}} t}) \quad (5.5)$$

A l'équilibre, si lors du retraitement on sépare le thorium de l'uranium, alors :

- dans le stock de l'uranium, l'activité γ augmente, avec comme temps caractéristique $\lambda_{228\text{Th}}$, puis tend vers l'équilibre ;
- dans le stock du thorium, l'activité γ diminue selon la période du ^{228}Th (1.91 ans) car l' ^{232}U , qui produit le ^{228}Th , à l'origine de l'activité γ , est absent de ce stock.

Par conséquent, une fois que le ^{233}Pa a décréu, l'U doit donc être utilisé rapidement pour fabriquer un nouveau combustible avant qu'il ne s'empoisonne en ^{228}Th [57]. Le thorium pourrait quant à lui être entreposé environ 20 ans avant d'être utilisé pour fabriquer un nouveau combustible. Enfin, il faut noter que cette forte activité γ peut aussi être vue comme un avantage car elle permet une lutte efficace contre la prolifération de l'élément fissile qu'est l' ^{233}U .

L'équation d'évolution de l' ^{232}U en réacteur est la suivante :

$$\frac{dN_{232\text{U}}}{dt} = N_{233\text{U}} \sigma_{233\text{U}}^{n,2n} \phi + N_{231\text{Pa}} \sigma_{231\text{Pa}}^{cap} \phi + N_{233\text{Pa}} \sigma_{233\text{Pa}}^{n,2n} \phi - N_{232\text{U}} (\sigma_{232\text{U}}^{abs} \phi + \lambda_{232\text{U}}) \quad (5.6)$$

A l'équilibre, $\frac{dN_{232\text{U}}}{dt} = 0$, et quand on calcule les termes de production de l' ^{232}U , les contributions majoritaires proviennent de la réaction (n,2n) sur l' ^{233}U et surtout de la réaction de capture sur le ^{231}Pa (lui-même produit par (n,2n) sur le ^{232}Th), et varient selon la gestion des AM (voir paragraphe 5.3.2).

5.1.4 Spectre en combustible Th/U

Une comparaison des spectres en cycle U/Pu et Th/U est présentée sur les figures 5.2 et 5.3. Les spectres sont assez similaires. Les principales différences sont à basse énergie,

ce qui est normal dans la mesure où il s'agit des résonances des noyaux lourds présents en combustible, et qu'ils ne sont pas les mêmes suivant le cycle Th/U ou U/Pu (cf paragraphe 4.2.3). De plus, aux alentours du keV, le spectre en cycle U/Pu est plus important que celui en cycle Th/U, de même qu'au delà de 2 MeV.

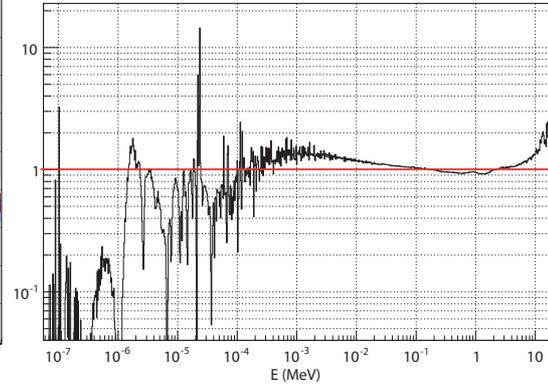
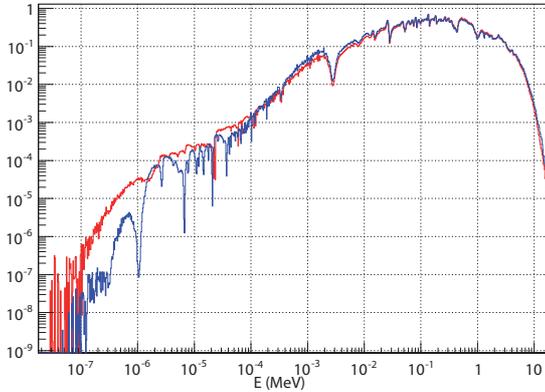


FIG. 5.2: Comparaison des spectres en cycle U/Pu (bleu) et Th/U (rouge) FIG. 5.3: Division des spectres : cycle U/Pu sur cycle Th/U

5.2 Cas de référence avec rechargement du combustible en cœur

5.2.1 Description du cœur

Le réacteur à neutrons rapides étudié est le même que celui avec combustible U/Pu (SFR V0, puissance thermique de 3600 MW). Le combustible U/Pu est remplacé par du combustible Th/U. Le vecteur isotopique de l'uranium utilisé au démarrage [25] est présenté dans le tableau 5.2. L'évolution est toujours réalisée jusqu'à l'équilibre avec rechargement du thorium et de l'uranium en cœur après refroidissement des assemblages usés et fabrication des assemblages frais. La température du combustible est toujours 1 500 K et la gestion de rechargement du cœur est la même que celle pour le cas de référence du RNR U/Pu. Tous les noyaux non recyclés sont remplacés par du thorium frais.

Néanmoins, une modification dans la géométrie du cœur a été apportée. Avec ce vecteur isotopique, la masse d' ^{233}U est constante durant 5 ans, avec une teneur de 13.2 %. Mais, dans ce cas, le k_{eff} est inférieur à 1. Cela illustre le fait que le bilan neutronique du cycle Th/U est plus tendu que celui du cycle U/Pu (cf paragraphe 5.1.1). La configuration de ce RNR conduit à un terme de fuite trop important pour obtenir à la fois la criticité et l'isogénération en cycle Th/U. Pour pallier à ce problème spécifique du cycle thorium, la teneur doit être augmentée à 16 % pour obtenir la criticité. Néanmoins, le système est alors sous-générateur. Pour contrebalancer cet effet, des couvertures axiales fertiles (ThO_2) sont ajoutées, de part et d'autre de la zone fissile, ce qui permet de récupérer une grande partie

Noyaux	% massique
^{232}U	0.2
^{233}U	68.14
^{234}U	22.04
^{235}U	5.23
^{236}U	4.38
^{238}U	0.02

TAB. 5.2: Vecteur isotopique de l'uranium

des neutrons de fuite pour la régénération et retrouver ainsi une masse d' ^{233}U globale (cœur + couvertures) constante pendant l'irradiation. Pour ce système (teneur en U de 16 % et vecteur U décrit dans le tableau 5.2), la hauteur des couvertures axiales permettant le maintien de l'isogénération est de 150 mm chacune. Dans cette simulation, la puissance totale, comprenant celle du cœur et des couvertures, est maintenue constante. Dans la suite, le RNR avec combustible Th/U sans transmutation est noté : Th/U Ref.

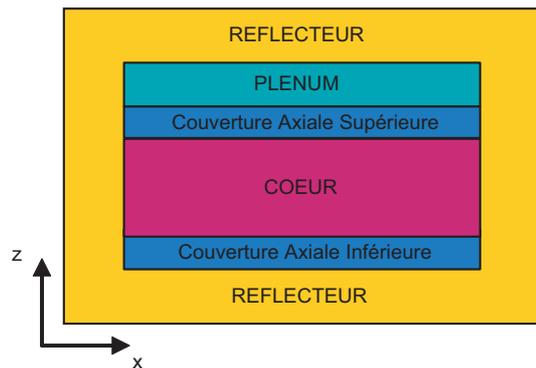


FIG. 5.4: Coupe axiale du réacteur Th/U avec couvertures axiales

5.2.2 Gestion du rechargement

La gestion se fait de la même façon que dans le cas de référence du cycle U/Pu. En ce qui concerne la gestion des couvertures axiales, elles sont rechargées et retaitées avec les assemblages du cœur et, à chaque cycle, l'uranium produit dans les couvertures est mélangé à l'uranium de la zone fissile. Toutefois, il faut noter que cette configuration est plus complexe à gérer, notamment au niveau de la phase de fabrication du combustible, puisque chacun des crayons est hétérogène. Cela ne serait pas le cas avec des couvertures radiales, mais celles-ci ne s'avèrent pas assez efficaces pour contrebalancer le bilan neutronique défavorable du cycle Th/U. L'équilibre sur le vecteur U est atteint définitivement au bout

de 140 ans. Les calculs à l'équilibre sont pris en début de cycle à 140 ans et en fin de cycle à 141 ans (cf figure 4.9).

5.2.3 Inventaires

Actinides

On rappelle que la simulation ne prend pas en compte les temps d'arrêt du réacteur lors de l'opération de chargement : cela entraîne une sous-estimation de l'inventaire de l' ^{233}U au démarrage de chaque cycle car le temps d'arrêt non pris en compte est de l'ordre de 30 jours, ce qui correspond à la période de désintégration du ^{233}Pa .

Sur la figure 5.6, on observe une augmentation d'une trentaine de kilos de la masse d' ^{233}U entre le déchargement et le rechargement. Cet effet est encore dû au ^{233}Pa : quand on retire les assemblages usés, on retire tous les éléments du combustible, dont le ^{233}Pa , qui pendant les temps de refroidissement des assemblages usés décroît vers de l' ^{233}U . Quand on remplace les assemblages frais, le ^{233}Pa est devenu de l' ^{233}U , et on observe donc une augmentation de l'isotope fissile. L'équilibre pour l' ^{233}U est atteint au bout de quelques dizaines d'années (cf figure 5.6). Par contre, concernant l' ^{234}U , l' ^{235}U et l' ^{236}U , il faut attendre plus de 100 ans (cf figures 5.5, 5.7 et 5.8).

En raison de la densité plus faible du ThO_2 , la masse initiale de ^{232}Th dans la zone fissile est de 55.9 t, à comparer à celle de l' ^{238}U , en cycle U/Pu, qui est de 61.7 t. Chaque couverture axiale comporte environ 11 t de ^{232}Th au démarrage. La masse initiale d' ^{233}U (cf tableau 5.3) est de 7.3 t, ce qui est 2 t de plus que la masse initiale du fissile dans le cycle U/Pu (cf chapitre 4, paragraphe 4.2).

À l'équilibre, la masse d' ^{233}U en cœur est de 6.9 tonnes, et les couvertures produisent à chaque cycle, c'est-à-dire tous les ans, 185 kg d' ^{233}U . La masse totale d'uranium en cycle est de 27.6 t, soit 19 t/GWe. La masse d' ^{232}U à l'équilibre est de 8 kg, dont 15.2 % proviennent de la réaction (n,2n) sur l' ^{233}U et 84.1 % de la capture sur le ^{231}Pa (le reste provient de la réaction (n,2n) sur le ^{233}Pa).

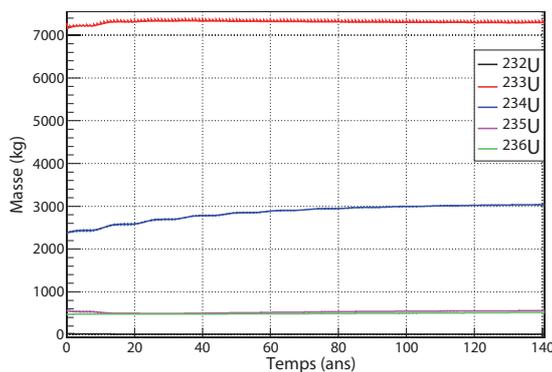


FIG. 5.5: Evolution du vecteur U dans le réacteur ($P_{elec} = 1.45$ GWe)

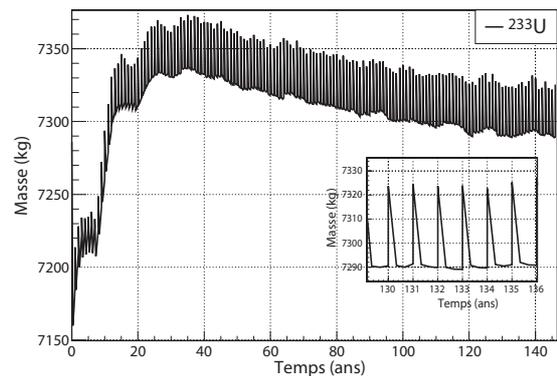


FIG. 5.6: Evolution masse totale d' ^{233}U ($P_{elec} = 1.45$ GWe)

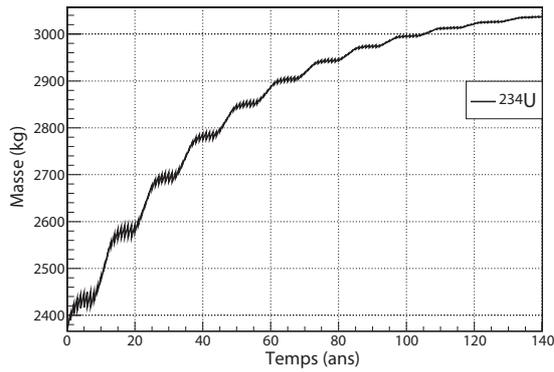


FIG. 5.7: Evolution masse totale d' ^{234}U ($P_{elec} = 1.45 \text{ GWe}$)

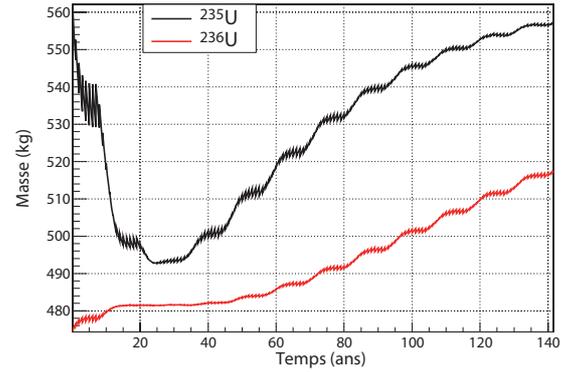


FIG. 5.8: Evolution masse totale d' ^{235}U et d' ^{236}U ($P_{elec} = 1.45 \text{ GWe}$)

	Masse (kg)		
	t_0	$t_{\text{éq}}$	$t_{\text{éq}} + 1 \text{ an}$
^{232}Th	77 401	74 285	72 890
^{231}Pa	0	10	15
^{233}Pa	0	105	143
^{237}Np	0	18	29
^{238}Pu	0	2	4
^{232}U	21	8	8
^{233}U	7 286	7 330	7 292
^{234}U	2 367	3 036	3 038
^{235}U	564	556	557
^{236}U	474	516	517
Total U	10 712	11 446	11 412

TAB. 5.3: RNR Th/U Ref - Inventaires totaux du vecteur U, du ^{232}Th et des principaux actinides mineurs ($P_{elec} = 1.45 \text{ GWe}$)

	Masse des PF (tonne)	
	$t_{\text{éq}}$	$t_{\text{éq}} + 1 \text{ an}$
Cycle U/Pu	1.91	3.24
Cycle Th/U cœur	2.20	3.53
Cycle Th/U cœur + couverture	2.25	3.62

TAB. 5.4: Comparaison de la masse des PF selon le cycle ($P_{elec} = 1.45 \text{ GWe}$)

Produits de fission (cf tableau 5.6)

La masse des PF est plus grande à $t_{\text{éq}}$ et $t_{\text{éq}} + 1$ an, dans le cas du cycle Th/U (cf tableau 5.4) que dans celui du cycle U/Pu. En effet, la chaleur dégagée Q par la réaction de fission varie selon l'isotope considéré et les isotopes fissile et fertile en cycle U/Pu ont des chaleurs de fission plus élevées que celles en cycle Th/U (cf tableau 5.5).

Noyaux	Energie dégagée par fission (MeV)
^{239}Pu	210.7
^{233}U	199
^{241}Pu	213.8
^{235}U	201.7
^{238}U	208.5
^{232}Th	196.2

TAB. 5.5: Energie dégagée par fission (MeV) selon l'isotope considéré

En cycle Th/U, la quantité de ^{137}Cs est augmentée de 42 % et celle de ^{90}Sr est multipliée par un facteur 4 (concernant les rendements des PF, alors que la bosse lourde ne bouge quasiment pas, la bosse légère a tendance à se déplacer vers la gauche quand un noyau fissile plus léger fissionne, ce qui centre la bosse légère sur le nombre de masse 90 [41]).

Les métaux de transition tels que le ruthénium (Ru), le rhodium (Rh) et le palladium (Pd) sont quant à eux produits en moins grande quantité en cycle Th/U : le Ru est divisé par 2, le Rh est divisé presque par 3 et le palladium presque par un facteur 7. Toutefois, la quantité de zirconium Zr est 2.3 fois plus importante en cycle Th/U que U/Pu, celle du molybdène Mo est augmentée de 30 %, et celle du terre rare yttrium Y est multipliée par 4.

Les lanthanides, quant à eux, augmentent en cycle Th/U, notamment le lanthane La augmente de 44 %, le cérium Ce de 66 %, le praséodyme Pr de 69 %.

Cette augmentation de certains PF en cycle Th/U va avoir des impacts sur la radiotoxicité et la chaleur des déchets à court terme, impacts que nous quantifierons dans le Chapitre 6.

5.2.4 Evolution du k_{eff}

A cause de l'effet protactinium, on observe une chute du k_{eff} avec un temps caractéristique de l'ordre du mois. En effet, entre $t = 0$ et $t = 4$ mois, la réactivité chute de 1922 pcm et la masse de ^{233}Pa passe de 0 à 142.7 kg. Au bout de 8 mois, la réactivité baisse encore de 685 pcm, mais la masse de ^{233}Pa augmente seulement de 6.2 kg. Le temps de mise à l'équilibre du vecteur U, et notamment l'augmentation de 11 kg de la masse de ^{234}U tous les 4 mois durant les dix premières années, explique cette chute du k_{eff} après les quatre premiers mois.

Eléments	Masse (kg)		% massique	
	Cycle U/Pu	Cycle Th/U	Cycle U/Pu	Cycle Th/U
Xe	14.9	19.2	12.4	12.5
Kr	0.7	3.4	0.6	2.2
Cs	13.3	16.8	11.1	10.9
Rb	0.7	3.2	0.6	2.1
Te	1.9	3.4	1.6	2.2
Tc	2.7	3	2.3	1.9
Ru	11.8	5.8	9.8	3.8
Rh	2.7	1	2.3	0.6
Pd	6.2	0.9	5.2	0.6
Sr	1.7	7.4	1.4	4.8
Ba	4.4	6.5	3.7	4.2
Mo	9.5	12.2	7.9	7.9
Y	0.9	3.6	0.8	2.3
Zr	8.7	20	7.3	13.0
La	3.8	5.5	3.2	3.6
Ce	8.9	14.8	7.4	9.6
Pr	3.2	5.4	2.7	3.5
Nd	9.1	13.9	7.6	9.0
autres	7.5	0.9	6	0.6
total	120	154	100	100

TAB. 5.6: Comparaison des PF en cycle Th/U et U/Pu en début de cycle ($P_{elec} = 1.45$ GWe)

5.3 Cas de transmutation homogène en cycle thorium

5.3.1 Description du cœur et gestion du rechargement

La configuration du système est la même, seule la gestion du rechargement diffère. En effet, lors de la fabrication des assemblages frais, le thorium et l'uranium recyclés, ainsi que les actinides mineurs², issus des assemblages usés, sont utilisés. Tous les autres paramètres restent inchangés. Les pertes dues au retraitement pour le thorium, l'uranium et les AM sont de 0.1 %. Dans la suite, le RNR avec combustible Th/U en transmutation homogène est noté : Th/U Hom. L'ensemble de l'uranium et des AM produits dans les couvertures axiales sont mélangés à ceux de la zone fissile.

5.3.2 Inventaires

Dans le tableau 5.8, les inventaires comparés entre les cas Th/U Ref et Th/U Hom sont présentés à $t_{\text{éq}}$ et $t_{\text{éq}} + 1$ an.

	Masse (kg)			
	$t_{\text{éq}}$		$t_{\text{éq}} + 1$ an	
	Th/U Ref	Th/U Hom	Th/U Ref	Th/U Hom
²³¹ Pa	10	65	15	65
²³³ Pa	105	104	143	141
²³² U	8	33	8	34
²³³ U	7 330	7 297	7 292	7 264
²³⁴ U	30 36	3 041	3 038	3 043
²³⁵ U	556	556	557	557
²³⁶ U	516	515	517	516
²³⁷ Np	18	110	29	110
²³⁸ Pu	2	74	4	75

TAB. 5.7: RNR Th/U Hom - Inventaires en cœur dans le cas Th/U Ref et le cas Th/U Hom à $t_{\text{éq}}$ et $t_{\text{éq}} + 1$ an ($P_{\text{elec}} = 1.45$ GWe)

Le fait de transmuter multiplie les inventaires en cœur :

- par 6 pour le ²³¹Pa ;
- par 6 pour le ²³⁷Np ;
- par 4 pour l'²³²U ;
- par 37 pour le ²³⁸Pu.

Concernant le ²³¹Pa, le ²³⁷Np et le ²³⁸Pu, qui sont des actinides mineurs (AM) du cycle Th/U, leur augmentation en cœur s'explique par leur accumulation due à la gestion du

²On considère comme actinides mineurs (AM) en cycle Th/U les éléments suivants : le protactinium (Pa), le neptunium (Np), le plutonium (Pu), l'américium (Am) et le curium (Cm).

rechargement (la fabrication des assemblages frais se fait en utilisant l'uranium, le thorium et les AM en transmutation homogène). L'augmentation de l'inventaire d' ^{232}U provient essentiellement du surcroît de captures neutroniques sur le ^{231}Pa , qui est présent en quantité plus importante dans le cœur dans le cas ThU/Hom. En effet, quand on calcule les termes de production de ^{232}U (cf équation 5.6), et que l'on regarde la contribution de chacun des termes, on obtient :

- la réaction de capture sur le ^{231}Pa contribue à 96.8 % à la production totale de ^{232}U ;
- la réaction (n,2n) sur ^{233}U représente 3 % de production totale de ^{232}U ;
- la réaction (n,2n) sur le ^{233}Pa représente 0.2 % de la contribution totale.

C'est donc bien la capture sur le ^{231}Pa , dont la masse en cœur est multipliée par 6 en transmutation homogène, qui est responsable de la surproduction de ^{232}U .

Nous verrons l'impact notamment de ^{232}U et du ^{238}Pu , ainsi que celles des autres éléments cités précédemment, sur la radiotoxicité et la chaleur des déchets et du cœur dans le Chapitre 6.

Dans le cas de la transmutation homogène, la teneur en AM dans le cœur est de 0.5 %. La masse d' ^{233}U surgénérée dans les couvertures axiales est de 180 kg environ, quasiment la même que dans le cas de référence. Le tableau 5.8 compare les inventaires en cœur des principaux noyaux, dans le cas sans transmutation et dans le cas avec transmutation homogène à l'équilibre.

	Masse (kg) Th/U (U/Pu)		% massique Th/U (U/Pu)	
	Ref	Hom	Ref	Hom
AM	135 (106)	369 (657)	0.17 (0.15)	0.55 (0.9)
PF	2 202 (1 913)	2 204 (1888)	3.3 (2.61)	3.3 (2.58)
Elément fertile	53 168 (59 116)	52 915 (58 383)	79.8 (80.7)	79.4 (79.7)
Elément fissile	10 897 (12 137)	11 119 (12 341)	16.4 (16.6)	16.8 (16.8)

TAB. 5.8: Inventaires en cœur dans le cas Th/U Ref (U/Pu Ref) et le cas Th/U Hom (U/Pu Hom) à $t_{\text{éq}}$ ($P_{\text{elec}} = 1.45 \text{ GWe}$)

On constate que la quantité d'AM en cœur est presque doublée dans le cas U/Pu Hom par rapport au cas Th/U Hom.

5.4 Comparaison de quelques paramètres de sûreté

En gardant les mêmes définitions que celles explicitées dans le Chapitre 3, la réactivité de vidange du sodium, le coefficient Doppler, la constante Doppler et le rapport entre la variation de réactivité et la variation de température sont calculés au démarrage, et à l'équilibre, en début et fin de cycle.

5.4.1 Vidange du sodium

La réactivité du vide est calculée pour une vidange de la zone fissile uniquement (pas de vidange du plenum, ni des couvertures axiales), c'est-à-dire dans le cas le plus défavorable. Les barres d'erreur sont du même ordre qu'en cycle U/Pu : 15 pcm pour le calcul du coefficient de vide et du β_{eff} , et inférieur à 0.1 \$ pour celle du coefficient de vide en \$.

Réactivité de vidange (pcm)

La réactivité de vidange dans la zone fissile est calculée au démarrage et à l'équilibre en début de cycle (DDC : $t_{\text{éq}}$) et en fin de cycle (FDC : $t_{\text{éq}} + 1$ an).

	$t = 0$	$t = t_{\text{éq}}$	$t = t_{\text{éq}} + 1$ an
RNR Th/U - Ref	-209	230	389
RNR Th/U - Hom	-223	290	435

TAB. 5.9: Réactivité du vide en pcm pour les deux gestions de cœur

Réactivité de vidange (\$)

	$t = 0$	$t = t_{\text{éq}}$	$t = t_{\text{éq}} + 1$ an
RNR Th/U - Ref (\$)	-0.59	0.66	1.10
RNR Th/U - Hom (\$)	-0.63	0.83	1.28

TAB. 5.10: Réactivité du vide en \$ pour les deux gestions de cœur

Fraction de neutrons retardés (pcm)

	$t = 0$	$t = t_{\text{éq}}$	$t = t_{\text{éq}} + 1$ an
RNR Th/U - Ref (pcm)	354	346	353
RNR Th/U - Hom (pcm)	354	350	339

TAB. 5.11: Fraction de neutrons retardés (pcm) pour les deux gestions de cœur

Quelle que soit la gestion du cœur, la réactivité de vidange en cycle Th/U est significativement améliorée : non seulement, elle est négative au démarrage, mais elle reste quasiment inférieure à 1 \$ à l'équilibre. C'est un avantage considérable par rapport à la réactivité de vide obtenue en cycle U/Pu, qui est l'ordre de 1900 pcm à l'équilibre, soit 5.54 \$.

Dans le tableau 5.12 est reportée la diminution de la réactivité de vidange en \$ obtenue en cycle Th/U. Cette différence provient d'une part de la plus faible fraction de fission du ^{232}Th (3 %) par rapport à celle de ^{238}U (15 %), et d'autre part, d'un plus faible taux d'augmentation de η^3 avec l'énergie pour le combustible Th/U que pour le combustible U/Pu, comme cela est visible sur la figure 5.9, dans la gamme d'énergie du spectre rapide (200 keV).

	$t = 0$	$t = t_{\text{éq}}$	$t = t_{\text{éq}} + 1 \text{ an}$
Ref (\$)	-5.15	-4.88	-4.79
Hom (\$)	-5.36	-5.23	-4.68

TAB. 5.12: Différences entre la réactivité du vide en \$ en cycle Th/U avec celle en cycle U/Pu

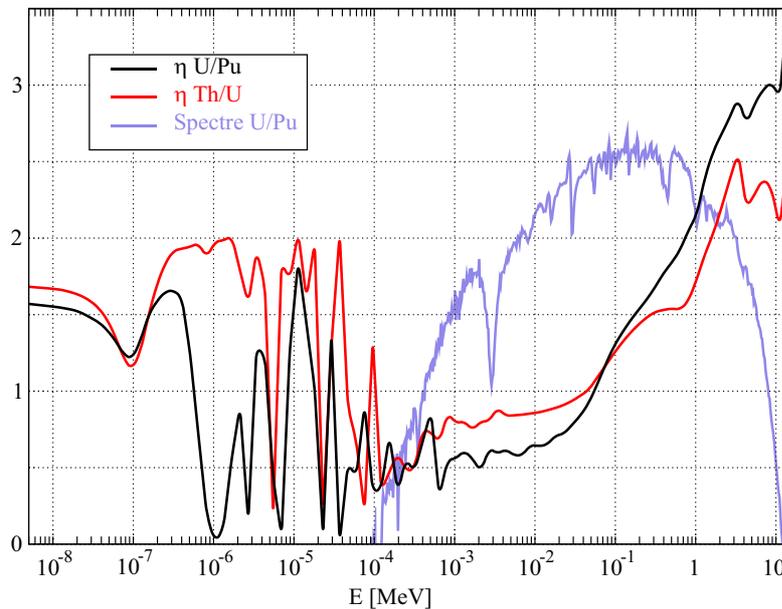


FIG. 5.9: Comparaison du η du combustible en cycle U/Pu (rouge) et Th/U (noir) (tous les actinides présents en cœur sont considérés dans le calcul du η)

Dans le cas Th/U Hom, la réactivité du vide est supérieure à 1 \$ à $t_{\text{éq}} + 1 \text{ an}$ (± 0.1 \$). La présence des AM en cœur, même en quantité assez faible, semble avoir une influence sur la réactivité du vide et la fraction de neutrons retardés. Cela étant, la barre d'erreur pour β_{eff} est de l'ordre de 16 pcm.

³On définit η comme : $\eta = \frac{\sum_i \nu_i N_i \sigma_i^{\text{fis}}}{\sum_i N_i \sigma_i^{\text{abs}}}$, où les N_i sont les principaux actinides.

Au démarrage, le β_{eff} en cycle Th/U est plus faible qu'en cycle U/Pu qui vaut 384 pcm (cf Chapitre 4). Même si la valeur du ν^d de ^{238}U est plus faible que celle du ^{232}Th (cf tableau 5.13), la proportion de fission du ^{232}Th est de 3.1 % au démarrage, tandis que celle de ^{238}U est de 15.3 %, soit 5 fois plus : la contribution de ^{238}U au β_{eff} est de 249 pcm alors que celle du ^{232}Th est de 69 pcm. Cela explique la différence sur la fraction de neutrons retardés au démarrage entre le cycle Th/U et U/Pu. Ensuite, à l'équilibre, les β_{eff} sont sensiblement les mêmes à 20 pcm près.

Noyaux	ν	ν_d (pcm) [55]	β (pcm)
^{239}Pu	2.95	664	225
^{238}U	2.77	4510	1628
^{233}U	2.54	729	287
^{232}Th	2.38	5 470	2 298

TAB. 5.13: Nombre de neutrons totaux ν et retardés ν_d émis par fission selon le noyau fissionnant et fractions de neutrons retardés β par noyaux

5.4.2 Coefficient Doppler

Les calculs de la constante Doppler et du coefficient Doppler sont réalisés aux mêmes temps que ceux de vidange. La température du combustible varie de 1 500 K (T_0) à 3 000 K (T_1)⁴.

	Configurations	t = 0	t = t _{éq}	T = t _{éq} + 1 an
$\frac{\Delta\rho}{\Delta T}$ (pcm/K)	RNR Th/U - Ref	-0.35	-0.32	-0.33
	RNR Th/U - Hom	-0.35	-0.31	-0.31
K_D (pcm)	RNR Th/U - Ref	-1 379	-1 265	-1 286
	RNR Th/U - Hom	-1 379	-1 221	-1 216
α_D (pcm/K)	RNR Th/U - Ref	-0.46	-0.42	-0.43
	RNR Th/U - Hom	-0.46	-0.41	-0.40
$\Delta\rho$ (pcm)	RNR Th/U - Ref	-528	-484	-492
	RNR Th/U - Hom	-528	-468	-466

TAB. 5.14: RNR Th/U - Coefficient Doppler pour les deux gestions de cœur

Quelque soit la gestion, le coefficient Doppler reste quasiment constant tout au long de l'évolution et demeure du même ordre de grandeur que celui du cycle U/Pu (cf tableaux 5.14 et Chapitre 4, paragraphe 4.5.2).

⁴Bien que la température de fusion du ThUO_2 soit supérieure à celle du UPuO_2 , on choisit de garder la même température T_1 pour pouvoir faire des points de comparaison avec les résultats obtenus en cycle U/Pu.

5.4.3 Indicateur de tendance

Il s'agit toujours du même indicateur I , défini dans l'équation 3.6, pour le cycle U/Pu. Les températures d'opération et de fusion sont toujours les mêmes que celles du coefficient Doppler (1500 K et 3000 K).

	$t = 0$	$t = t_{\text{éq}}$	$T = t_{\text{éq}} + 1 \text{ an}$
RNR Th/U - Ref	-737	-254	-103
RNR Th/U - Hom	-751	-178	-31

TAB. 5.15: RNR Th/U - Indicateur de tendance

Dans les deux gestions, du fait de sa faible amplitude, la réactivité de vidange peut être contrebalancée par la réactivité Doppler (cf tableau 5.15). Ceci est un résultat très intéressant du point de vue de la sûreté : le cœur, de par sa conception, semble alors capable « d'éliminer » l'effet positif de la réactivité due à la vidange via l'effet Doppler.

Il est à noter ici que le but principal de ce travail étant une comparaison des déchets issus des cycles U/Pu et Th/U, nous n'avons pas exploré les voies possibles pour améliorer encore cette réactivité de vidange et chercher des configurations à effet de vide négatif.

De la même façon, il serait possible de réduire les inventaires de fissile en cœur en profitant des aspects positifs de la sûreté en diminuant, par exemple, le rayon des crayons combustibles pour se rapprocher d'une configuration type Superphénix⁵.

⁵On rappelle que le diamètre des crayons dans notre étude est de 10 mm, tandis que dans Superphénix, il était de 8.5 mm [58]. L'augmentation du volume du combustible permet de réduire celui du sodium, et de diminuer la valeur de la réactivité du vide, dans le cas où le sodium serait vidangé du cœur. Dans notre étude, la marge obtenue sur la réactivité de vidange en cycle Th/U par rapport au cycle U/Pu permet d'envisager de relâcher la contrainte sur le volume du sodium en cœur.

Chapitre 6

Etude comparative de la radiotoxicité et de la chaleur issues des cycles Th/U et U/Pu

Nous présentons ici une comparaison de la radiotoxicité et de la chaleur résiduelle des déchets et de l'inventaire du cœur, ainsi que des masses d'actinides mineurs (AM) mise aux déchets et en cœur, pour les différentes configurations étudiées aux chapitres précédents. Dans un premier temps, cette comparaison porte sur les déchets issus des cycles U/Pu et Th/U pour les différents types de gestions envisagés, avec et sans transmutation des AM. Les déchets issus de la transmutation hétérogène en cycle U/Pu sont similaires à ceux obtenus en transmutation homogène, et ne seront donc pas présentés ici pour ne pas alourdir les figures. Dans un deuxième temps, nous tentons de déterminer au bout de quelle durée de fonctionnement du nucléaire la transmutation devient intéressante. Dans ce but, nous distinguons, d'une part, la radiotoxicité des déchets cumulés, produits chaque année, mesurée en sievert (Sv) par giga watt électrique an (GWe.an), et d'autre part, la radiotoxicité du cœur, qu'il faudra prendre en compte en « fin de jeu », c'est-à-dire, quand on arrêtera l'électronucléaire, l'ensemble de l'inventaire des éléments fissile et fertile et des AM en cœur et en cycle devenant alors un déchet. Cette étude est donc menée en fonction de la date d'arrêt du nucléaire. Pour tenter d'estimer ce gain, les configurations à l'équilibre des RNR U/Pu Hom, RNR U/Pu Ref, RNR Th/U Hom et RNR Th/U Ref des Chapitres 4 et 5 sont utilisées.

6.1 Comparaison de la radiotoxicité et de la chaleur résiduelle des déchets des cycles U/Pu et Th/U

La radiotoxicité et la chaleur sont calculées pour les déchets produits par un réacteur de 3600 MW_{th}, à l'équilibre. Les déchets sont composés principalement des produits de fission, des actinides non recyclés (les AM dans le cas de référence), des pertes chimiques

des actinides recyclés (éléments fertile et fissile dans tous les cas, et les AM en plus dans les cas de la transmutation). Les pertes chimiques sont prises à 0.1 % pour tous les actinides recyclés. La radiotoxicité et la chaleur sont normalisées à l'énergie électrique produite, l'unité choisie étant le GWe.an.

6.1.1 Comparaison inter gestion de la radiotoxicité des déchets

Dans ce paragraphe, les radiotoxicités des déchets sont comparées selon la gestion du cœur utilisée pour un cycle donné, afin de quantifier l'impact de la mise en œuvre de la transmutation des AM sur les déchets.

Cycle U/Pu

Les différentes contributions à la radiotoxicité des déchets dans le cas RNR U/Pu Ref (figure 6.1)

L' ^{241}Am décroît avec une période de 432 ans. On observe une remontée de sa radiotoxicité (« par père ») vers 100 000 ans, ce qui correspond à l'apparition de l' ^{233}U , obtenu par deux décroissances α successives, de l' ^{241}Am sur le ^{237}Np , et du ^{237}Np sur l' ^{233}U . La radiotoxicité augmente car la période de décroissance du ^{237}Np (2.144 millions d'années) est beaucoup plus grande que celle de l' ^{233}U (165 000 ans), et qu'il y a, dans le même temps, la montée à l'équilibre de toute la chaîne entre l' ^{233}U et le ^{209}Bi ; l'équilibre séculaire entre le ^{237}Np et l' ^{233}U est atteint aux bout de 10 fois la période de l' ^{233}U , soit aux alentours de 1.6 million d'années, et l'ensemble de la chaîne décroît alors avec la constante de temps du ^{237}Np , ce qu'on observe à 2 millions d'années.

La radiotoxicité de l' ^{243}Am commence à décroître aux alentours de 7 000 ans (période de l' ^{243}Am de 7 370 ans). Au-delà de 300 000 ans, la radiotoxicité reste constante car tout l' ^{243}Am initial est devenu de l' ^{235}U , qui a une durée de vie de 700 millions d'années, et qui est à l'équilibre avec la chaîne en aval.

Le ^{244}Cm commence à décroître très rapidement (période de 18 ans) sur le ^{240}Pu . La courbe de radiotoxicité chute de nouveau au bout de 6 000 ans (période du ^{240}Pu de 6500 ans), et le ^{240}Pu décroît vers l' ^{236}U , de période 23 millions d'années. La radiotoxicité engendrée par le ^{244}Cm diminue sans cesse au cours du temps car les décroissances se font vers des noyaux qui ont des durées de vie croissantes avec plus d'un facteur deux sur la période radioactive : le fils et le père ne coexistent pas ensemble.

La radiotoxicité du ^{237}Np s'explique de la même façon que pour l' ^{241}Am : elle est constante jusqu'à la remontée due à l'apparition de l' ^{233}U et de la chaîne en aval.

La radiotoxicité du ^{239}Pu est constante durant 20 000 ans, puis le ^{239}Pu (période 24 000 ans) décroît sur l' ^{235}U . La radiotoxicité est constante ensuite car l' ^{235}U est quasi stable à cette échelle de temps, du fait de sa période radioactive très longue.

Les différentes contributions à la radiotoxicité des déchets dans le cas RNR U/Pu Hom (figure 6.2)

Contrairement au cas de référence, ce ne sont plus les AM qui dominant après 300 ans,

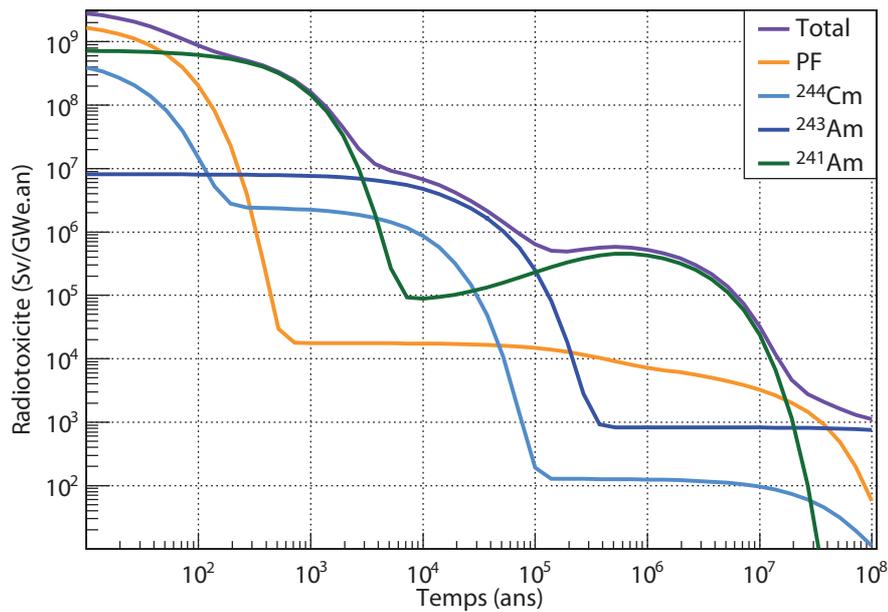


FIG. 6.1: Principales contributions à la radiotoxicité des déchets pour un RNR U/Pu Ref

mais les isotopes du Pu (pertes dues au retraitement). Le ^{240}Pu (période radioactive 6 500 ans) domine entre 500 ans et 10 000 ans, puis c'est au tour du ^{239}Pu (période radioactive 24 000 ans) de dominer entre 10 000 ans et 130 000 ans. Après 130 000 ans, ce sont les PF qui dominent à nouveau, avec l'isotope 129 de l'iode. Enfin, entre 150 000 ans et 500 000 ans, le ^{238}Pu contribue de manière non négligeable avec les PF. Il est à noter que les AM ont une contribution significative entre 300 ans et 500 ans.

Comparaison des radiotoxicités des déchets dans le cas de référence et transmutation homogène pour un RNR U/Pu (cf figure 6.3)

Pour les réacteurs à neutrons rapides (RNR) à combustible U/Pu, la contribution des PF est identique et la différence de radiotoxicités est due au retraitement des actinides mineurs (AM). En effet, dans le cas de référence, les contributions de l' ^{241}Am et du ^{244}Cm ne sont pas négligeables au début (cf figure 6.1), tandis que la radiotoxicité est totalement dominée par les PF dans le cas avec transmutation (cf figure 6.2), puisque les AM sont retirés des déchets ultimes. Sans transmutation des AM, la radiotoxicité à long terme est dominée essentiellement par les isotopes de l'américium (cf figure 6.1).

Quand les AM sont recyclés (cf figure 6.2), la contribution du ^{239}Pu (et du ^{240}Pu), provenant des pertes chimiques du retraitement, est la plus importante entre 1 000 ans et 200 000 ans. Puis, la radiotoxicité est due aux PF à vie longue, le principal étant l' ^{129}I .

La comparaison des courbes (cf figure 6.3) montrent que pendant les 50-100 premières années (ce qui correspond aux périodes d'entreposage en surface avant stockage), la transmutation des AM permet de réduire d'un facteur 2 environ la radiotoxicité des déchets.

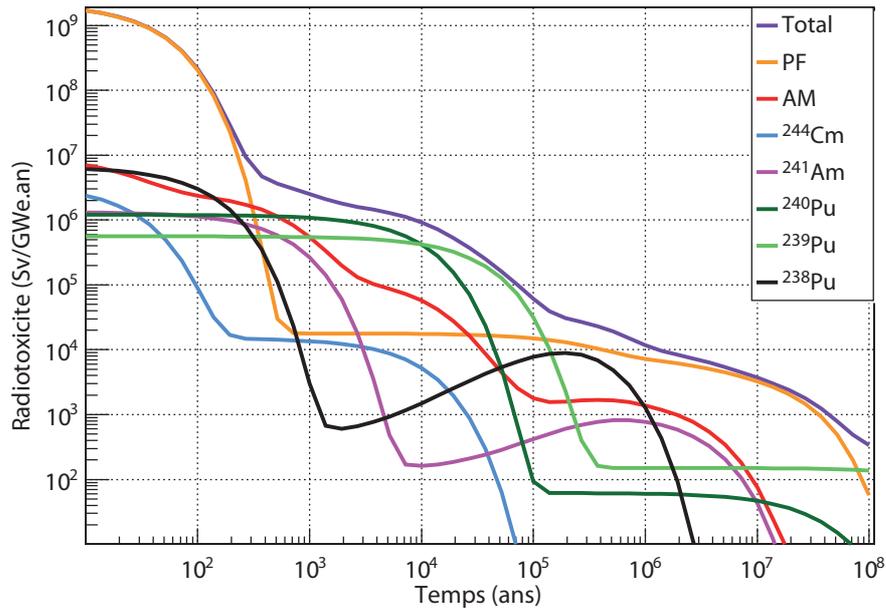


FIG. 6.2: Principales contributions à la radiotoxicité des déchets pour un RNR U/Pu Hom

Après cette période, l'avantage de la transmutation s'accroît. Le gain est de l'ordre de 50 à 100 entre 200 et 2 000 ans, puis entre 200 000 ans et 10 millions d'années. Entre ces deux périodes, le gain est de l'ordre de 10. On mesure ici l'impact significatif de la mise en œuvre de la transmutation des AM sur la radiotoxicité des déchets sur toute la période de stockage géologique.

Cycle Th/U

Les différentes contributions à la radiotoxicité des déchets dans le cas RNR Th/U Ref (figure 6.4)

Dans le cas de référence (cf figure 6.4), les contributions du ^{231}Pa , du ^{238}Pu et du ^{237}Np dominent la radiotoxicité :

- le ^{231}Pa , de période 32 760 ans, domine entre 300 et 200 000 ans : le ^{231}Pa provient de la réaction (n,2n) sur le ^{232}Th . Le facteur de dose du ^{231}Pa est particulièrement élevé (0.7×10^{-6} Sv/Bq, soit près de trois le facteur de dose du ^{239}Pu), qui s'accompagne d'une émission d'un rayonnement α d'une énergie de 5 MeV environ [59] ;
- le ^{238}Pu domine entre 200 000 et 500 000 ans. La première diminution de sa radiotoxicité apparaît aux alentours de 90 ans (sa période est de 87 ans). Puis, la radiotoxicité augmente car le ^{238}Pu décroît sur l' ^{234}U , qui décroît sur le ^{230}Th , et la période de l' ^{234}U étant plus grande que celle du ^{230}Th (245 500 ans contre 75 400 ans), les activités des deux noyaux sont alors du même ordre de grandeur, et leur cumul (en ajoutant à cela l'activité de la chaîne en aval lorsqu'elle se met à l'équilibre) conduit

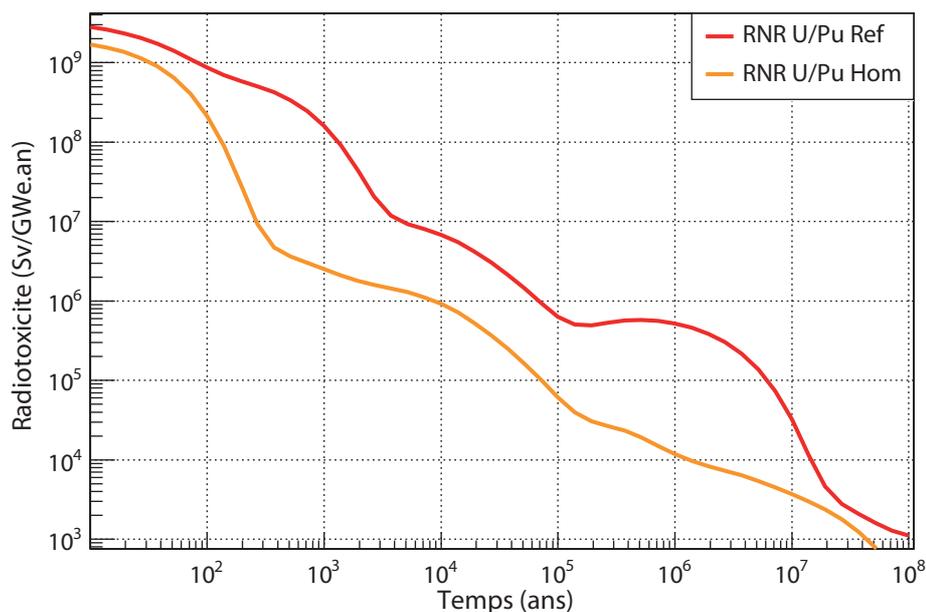


FIG. 6.3: Comparaison des radiotoxicités des déchets pour les 2 configurations en cycle U/Pu

à une augmentation de la radiotoxicité totale « par père » ;

- le ^{237}Np , de période 2.144 millions d'années, domine après 500 000 ans, à cause de la montée à l'équilibre de la chaîne de décroissance en aval du ^{237}Np , qui commence par la décroissance sur l' ^{233}U (cf paragraphe 6.1.1).

Les différentes contributions à la radiotoxicité des déchets dans le cas RNR Th/U Hom (figure 6.5)

Dans le cas avec transmutation homogène (cf figure 6.5), entre 1 000 ans et 800 000 ans, c'est l' ^{233}U qui domine à la place du ^{231}Pa , puis du ^{238}Pu et du ^{237}Np . Il est à noter que dans les deux cycles, U/Pu et Th/U, dans les cas avec transmutation, ce sont les isotopes fissiles (respectivement ^{233}U et ^{239}Pu), qui dominent la période entre 10^3 ans et 10^5 ans. Or, dans ce cas, après 10 000 ans, un regain de radiotoxicité est observé en cycle Th/U, alors qu'en cycle U/Pu, la radiotoxicité diminue continument (cf figure 6.7). Cela provient de la différence des chaînes de décroissance de l' ^{233}U et du ^{239}Pu . L' ^{233}U décroît par radioactivité α sur du ^{229}Th , de période 7880 ans, alors que le ^{239}Pu , décroît sur de l' ^{235}U , qui lui est quasi stable (cf paragraphe 6.1.1). Tant que l'équilibre séculaire n'est pas atteint entre l' ^{233}U et le ^{229}Th , la radiotoxicité augmente ; une fois l'équilibre atteint, soit environ 80 000 ans après ($7\,880 \times 10$), l'ensemble ^{233}U et ^{229}Th décroît de nouveau avec la période de l' ^{233}U . En dehors de la période, [1 000 ans ; 800 000 ans], les PF dominent la radiotoxicité des déchets.

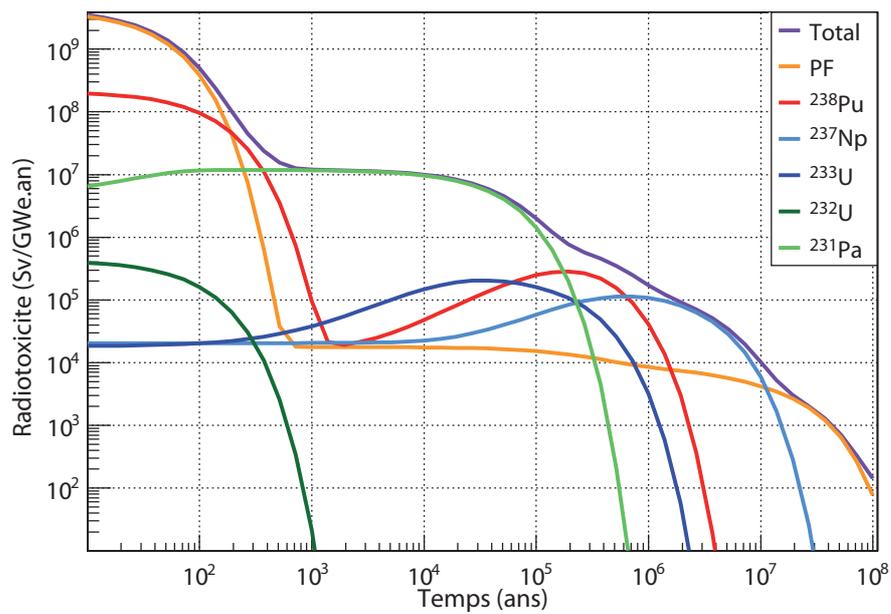


FIG. 6.4: Principales contributions à la radiotoxicité des déchets pour un RNR Th/U Ref

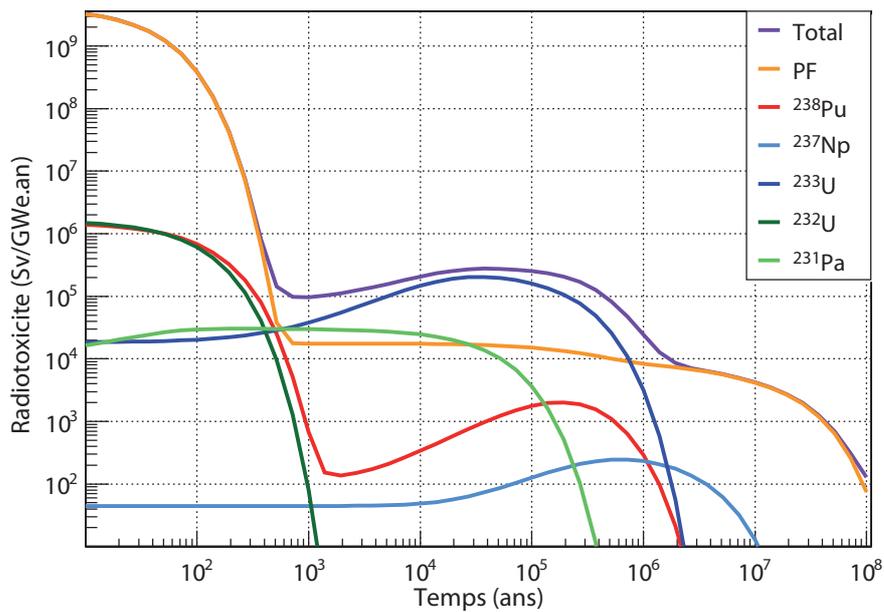


FIG. 6.5: Principales contributions à la radiotoxicité pour un RNR Th/U Hom

Comparaison des radiotoxicités des déchets dans le cas de référence et transmutation homogène pour un RNR Th/U (cf figure 6.6)

Comparée au cas de référence, la radiotoxicité du cas de transmutation homogène est ré-

duite de presque un facteur 100 entre 300 et 100 000 ans, et d'un facteur 5 entre 100 000 ans et 1 million d'années. En revanche, contrairement au cycle U/Pu, la transmutation des AM n'apporte pas de gain de radiotoxicité pendant la période d'entreposage de l'ordre du siècle. Cela est dû à la moindre production d'AM à vie moyenne en cycle Th/U par rapport au cycle U/Pu. Que ce soit avec ou sans transmutation, entre 0 et 700 ans, ce sont les PF qui contribuent majoritairement à la radiotoxicité. Ensuite, deux périodes se distinguent toujours selon la gestion, et les PF à vie longue dominant :

- après 800 000 ans, en transmutation homogène ;
- après 20 millions d'années, sans transmutation.

Encore une fois la transmutation des AM offre un avantage significatif sur la radiotoxicité des déchets ultimes sur toute la période de stockage géologique.

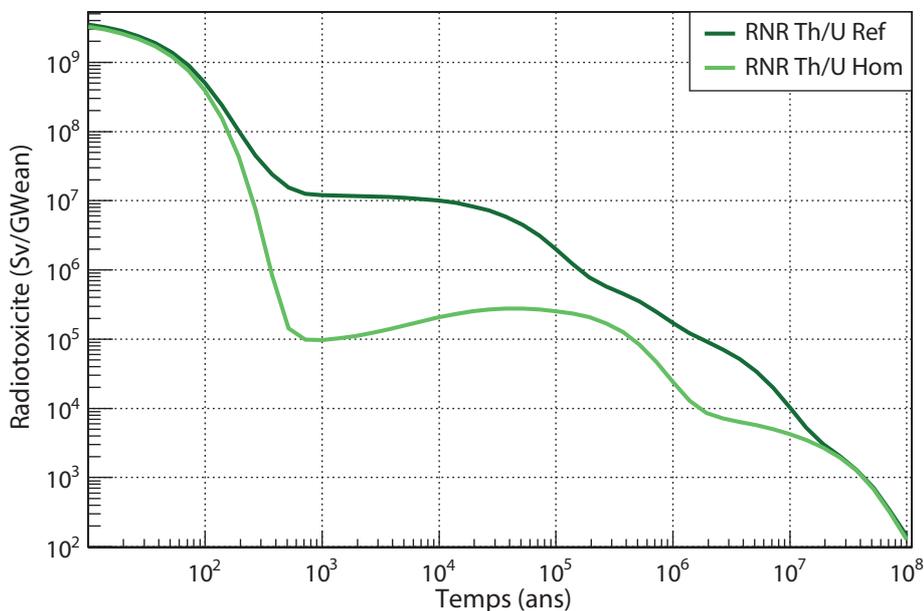


FIG. 6.6: Comparaison des radiotoxicités pour les 2 configurations en cycle Th/U

6.1.2 Comparaison inter cycle des radiotoxicités

Dans ce paragraphe, les radiotoxicités sont comparées selon le cycle utilisé pour une gestion du cœur donnée.

Il est à noter que, quels que soient le cycle et le type de gestion, durant les 300 premières années, la radiotoxicité est essentiellement dominée par les produits de fission (PF) à demi-vie de 30 ans, essentiellement le strontium (Sr) et le césium (Cs) (cf figure 6.8).

Cas de référence

En cycle Th/U (cf figure 6.7), la radiotoxicité jusqu'à 50 ans est légèrement plus élevée que celle en cycle U/Pu. En effet, la contribution des PF pour le cycle Th/U est plus grande : les productions par fission d' ^{233}U de ^{90}Sr et de ^{137}Cs , qui dominent cette période, sont respectivement trois fois et 30 % plus importantes que les productions par fission du ^{239}Pu (cf figure 6.8). Cet effet annule l'avantage de la moindre production d'AM à vie moyenne en cycle Th/U. La radiotoxicité des déchets en cycle U/Pu devient ensuite jusqu'à 10 fois plus élevée qu'en cycle Th/U, entre 100 et 4000 ans, et après 300 000 ans. Entre 4000 et 300 000 ans, la radiotoxicité en cycle Th/U est presque jusqu'à 4 fois plus importante qu'en cycle uranium : cela est dû à la présence du ^{231}Pa (cf figure 6.4).

Cas avec transmutation homogène

En transmutation homogène (cf figure 6.7, courbes orange et verte claire), on observe tout d'abord deux fois plus de radiotoxicité pendant 200 ans en cycle Th/U, à cause des PF. Puis, entre 200 ans et 30 000 ans, il y a un net avantage du cycle Th/U sur le cycle U/Pu (facteur 12). Puis, à cause de la contribution de l' ^{233}U et de la montée à l'équilibre de sa chaîne (cf figure 6.5), la radiotoxicité des déchets du cycle U/Pu est plus faible d'un facteur 10 environ. Après 2 millions d'années, les deux cycles sont équivalents.

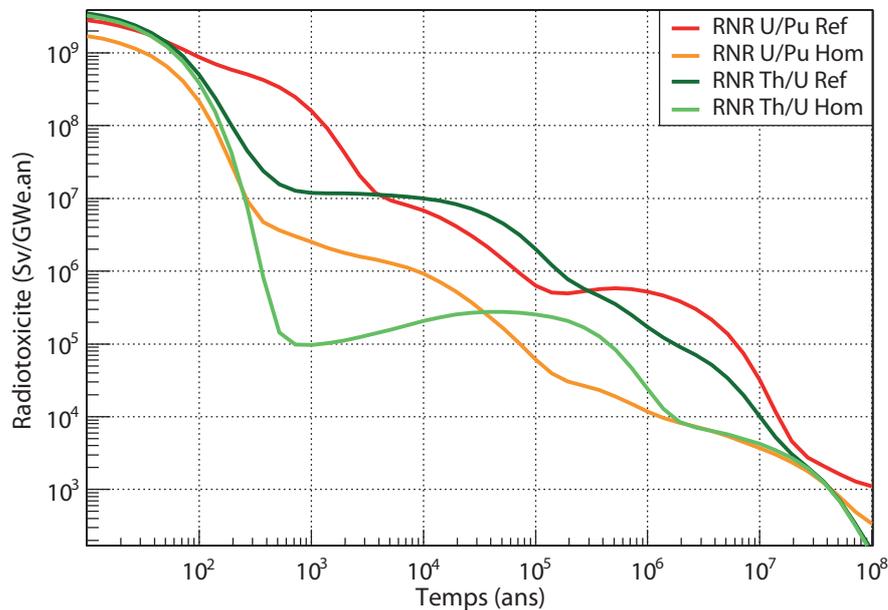
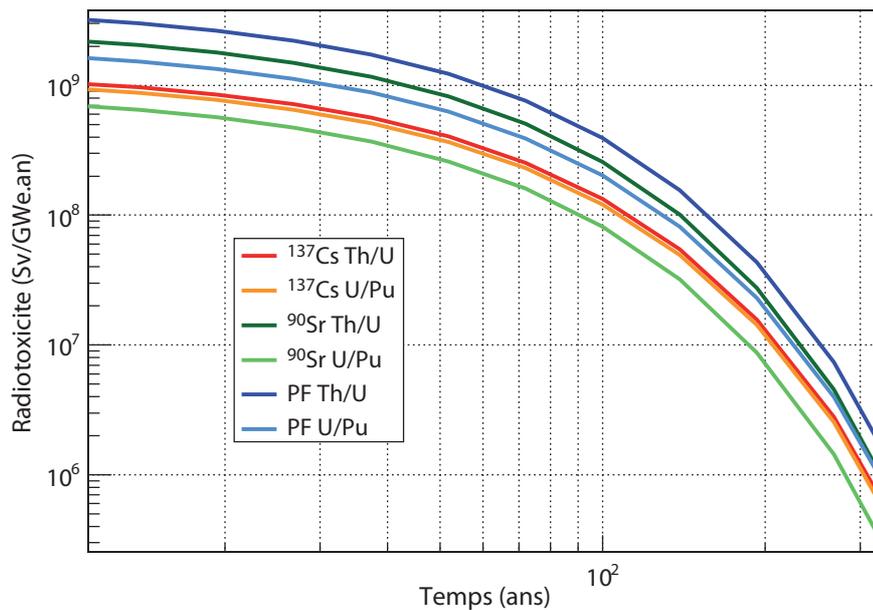


FIG. 6.7: Comparaison des radiotoxicités pour les 4 configurations : 2 configurations en cycle U/Pu et 2 configurations en cycle Th/U

FIG. 6.8: Comparaison des PF : ^{137}Cs et ^{90}Sr

Conclusion

Au vu de cette comparaison globale, il est donc difficile de dégager des avantages clairs pour un cycle ou l'autre. Cependant, les périodes considérées ne sont pas équivalentes en terme de gestion des risques. Jusqu'à 1 000 ans, on se situe encore à des échelles de temps pertinentes vis-à-vis de l'évolution de nos sociétés. Dans cette période, où le risque peut être qualifié de potentiel, le cycle Th/U offre un avantage significatif. C'est aussi pendant cette période que la radiotoxicité est la plus élevée, et où il est plus avantageux de la réduire. En 1 million d'années, la radiotoxicité est de toute façon réduite d'un facteur 1 000 dans le cas de référence et de 100 000 dans le cas de transmutation, du fait de la décroissance naturelle.

6.1.3 Chaleur résiduelle des différentes configurations

La chaleur résiduelle, qui provient des désintégrations radioactives (cf Chapitre 3), est une grandeur fondamentale pour le dimensionnement des sites de stockage des déchets. La période pertinente est ici réduite à quelques centaines d'années, période pendant laquelle la température des colis atteint un maximum, puis redescend. C'est pendant cette période, où la température est maximale, que le colis peut se dégrader et perdre une partie de ses propriétés de confinement, ce qui aurait un impact important sur le relâchement des radionucléides sur toute la période géologique qui suit.

Comme le montre la figure 6.9, dans le cas sans transmutation, la chaleur résiduelle est grandement réduite durant les premières centaines d'années en cycle Th/U : réduction

d'un facteur 3 après 100 ans et d'un facteur 17.5 à 1000 ans. Durant les 200 premières années, les principales contributions pour le cycle Th/U sont seulement les PF, mais pour le cycle uranium, ce sont à la fois les PF mais aussi le ^{244}Cm (cf figure 6.1). Lorsque la transmutation est mise en œuvre, la contribution du ^{244}Cm devient négligeable, et le cycle U/Pu gagne quasiment un facteur 2 sur la chaleur résiduelle par rapport au cycle Th/U. La production supplémentaire de césium et de strontium en cycle Th/U conduit alors à une chaleur plus importante durant les 200 premières années. Au bout de 1000 ans, la chaleur du cas Th/U Hom est réduite d'un facteur 10 par rapport à celle du cas U/Pu Hom.

Concernant le cycle U/Pu, la transmutation permet de réduire la chaleur de près d'un facteur 10 au bout de 100 ans, et d'un facteur 100 au bout de 400 ans.

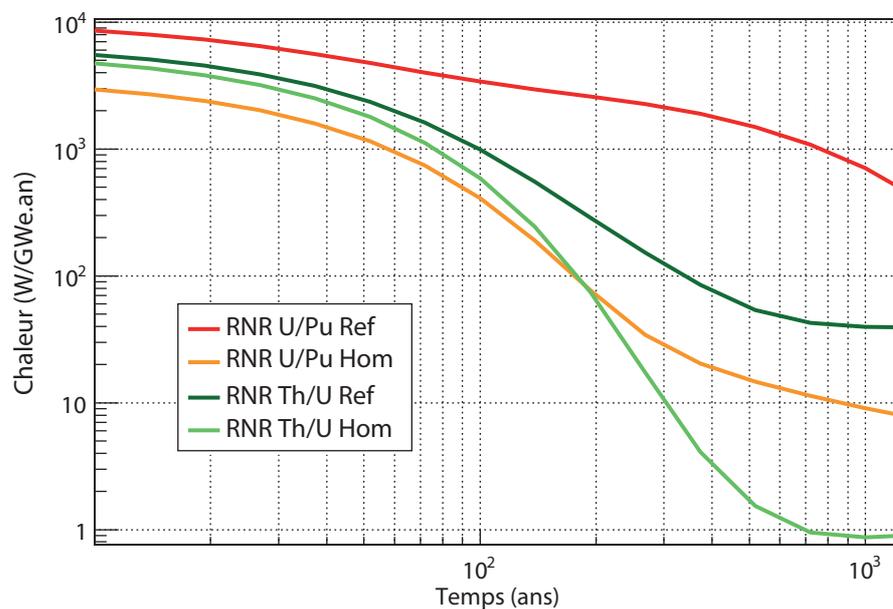


FIG. 6.9: Comparaison de la chaleur résiduelle des déchets pour les 4 configurations

6.1.4 Comparaison de la radiotoxicité des déchets du RNR U/Pu Ref et des colis vitrifiés actuels

En France, le combustible utilisé des réacteurs à eau sous pression (REP) à uranium enrichi (UOX) est retraité. Le plutonium et l'uranium sont retirés du combustible utilisé. Les PF et les AM sont incorporés dans une matrice de verre : ils constituent alors des colis vitrifiés, dits CSD-V, produits à La Hague [50, 60]. Nous allons comparer la radiotoxicité des déchets issus d'un RNR U/Pu Ref avec celle des colis vitrifiés actuels issus du traitement des UOX. Pour pouvoir établir des comparaisons, la radiotoxicité est normalisée par GWe.an.

Durant les 50 premières années, la radiotoxicité totale du colis CSD-V est supérieure

à celle du RNR U/Pu Ref (cf figure 6.10). Cela est dû à une contribution plus importante des PF dans le colis de presque un facteur 2. Cette contribution plus élevée des PF du colis s'étend sur quasiment 500 ans (cf figure 6.10). Elle provient notamment de la fission de l' ^{235}U , qui produit plus de PF à demi-vie courte que la fission du ^{239}Pu , tels que le ^{90}Sr et le ^{137}Cs (cf figure 6.11). La quantité de ^{90}Sr est multipliée par près d'un facteur 3 et celle de ^{137}Cs est augmentée de plus de 45 %.

De plus, le rendement thermique du REP étant plus faible que celui du RNR, un plus grand nombre de fissions est nécessaire en REP pour atteindre la même puissance électrique. Par conséquent, le nombre de PF produits en REP est plus élevé qu'en RNR pour une puissance électrique donnée. Le rendement du REP étant de 33 %, et celui du RNR étant de 40 %, l'augmentation globale du nombre de PF est de l'ordre de 17.5 %. Enfin, l'énergie libérée par une fission de l' ^{235}U est plus faible que pour le ^{239}Pu (respectivement 202 MeV et 211 MeV), ce qui entraîne un nombre de fission et donc un nombre de PF plus faible en RNR U/Pu pour obtenir la même énergie.

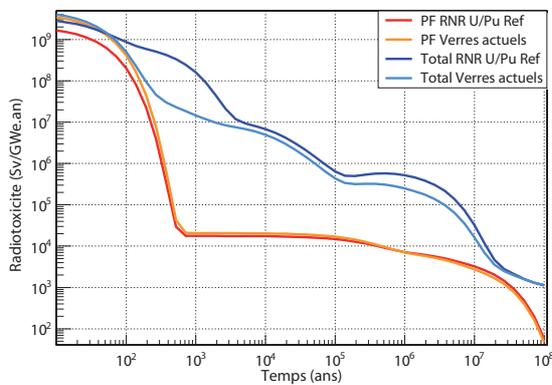


FIG. 6.10: Radiotoxicités totale et des PF des déchets d'un RNR U/Pu Ref et de colis CSD-V

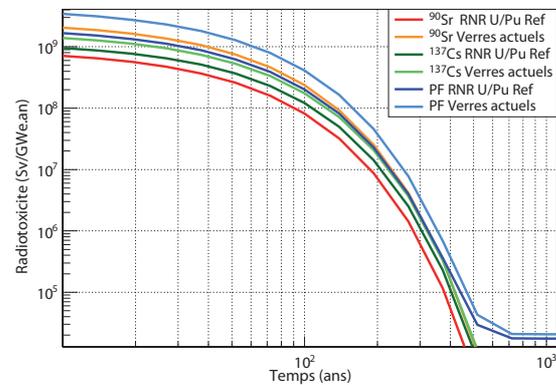


FIG. 6.11: Radiotoxicités des PF des déchets issus d'un RNR U/Pu Ref et de colis CSD-V

La radiotoxicité totale du RNR U/Pu Ref devient plus élevée que celle du colis CSD-V au bout de 50 ans, car la contribution des AM en RNR U/Pu Ref chute moins vite que celle des AM dans les colis actuels (cf figure 6.12). Cela provient d'une contribution plus élevée de l' ^{241}Am (cf figure 6.13).

La radiotoxicité de l' ^{241}Am est plus élevée dans les déchets issus d'un RNR U/Pu Ref, à cause de la plus grande quantité de ^{241}Pu , de période 14.4 ans, dans le combustible d'un RNR U/Pu Ref à l'équilibre. Par contre, concernant le ^{244}Cm et le ^{237}Np , leurs contributions à la radiotoxicité sont plus grandes dans le cas des déchets actuels que dans celui du RNR U/Pu Ref. Pour le ^{237}Np , cela s'explique par les captures successives à partir de l' ^{235}U et les réactions (n,2n) sur l' ^{238}U favorisées en spectre rapide. Quant au ^{244}Cm , ce résultat peut surprendre, mais il s'explique par le fait que les captures successives sont favorisées en spectre thermique, alors qu'en spectre rapide, même les noyaux pairs en neutrons fissionnent de manière significative, ce qui limite leur accumulation.

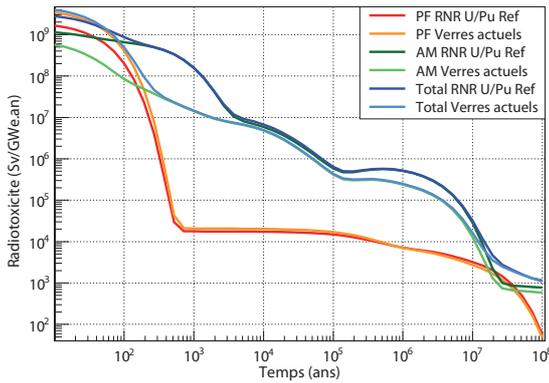


FIG. 6.12: Radiotoxicités totale, des AM des PF des déchets issus d'un RNR U/Pu Ref et de colis CSD-V

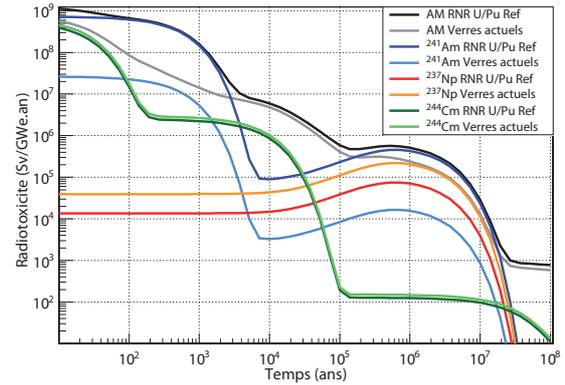


FIG. 6.13: Radiotoxicité des AM en RNR U/Pu Ref et dans un CSD-V

En REP, les différents AM ont tour à tour une contribution dominante (cf figure 6.13). Tout d'abord, le ^{244}Cm dont la période est de 18 ans domine, puis c'est le tour de l' ^{241}Am (période 432 ans), puis de nouveau, la chaîne de décroissance du ^{244}Cm contribue majoritairement à la radiotoxicité par le biais du ^{240}Pu , et enfin la chaîne de décroissance du ^{237}Np domine à partir de 50 000 ans.

En RNR, ce sont les américium qui dominent la radiotoxicité sur toute la période de temps considérée. Au début, c'est l' ^{241}Am , avec néanmoins une contribution non négligeable du ^{244}Cm , puis l' ^{243}Am domine entre 3 000 et 100 000 ans, et enfin, c'est de nouveau l' ^{241}Am .

6.1.5 Conclusion

Selon le combustible utilisé, des avantages et des inconvénients apparaissent dans les deux cycles et aucun des deux ne se distingue réellement, la baisse de la radiotoxicité étant fonction de la période de temps considéré. Le cycle Th/U offre cependant des avantages significatifs concernant le risque potentiel sur l'intervalle de temps compris entre 200 ans et 20 000 ans. En revanche, concernant la chaleur dégagée, le cycle Th/U apporte un avantage certain. Dans la gestion de référence, où les AM sont envoyés aux déchets à chaque cycle, le cycle Th/U permet de diminuer significativement la charge thermique des déchets et de réduire ainsi la surface du site de stockage. Si la transmutation est mise en œuvre, cet avantage, du cycle Th/U sur le cycle U/Pu, n'apparaît qu'après 200 ans. L'impact sur le dimensionnement du site devrait persister compte tenu du fait que les verres sont de toute façon entreposés plusieurs dizaines d'années avant leur descente dans le site de stockage¹. Selon le mode de gestion du cœur, sans surprise, la transmutation homogène permet de

¹Les premiers déchets HA-VL actuels devraient être stockés dans un site type celui de Bure après 2060, soit un entreposage préalable de 70 ans environ, au minimum, afin de laisser décroître leur charge thermique.

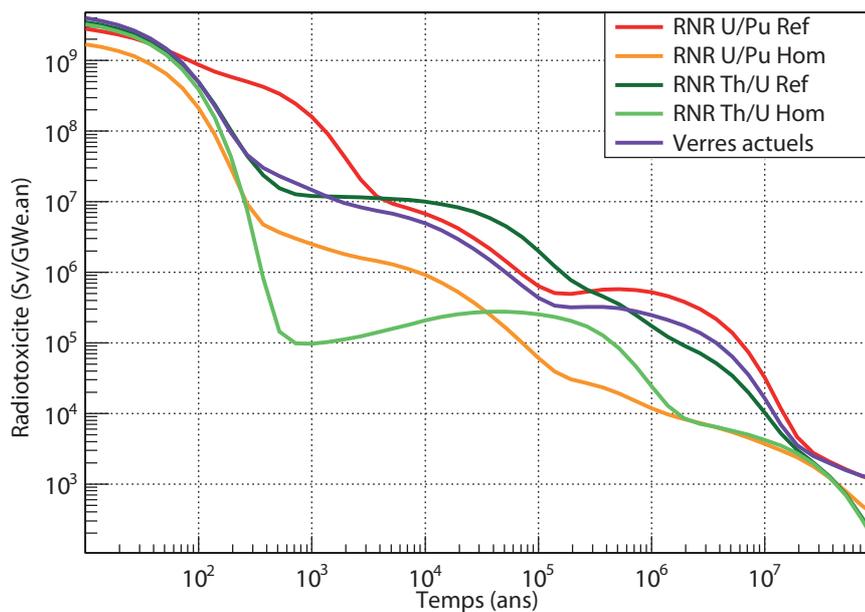


FIG. 6.14: Comparaison de la radiotoxicité des déchets pour les 4 configurations RNR et les déchets actuels

réduire considérablement la radiotoxicité des déchets. Néanmoins la mise en oeuvre de la transmutation soulève un certain nombre de problèmes, et notamment celui de la quantité d'AM à manipuler en cœur, avec la question de la fabrication d'assemblages frais contenant une part d'AM en plus des éléments fissile-fertile, et la nécessité de concevoir des usines de fabrication de combustible aptes à recevoir des quantités non négligeables d'AM. Un autre problème est l'augmentation de la radiotoxicité du cœur en transmutation homogène. Une question qui peut alors se poser est de savoir si le jour où l'on arrête la filière avec transmutation et que l'inventaire du cœur du réacteur devient aussi un déchet, alors la radiotoxicité des déchets cumulés produits chaque année jusqu'à l'arrêt de la filière ajoutée à celle du cœur apporte un gain suffisant par rapport à l'option de référence. Ces questions sont développées dans les paragraphes suivants en commençant par la description de la radiotoxicité des différents cœurs à l'équilibre.

6.2 Comparaison de la radiotoxicité des cœurs U/Pu et Th/U

Nous présentons ici la radiotoxicité détaillée du cœur pour chacun des cycles, U/Pu et Th/U, et chaque mode de gestion, avec ou sans transmutation homogène. Pour pouvoir réaliser le rechargement en cœur de manière continue, il est nécessaire d'avoir des assemblages supplémentaires prêts à être remis en cœur, pour que les assemblages sortis du cœur aient le temps de refroidir et pour également prendre en compte le temps de fabrication

des assemblages frais : le temps de refroidissement étant de 5 ans, celui de fabrication de 2 ans, et la durée d'un cycle étant de 1 an, un lot sur les sept lots de 86 assemblages doit être disponible pour permettre un rechargement du cœur en continu. Au total, 12 lots de 86 assemblages sont donc nécessaires. La durée d'irradiation d'un lot étant de 5 ans, le facteur de normalisation pour prendre en compte la radiotoxicité de l'inventaire total du cœur est $\frac{12}{5}$.

6.2.1 Cycle U/Pu

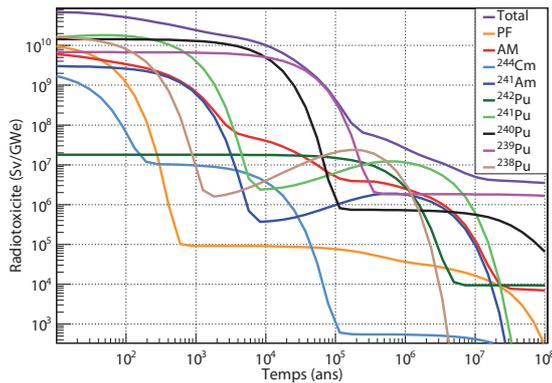


FIG. 6.15: Principales contributions à la radiotoxicité d'un cœur de RNR U/Pu Ref (Sv/GWe)

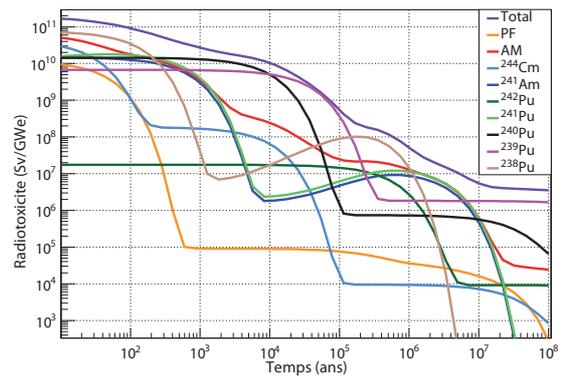


FIG. 6.16: Principales contributions à la radiotoxicité d'un cœur de RNR U/Pu Hom (Sv/GWe)

Cas de référence (cf figure 6.15)

Dans ce mode de gestion du combustible usé, seuls les éléments fissile et fertile sont remis en cœur. Les AM sont mis aux déchets à 100 % à chaque cycle, ce qui conduit à un inventaire faible de ces éléments en cœur. La radiotoxicité est alors dominée sur toute la période de temps par le plutonium (cf figure 6.15).

Un an après le déchargement du cœur, ce sont les isotopes 238, 240 et 241 du Pu qui dominent avec respectivement des valeurs de radiotoxicité de 1.76×10^{10} Sv/GWe, 1.44×10^{10} Sv/GWe et 1.42×10^{10} Sv/GWe, puis les PF avec 1.18×10^{10} Sv/GWe, puis les AM avec 9.45×10^9 Sv/GWe, et enfin le ^{239}Pu avec 6.78×10^9 Sv/GWe.

Les contributions majoritaires à la radiotoxicité se distribuent comme suit :

- jusqu'à 10 ans, le ^{238}Pu domine ;
- entre 10 ans et 300 ans, c'est le ^{241}Pu qui domine ; on observe une remontée de sa radiotoxicité qui s'explique par la décroissance β du ^{241}Pu sur l' ^{241}Am , qui a une période de 432 ans, qui décroît lui-même sur le ^{237}Np ;
- de 300 ans à 8 600 ans, le ^{240}Pu domine ;
- entre 8 600 ans et 200 000 ans, c'est le ^{239}Pu qui domine. Il est à noter que la contribution du ^{239}Pu sur cet intervalle de temps est plus que majoritaire : elle recouvre

- la totalité de la radiotoxicité ;
- de 200 000 ans à 500 000 ans, le ^{238}Pu (en tant que père) domine de nouveau. La radiotoxicité du ^{238}Pu , après avoir diminué drastiquement vers 100 ans (la période du ^{238}Pu est de 86.6 ans), augmente à nouveau, du fait de la formation par décroissances α successives, de l' ^{234}U , de période radioactive de 245 500 ans et du ^{230}Th , qui lui a une période plus faible que celle de son prédécesseur (75 400 ans) : cela entraîne le cumul des activités de ces deux noyaux qui sont alors du même ordre de grandeur et explique le regain de radiotoxicité du ^{238}Pu ;
 - entre 500 000 ans et 7 millions d'années, le ^{241}Pu contribue majoritairement de nouveau : la remontée de sa radiotoxicité est due à la formation de l' ^{233}U , de période 160 000 ans, par décroissance α du ^{237}Np d'une période d'environ 2 millions d'années (et qui provient de la décroissance α de l' ^{241}Am , issu de la décroissance β du ^{241}Pu) ;
 - après 7 millions d'années, le ^{239}Pu domine à nouveau.

Concernant les AM, ils jouent ici un rôle secondaire, leur quantité en cœur étant relativement faible. La répartition de la contribution des AM dans le cœur est identique à celle dans les déchets : l' ^{241}Am domine sur les 2500 premières années, avec une contribution au démarrage du ^{244}Cm , puis l' ^{243}Am domine sur l'intervalle [2500 ans ; 120 000 ans], et de nouveau, l' ^{241}Am a la contribution majoritaire parmi les AM (cf figure 6.15).

Cas avec transmutation homogène (cf figure 6.16)

Dans ce mode, les éléments fissile et fertile, ainsi que les AM sont remis en cœur. Sont mis aux déchets les PF et 0.1 % des AM et des éléments fissile et fertile, correspondant aux pertes chimiques.

Malgré l'inventaire plus important des AM en cœur, du fait de leur multirecyclage, ce sont toujours les isotopes du Pu qui dominent la radiotoxicité (sauf entre 1 et 7 millions d'années où ce sont à la fois les AM et le ^{241}Pu qui dominent). La radiotoxicité des AM (cf figure 6.17) et celle du ^{238}Pu (cf figure 6.18) ont augmenté.

La radiotoxicité du ^{238}Pu augmente en transmutation homogène car son inventaire en cœur homogène est plus de 4 fois plus important qu'en cœur de référence, du fait du multirecyclage de l' ^{241}Am , qui produit du ^{238}Pu par capture neutronique. Ce facteur 4 de l'inventaire du ^{238}Pu en cœur se retrouve sur la radiotoxicité au déchargement du réacteur, la radiotoxicité du ^{238}Pu étant de 7.6×10^9 Sv/GWe en cas de transmutation homogène, et celle en cas de référence est de 1.76×10^{10} Sv/GWe.

Les contributions majoritaires à la radiotoxicité se distribuent ainsi :

- jusqu'à 190 ans, le ^{238}Pu domine ;
- de 190 ans à 9 800 ans, le ^{240}Pu domine ;
- entre 9 800 ans et 150 000 ans, c'est le ^{239}Pu qui domine. Comme en cas de référence, la contribution du ^{239}Pu sur cet intervalle de temps est plus que majoritaire ;
- de 150 000 ans à 1 million d'années, le ^{238}Pu domine de nouveau. De même que dans le cas de référence, la radiotoxicité du ^{238}Pu augmente à nouveau après avoir diminué vers 100 ans ;

- entre 1 million d’années et 7 millions d’années, le ^{241}Pu et les AM contribuent majoritairement : cette contribution est due à la coexistence du ^{237}Np et de l’ ^{233}U , le ^{237}Np étant formé dans les deux cas (^{241}Pu et AM) par décroissance α sur l’ ^{241}Am ;
- après 7 millions d’années, le ^{239}Pu domine à nouveau.

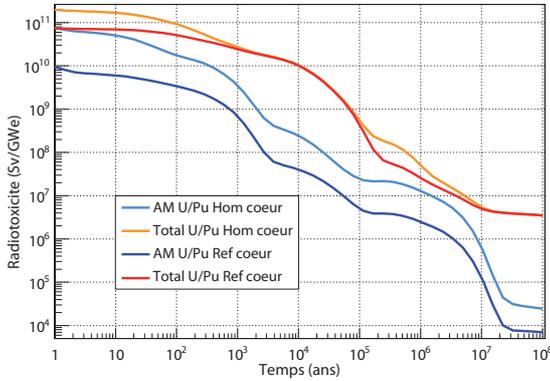


FIG. 6.17: Comparaison des contributions des AM à la radiotoxicité d’un cœur de RNR U/Pu dans les cas avec et sans transmutation homogène (Sv/GWe)

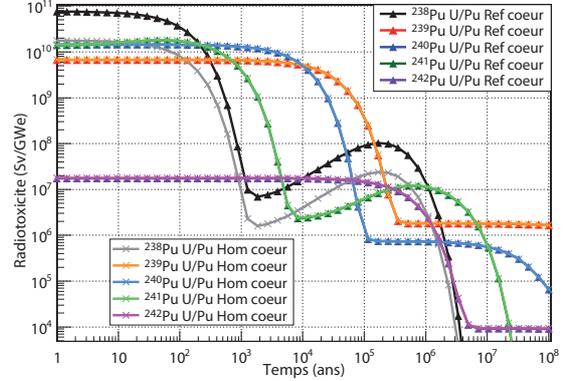


FIG. 6.18: Comparaison des contributions du Pu à la radiotoxicité d’un cœur de RNR U/Pu dans les cas avec et sans transmutation homogène (Sv/GWe)

6.2.2 Cycle Th/U

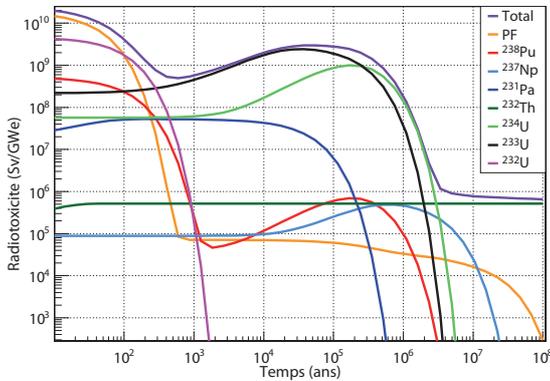


FIG. 6.19: Principales contributions à la radiotoxicité d’un cœur de RNR Th/U Ref (Sv/GWe)

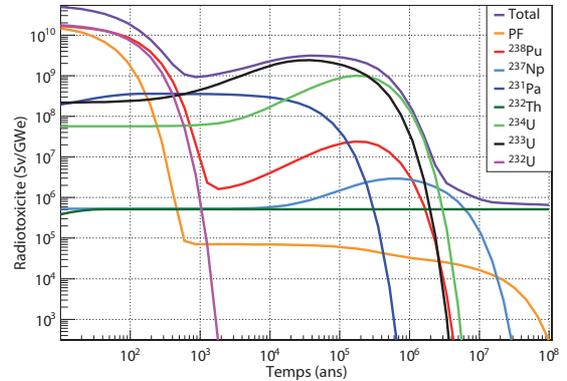


FIG. 6.20: Principales contributions de la radiotoxicité d’un cœur de RNR Th/U Hom (Sv/GWe)

Cas de référence (cf figure 6.19)

On rappelle que dans ce mode de gestion du cœur, seuls les éléments fissile et fertile sont remis en cœur. Les AM sont mis aux déchets à 100 %.

La radiotoxicité du cœur est dominée durant les 100 premières années par les PF. Entre 100 et 3.4 millions d'années, elle est dominée par des isotopes de l'uranium. Après 3.4 millions d'années, c'est le ^{232}Th qui domine. La radiotoxicité totale à la sortie du cœur est de 2.34×10^{10} Sv/GWe, soit 3 fois moins qu'en cycle U/Pu. En effet, en cycle U/Pu, même à la sortie du cœur, ce sont les isotopes du plutonium qui dominent la radiotoxicité (cf paragraphe 6.2.1). Entre 100 ans et 3.4 millions d'années, la radiotoxicité est dominée par les isotopes suivants :

- entre 100 ans et 300 ans, l' ^{232}U ;
- de 300 ans à 240 000 ans, l' ^{233}U . C'est le cumul des activités, alors du même ordre de grandeur, de l' ^{233}U et du ^{229}Th (obtenu par décroissance α sur l' ^{233}U), de périodes respectives 160 000 ans et 7 880 ans, qui provoque la remontée de la radiotoxicité ;
- entre 240 000 ans et 3.4 millions d'années, l' ^{234}U . On observe également une remontée de la radiotoxicité due au cumul des activités de l' ^{234}U , du ^{230}Th (qui sont alors du même ordre de grandeur), de périodes respectives 245 500 ans et 75 400 ans, et de la chaîne en aval ;
- après 3.4 millions d'années, le ^{232}Th .

Cas avec transmutation homogène (cf figure 6.20)

De même qu'en cycle U/Pu, dans ce mode, les éléments fissile et fertile, ainsi que les AM² sont remis en cœur. Sont mis aux déchets les PF et 0.1 % des AM et des éléments fissile et fertile (pertes chimiques). La radiotoxicité à la sortie du cœur est 3.5 fois moins importante en cycle Th/U qu'en cycle U/Pu. A la différence du cycle U/Pu, les AM jouent un rôle dans les contributions majeures à la radiotoxicité en cycle Th/U. En effet, entre 3 et 500 ans, le ^{238}Pu domine et entre 1.5 et 6 millions d'années, c'est le ^{237}Np . L'isotope qui subit l'augmentation de radiotoxicité la plus marquée est, comme dans le cycle U/Pu, le ^{238}Pu , ici produit par capture sur le ^{237}Np , et considéré en cycle Th/U comme un actinide mineur (cf figure 6.4). L'inventaire du ^{238}Pu en cœur est multiplié par 37 dans le cas homogène et sa radiotoxicité de presque autant (un facteur 34). Concernant les isotopes de l'uranium, la radiotoxicité de l' ^{232}U est multipliée par 4 et joue un rôle pendant les 100 premières années (cf figure 6.22). Cela provient de l'augmentation de l'inventaire de l' ^{232}U en transmutation homogène (facteur 4) due au recyclage du ^{231}Pa .

6.2.3 Conclusion

L'un des principaux résultats qui ressort de cette étude est que la radiotoxicité du cœur, avec ou sans transmutation, est dominée par les éléments fissiles du cycle considéré. Nous verrons dans le paragraphe 6.3.2 comment quantifier le gain global obtenu grâce à la transmutation, en prenant en compte à la fois les déchets cumulés tous les ans durant le fonctionnement du réacteur et la radiotoxicité de l'inventaire du cœur.

²On rappelle que sont considérés comme actinides mineurs (AM) en cycle Th/U les éléments suivants : le protactinium (Pa), le neptunium (Np), le plutonium (Pu), l'américium (Am) et le curium (Cm).

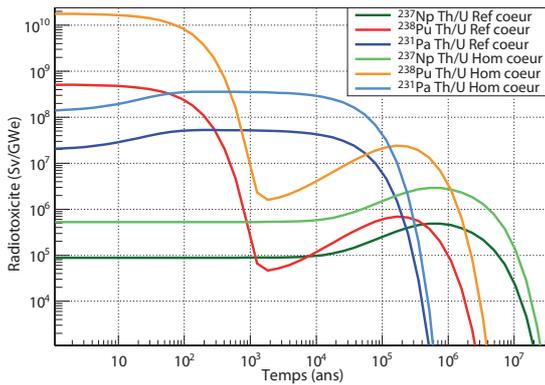


FIG. 6.21: Comparaison des contributions des AM à la radiotoxicité d'un cœur de RNR Th/U dans les cas avec et sans transmutation homogène (Sv/GWe)

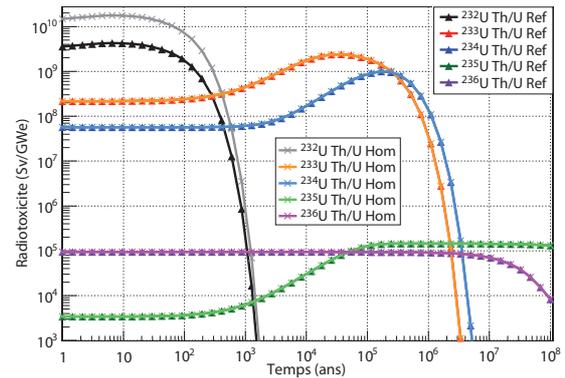


FIG. 6.22: Comparaison des contributions des isotopes d'uranium à la radiotoxicité d'un cœur de RNR Th/U dans les cas avec et sans transmutation homogène (Sv/GWe)

6.3 Apport de la transmutation homogène en cycle U/Pu et Th/U

6.3.1 Masse des actinides mineurs en cœur et aux déchets selon la gestion envisagée

Pour étudier les avantages et les inconvénients de la transmutation homogène, différentes grandeurs peuvent être utilisées. Dans cette partie, nous comparons les masses d'actinides mineurs (AM) mises aux déchets et l'inventaire en cœur, avec et sans transmutation, pour un cycle donné.

Cycle U/Pu

Concernant la radiotoxicité des déchets, la transmutation permet d'éviter de mettre les AM aux déchets, mais en contrepartie, il faut gérer un inventaire plus important en cœur, et donc les manipuler : cela illustre la contrainte de la transmutation.

Cela étant, la réduction des AM mis aux déchets dans le cas de la transmutation homogène reste considérable (cf figures 6.25 et 6.26).

Dans le cas du cycle U/Pu, au bout de 100 ans, l'inventaire des AM en cœur est multiplié par 7 dans le cas homogène, mais la quantité cumulée des AM mise aux déchets est divisée par 9. Au bout de 200 ans, l'inventaire des AM en cœur est stabilisé et la masse cumulée des AM mise aux déchets est alors divisée par 17. A partir de 20 ans, la masse cumulée des AM mise aux déchets est de 20 kg tous les ans.

Au bout de 20 ans, la quantité globale d'AM en (cœur+déchets) est plus grande dans

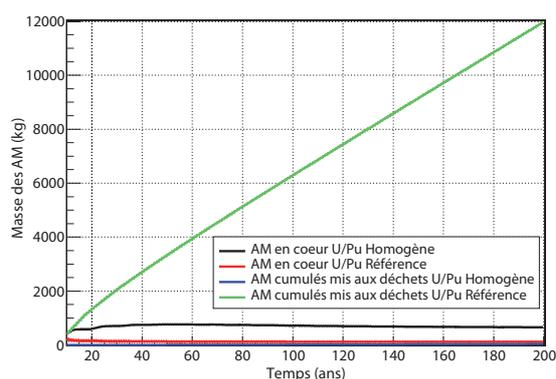


FIG. 6.23: Masse des AM en cœur (noir : U/Pu Hom, rouge : U/Pu Ref) et masse cumulée des AM mise aux déchets (bleu : U/Pu Hom, vert : U/Pu Ref)

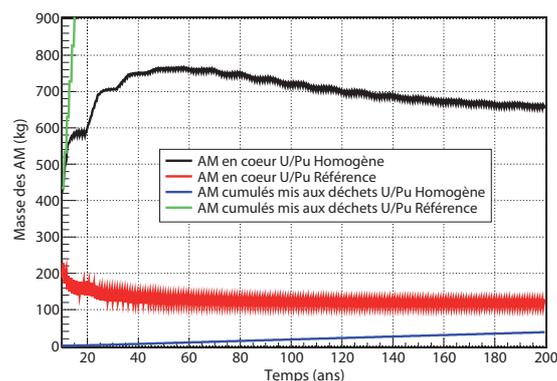


FIG. 6.24: Zoom de la masse des AM en cœur (noir : U/Pu Hom, rouge : U/Pu Ref) et masse cumulée des AM mise aux déchets (bleu : U/Pu Hom)

le cas U/Pu Hom que dans le cas U/Pu Ref. Néanmoins, à l'équilibre (cf tableau 6.3), une grande quantité d'AM doit être manipulée en cœur (7 fois plus), ce qui pose un certain nombre de problèmes techniques, notamment lors du retraitement du combustible utilisé pour fabriquer des assemblages frais : il faudra concevoir de nouvelles usines de fabrication de combustible, pour qu'elles soient en mesure de traiter des concentrations plus importantes d'AM (blindage).

Cela étant, l'intérêt de la transmutation homogène sur la réduction des déchets est indéniable, si l'on envisage d'avoir recours à l'énergie nucléaire sur plusieurs décennies, car, non seulement, la diminution de la masse des AM mise aux déchets permet de réduire le risque potentiel à long terme, mais aussi la chaleur dégagée par les déchets, ce qui a un impact direct sur la surface des sites de stockage. En effet, si le nucléaire était multiplié par 10, avec une gestion en cycle ouvert, un site de stockage serait nécessaire presque tous les ans au niveau mondial [62] (site de stockage souterrain de déchets HA et MA-VL, situé à 500 m de profondeur, d'une surface de 15 km² [?]). La mise en œuvre de la transmutation pourrait permettre de multiplier jusqu'à 10 la quantité de déchets stockables dans un site donné.

Cycle Th/U

De même que pour le cycle U/Pu, la masse cumulée d'AM mise aux déchets et la masse d'AM en cœur dans le cas de référence sont comparées avec celles dans le cas de transmutation homogène (cf figures 6.25 et 6.26). Par rapport au cycle U/Pu, la masse cumulée d'AM mise aux déchets dans le cas de référence en cycle Th/U est réduite de presque un facteur 4 (cf tableau 6.1). L'inventaire en cœur de Th/U Ref est légèrement plus important que celui de U/Pu Ref. Cela s'explique d'une part, par la présence des 30 cm de couvertures axiales en cycle Th/U (les AM issus de ces couvertures sont comptabilisés

dans les AM en cœur), mais surtout à cause du ^{233}Pa , dont la durée de vie est plus de 10 fois plus grande que celle du ^{239}Np (cf tableau 6.2). Néanmoins, la masse d'AM mise aux déchets est plus grande en cycle U/Pu que Th/U du fait de la très courte durée de vie du ^{233}Pa , noyau qui représente près de 80 % des AM en cœur : en effet, après le temps de refroidissement, tout le ^{233}Pa a disparu. Au bout de 100 ans, l'inventaire des AM en cœur est multiplié par 2.5 dans le cas homogène, mais la quantité cumulée des AM mise aux déchets est divisée par 500 (cf figure 6.25).

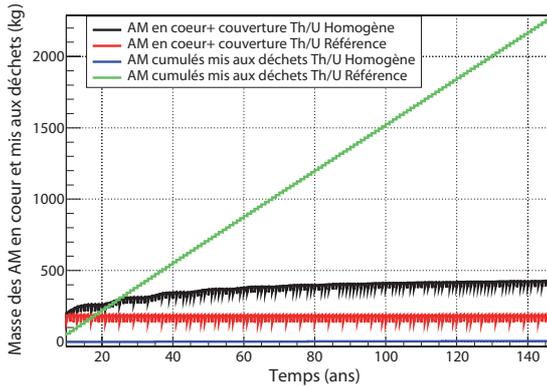


FIG. 6.25: Masse des AM en cœur (noir : Th/U Hom, rouge : Th/U Ref) et masse cumulée des AM mise aux déchets (bleu : Th/U Hom, vert : Th/U Ref)

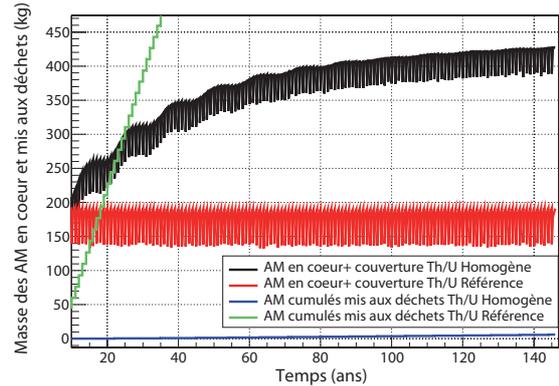


FIG. 6.26: Zoom de la masse des AM en cœur (noir : Th/U Hom, rouge : Th/U Ref) et masse cumulée des AM mise aux déchets (bleu : Th/U Hom)

	Référence		Homogène	
	U/Pu	Th/U	U/Pu	Th/U
Masse des AM en cœur (kg)	107	136	692	389
Masse des AM cumulée mise aux déchets (kg)	8600	2173	22	6

TAB. 6.1: Comparaison des masses d'AM en cœur et cumulée mise aux déchets en cycles U/Pu et Th/U à $t = 140$ ans ($P_{elec} = 1.45$ GWe.an)

Sans transmutation, chaque année, 16 kg d'AM sont mis aux déchets dans le cas Th/U Ref : la masse d'AM mise aux déchets en Th/U est plus faible que celle en cycle U/Pu (20 kg). Quand on transmute, la masse d'AM mise aux déchets ne dépasse pas 6 kg en cycle Th/U, et 22 kg en cycle U/Pu à $t = 140$ ans. En ce qui concerne la transmutation homogène, en cycle U/Pu, la masse des AM en cœur diminue à 140 ans, tandis qu'en cycle Th/U, elle a tendance à continuer d'augmenter (cf tableau 6.2).

Temps (ans)	0	50	100	146
Masses AM en cœur U/Pu Ref (kg)	89	114	108	107
Masses AM en cœur Th/U Ref (kg)	0	136	134	191
Masses AM en cœur U/Pu Hom (kg)	89	765	725	685
Masses AM en cœur Th/U Hom (kg)	0	327	374	428

TAB. 6.2: Comparaison des masses d'AM en cœur pour les cycles U/Pu et Th/U à différents temps ($P_{elec} = 1.45$ GWe.an)

Masse des AM en cœur (kg)	Référence	Homogène
^{245}Cm	0.1	17.0
^{244}Cm	2.1	67.2
^{243}Cm	0.1	2.0
^{242}Cm	3.6	17.5
^{243}Am	15.4	102.4
$^{242*}\text{Am}$	1.0	16.6
^{241}Am	65.4	371.3
^{239}Np	8.1	7.5
^{237}Np	11.5	74.2
Total	107.4	692.5

TAB. 6.3: Comparaison des masses des AM en cœur en cycle U/Pu à $t = 140$ ans ($P_{elec} = 1.45$ GWe.an)

Masse des AM en cœur (kg)	Référence	Homogène
^{240}Pu	0.003	8.9
^{239}Pu	0.1	22.2
^{238}Pu	2.1	74.4
^{237}Np	18.5	110.2
^{233}Pa	105.2	106.3
^{231}Pa	9.5	65
Total	135.4	388.6

TAB. 6.4: Comparaison des masses des AM en cœur en cycle Th/U à $t = 140$ ans ($P_{elec} = 1.45$ GWe.an)

6.3.2 Calcul du gain sur la radiotoxicité obtenu par transmutation

Le but est de savoir au bout de quelle durée de fonctionnement du nucléaire la transmutation devient intéressante. Autrement dit, si le cycle électronucléaire est arrêté au bout

de x années, quel sera le gain sur la radiotoxicité. Il faut faire attention de bien distinguer deux choses : d'une part, la radiotoxicité des déchets sortis chaque année, mesurée en sievert (Sv) par giga watt électrique an (GWe.an), et d'autre part, la radiotoxicité du cœur, qu'il faudra prendre en compte en « fin de jeu », c'est-à-dire, quand on arrêtera le cycle électronucléaire, car l'inventaire total (cœur + cycle) deviendra alors un déchet.

Cycle U/Pu

Pour tenter d'estimer ce gain, les configurations RNR U/Pu Hom et RNR U/Pu Ref du chapitre 4 sont utilisées. On rappelle que dans le cas :

- RNR U/Pu Ref, seuls l'U et le Pu sont rechargés en cœur, et les AM sont mis aux déchets (cf fig. 6.27) ;
- RNR U/Pu Hom, le Pu, l'U et les AM sont recyclés en cœur (cf figure 6.27), seuls les PF et les pertes chimiques dues au retraitement du Pu, de l'U et des AM sont présents dans les déchets.

Dans chacune de ces configurations, la radiotoxicité du cœur (en Sv/GWe) et celle des déchets (en Sv/GWe.an) est calculée. On définit alors une fonction gain $g_T(t)$ à un temps géologique donné T (cf équation 6.1).

$$g_T(t) = \frac{I_T^{Ref} + d_T^{Ref} * t}{I_T^{Hom} + d_T^{Hom} * t} \quad (6.1)$$

avec :

- I_T^{Ref} est la radiotoxicité du cœur normalisée¹ de la configuration sans transmutation (Sv/GWe) U/Pu Ref ;
- I_T^{Hom} est la radiotoxicité du cœur normalisée¹ de la configuration avec transmutation (Sv/GWe.an) U/Pu Hom ;
- d_T^{Ref} est la radiotoxicité des déchets par an de la configuration sans transmutation (Sv/GWe) U/Pu Ref ;
- d_T^{Hom} est la radiotoxicité des déchets par an de la configuration avec transmutation (Sv/GWe.an) U/Pu Hom ;
- t le temps au bout duquel l'électronucléaire est arrêté ;
- T le temps géologique pour lequel on examine les radiotoxicités.

Le numérateur et le dénominateur représentent la totalité des déchets, cœur compris, dans chacun des cas, avec ou sans transmutation des AM, durant un temps t de fonctionnement du nucléaire. La courbe suivante est obtenue (cf fig. 6.28) pour les temps géologiques $T = 1\,000$ ans, $10\,000$ ans et $100\,000$ ans et pour un temps de fonctionnement du nucléaire qui s'échelonne de 0 à $1\,000$ ans.

Remarques préliminaires

¹Facteur $\frac{12}{5}$ pour tenir compte de tous les assemblages du cycle.

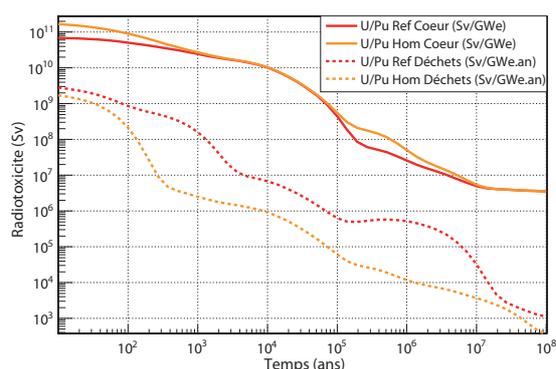


FIG. 6.27: Radiotoxicité du cœur (normalisé) en Sv/GWe et des déchets en Sv/GWe.an dans les cas Ref (rouge) et Hom (orange) pour le cycle U/Pu

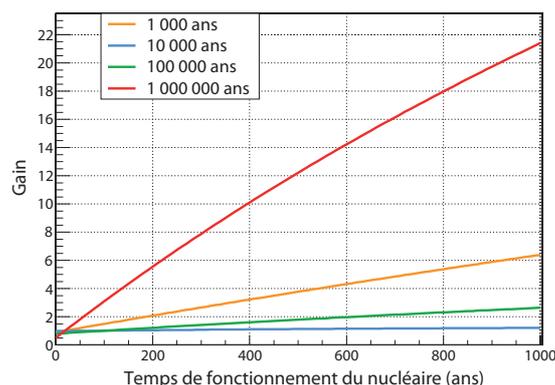


FIG. 6.28: Gain en radiotoxicité avec la transmutation en cycle U/Pu (cœur normalisé)

D'après le tableau 6.5, on constate que les radiotoxicités du cœur sont toujours du même ordre de grandeur dans les cas avec et sans transmutation. La radiotoxicité du cœur en transmutation homogène est toujours de 3 ordres de grandeurs plus grande que celle des déchets. Par conséquent, même au bout de 1000 ans de fonctionnement du nucléaire, c'est toujours la radiotoxicité du cœur en transmutation homogène qui domine celle des déchets cumulés au cours des 1000 ans. C'est donc la radiotoxicité des déchets en cas de référence qui va gouverner la fonction de gain.

Temps géologique (ans)	Radiotoxicité cœur (Sv/GWe)		Radiotoxicité déchets (Sv/GWe.an)	
	Homogène	Référence	Homogène	Référence
1 000	2.72×10^{10}	2.45×10^{10}	2.70×10^6	1.67×10^8
10 000	1.04×10^{10}	1.02×10^{10}	7.33×10^6	1.14×10^7
100 000	5.49×10^8	4.40×10^8	9.82×10^4	1.27×10^6
1 million	5.10×10^7	2.58×10^7	1.39×10^4	1.36×10^6

TAB. 6.5: Valeurs des radiotoxicités du cœur et des déchets en cas de référence et de transmutation homogène pour différents temps géologiques donnés en cycle U/Pu

Pour décrire la fonction gain aux temps géologiques $T = 1\,000$ ans, $T = 10\,000$ ans, $T = 100\,000$ ans et $T = 1$ million d'années, on compare cette fonction pour une durée du cycle électronucléaire $t = 200$ ans.

Sur la figure 6.27, à $T = 1\,000$ ans, l'écart entre la radiotoxicité du cœur et celle des déchets en cas de référence est le plus faible par rapport aux temps $T = 10\,000$ ans et $T = 100\,000$ ans. Cette radiotoxicité importante des déchets, dans le cas de référence, à ce temps géologique, est due à l' ^{241}Am . Ainsi, le numérateur de la fonction gain est plus élevé que le dénominateur, sachant que la radiotoxicité du cœur est quasiment la même

avec et sans transmutation (cf tableau 6.5), et que la radiotoxicité des déchets est 60 fois plus élevée dans le cas de référence que celle des déchets en transmutation homogène. De ce fait, à $t = 200$ ans, le gain est déjà supérieur à 2.

A $T = 10\,000$ ans, il y a trois ordres de grandeur entre la radiotoxicité du cœur et celle des déchets en cas de référence. En revanche, la radiotoxicité du cœur est la même avec et sans transmutation (cf figure 6.27). En outre, il y a moins d'un ordre de grandeur entre la radiotoxicité des déchets entre le cas de référence et le cas avec transmutation. Ainsi, même si le gain est supérieur à 1 au bout de 200 ans de fonctionnement du nucléaire, il reste toujours inférieur à 2, même au bout de 1 000 ans de fonctionnement du nucléaire (cf figure 6.28). La transmutation n'apporte donc rien de significatif à cette période géologique.

A $T = 100\,000$ ans, on a le même type de configuration qu'à $T = 10\,000$ ans, mais l'écart entre les radiotoxicités des déchets est de plus d'un ordre de grandeur (cf tableau 6.5), ce qui conduit à un meilleur gain (cf figure 6.28), mais qui atteint un facteur 2 seulement après 600 ans de fonctionnement du parc, ce qui reste très faible.

A $T = 1$ million d'années, l'écart entre la radiotoxicité du cœur et celle des déchets en cas de référence est beaucoup plus faible (il y a un regain de radiotoxicité des déchets toujours à cause de l' ^{241}Am) : moins de 2 ordres de grandeur (cf figure 6.27). Même si la radiotoxicité du cœur en cas de référence est plus faible que celle du cœur en transmutation homogène (elle est divisée par 2), la radiotoxicité des déchets dans le cas de référence est 100 fois plus élevée (cf tableau 6.5). Au bout de 200 ans de fonctionnement du nucléaire, on a déjà gagné un facteur 5 sur la radiotoxicité grâce à la transmutation à ce temps géologique donné, et on atteint un facteur 20 au bout de 1 000 ans de fonctionnement.

Il est nécessaire de prendre en compte à la fois les radiotoxicités du cœur et des déchets, parce que même si les AM sont soit dans le cœur (transmutation homogène), soit dans les déchets (référence), le Pu est recyclé de la même manière, c'est-à-dire en cœur, dans les deux configurations, et ce sont les isotopes du Pu, et non les AM, qui dominent la radiotoxicité. Cela limite alors l'apport positif de la transmutation, lorsque la « fin de jeu », c'est-à-dire la prise en compte de la gestion de l'inventaire du cœur lors de l'arrêt de la filière, est considérée en plus des déchets. La radiotoxicité du cœur est au minimum deux ordres de grandeur plus grande que celle des déchets. Par conséquent, l'effet d'une radiotoxicité des déchets diminuée dans le cas de transmutation homogène est limité, et les gains sur la transmutation à $T = 1\,000$ ans et $100\,000$ ans sont assez décevants (cf figure 6.28).

Cycle Th/U

Les hypothèses sont les mêmes que pour le cycle U/Pu. Dans chacune des configurations, la radiotoxicité du cœur est en Sv/GWe et celle des déchets en Sv/GWe.an. La radiotoxicité du cœur est normalisée par $\frac{12}{5}$ pour prendre en compte les assemblages en cœur et les assemblages en cours de retraitement. La fonction gain est définie comme à l'équation 6.1. La figure 6.30 (cœur normalisé) est obtenue pour les temps géologiques $T = 1\,000$ ans, $10\,000$ ans, $100\,000$ ans et 1 million d'années et pour un temps de fonction-

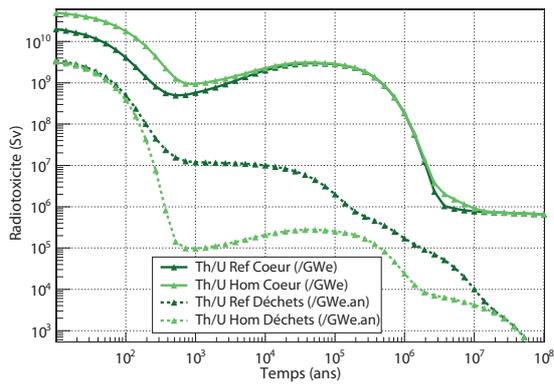


FIG. 6.29: Radiotoxicité du cœur (normalisé) en Sv/GWe et des déchets en Sv/GWe.an dans les cas Ref (vert foncé) et Hom (vert clair) pour le cycle Th/U

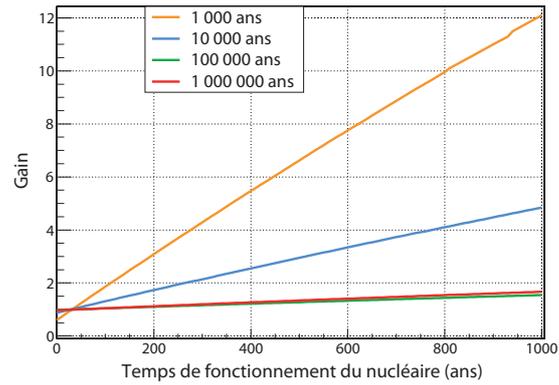


FIG. 6.30: Gain en radiotoxicité avec la transmutation en cycle Th/U (cœur normalisé)

nement du nucléaire qui varie de 0 à 1 000 ans.

Remarques préliminaires

Le gain est supérieur à 1 au plus tard au bout de 50 ans de fonctionnement du nucléaire quelque soit le temps géologique considéré (cf figure 6.30), contre 100 ans pour le cycle U/Pu (cf figure 6.28). Comme pour le cycle U/Pu, la radiotoxicité du cœur en transmutation homogène est toujours au moins de 3 ordres de grandeurs plus grande que celle des déchets. Les radiotoxicités du cœur sont également du même ordre de grandeur.

Temps géologique (ans)	Radiotoxicité cœur (Sv/GWe)		Radiotoxicité déchets (Sv/GWe.an)	
	Homogène	Référence	Homogène	Référence
1000	9.41×10^8	5.70×10^8	9.68×10^4	1.20×10^7
10000	2.27×10^9	1.99×10^9	2.07×10^5	9.99×10^6
100000	2.86×10^9	2.81×10^9	2.54×10^5	2.00×10^6
1 million	1.90×10^8	1.84×10^8	2.42×10^4	1.72×10^5

TAB. 6.6: Valeurs des radiotoxicités du cœur et des déchets en cas de référence et de transmutation homogène pour différents temps géologiques donnés en cycle Th/U

A $T = 1000$ ans, même si la radiotoxicité du cœur en cas de référence est presque deux fois plus faible que celle en cas de transmutation, l'écart entre la radiotoxicité des déchets en cas de référence et celle des déchets en cas de transmutation homogène est supérieur à deux ordres de grandeur (cf figure 6.29). En cas de référence, l'écart entre la radiotoxicité des déchets et celle du cœur est inférieur à 2 ordres de grandeur (cf tableau 6.6). Par

conséquent, le gain à ce temps géologique est déjà d'un facteur 3 au bout de 200 ans de fonctionnement du nucléaire (cf figure 6.30). Cette valeur élevée de la radiotoxicité des déchets en cas de référence à $T = 1\,000$ ans est due au ^{231}Pa qui domine cette période.

A $T = 10\,000$ ans, en cas de référence, l'écart entre la radiotoxicité du cœur et les déchets augmente (cf figure 6.29). La radiotoxicité des déchets en transmutation homogène augmente aussi (à cause de la remontée de l' ^{233}U). Le gain est alors plus faible qu'au temps géologique $T = 1\,000$ ans : au bout de 200 ans de fonctionnement du nucléaire, le gain reste inférieur à 2 (cf figure 6.30).

A $T = 100\,000$ ans et $T = 1$ million d'années, les radiotoxicités du cœur sont quasiment les mêmes dans le cas de référence et celui de transmutation (cf tableau 6.6). L'écart entre la radiotoxicité des déchets et du cœur dans le cas de référence est de 2.5 à 3 ordres de grandeur. Par conséquent, le gain reste inférieur à 2 au bout de 200 ans de fonctionnement du nucléaire (cf figure 6.30). En outre, l'écart entre les radiotoxicités des déchets est faible par rapport aux autres temps géologiques (1000 ans et 10000 ans) : d'une part, le numérateur de la fonction gain diminue, et d'autre part, son dénominateur augmente, et par conséquent, le gain atteint à peine 1 : il n'y a pas d'apport de la transmutation homogène à ces deux temps géologiques, même si le cycle électronucléaire fonctionne pendant 1000 ans (cf figure 6.30). Là encore, l'apport de la transmutation peut apparaître décevant. Mais, on peut noter que sur les périodes de 1000 ou 10000 ans, la transmutation des AM est plus avantageuse en cycle Th/U ; à 100000 ans, elle n'apporte pas grand chose dans les deux cycles ; à 1 million d'années, elle est efficace uniquement pour le cycle U/Pu.

6.3.3 Comparaison du gain inter cycle

Dans ce paragraphe, nous comparons sur le même modèle que précédemment la radiotoxicité globale inter cycle pour une gestion de cœur fixée (avec ou sans transmutation). Pour connaître le gain sur la radiotoxicité obtenu avec un cycle Th/U par rapport à un cycle U/Pu, on calcule le rapport suivant, soit avec les radiotoxicités obtenues avec le cas de référence $g_T^{Ref}(t)$ (6.2), soit avec celles obtenues en transmutation homogène $g_T^{Hom}(t)$ (6.3).

$$g_T^{Ref}(t) = \frac{I_T^{U/PuRef} + d_T^{U/PuRef} * t}{I_T^{Th/URef} + d_T^{Th/URef} * t} \quad (6.2)$$

$$g_T^{Hom}(t) = \frac{I_T^{U/PuHom} + d_T^{U/PuHom} * t}{I_T^{Th/UHom} + d_T^{Th/UHom} * t} \quad (6.3)$$

avec :

- t le temps au bout duquel le cycle électronucléaire est arrêté ;
- T le temps géologique pour lequel on regarde les radiotoxicités ;
- $I_T^{Th/URef}$ est la radiotoxicité du cœur normalisée¹ de la configuration sans transmutation (Sv/GWe) Th/U Ref au temps géologique T ;

¹Facteur $\frac{12}{5}$ pour tenir compte de tous les assemblages du cycle.

- $I_T^{U/PuRef}$ est la radiotoxicité du cœur normalisée¹ de la configuration sans transmutation (Sv/GWe) U/Pu Ref au temps géologique T ;
- $I_T^{Th/UHom}$ est la radiotoxicité du cœur normalisée¹ de la configuration avec transmutation (Sv/GWe) Th/U Hom au temps géologique T ;
- $I_T^{U/PuHom}$ est la radiotoxicité du cœur normalisée¹ de la configuration avec transmutation (Sv/GWe) U/Pu Hom au temps géologique T ;
- $d_T^{Th/URef}$ est la radiotoxicité des déchets par an de la configuration sans transmutation (Sv/GWe.an) Th/U Ref au temps géologique T ;
- $d_T^{U/PuRef}$ est la radiotoxicité des déchets par an de la configuration sans transmutation (Sv/GWe.an) U/Pu Ref au temps géologique T ;
- $d_T^{Th/UHom}$ est la radiotoxicité des déchets par an de la configuration avec transmutation (Sv/GWe.an) Th/U Ref au temps géologique T ;
- $d_T^{U/PuHom}$ est la radiotoxicité des déchets par an de la configuration avec transmutation (Sv/GWe.an) U/Pu Hom au temps géologique T.

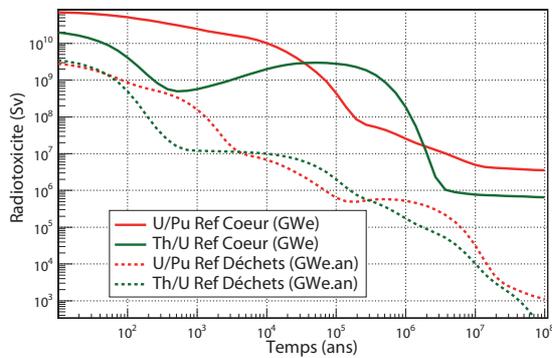


FIG. 6.31: Radiotoxicité du cœur (normalisé) en Sv/GWe et des déchets en Sv/GWe.an dans en cycle Th/U (vert) et U/Pu (orange) sans transmutation

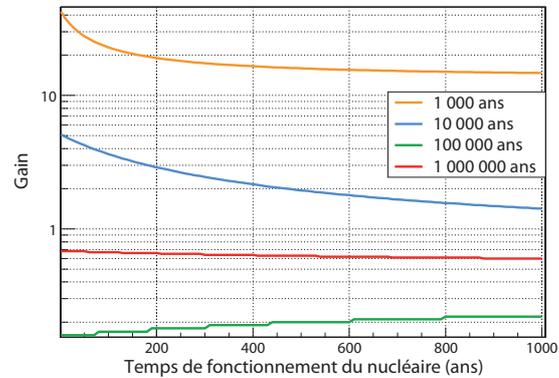


FIG. 6.32: Gain en radiotoxicité en cycle Th/U sans transmutation (cœur normalisé) : $g_T^{Ref}(t)$

Que ce soit avec ou sans transmutation, la radiotoxicité globale est plus faible à $T = 1000$ ans et 10000 ans en cycle Th/U (cf figures 6.34 et 6.32), le gain pouvant atteindre respectivement 29 et 4. Par contre, à $T = 100000$ ans et $T = 1$ million, la radiotoxicité globale du cycle U/Pu, avec ou sans transmutation, est au minimum 4 fois plus faible que celle du cycle Th/U. Cela s'explique par la forte radiotoxicité des isotopes de l'uranium à ce temps (temps de décroissance de ^{234}U : 245 500 ans et de ^{233}U : 159 200 ans), alors qu'à $T = 1000$ ans et 10000 ans, ce sont les isotopes du Pu qui dominent (temps de décroissance du ^{240}Pu : 6 500 ans et du ^{239}Pu : 24 000 ans). Quelque soit la gestion considérée, à $T = 100000$ ans, le gain est inférieur à 0.2 et à $T = 1$ millions d'années, le gain reste inférieur à 0.7, c'est-à-dire que le cycle U/Pu est plus favorable.

Ces résultats confirment que l'avantage du cycle Th/U en terme de déchets est significatif sur les 10 000 premières années, période liée au risque potentiel, et sur laquelle il

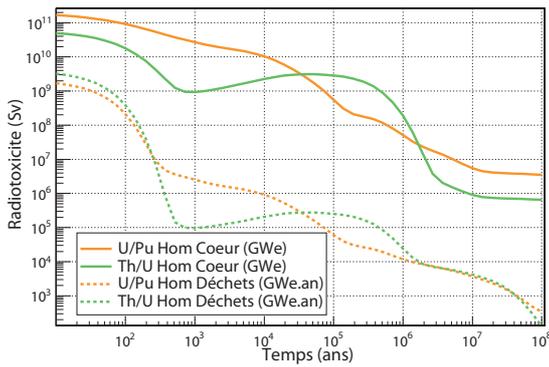


FIG. 6.33: Radiotoxicité du cœur (normalisée) en Sv/GWe et des déchets en Sv/GWe.an dans un cycle Th/U (vert) et U/Pu (orange) en transmutation homogène

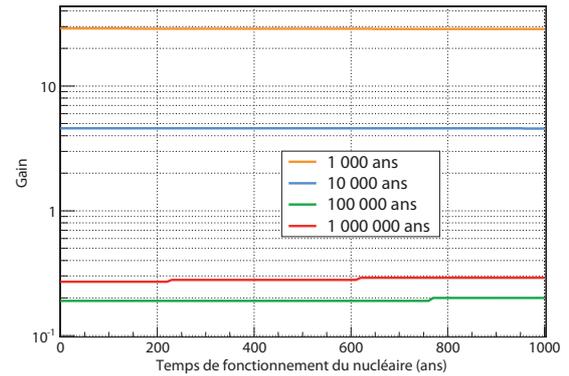


FIG. 6.34: Gain en radiotoxicité en cycle Th/U avec transmutation (cœur normalisé) : $g_T^{Hom}(t)$

est le plus avantageux de réduire la radiotoxicité, encore très élevée.

6.3.4 Conclusion

Si l'on envisage d'avoir recours de manière massive à l'énergie nucléaire, sur une période de temps considérable, la transmutation apparaît comme un atout essentiel pour réduire la masse, la radiotoxicité et la chaleur des déchets (et de ce fait, diminuer la dimension des sites de stockage).

Mais, si l'on considère l'arrêt de la filière, et par conséquent la radiotoxicité du cœur en plus de celle des déchets, le fait de transmuter ne permet pas d'obtenir un gain considérable sur la radiotoxicité totale (cœur et déchets cumulés). Lorsque l'on transmute, le cycle Th/U permet de réduire la radiotoxicité globale (cœur et déchets cumulés) de l'ordre d'un facteur 5 à 30, sur la période [1 000 ans ; 10 000 ans] après le stockage par rapport au cycle U/Pu. Au-delà, le cycle Th/U n'est pas si avantageux, notamment à cause de l'inventaire d' ^{233}U important en cœur et de sa radiotoxicité élevée sur le long terme.

Enfin, il faut noter qu'en « fin de jeu », la radiotoxicité de l'élément fissile du cycle (Pu ou U) est très pénalisante, comme cela a été montré sur les calculs de gain précédents, ce qui limite l'apport de la transmutation des AM. Or, ces éléments fissiles (Pu ou U, selon le cycle) pourraient être incinérés dès lors que la décision de sortir de la filière est prise. Des RNR-Na en mode incinérateur de Pu, tels que ceux définis dans le cadre du projet CAPRA (Consommation Accrue de Plutonium dans les réacteurs RAPides) pourraient être utilisés : des taux de consommation du Pu de l'ordre de 75 kg/TWhe pourraient être obtenus avec des cœurs ayant une teneur de 45 % en Pu. Du fait du caractère réversible des réacteurs dans le projet CAPRA (cf Annexe E), les mêmes RNR-Na pourraient être utilisés moyennant quelques modifications. L'incinération des éléments fissiles peut être relativement efficace, en tout cas, pendant quelques dizaines d'années (au-delà, les éléments

non fissiles empoisonnent le combustible et limitent le taux d'incinération). Les résultats obtenus ici montrent qu'il est maintenant très important d'envisager une incinération de la matière fissile en « fin de jeu », afin de valoriser pleinement la transmutation des AM. Des études préliminaires [63] ont déjà été menées, et montrent que l'inventaire en fissile pourrait être réduit d'un facteur 3 à 4 environ, pendant la phase de décroissance d'un parc RNR U/Pu à l'équilibre, dès lors que la décision de sortie de la filière est prise.

Conclusion et perspectives

Dans ce mémoire, nous avons, dans un premier temps, validé de nouvelles méthodes d'évolution utilisées dans le code MURE pour les calculs cœur, qui permettent de réduire leur temps d'exécution (qui est l'un des points faibles des codes Monte Carlo). En outre, nous avons également quantifié les erreurs statistiques engendrées par ces calculs probabilistes, ainsi que leur accumulation. De plus, une méthode pour calculer la fraction effective de neutrons retardés β_{eff} en Monte Carlo a été mise en place.

Pour l'étude de la régénération et de la transmutation, un rechargement du combustible en cœur de type OUT-IN a été implémenté dans MURE. Il permet de gérer automatiquement l'intégralité du cycle, en prenant en compte non seulement l'évolution du combustible durant l'irradiation, mais aussi pendant son refroidissement et son retraitement. Il suffit alors de fixer la valeur de paramètres pré-définis, tels que le temps d'irradiation, le temps de refroidissement, le temps de fabrication ou les noyaux à remettre en cœur. Ce type de rechargement, même s'il a un certain nombre de limites, a le mérite d'assurer le même burn-up à tous les assemblages en cœur. Des améliorations sont encore à réaliser comme un découpage axial du combustible lors du rechargement, la prise en compte du temps d'arrêt du réacteur lors du déchargement du combustible usé, la possibilité de gérer deux zones d'enrichissement distinctes, ou bien encore la réalisation d'un rechargement plus homogène prenant en compte l'appâtissement de la nappe de puissance et limitant les fuites radiales de neutrons vers la cuve.

Dans un second temps, des évolutions cœur de RNR U/Pu et Th/U ont été calculées jusqu'à atteindre l'équilibre du vecteur isotopique de l'élément fissile. Nous avons tenté de déterminer non seulement les avantages de la transmutation pour un cycle donné, mais aussi ceux apportés par l'utilisation d'un cycle Th/U plutôt que U/Pu, en termes de radiotoxicité et de chaleur, mais aussi de sûreté, dans un RNR. En effet, une configuration de RNR-Na à combustible Th/U (sans transmutation) a été identifiée avec une réactivité de vidange négative au démarrage et inférieure à 1 \$ à l'équilibre. En outre, si l'on envisage d'avoir recours de manière massive à l'énergie nucléaire sur une période de temps considérable, la transmutation apparaît comme un atout essentiel pour réduire la masse, la radiotoxicité et la chaleur des déchets. Pour cela, nous avons quantifié la radiotoxicité et la chaleur des déchets issus de chaque configuration, U/Pu Ref et U/Pu Hom, d'une part, et Th/U Ref et Th/U Hom d'autre part, et nous les avons comparées selon le cycle choisi et selon la gestion envisagée.

La comparaison des cycles U/Pu et Th/U pour la radiotoxicité des déchets ne permet pas de dégager véritablement des avantages clairs pour un cycle ou l'autre. Cependant, les périodes considérées ne sont pas équivalentes concernant la gestion des risques, et le cycle Th/U offre le bénéfice de réduire la radiotoxicité durant des périodes où elle est la plus élevée, notamment entre 200 ans et 20 000 ans. En 1 million d'années, la radiotoxicité est de toute façon réduite d'un facteur 1 000 dans le cas de référence et de 100 000 dans le cas de transmutation, du fait de la décroissance naturelle. Nous avons donc mis en évidence et quantifié précisément l'avantage du cycle Th/U pour ce qui est du risque potentiel associé au stockage des déchets radioactifs.

Concernant la chaleur dégagée, le cycle Th/U apporte un atout certain : en gestion de référence, dans laquelle les AM sont envoyés aux déchets à chaque cycle, la chaleur est réduite d'un facteur 2 au bout de 100 ans et d'un facteur 20 au bout de 1000 ans. C'est un point très positif pour le cycle Th/U, car la chaleur résiduelle est un paramètre essentiel pour dimensionner les sites de stockage des déchets. Néanmoins, si la transmutation est mise en oeuvre, cet avantage, du cycle Th/U sur le cycle U/Pu, n'apparaît qu'après 200 ans.

Selon le mode de gestion du cœur, sans surprise, la transmutation homogène, qu'elle soit mise en oeuvre en cycle U/Pu ou Th/U, permet de réduire significativement la radiotoxicité des déchets, de facteurs variables suivant la période de temps considéré. Toutefois, elle se fait au détriment d'une augmentation importante de l'inventaire des AM en cœur, qui peut conduire à des difficultés techniques en terme de manipulation et de retraitement du combustible usé, et nécessiter la construction de nouvelles usines capables de recevoir des quantités non négligeables d'AM.

L'augmentation des AM en cœur en transmutation homogène ne conduit pas à une hausse significative de la radiotoxicité du cœur, car c'est l'élément fissile qui domine cette radiotoxicité dans les réacteurs rapides, du fait de son inventaire élevé. Si l'on considère la « fin de jeu », c'est-à-dire l'arrêt de la filière, l'inventaire du cœur du réacteur devient alors un déchet. En prenant alors en compte à la fois la radiotoxicité des déchets cumulés produits chaque année jusqu'à l'arrêt de la filière et la radiotoxicité du cœur, le gain apporté par la transmutation par rapport au cas de référence n'est pas considérable. Ce gain est aussi calculé pour une gestion donnée afin de déterminer le cycle le plus avantageux. Il en résulte qu'en transmutation homogène, le cycle Th/U, par rapport au cycle U/Pu, permet de réduire la radiotoxicité globale (cœur et déchets cumulés) de l'ordre d'un facteur 5 à 30, entre 1 000 ans et 10 000 ans après le stockage. Au-delà, le cycle Th/U n'est pas si favorable, à cause notamment d'une quantité importante d'²³³U en cœur, qui a une radiotoxicité élevée sur le long terme.

Enfin, il est à noter qu'en « fin de jeu », la radiotoxicité de l'élément fissile du cycle (Pu ou U) est très pénalisante, ce qui limite l'apport de la transmutation des AM. Or, ces éléments fissiles (Pu ou U, selon le cycle) pourraient être incinérés dès lors que la décision de sortir de la filière est prise. Les mêmes RNR-Na, que ceux utilisés dans cette étude en mode régénérateur, pourraient être utilisés, moyennant quelques modifications, en mode incinérateur de Pu (ou U), tels que ceux définis dans le cadre du projet CAPRA. Les résultats présentés dans ce mémoire montrent qu'il est maintenant très important d'envisager

sager une incinération de la matière fissile en « fin de jeu », afin de valoriser pleinement la transmutation des AM. Des études préliminaires [63] ont montré que l'inventaire fissile pourrait être réduit d'un facteur 3 à 4 environ, pendant la phase de décroissance d'un parc RNR U/Pu à l'équilibre, dès lors que la décision d'arrêt de la filière est prise.

ANNEXES

Annexe A

Détails des zones géographiques

L'Amérique du Nord comprend les Etats-Unis, le Canada et le Mexique.

L'Amérique du Sud et Centrale comprend en plus les Caraïbes et Porto Rico.

L'Europe comprend tous les pays de l'Organisation de coopération et de développement économiques (OCDE)¹ [64], plus l'Albanie, la Bosnie-Herzégovine, la Bulgarie, la Croatie, Chypre, les anciens pays de la République Yougoslave de Macédoine, Gibraltar, Malte, la Roumanie, la Serbie, le Monténégro et la Slovaquie.

L'Eurasie comprend tous les anciens pays de l'Union Soviétique ²[1].

Le Moyen-Orient est constitué de la Péninsule Arabique, de l'Iran, de l'Iraq, d'Israël, de la Jordanie, du Liban et de la Syrie.

L'Afrique est subdivisée en trois parties :

- l'Afrique du Nord : les territoires africains du bassin méditerranéen, de l'Égypte à l'Ouest du Sahara ;
- l'Afrique de l'Ouest : les territoires de la côte ouest de l'Afrique, de la Mauritanie à l'Angola, incluant le Cap Vert et le Tchad ;
- l'Afrique de l'Est et Centrale : les territoires de la côte est de l'Afrique, du Soudan à l'Afrique du Sud, et incluant le Botswana, Madagascar, le Malawi, la Namibie, l'Ouganda, la Zambie et le Zimbabwe.

L'Asie du Pacifique comprend les pays suivants : le Brunei, le Cambodge, la Chine, Hong Kong, l'Indonésie, le Japon, le Laos, la Malaisie, la Mongolie, la Corée du Nord, les Philippines, Singapour, l'Asie du Sud (Afghanistan, Bangladesh, Inde, Birmanie, Nepal, Pakistan, Sri Lanka), la Corée du Sud, Taiwan, la Thaïlande, le Vietnam, l'Australie, la Nouvelle Zélande, la Papouasie-Nouvelle-Guinée, la Guinée.

L'Union Européenne regroupe l'Autriche, la Belgique, la Bulgarie, Chypre, la République Tchèque, le Danemark, l'Estonie, la Finlande, la France, l'Allemagne, la Grèce, l'Hongrie,

¹ Allemagne, Australie, Autriche, Belgique, Canada, Chili, Corée du Sud, Danemark, Espagne, Etats-Unis, Finlande, France, Grèce, Hongrie, Irlande, Islande, Italie, Japon, Luxembourg, Mexique, Norvège, Nouvelle-Zélande, Pays-Bas, Pologne, Portugal, Royaume-Uni, République Slovaque, République Tchèque, Slovaquie, Suisse, Suède, Turquie.

² L'Arménie, l'Azerbaïdjan, la Biélorussie, l'Estonie, la Géorgie, le Kazakhstan, le Kirghizistan, la Lettonie, la Lituanie, la Moldavie, la Russie, le Tadjikistan, le Turkménistan, l'Ukraine et l'Ouzbékistan.

l'Irlande, l'Italie, la Lettonie, la Lituanie, le Luxembourg, Malte, les Pays-Bas, la Pologne, le Portugal, la Roumanie, la Slovaquie, la Slovénie, l'Espagne, la Suisse et le Royaume-Uni.

Annexe B

Production d'électricité

Electricité (TWh/an)	France	Allemagne	Italie	Suède	UK	Finlande
Charbon	28.2	310.6	49.7	1.7	138.3	22.0
Pétrole	6.2	11.1	35.4	1.1	4.7	0.5
Gaz	22.0	72.9	172.6	0.8	164.5	10.5
Biomasse	2.0	21.8	3.7	8.7	8.1	9.7
Déchets	3.5	8.9	3.2	1.9	3.3	0.4
Nucléaire	439.7	140.5	0.0	67.0	63.0	23.4
Hydro	63.7	28.5	38.5	66.2	8.9	14.2
Géothermie	0.0	0.0	5.6	0.0	0.0	0.0
Photovoltaïque	0.0	3.1	0.0	0.0	0.0	0.0
Eolien	4.1	39.7	4.0	1.4	5.3	0.2
Autres sources	0.5	0.0	1.0	0.0	0.0	0.4
Production totale	569.8	637.1	313.9	148.8	396.1	81.2

TAB. B.1: Production d'électricité en 2007 pour quelques pays européens [6])

Electricité (TWh/an)	Etats-Unis	Canada	Japon	Chine	Inde
Charbon	2118.5	115.7	310.8	2656.4	549.1
Pétrole	78.1	9.8	156.3	33.7	33.3
Gaz	915.2	40.7	289.9	30.5	66.7
Biomasse	49.5	8.3	15.8	2.3	2.0
Déchets	22.1	0.2	7.3	0	0
Nucléaire	836.6	93.5	263.8	62.1	16.8
Hydro	275.5	368.5	84.2	485.3	123.8
Géothermie	16.8	0.0	3.0	0	0
Photovoltaïque	0.0	0.0	0.0	0.1	0.0
Eolien	34.6	3.0	2.6	8.8	11.7
Autres sources	1.8	0.0	0.0	0	0
Production totale	4348.9	639.8	1133.7	3279.2	803.4

TAB. B.2: Production d'électricité en 2007 pour quelques pays non européens [6]

Annexe C

Loi du 28 juin 2006

La loi du 28 juin 2006 relative à la gestion durable des matières et des déchets radioactifs complète la loi du 30 décembre 1991 relative aux recherches sur la gestion des déchets radioactifs dite loi « Bataille ». Parmi les principales dispositions, la loi :

- prévoit l'établissement d'un Plan national de gestion des matières et des déchets radioactifs, mis à jour tous les 3 ans ;
- fixe le nouveau calendrier pour les recherches sur les déchets de haute activité et de moyenne activité à vie longue (HA-MVL). La loi précise que les trois voies de recherche prévues par la loi « Bataille » sont complémentaires mais indique que le stockage réversible en formation géologique profonde est la solution de référence. La loi prévoit qu'une nouvelle loi devra intervenir au plus tard en 2015 pour définir les conditions de la réversibilité ;
- prévoit l'établissement de l'inventaire tous les 3 ans des matières et déchets radioactifs présents en France ;
- définit de façon très précise les obligations qui vont s'exercer sur les exploitants nucléaires en matière de provisions pour le financement de la gestion des déchets radioactifs et du démantèlement. Les producteurs de déchets devront eux-mêmes provisionner dès maintenant les sommes nécessaires aux financements prévus pour le long terme ;
- prévoit également un renforcement des procédures d'évaluation et de l'information du public et de la concertation. C'est après examen par l'ASN, débat et enquête publics, et avis des collectivités locales que la construction d'un stockage sur un site précis pourra être autorisée, à l'horizon 2015 ;
- accroît le rôle de l'ANDRA en lui donnant notamment une mission de service public pour la prise en charge des déchets ;
- interdit le stockage de façon définitive sur le sol français des déchets étrangers en prévoyant l'adoption de règles précisant les conditions de retour des déchets issus du traitement des combustibles usés ou des déchets provenant de l'étranger traités en France.

Annexe D

Valeurs du nombre des neutrons prompts ν_p , retardés ν_d et totaux ν_{tot} et des β

Noyaux	ν_d		ν_{tot}		β (pcm)	
	ENDFB7	Réf. [41]	ENDFB7	Réf. [41]	ENDFB7	Réf. [41]
^{232}Th	5.47×10^{-2}	5.33×10^{-2}	2.10	2.34	2599	2270
^{233}U	7.40×10^{-3}	7.31×10^{-3}	2.51	2.52	295	290
^{235}U	1.67×10^{-2}	1.67×10^{-2}	2.52	2.45	663	680
^{238}U	4.40×10^{-2}	4.39×10^{-2}	2.49	2.77	1766	1580
^{239}Pu	6.45×10^{-3}	6.30×10^{-3}	3.00	2.93	215	2185
^{240}Pu	0.81×10^{-2}	0.95×10^{-2}	3.01	3.07	270	310
^{241}Pu	1.62×10^{-2}	1.52×10^{-2}	2.95	2.95	550	515
^{242}Pu	1.97×10^{-2}	2.21×10^{-2}	2.81	3.05	701	720

TAB. D.1: Comparaison des valeurs du nombre de neutrons retardés produits par fission (ν_d), du nombre de neutrons produits par fission (ν_{tot}) et des β issues de ENDFB7 et de la référence [41]

Noyaux	ν_p	ν_{tot}	ν_d	β (pcm)
^{234}U	2.56	2.57	1.27×10^{-2}	493
^{235}U	2.44	2.46	1.63×10^{-2}	662
^{236}U	2.63	2.65	2.27×10^{-2}	858
^{238}U	2.72	2.77	4.31×10^{-2}	1558
^{237}Np	2.86	2.87	1.06×10^{-2}	368
^{238}Pu	3.00	3.00	4.03×10^{-3}	134
^{239}Pu	2.94	2.94	6.38×10^{-3}	217
^{240}Pu	3.01	3.02	8.75×10^{-3}	290
^{241}Pu	2.95	2.97	1.61×10^{-2}	544
^{242}Pu	3.06	3.08	1.93×10^{-2}	628
^{241}Am	3.38	3.38	4.10×10^{-3}	121
^{242}Am	3.30	3.31	7.72×10^{-3}	233
^{243}Am	3.55	3.56	7.73×10^{-3}	217
^{243}Cm	3.46	3.47	2.95×10^{-3}	85
^{244}Cm	3.51	3.51	4.15×10^{-3}	118
^{245}Cm	3.61	3.62	6.37×10^{-3}	176

TAB. D.2: Valeurs du nombre de neutrons prompts produits par fission (ν_p), du nombre de neutrons produits par fission (ν_{tot}), du nombre de neutrons retardés produits par fission (ν_d) et des β issues du calcul MCNP

Noyaux	ν_d	ν_{tot}	β (pcm)
²²⁸ Th	1.12×10^{-2}	2.02	552
²²⁹ Th	1.62×10^{-2}	2.09	777
²³⁰ Th	2.36×10^{-2}	2.07	1139
²³² Th	5.47×10^{-2}	2.10	2599
²³³ Th	7.44×10^{-2}	2.06	3604
²³⁴ Th	1.10×10^{-1}	2.21	4960
²³¹ Pa	1.11×10^{-2}	2.24	495
²³³ Pa	2.28×10^{-2}	2.16	1055
²³² U	4.37×10^{-3}	3.13	140
²³³ U	7.40×10^{-3}	2.51	295
²³⁴ U	1.29×10^{-2}	2.36	545
²³⁵ U	1.67×10^{-2}	2.52	663
²³⁶ U	2.32×10^{-2}	2.46	941
²³⁸ U	4.40×10^{-2}	2.49	1766
²³⁵ Np	4.85×10^{-3}	2.66	182
²³⁶ Np	7.05×10^{-3}	3.12	226
²³⁷ Np	1.08×10^{-2}	2.64	410
²³⁸ Pu	4.18×10^{-3}	2.90	144
²³⁹ Pu	6.45×10^{-3}	3.00	215
²⁴⁰ Pu	0.81×10^{-2}	3.01	270
²⁴¹ Pu	1.62×10^{-2}	2.95	550
²⁴² Pu	1.97×10^{-2}	2.81	701
²⁴⁴ Pu	3.00×10^{-2}	2.82	1064
²⁴¹ Am	4.27×10^{-3}	3.11	137
^{242*} Am	7.80×10^{-3}	3.27	238
^{242*} Am	6.50×10^{-3}	3.27	199
²⁴³ Am	7.95×10^{-3}	3.38	235
²⁴² Cm	1.36×10^{-3}	3.44	40
²⁴³ Cm	3.01×10^{-3}	3.43	88
²⁴⁴ Cm	4.35×10^{-3}	3.24	134
²⁴⁵ Cm	6.40×10^{-3}	3.60	178
²⁴⁸ Cm	1.96×10^{-2}	3.13	626
²⁵⁰ Cm	4.40×10^{-2}	3.40	1295
²⁴⁷ Bk	4.20×10^{-3}	3.51	120
²⁴⁹ Bk	8.90×10^{-3}	3.35	266

TAB. D.3: Valeurs du nombre de neutrons retardés produits par fission (ν_d), du nombre de neutrons produits par fission (ν_{tot}) et des β issues de ENDFB7

Annexe E

Le projet CAPRA

E.1 Introduction [38]

Le programme CAPRA-CADRA (consommation accrue de plutonium dans les (réacteurs) rapides et consommation accrue des déchets dans les réacteurs rapides), lancé en mars 1993, est destiné à démontrer, d'une part, la faisabilité d'un RNR-Na basé sur le concept de l'EFR, qui soit optimisé pour consommer du plutonium (Pu), même de qualité dégradée, et d'autre part, qui soit capable de détruire des AM et des PF-VL, dans ces mêmes réacteurs. En 1999, l'objectif a été élargi à différents types de réacteurs et les aspects brûleur de Pu et transmutation des AM et des PF-VL ont été séparés [66]. Trois objectifs sont donc à atteindre :

- une consommation accrue de Pu : de l'ordre de 80 kg/TWhe pour un réacteur à combustible oxyde (ce qui équivaut à 800 kg de Pu par an pour un réacteur de 1500 MWe) ;
- la destruction des AM : le programme SPIN recommande la transmutation en RNR, et plus particulièrement, le recyclage du neptunium (Np) dans le combustible et le recyclage de l'américium (Am) dans des cibles placées en périphérie du cœur, en remplacement des traditionnelles couvertures fertiles (depuis, la transmutation est plutôt considérée en mode homogène) ;
- une possibilité de réversibilité : nécessité de compatibilité des technologies pour reconfigurer les brûleurs en surgénérateurs.

E.2 Choix de conception

Pour permettre un retour vers la surgénération, le fluide réfrigérant reste le sodium.

Dans un premier temps, les couvertures fertiles, axiales et radiales, qui ont pour rôle dans les RNR conventionnels de régénérer le Pu, sont supprimées. Le cœur peut éliminer le Pu mais à un niveau relativement faible, de l'ordre de 15 kg/TWhe. Il faut donc mettre en oeuvre une conception spécifique pour obtenir un niveau de consommation élevée. La consommation de Pu dans un MOX provient de deux effets antagonistes : sa destruction

par fission ou par capture et sa production à partir de ^{238}U . Par conséquent, pour accroître la consommation de Pu, il faut réduire la part de ^{238}U dans le combustible, c'est-à-dire augmenter la teneur en Pu. Pour atteindre cette consommation accrue, on peut utiliser :

- un combustible oxyde à condition d'augmenter la teneur en Pu, du type combustible MOX avec une teneur en Pu de 40 à 45 % maximum pour pouvoir permettre le retraitement du combustible par procédé PUREX : un taux de consommation du Pu de 75 kg/TWh peut alors être envisagé [67] ;
- un combustible novateur sans uranium pour bénéficier du plus haut niveau possible de consommation du Pu, à savoir 110 kg/TWh [67, 68].

La faisabilité de la première option a déjà été démontrée, alors que pour la seconde, des pistes sont à l'étude : un bon candidat semble être un combustible à base de nitrure, PuN, qui est caractérisé par une excellente conductivité thermique et un point de fusion élevé [67].

Concernant les structures, dans la mesure où l'on conserve le même fluide réfrigérant et si le MOX à haute teneur en Pu est choisi comme combustible, alors les matériaux de structure des surgénérateurs sont adaptés à un réacteur type CAPRA.

E.3 Description d'un cœur sous générateur [70]

E.3.1 Inventaire et description géométrique

Les études CAPRA portent sur un cœur de forte puissance qui puisse être intégré dans la chaudière EFR. L'obtention d'un fort enrichissement en Pu en même temps qu'un bilan neutronique équilibré a conduit à une réduction considérable de l'inventaire de combustible à l'intérieur d'un volume de cœur donné (démarche de dilution). Pour un combustible oxyde, on passe de 40 t de combustible pour un réacteur conventionnel à 20-25 t pour un brûleur de référence (type CAPRA 4/94), ayant une teneur en Pu de 45 %, de qualité isotopique dégradée (Pu recyclé deux fois en REP MOX) : dans les deux cas, le combustible contient 9 à 10 t de Pu [67]. La diminution par deux de l'inventaire en combustible conduit à une réduction du temps de séjour du combustible en cœur, ce qui peut entraîner des conditions défavorables économiquement parlant. Trois niveaux de réduction de l'inventaire de combustible sont possibles :

- une pastille combustible de petit diamètre avec un grand trou central ;
- un assemblage combustible hétérogène contenant des aiguilles vides de combustible ;
- un cœur hétérogène comportant des assemblages diluants.

La particularité de l'assemblage combustible CAPRA est de renfermer un très grand nombre d'aiguilles (469 contre 331 pour un assemblage EFR), divisées en aiguilles combustibles (336) et en aiguilles vides (133). Ces dernières contiennent un matériau inerte (par exemple, MgAl_2O_4), ce qui permet de diminuer les conséquences d'éventuels accidents de fusion et de minimiser les risques de recriticité liés au fort enrichissement. Les pastilles d'oxyde sont de géométrie annulaire avec un large trou central. Les aiguilles sont de petit diamètre de sorte que le faisceau d'aiguilles occupe un volume équivalent au volume de

faisceau d'aiguilles EFR, malgré un plus grand nombre d'aiguilles.

L'assemblage diluant comporte un faisceau de 52 aiguilles, de grand diamètre, vides de tout matériau. Les assemblages diluants permettent de réduire l'effet de vidange du sodium et d'obtenir un meilleur aplatissement de la nappe de puissance. Ces assemblages sont également utilisés pour la gestion de la réactivité.

Il es à noter que des Pu de qualité variée peuvent être utilisés en effectuant quelques adaptations mineures sur la conception de l'assemblage combustible de la version de référence 4/94.

E.3.2 Réversibilité

L'intégration d'un cœur CAPRA dans la chaudière d'un EFR ne pose pas de difficultés majeures : quelques adaptations sont nécessaires à cause de la légère réduction du pas de l'assemblage. De plus, il a été démontré que le concept CAPRA 4/94 peut retourner à un concept surgénérateur (version compact de l'EFR), avec des pénalités très limitées sur la performance de surgénération et le temps de séjour du combustible.

E.4 Conclusion

La conception CAPRA permet une consommation de Pu élevée (74 kg/TWhe). Ce cœur se caractérise également par des effets de vidange du sodium et Doppler à un niveau acceptable. Pour le parc électronucléaire français et dans l'hypothèse d'un premier recyclage de Pu en REP (MOX), il faudrait un RNR de type CAPRA pour trois à quatre REP, pour parvenir à stabiliser le stock de Pu. Dans le cadre d'un déploiement de RNR-Na, le concept CAPRA, de par sa réversibilité, pourrait jouer le rôle d'incinérateur de Pu en « fin de jeu », comme évoqué dans le paragraphe 6.3.4 du Chapitre 6.

Annexe F

Sections efficaces par cycle et par gestion

Barns Noyaux	$\sigma_{fission}$ à $t_{\text{éq}}$		$\sigma_{capture}$ à $t_{\text{éq}}$	
	U/Pu Ref	U/Pu Hom	U/Pu Ref	U/Pu Hom
^{238}U	0.0442101	0.0447934	0.288319	0.285553
^{238}Pu	1.10778	1.12464	0.775305	0.772579
^{239}Pu	1.83241	1.822	0.533186	0.521248
^{240}Pu	0.376806	0.379444	0.539077	0.531304
^{241}Pu	2.7029	2.67935	0.487766	0.479788
^{242}Pu	0.25987	0.262916	0.48415	0.476152
^{241}Am	0.30272	0.264438	2.14423	1.83955
^{243}Am	0.26872	0.204562	2.1218	1.59732
^{244}Cm	0.611762	0.440087	1.08031	0.772901
^{237}Np	0.446775	0.335935	2.26961	1.68952

TAB. F.1: RNR U/Pu Ref et Hom - Sections efficaces de fission et de capture à l'équilibre

Barns	$\sigma_{fission}$ à $t_{\text{éq}}$		$\sigma_{capture}$ à $t_{\text{éq}}$	
	Th/U Ref	Th/U Hom	Th/U Ref	Th/U Hom
^{232}Th	0.0100151	0.0100201	0.322336	0.320952
^{231}Pa	0.261623	0.229587	1.82913	1.54138
^{233}Pa	0.0449405	0.0451686	1.84459	1.84565
^{237}Np	0.514537	0.434097	2.00838	1.66827
^{238}Pu	1.63815	1.32898	0.957881	0.767784
^{232}U	2.02284	2.05412	0.606385	0.614781
^{233}U	2.90217	2.89806	0.341791	0.340802
^{234}U	0.403235	0.403884	0.487124	0.484877
^{235}U	2.08046	2.07669	0.57289	0.570407
^{236}U	0.128135	0.128294	0.457995	0.456866

TAB. F.2: RNR Th/U Ref et Hom - Sections efficaces de fission et de capture à l'équilibre

Annexe G

Pertes de réactivité par cycle

Gestion	Cycle U/Pu (pcm)	Cycle Th/U (pcm)
Référence	-673	-1415
Homogène	-529	-1384
Hétérogène	-519	/

TAB. G.1: Pertes de réactivité en pcm

Annexe H

Facteurs de dose et de chaleur

Dans les tableaux suivants sont consignées les valeurs des facteurs de dose et de chaleur utilisées dans MURE.

ZZZAAAI	W/Ci	Sv/Bq
380900	1.16×10^{-3}	2.80×10^{-8}
430990	5.01×10^{-4}	7.80×10^{-10}
531290	4.77×10^{-4}	1.10×10^{-7}
551350	3.32×10^{-4}	2.00×10^{-9}
551370	1.01×10^{-3}	1.30×10^{-8}
340790	3.13×10^{-4}	0
400930	2.90×10^{-4}	0
461070	5.50×10^{-5}	0
501260	1.08×10^{-3}	0
621510	7.41×10^{-4}	0
812060	3.19×10^{-3}	0
812070	2.94×10^{-3}	0
812080	2.35×10^{-2}	0
812090	1.60×10^{-2}	0
812100	1.69×10^{-2}	0
822070	9.68×10^{-3}	0
822090	1.17×10^{-3}	5.70×10^{-11}
822100	2.03×10^{-4}	6.80×10^{-7}
822110	3.08×10^{-3}	1.80×10^{-10}
822120	1.90×10^{-3}	5.90×10^{-9}
822140	3.32×10^{-3}	1.40×10^{-10}
832100	2.31×10^{-3}	1.30×10^{-9}

ZZZAAAI	W/Ci	Sv/Bq
832110	3.92×10^{-2}	0
832120	1.65×10^{-2}	2.60×10^{-10}
832130	3.95×10^{-3}	2.00×10^{-10}
832140	7.53×10^{-3}	1.10×10^{-10}
832150	4.74×10^{-3}	0
842100	3.14×10^{-3}	2.40×10^{-7}
842110	4.41×10^{-2}	0
842120	5.70×10^{-2}	0
842130	4.96×10^{-2}	0
842140	4.56×10^{-2}	0
842150	4.38×10^{-2}	0
842160	4.02×10^{-2}	0
842180	1.00×10^{-2}	0
852170	4.19×10^{-2}	0
852180	4.00×10^{-2}	0
852190	3.62×10^{-2}	0
862190	4.08×10^{-2}	0
862200	3.73×10^{-2}	0
862220	3.26×10^{-2}	0
872210	3.79×10^{-2}	0
872230	2.85×10^{-3}	2.30×10^{-9}
882230	3.50×10^{-2}	1.00×10^{-7}

TAB. H.1: Facteur de chaleur en Watt par Curie et facteur de dose en Sievert par Becquerel

ZZZAAAI	W/Ci	Sv/Bq	ZZZAAAI	W/Ci	Sv/Bq
882240	3.37×10^{-2}	6.50×10^{-8}	932380	6.52×10^{-3}	9.10×10^{-10}
882250	7.08×10^{-4}	9.60×10^{-8}	932390	2.53×10^{-3}	8.00×10^{-10}
882260	2.84×10^{-2}	2.80×10^{-7}	932400	9.53×10^{-3}	8.20×10^{-11}
882280	6.88×10^{-5}	6.70×10^{-7}	942360	3.42×10^{-2}	8.60×10^{-8}
892250	3.43×10^{-2}	2.40×10^{-8}	942370	0	1.00×10^{-10}
892270	4.74×10^{-4}	1.10×10^{-6}	942380	3.26×10^{-2}	2.30×10^{-7}
892280	8.04×10^{-3}	4.30×10^{-10}	942390	3.02×10^{-2}	2.50×10^{-7}
902270	3.60×10^{-2}	8.90×10^{-9}	942400	3.06×10^{-2}	2.50×10^{-7}
902280	3.21×10^{-2}	7.00×10^{-8}	942410	7.20×10^{-5}	4.70×10^{-9}
902290	2.90×10^{-2}	4.80×10^{-7}	942420	2.90×10^{-2}	2.40×10^{-7}
902300	2.77×10^{-2}	2.10×10^{-7}	942430	1.02×10^{-3}	8.50×10^{-11}
902310	1.21×10^{-3}	3.40×10^{-10}	942440	2.71×10^{-2}	2.40×10^{-7}
902320	2.38×10^{-2}	2.30×10^{-7}	952410	3.28×10^{-2}	2.00×10^{-7}
902340	1.49×10^{-4}	3.40×10^{-9}	952420	1.16×10^{-3}	3.00×10^{-10}
912310	2.97×10^{-2}	7.10×10^{-7}	952430	3.15×10^{-2}	2.00×10^{-7}
912320	6.59×10^{-3}	7.20×10^{-10}	952440	6.82×10^{-3}	4.60×10^{-10}
912330	2.36×10^{-3}	8.80×10^{-10}	962420	3.59×10^{-2}	1.30×10^{-8}
912340	4.95×10^{-3}	5.10×10^{-10}	962430	3.61×10^{-2}	2.00×10^{-7}
922320	3.15×10^{-2}	2.90×10^{-7}	962440	3.44×10^{-2}	1.60×10^{-7}
922330	2.86×10^{-2}	5.00×10^{-8}	962450	3.33×10^{-2}	3.00×10^{-7}
922340	2.83×10^{-2}	4.90×10^{-8}	962460	3.19×10^{-2}	2.90×10^{-7}
922350	2.71×10^{-2}	4.60×10^{-8}	962470	3.12×10^{-2}	2.70×10^{-7}
922360	2.66×10^{-2}	4.60×10^{-8}	962480	2.76×10^{-2}	1.10×10^{-6}
922370	2.05×10^{-3}	7.60×10^{-10}	982480	3.77×10^{-2}	2.80×10^{-8}
922380	2.49×10^{-2}	4.40×10^{-8}	982490	3.73×10^{-2}	3.50×10^{-7}
922390	2.64×10^{-3}	2.80×10^{-11}	982500	3.63×10^{-2}	1.60×10^{-7}
922400	7.70×10^{-4}	1.10×10^{-9}	982510	3.66×10^{-2}	3.60×10^{-7}
932360	2.00×10^{-3}	1.70×10^{-8}	982520	3.52×10^{-2}	9.00×10^{-8}
932370	2.88×10^{-2}	1.10×10^{-7}	972490	1.90×10^{-4}	9.70×10^{-10}

TAB. H.2: Facteur de chaleur en Watt par Curie et facteur de dose en Sievert par Becquerel

Annexe I

Production d' ^{233}U pour démarrer des RNR en cycle Th/ ^{233}U

Dans le Chapitre 5, l'intérêt de la filière thorium, particulièrement en matière de sûreté, avec une réactivité de vide très améliorée a été exposé. Néanmoins, l' ^{233}U étant un noyau artificiel, il convient d'identifier les différentes voies possibles pour démarrer cette filière avec les noyaux fissiles et fertiles disponibles actuellement. Nous avons mené des études pour quantifier la production d' ^{233}U avec des RNR-Na. Deux voies se distinguent : la première, avec un combustible Th/ ^{238}U / ^{235}U avec un enrichissement en ^{235}U plus ou moins élevé, et la deuxième avec un combustible Th/Pu, le Pu étant issu d'un combustible d'un REP MOX, qui a refroidi 30 ans. Dans chacune de ces configurations, des couvertures axiales de 150 mm sont présentes de part et d'autre de la zone fissile, constituées de ThO_2 . L'élément fertile rechargé est bien entendu du thorium. Les éléments retraités sont dans les deux cas le Th, l'U et le Pu. La puissance du réacteur est toujours de 1450 MWe pour l'ensemble (cœur + couvertures). Nous nous proposons de comparer les déchets produits à différents temps d'évolution, ainsi que quelques paramètres de sûreté, pour ces deux types de RNR producteurs d' ^{233}U . Ces résultats permettent de se représenter ce que pourrait être une transition vers un cycle Th/U asymptotique en RNR-Na.

I.1 Configuration RNR Th/ ^{235}U enrichi

I.1.1 Teneurs

Suivant l'enrichissement en ^{235}U choisi, le système sera plus ou moins long à converger vers un RNR Th/U Ref à l'équilibre décrit dans le Chapitre 5. Deux cas ont été ici étudiés :

- Th/ ^{235}U « 40 » : avec un enrichissement de 40 % en ^{235}U dans le vecteur uranium, avec Th = 56.25 %, ^{235}U = 17.5 % et ^{238}U = 26.25 % ;
- Th/ ^{235}U « 90 » : avec un enrichissement de 90 % en ^{235}U dans le vecteur uranium, avec Th = 79.5 %, ^{235}U = 18.5 % et ^{238}U = 2 %.

Pour chacune de ces configurations, le cœur comporte des couvertures axiales constituées de ThO_2 , pour maintenir le k_{eff} constant et légèrement supérieur à 1. Le choix des enrichissements s'est fait de manière à avoir un cœur qui reste critique tout au long de l'irradiation. Les évolutions sont réalisées jusqu'à l'équilibre, c'est-à-dire jusqu'à tendre vers un RNR Th/U Ref. Les éléments fissiles (U et Pu) et fertiles (U et Th) issus du cœur sont utilisés pour fabriquer les assemblages neufs et du ThO_2 est employé pour remplacer les éléments retirés. La gestion du rechargement est la même que dans les cas de référence présenté dans les Chapitres 4 et 5. Les AM ne sont donc pas transmutés et sont mis aux déchets. La longueur du cycle est de 1 an, le temps de refroidissement de 5 ans et le temps de refabrication de 2 ans. Le cœur est divisé en 5 zones radiales et 1 zone axiale.

Au démarrage, la masse initiale d' ^{235}U en cœur dans le cas Th/ ^{235}U « 40 » est 7.85 t/GWe. Si on considère tout le cycle, on multiplie cette valeur par $\frac{12}{5}$ pour prendre en compte les assemblages hors cœur. La masse d' ^{235}U est donc de 18.84 t/GWe et la masse totale d'uranium enrichi au démarrage est 47.5 t/GWe dans le cas Th/ ^{235}U « 40 ».

Au démarrage, la masse initiale d' ^{235}U en cœur dans le cas Th/ ^{235}U « 90 » est 9.05 t/GWe, soit 24.2 t/GWe en prenant en compte les assemblages hors cœur.

La masse d'uranium naturel (U_{nat}) nécessaire pour l'enrichissement à $100 \times x_{enr}$ d' ^{235}U d'une masse M_{enr} d'uranium se calcule grâce à la formule suivante :

$$M_{nat} = M_{enr} \frac{x_{enr} - x_{app}}{x_{nat} - x_{app}} \quad (\text{I.1})$$

où M_{nat} est la masse d' U_{nat} , M_{enr} est la masse d'uranium enrichi, x_{enr} est la proportion d' ^{235}U dans l'uranium enrichi, x_{app} est la proportion d' ^{235}U dans l'uranium appauvri et x_{nat} est la proportion d' ^{235}U dans l' U_{nat} .

Dans les cas Th/ ^{235}U « 40 » et Th/ ^{235}U « 90 », 4013 t/GWe et 4620 t/GWe d' U_{nat} sont respectivement nécessaires.

La masse d' U_{nat} nécessaire pour faire fonctionner un REP enrichi à 3.7 % durant 50 ans est de l'ordre 9175 t/GWe (le temps de fonctionnement du réacteur n'a pas à être pris en compte pour les Th/ $U_{enrichi}$ car ils sont rechargés par du thorium). La masse d' U_{nat} nécessaire pour faire fonctionner ce REP pendant 50 ans est au minimum le double de celle dont on a besoin pour démarrer directement un RNR Th/ $U_{enrichi}$.

Cela étant, il est à noter que la masse totale d' U_{nat} est nécessaire dès le démarrage et durant la première décennie pour les RNR Th/ $U_{enrichi}$, tandis qu'en ce qui concerne le REP, son apport est réparti sur les 50 ans de fonctionnement. En RNR Th/ $U_{enrichi}$, la consommation d' U_{nat} est réduite par deux par rapport à un parc REP fonctionnant pendant 50 ans, au-delà la consommation de ressources naturelles se limite à environ 1 t/GWe de ^{232}Th par an. Le gain réel de la régénération sur la contrainte ressource ne se fait donc sentir qu'après quelques décennies.

I.1.2 Inventaires des Th/²³⁵U enrichi

Le premier constat que l'on peut faire est qu'au bout de 80 ans, la masse d'²³³U est constante avec le cas Th/²³⁵U « 90 », alors que pour le RNR Th/²³⁵U « 40 », à 160 ans, l'équilibre en ²³³U n'est pas encore complètement atteint.

Au bout de 100 ans, le système Th/²³⁵U « 40 » a produit 6 430 kg d'²³³U et le système Th/²³⁵U « 90 » 7 203 kg. Dans notre étude, 7 282 kg d'²³³U sont nécessaires pour démarrer un RNR Th/U Ref.

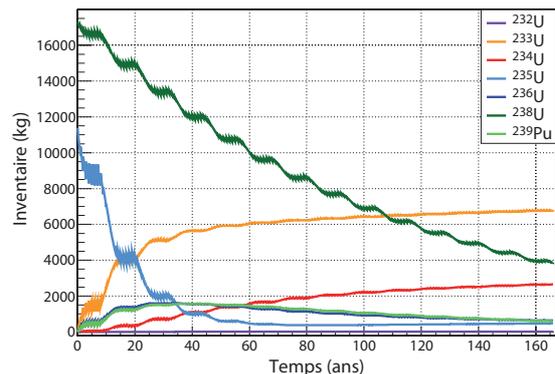


FIG. I.1: Inventaire total pour le cas Th/²³⁵U « 40 »

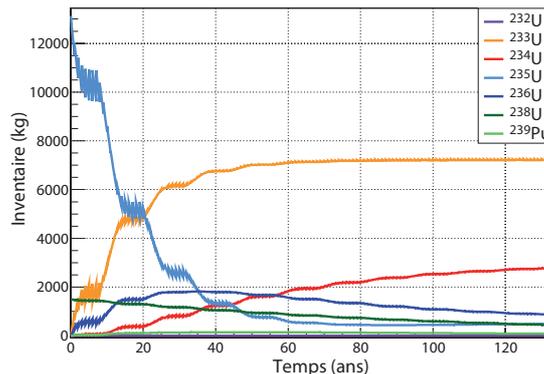


FIG. I.2: Inventaire total pour le cas Th/²³⁵U « 90 »

I.1.3 Paramètres de sûreté

Les paramètres de sûreté sont calculés comme définis dans le Chapitre 3.

Réactivité de vidange

Les réactivités de vidange sont un peu meilleures dans le cas Th/²³⁵U « 90 » que dans le cas Th/²³⁵U « 40 » car c'est le cas le plus proche du RNR Th/U Ref. Du fait de la présence de l'²³⁵U, les fractions de neutrons retardés sont plus grandes en début d'évolution (au démarrage et à 20 ans).

Les réactivités de vidange (pcm et \$) sont meilleures dans le cas Th/²³⁵U « 90 » que Th/U Ref, car en plus de bénéficier de l'avantage apporté par le cycle Th/U pour réduire ces paramètres, la présence d'une grande quantité d'²³⁵U en cœur au moment du démarrage multiplie presque par 2 la fraction de neutrons retardés, ce qui stabilise mieux le réacteur.

Dans le cas Th/²³⁵U « 40 », au démarrage, la fraction de neutrons retardés β_{eff} est plus élevée que dans le cas Th/²³⁵U « 90 ». En effet, la quantité d'²³⁸U est plus de 13 fois plus faible dans le Th/²³⁵U « 90 », facteur que l'on retrouve sur la valeur des proportions de fission de l'²³⁸U (cf tableau I.2) entre les cas Th/²³⁵U « 40 » et Th/²³⁵U « 90 », ce qui explique la valeur plus élevée du β_{eff} au démarrage dans cette configuration.

Temps (ans)	t = 0		t = 20		t = 160 (« 40 ») ou 80 (« 90 »)	
Configurations	« 40 »	« 90 »	« 40 »	« 90 »	« 40 »	« 90 »
Réactivité de vidange (pcm)	-344	-489	400	-23	465	269
Réactivité de vidange (\$)	-0.49	-0.73	0.89	-0.05	1.34	0.78
β_{eff}	701	674	452	471	346	346

TAB. I.1: RNR Th/²³⁵U « 40 » et Th/²³⁵U « 90 » - Réactivité de vidange dans zone fissile

Configurations	« 40 »	« 90 »
²³² Th	2 %	2.7 %
²³⁵ U	94 %	97 %
²³⁸ U	4 %	0.3 %

TAB. I.2: RNR Th/²³⁵U « 40 » et Th/²³⁵U « 90 » - Proportions de fission au démarrage

Coefficient Doppler

En début d'évolution, le coefficient Doppler des deux Th/²³⁵U enrichi est plus faible en valeur absolue que celui du Th/U Ref (cf Chapitre 5).

Dans les deux cas Th/²³⁵U enrichi, la quantité d'²³⁸U diminue au cours du temps, ce qui entraîne une moindre production de ²³⁹Pu, qui a tendance à détériorer le coefficient Doppler. Par conséquent, en valeur absolue, le coefficient Doppler augmente au cours du temps. Néanmoins, il reste un peu moins bon que celui du RNR Th/U Ref.

	Configurations	t = 0	t = t _{éq}	t = t _{éq} + 1 an
$\frac{\Delta\rho}{\Delta T}$ (pcm/K)	Th/ ²³⁵ U « 40 »	-0.23	-0.24	-0.28
	Th/ ²³⁵ U « 90 »	-0.20	-0.25	-0.31
K _D (pcm)	Th/ ²³⁵ U « 40 »	-900	-921	-1086
	Th/ ²³⁵ U « 90 »	-793	-993	-1223
α_D (pcm/K)	Th/ ²³⁵ U « 40 »	-0.30	-0.31	-0.36
	Th/ ²³⁵ U « 90 »	-0.26	-0.33	-0.41
$\Delta\rho$ (pcm)	Th/ ²³⁵ U « 40 »	-345	-353	-416
	Th/ ²³⁵ U « 90 »	-304	-380	-468

TAB. I.3: RNR Th/²³⁵U « 40 » et Th/²³⁵U « 90 » - Coefficient Doppler pour les deux gestions de cœur

I.1.4 Déchets issus des Th/²³⁵U enrichi

Déchets sortis au bout de 10 ans

La radiotoxicité des déchets sortis au bout de 10 ans est assez semblable dans les deux cas Th/²³⁵U « 40 » et « 90 » (cf figures I.3 et I.4). Durant les 300 premières années, les PF dominent la radiotoxicité. Puis, entre 300 ans et 200 000 ans, c'est le ²³¹Pa provenant de la réaction (n,2n) sur le ²³²Th, qui contribue majoritairement. On constate d'ailleurs, que la radiotoxicité du ²³¹Pa dans le cas Th/²³⁵U « 90 » est légèrement plus élevée que celle dans le cas Th/²³⁵U « 40 », du fait d'une plus grande proportion de ²³²Th dans le cas « 90 » (23 % en plus). Enfin, entre 200 000 ans et 14 millions d'années, un regain de radiotoxicité provenant du ²³⁷Np est observé, qui correspond à l'apparition de l'²³³U : la radiotoxicité augmente car la période de décroissance du ²³⁷Np (2.144 millions d'années) est beaucoup plus grande que celle de l'²³³U (165 000 ans), et qu'il y a, dans le même temps, la montée à l'équilibre de toute la chaîne entre le ²³³U et le ²⁰⁹Bi ; après 14 millions, ce sont les PF à vie longue, tel que l'¹²⁹I, qui dominent la radiotoxicité.

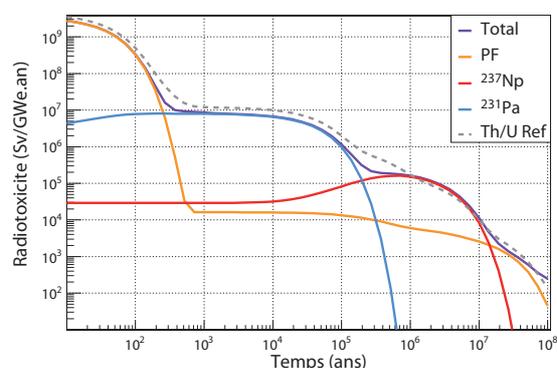


FIG. I.3: Radiotoxicité des déchets sortis au bout de 10 ans dans le cas Th/²³⁵U « 40 »

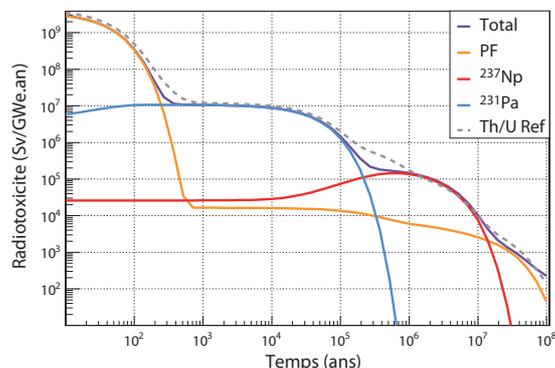


FIG. I.4: Radiotoxicité des déchets sortis au bout de 10 ans dans le cas Th/²³⁵U « 90 »

Déchets sortis au bout de 50 ans

Dans les déchets sortis au bout de 50 ans, une contribution nouvelle à la radiotoxicité apparaît dans le cas Th/²³⁵U « 40 » : celle de l'²⁴¹Am entre 200 ans et 1 100 ans. Cela provient de l'²³⁸U, présent en plus grande quantité (10 fois plus) que dans le cas Th/²³⁵U « 90 » : en effet, dans le cas Th/²³⁵U « 90 », la teneur de l'²³⁸U est initialement de 2 %, tandis qu'elle est de 26.25 % dans le cas Th/²³⁵U « 40 ». Cela conduit à une production importante de ²³⁹Pu, de ²⁴⁰Pu et de ²⁴¹Pu, qui décroît sur de l'²⁴¹Am.

Déchets sortis au bout de 100 ans

La tendance observée sur les déchets sortis à 50 ans se confirme avec une augmentation de la contribution de l'²⁴¹Am.

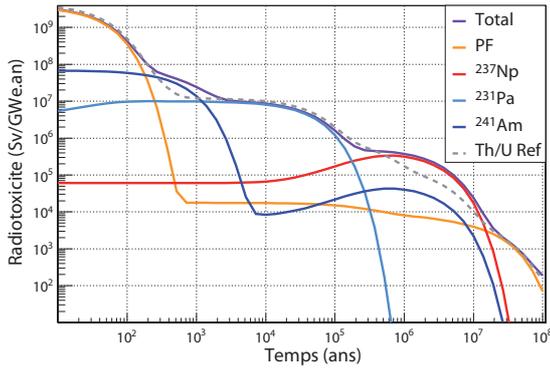


FIG. I.5: Radiotoxicité des déchets sortis au bout de 50 ans dans le cas $\text{Th}/^{235}\text{U}$ « 40 »

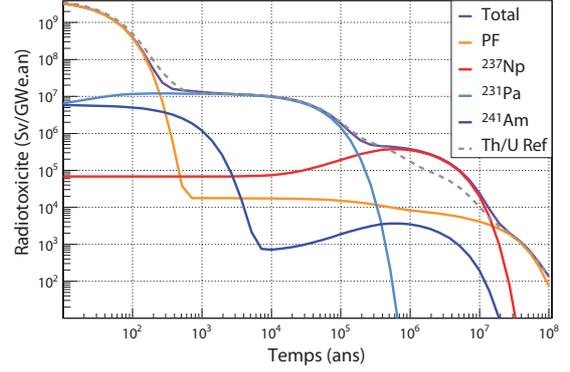


FIG. I.6: Radiotoxicité des déchets sortis au bout de 50 ans dans le cas $\text{Th}/^{235}\text{U}$ « 90 »

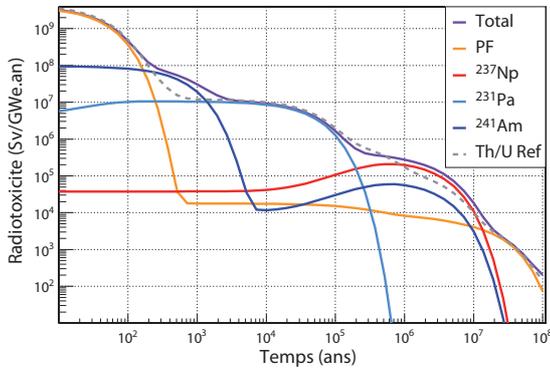


FIG. I.7: Radiotoxicité des déchets sortis au bout de 100 ans dans le cas $\text{Th}/^{235}\text{U}$ « 40 »

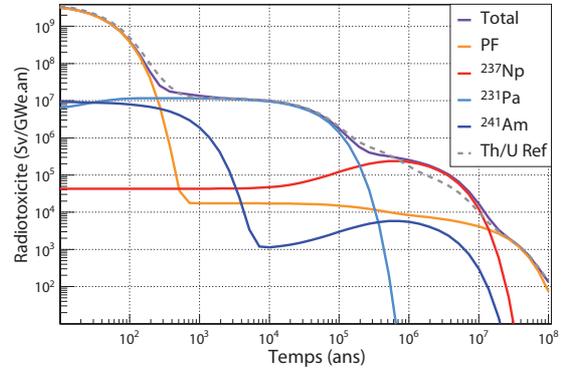


FIG. I.8: Radiotoxicité des déchets sortis au bout de 100 ans dans le cas $\text{Th}/^{235}\text{U}$ « 90 »

I.1.5 Comparaison de la radiotoxicité des déchets des $\text{Th}/^{235}\text{U}$ enrichi avec celle du RNR Th/U Ref

Sur la figure I.9, quand on compare la radiotoxicité totale des cas $\text{Th}/^{235}\text{U}$ « 40 », $\text{Th}/^{235}\text{U}$ « 90 » et Th/U Ref, on constate, sans surprise, que la celle du cas $\text{Th}/^{235}\text{U}$ « 90 » est la plus proche de celle du RNR Th/U Ref. Néanmoins, entre 700 000 ans et 14 millions d'années, la radiotoxicité des $\text{Th}/^{235}\text{U}$ est plus élevée à cause de la remontée de radiotoxicité issue du ^{237}Np , qui est présent en plus grande quantité que dans le Th/U Ref, du fait de la présence d' ^{238}U (réaction $(n,2n)$), mais surtout des captures sur l' ^{235}U . En effet, dans le cas $\text{Th}/^{235}\text{U}$ « 40 », l'inventaire en ^{237}Np à 100 ans est de 45 kg, dans le cas $\text{Th}/^{235}\text{U}$ « 90 » de 50 kg, et dans le cas Th/U Ref de 23 kg.

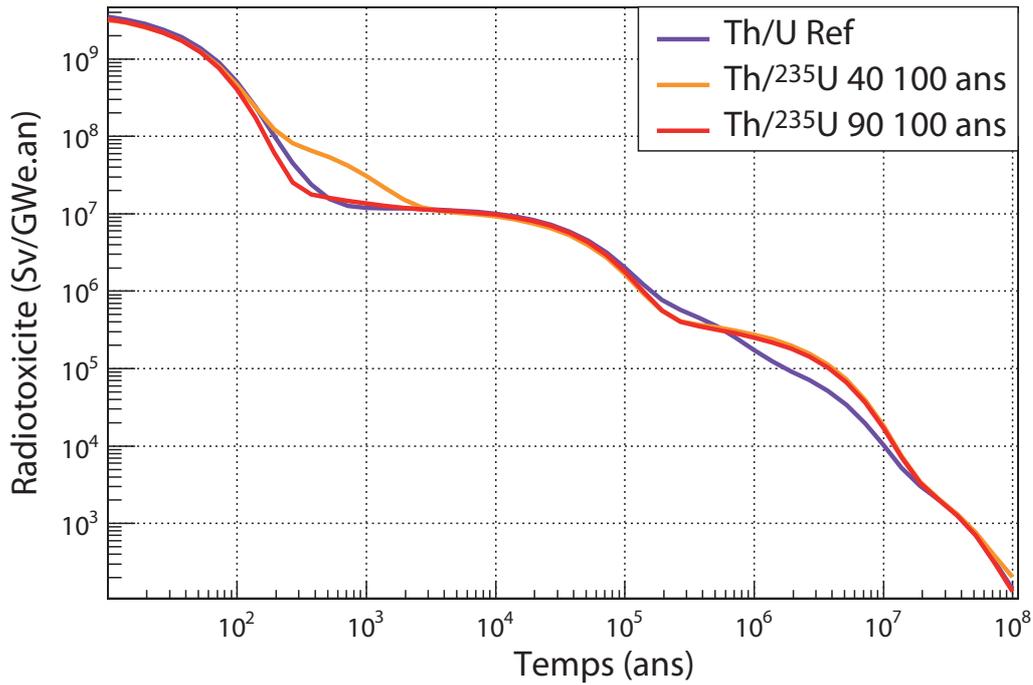


FIG. I.9: Radiotoxicité des déchets sortis au bout de 100 ans dans les cas $\text{Th}/^{235}\text{U}$ « 40 » et « 90 », et Th/U

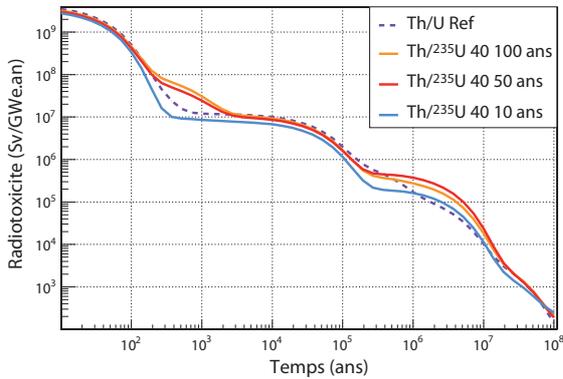


FIG. I.10: Evolution de la radiotoxicité des déchets dans le cas $\text{Th}/^{235}\text{U}$ « 40 » et Th/U Ref

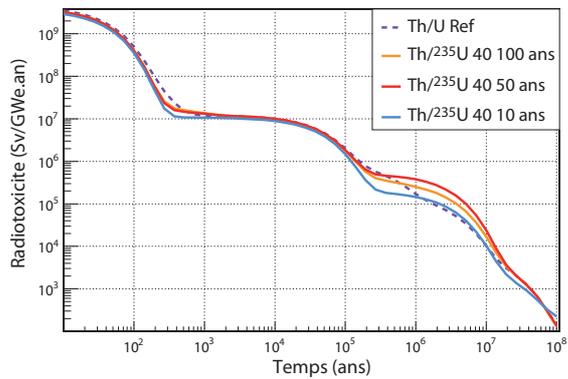


FIG. I.11: Evolution de la radiotoxicité des déchets dans le cas $\text{Th}/^{235}\text{U}$ « 90 » et Th/U Ref

I.2 Configuration RNR Th/Pu

Comparé à un RNR Th/Pu , les RNR $\text{Th}/^{235}\text{U}$ enrichi sont plus avantageux du point de vue de la sûreté et de la production des déchets. Néanmoins, démarrer des RNR avec du $\text{Th}/^{235}\text{U}$ enrichi nécessite une quantité considérable d' U_{nat} (cf paragraphe I.1.1). De plus, l'enrichissement en ^{235}U requis est particulièrement élevé, ce qui peut poser des difficultés

pour obtenir les autorisations nécessaires à cause du risque de prolifération.

En outre, du Pu issu des MOX et des UOX est immédiatement disponible. Un RNR Th/Pu apparaît alors être une voie logique pour produire l' ^{233}U nécessaire au démarrage de la filière Th/U Ref.

La configuration du cœur est la même que précédemment, et comporte donc, de part et d'autre de la zone fissile des couvertures axiales (150 mm), contenant du ThO_2 . Les couvertures axiales sont rechargées tous les ans avec du thorium. Le cœur est divisé en 5 zones radiales et 1 zone axiale. Le combustible initial est un mélange de thorium et de plutonium : le vecteur isotopique du Pu utilisé est celui d'un MOX refroidi 30 ans (cf Chapitre 4) et la teneur en Pu est de 18 %.

Les éléments recyclés sont le Th, l'U et le Pu, et la matière fertile utilisée est du Th.

La gestion du rechargement est la même que dans les cas de référence présentés dans les Chapitres 4 et 5. Les AM ne sont donc pas transmutés et sont mis aux déchets. La longueur du cycle est de 1 an, le temps de refroidissement de 5 ans et le temps de refabrication de 2 ans.

Les couvertures axiales permettent de surgénérer de l' ^{233}U et de maintenir un k_{eff} légèrement supérieur à 1 après 30 ans.

I.2.1 Inventaires

Pour l' ^{233}U , l'équilibre est atteint au bout de 60 ans et son inventaire est de 7 400 kg. La masse du ^{239}Pu est divisée par 10 en 40 ans, tandis que celle du ^{241}Pu met deux fois plus de temps pour être réduite du même facteur. La masse du ^{240}Pu est divisée par 10 au bout de 120 ans. L' ^{234}U est lui aussi long à converger (environ 160 ans). On note une sorte d'effet miroir entre l'évolution de ces deux noyaux (^{240}Pu et ^{234}U) : chacun des ces isotopes est produit par capture sur les deux noyaux fissiles principaux, respectivement, le ^{239}Pu et l' ^{233}U , qui eux aussi croissent et décroissent avec une certaine symétrie, du fait que l'un remplace l'autre.

I.2.2 Paramètres de sûreté

Réactivité de vidange

La réactivité de vidange au démarrage est du même ordre de grandeur que celle en cycle U/Pu. Elle diminue ensuite pour tendre vers celle du Th/U. La fraction de neutrons retardés est très faible au départ, parce que l'on conjugue les effets négatifs du thorium et du plutonium. En effet, malgré la très grande valeur de β du ^{232}Th (cf tableau I.5), sa proportion de fission est faible (par rapport à celle de l' ^{238}U dans un RNR U/Pu, qui est de l'ordre de 15 %), et le β du ^{239}Pu (225 pcm) est plus faible encore que celui de l' ^{233}U (287 pcm).

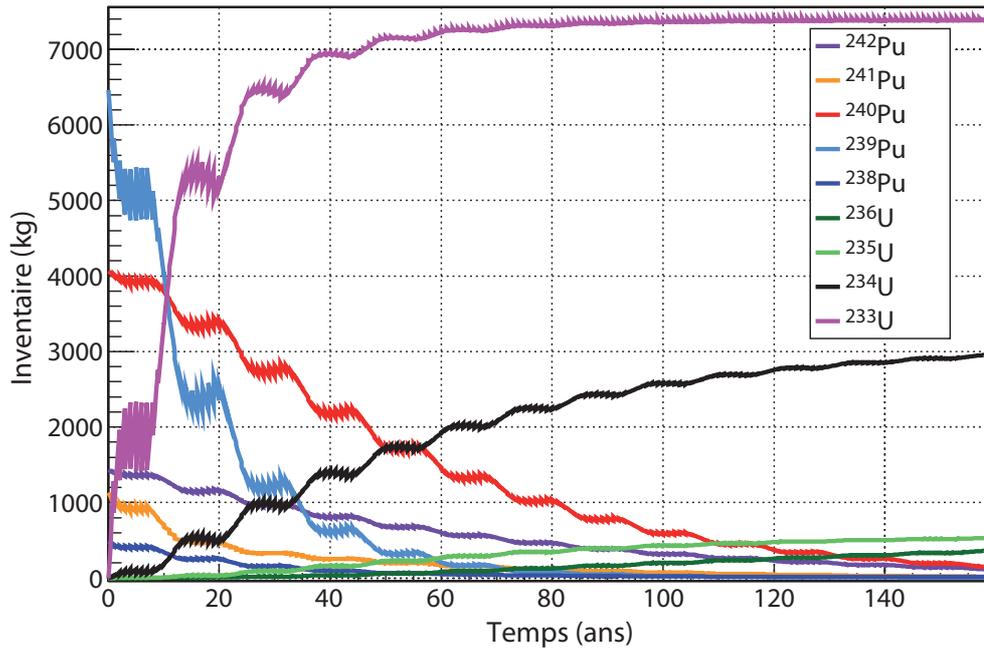


FIG. I.12: Inventaire total pour le cas Th/Pu

	t = 0	t = 10	t = 20	t = 60
Réactivité de vidange (pcm)	1 427	1 249	865	413
Réactivité de vidange (\$)	5.05	4.22	2.7	1.22
β_{eff}	283	296	321	339

TAB. I.4: RNR Th/Pu - Réactivité de vidange dans zone fissile

Configurations	Proportions de fission
^{232}Th	3.7 %
^{238}Pu	3.2 %
^{239}Pu	65.7 %
^{240}Pu	9.2 %
^{241}Pu	15.7 %
^{241}Pu	2.3 %
^{241}Am	0.2 %

TAB. I.5: RNR Th/Pu - Proportions de fission au démarrage

Coefficient Doppler

Le coefficient Doppler se détériore durant les premières décennies puis augmente à nouveau en valeur absolue, au fur et à mesure que le ^{239}Pu , qui a un effet défavorable sur ce coefficient, est consommé.

	t = 0	t = 10	t = 20	t = 60
$\frac{\Delta\rho}{\Delta T}$ (pcm/K)	-0.32	-0.27	-0.26	-0.30
K_D (pcm)	-1 247	-1 065	-1 020	-1194
α_D (pcm/K)	-0.42	-0.36	-0.34	-0.40
$\Delta\rho$ (pcm)	-478	-408	-391	-457

TAB. I.6: RNR Th/Pu - Coefficient Doppler

Conclusion

Les configurations Th/ ^{235}U enrichi ont une réactivité de vidange meilleure que celle du Th/Pu (au sens qu'elles sont plus faibles), mais cela est contrebalancé par un coefficient Doppler un peu meilleur pour le Th/Pu. Toutefois, la fraction des neutrons retardés au démarrage du Th/Pu semble assez pénalisante, même si la réactivité de vidange en β est du même ordre de grandeur que celle que l'on a pour le cycle U/Pu (cf Chapitre 4).

I.2.3 Déchets issus du Th/Pu

Déchets sortis au bout de 10 ans

Les contributions majoritaires se distribuent comme suit :

- jusqu'à 40 ans, ce sont les PF (avec une contribution non négligeable de l' ^{241}Am et du ^{244}Cm);
- entre 40 et 2 300 ans, l' ^{241}Am contribue majoritairement ;
- entre 2 300 ans et 30 000 ans, c'est l' ^{243}Am ;
- entre 30 000 ans et 150 000 ans, c'est le ^{231}Pa ;
- entre 150 000 ans et 18 millions d'années, c'est de nouveau l' ^{241}Am ;
- après 18 millions d'années, c'est l' ^{243}Am qui contribue majoritairement.

Déchets sortis au bout de 50 ans

Les contributions majoritaires se distribuent comme suit :

- jusqu'à 100 ans, ce sont les PF ;
- entre 100 et 2 000 ans, l' ^{241}Am contribue majoritairement ;
- entre 2 000 ans et 200 000 ans, c'est le ^{231}Pa ;
- entre 200 000 ans et 14 millions d'années, c'est de nouveau l' ^{241}Am ;
- entre 14 et 32 millions d'années, ce sont à nouveau les PF ;

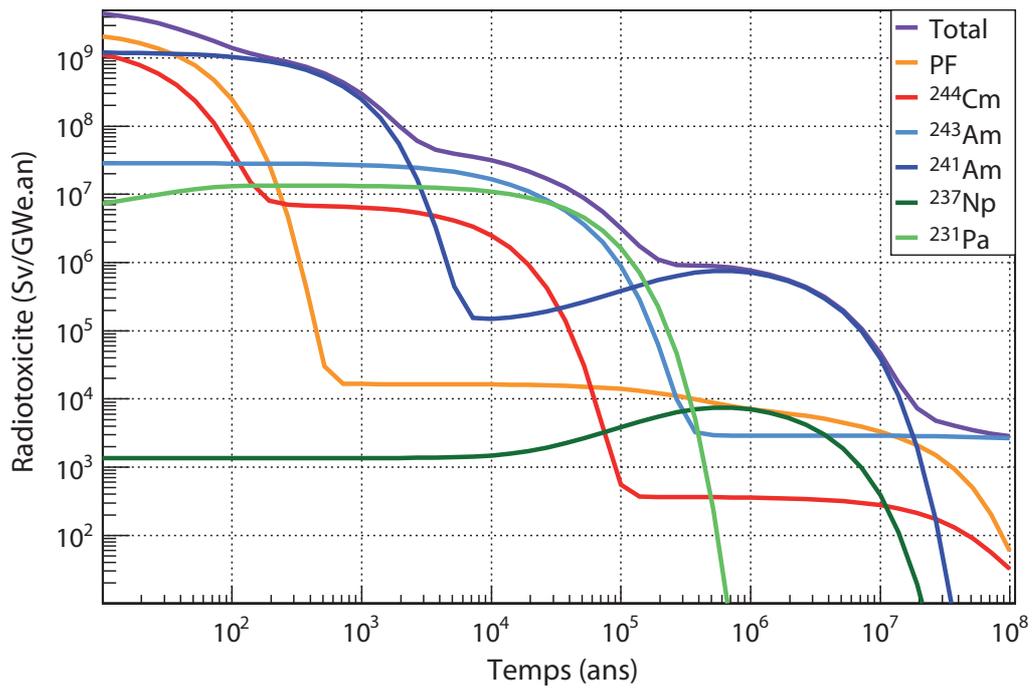


FIG. I.13: Radiotoxicité des déchets sortis au bout de 10 ans dans le cas Th/Pu

– après 32 millions d’années, c’est l’ ^{243}Am qui contribue majoritairement.

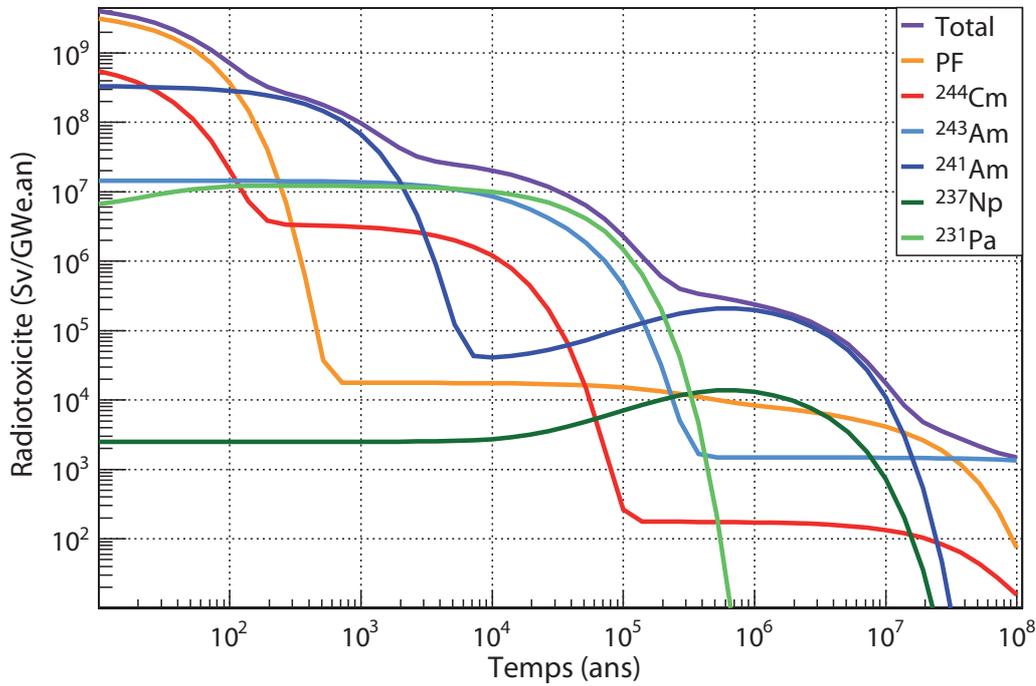


FIG. I.14: Radiotoxicité des déchets sortis au bout de 50 ans dans le cas Th/Pu

Déchets sortis au bout de 100 ans

Les contributions majoritaires se distribuent comme suit :

- jusqu'à 150 ans, ce sont les PF ;
- entre 150 et 1 300 ans, l' ^{241}Am contribue majoritairement ;
- entre 1 300 ans et 250 000 ans, c'est le ^{231}Pa ;
- entre 250 000 ans et 9 millions d'années, c'est de nouveau l' ^{241}Am (et le ^{237}Np) ;
- entre 9 et 50 millions d'années, ce sont à nouveau les PF ;
- après 50 millions d'années, c'est l' ^{243}Am qui contribue majoritairement.

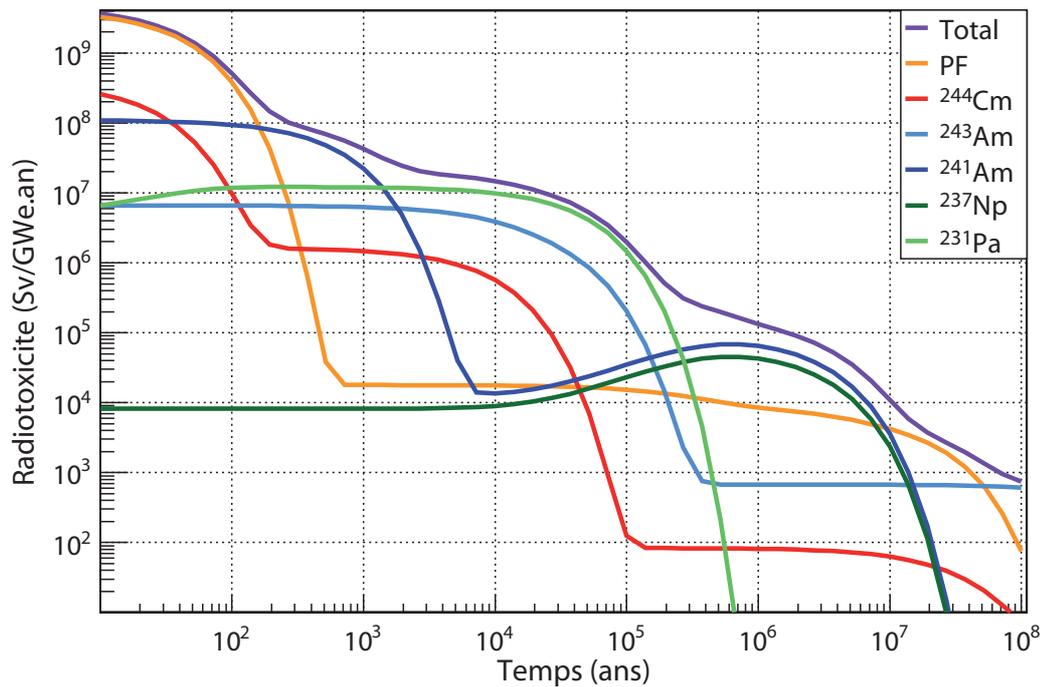


FIG. I.15: Radiotoxicité des déchets sortis au bout de 100 ans dans le cas Th/Pu

Conclusion

Plus les déchets sont sortis tard, plus la contribution à la radiotoxicité des américium (^{241}Am et ^{243}Am) et du ^{244}Cm diminue, du fait de la réduction de l'inventaire en ^{239}Pu .

En revanche, la contribution des PF durant les premières centaines d'années augmente aussi car au cours de l'évolution, de plus en plus d' ^{233}U est formé, et ce dernier produit plus de PF à vie moyenne en fissionnant que le ^{239}Pu . La contribution du ^{237}Np , elle aussi augmente au cours de l'évolution.

I.2.4 Comparaison de la radiotoxicité des déchets du RNR Th/Pu avec celle des RNR U/Pu Ref et Th/U Ref

Sur la figure I.16, on voit que la forme de la courbe de radiotoxicité tend à se rapprocher de celle du RNR Th/U Ref (courbe rouge). Concernant les déchets sortis au début, c'est-à-dire au bout de 10 ans, leur radiotoxicité est plus élevée sur tous les temps géologiques que celles des RNR Th/U Ref ou U/Pu Ref.

Pour les déchets sortis à la fin (au bout de 100 ans, courbe turquoise), la radiotoxicité des déchets du Th/Pu se place entre les radiotoxicités des RNR Th/U Ref et U/Pu Ref. Entre 200 ans et 100 000 ans, la radiotoxicité du Th/Pu est plus élevée que celle du Th/U, à cause de la présence en quantité plus grande d'américium dans le Th/Pu.

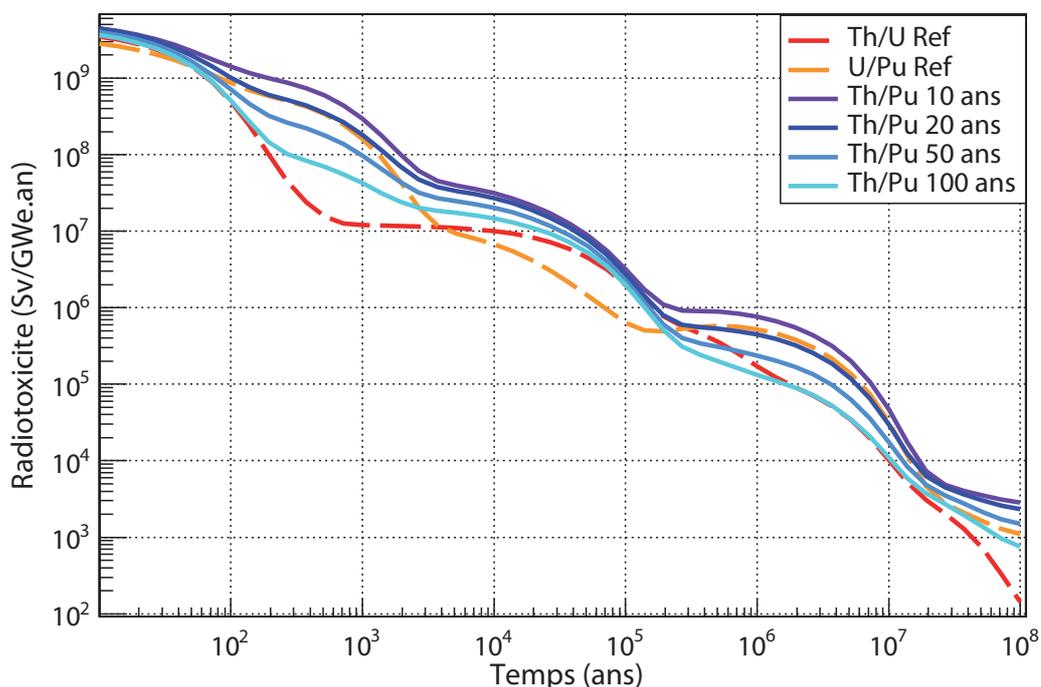


FIG. I.16: Comparaison des radiotoxicités des RNR U/Pu Ref et Th/U Ref avec celle de Th/Pu au différents temps de sortie des déchets

I.3 Conclusion : comparaison globale des déchets issus des Th/²³⁵U enrichi, du Th/Pu et des cas de référence U/Pu et Th/U

La radiotoxicité globale des déchets sortis au bout de 10 ans (cf figure I.17) est plus faible dans les cas Th/²³⁵U enrichi car moins d'AM, tels que l'²⁴¹Am, l'²⁴³Am ou le ²⁴⁴Cm, sont présents dans les déchets.

Concernant les déchets sortis au bout de 50 ans (cf figure I.18), la radiotoxicité du Th/²³⁵U « 40 », entre 200 ans et 2000 ans, augmente à cause de l'augmentation de l'inventaire d'²⁴¹Am (cf figure I.5). La radiotoxicité entre 300 000 ans et 10 millions d'années augmente pour les Th/²³⁵U enrichi, à cause du ²³⁷Np, et devient plus importante que la radiotoxicité des déchets du Th/Pu pour la même période de temps considérée.

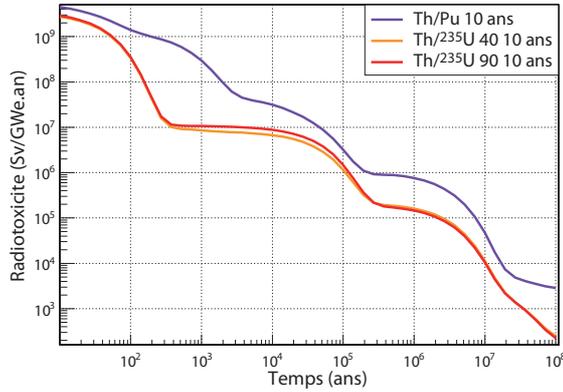


FIG. I.17: Radiotoxicité totale des déchets sortis au bout de 10 ans

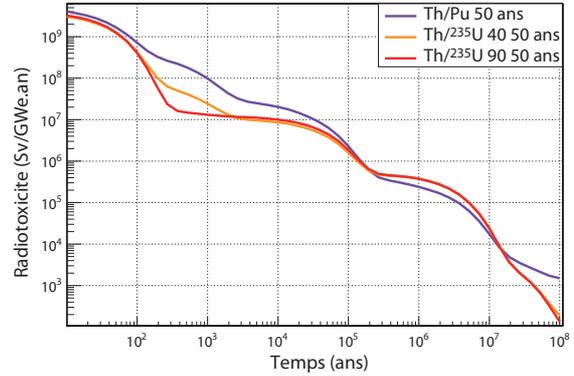


FIG. I.18: Radiotoxicité totale des déchets sortis au bout de 50 ans

Pour les déchets sortis au bout de 100 ans (cf figure I.19), la radiotoxicité de ceux issus du Th/Pu continue de diminuer entre 200 ans et 3 000 ans, ainsi qu'entre 200 000 ans et 10 millions d'années, du fait de la diminution d'²⁴¹Am.

Enfin, lorsque l'on compare les déchets issus du Th/Pu et des Th/²³⁵U enrichi sortis à 100 ans avec ceux issus du Th/U Ref et de l'U/Pu Ref (cf figure I.20), on remarque que jusqu'à 100 000 ans, le Th/²³⁵U « 90 » a la radiotoxicité qui se rapproche le plus de celle du Th/U Ref. Entre 100 000 ans et 10 millions d'années, c'est le Th/Pu qui a sa radiotoxicité confondue avec celle du Th/U Ref, et après 10 millions d'années, ce sont les Th/²³⁵U enrichi.

Jusqu'à 100 000 ans, les contributions majoritaires pour le Th/²³⁵U « 90 » sont successivement les PF, puis le ²³¹Pa, comme pour le RNR Th/U Ref. Entre 100 000 ans et 10 millions d'années, les contributions du ²³⁷Np et de l'²⁴¹Am sont du même ordre de grandeur et inférieur à 10⁵ Sv pour le Th/Pu, tandis que pour les Th/²³⁵U enrichi, la contribution du ²³⁷Np est d'environ de 2 × 10⁵.

Finalement, les atouts de chacune de ces configurations productrices d'²³³U sont partagés. En effet, du point de vue de l'économie des ressources, et en particulier de l'*U_{nat}*, le RNR Th/Pu est bien sûr le plus avantageux car le Pu est déjà disponible. Néanmoins, les RNR Th/²³⁵U enrichi nécessitent un apport moitié moindre en *U_{nat}* pour démarrer ce type de réacteur que pour le fonctionnement d'un REP durant 50 ans (qui aurait produit le Pu nécessaire au démarrage d'un RNR).

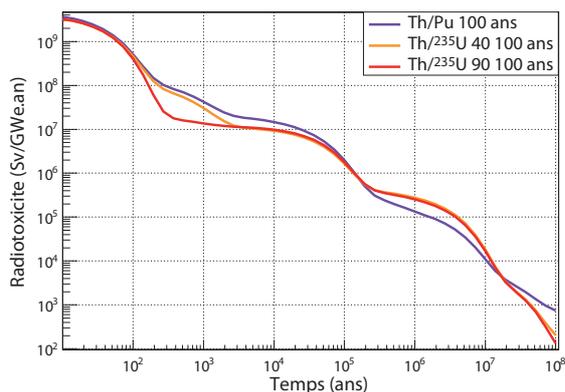


FIG. I.19: Radiotoxicité totale des déchets sortis au bout de 100 ans

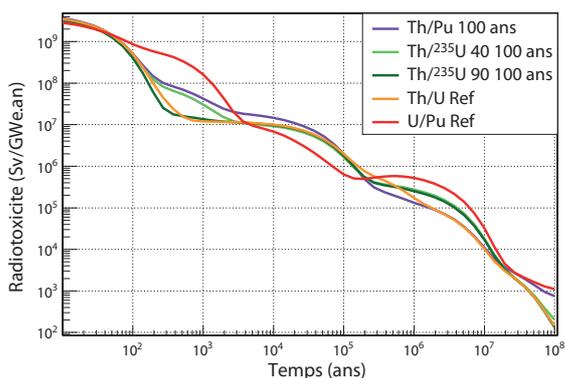


FIG. I.20: Radiotoxicité totale des déchets pour Th/Pu et Th/²³⁵U au bout de 100 ans, et, Th/U Ref et U/Pu Ref à l'équilibre

Du point de vue de la production d'²³³U, le RNR Th/Pu est la configuration qui conduit le plus rapidement à l'inventaire nécessaire pour démarrer un Th/U Ref : en effet, en 60 ans, le Th/Pu a formé plus d'²³³U (7.4 t) que nécessaire pour démarrer un réacteur Th/U Ref (7.3 t), alors que dans le même temps, le Th/²³⁵U « 40 » a produit 6 t d'²³³U et le Th/²³⁵U « 90 » 7 t d'²³³U.

En ce qui concerne les paramètres de sûreté, la réactivité de vidange des Th/²³⁵U enrichi est bien meilleure (environ 1800 pcm d'écart) au démarrage que celle du Th/Pu, du fait de l'absence de Pu dans ces réacteurs.

Pour ce qui est des déchets, pour ceux sortis à 100 ans, le même type de commentaires que ceux déjà faits lors de la comparaison des cycles U/Pu et Th/U peut s'appliquer ici. En effet, selon les périodes de temps géologiques chacune des configurations Th/²³⁵U enrichi et Th/Pu a ses points forts. Néanmoins, quand on examine l'évolution de la radiotoxicité des déchets selon l'instant où ils sortent du réacteur, la radiotoxicité des Th/²³⁵U enrichi est largement réduite durant les premières décennies.

Il semble donc qu'en matière d'économie des ressources et d'efficacité de production d'²³³U, le RNR Th/Pu soit la configuration la plus adaptée, mais pour ce qui a trait à la sûreté et à la réduction de la radiotoxicité des déchets, les RNR Th/²³⁵U enrichi sont les plus appropriés.

BIBLIOGRAPHIE

Bibliographie

- [1] *BP Statistical Review of World Energy June 2010*. Site <http://www.bp.com/>, consulté en Juillet 2010.
- [2] J.L. BOBIN et al. *L'énergie dans le monde : bilan et perspectives*. EDP Sciences, Un dossier scientifique, 2007.
- [3] S. DAVID. *Systèmes du futur et stratégies*. Ecole Joliot-Curie de physique nucléaire 2006, "Le cycle électronucléaire : de la fission aux nouvelles filières", Maubuisson, France, 18-23 Septembre 2006.
- [4] S. BOUNEAU et al. *Construction d'un monde énergétique en 2050*. EDP Sciences, Ann. Phys. Fr., 34, 2009.
- [5] *Key world energy statistics*. INTERNATIONAL ENERGY AGENCY, 9 rue de la Fédération 75739 Paris Cedex 15, www.iea.org.
- [6] *IEA Energy statistics*. Site <http://www.iea.org/>, consulté en Juillet 2010.
- [7] S. DAVID. *Energie Nucléaire : Présent et Perspectives* Cours, Paris, Mai 2006.
- [8] *Livre Rouge* Publication OCDE-AEN-AIEA, 2007.
- [9] A. ZAETTA, S. DAVID, C. GARZENNE. *Physiques des réacteurs et transmutation*. Présentation GEDEPEON, .
- [10] R. BRISSOT. *Présent et futur(s) de l'aval du cycle électronucléaire*. Présentation.
- [11] *Energy to 2050. Scenarios for a Sustainable Future* Site http://www.iea.org/textbase/nppdf/free/2000/2050_2003.pdf, consulté en Juillet 2010.
- [12] F. CARRE et C. RENAULT. *Réacteurs nucléaires du futur*. Techniques de l'ingénieur, BN3230.
- [13] G. VENDRYES. *Superphénix, pourquoi ?* Nucléon, 1997.
- [14] J.F. SAUVAGE. *Phénix. Une histoire de cœur et d'énergie*. CEA, EDF, 2004.
- [15] Site http://en.wikipedia.org/wiki/BN-350_reactor, consulté en Juillet 2010.
- [16] J. GUIDEZ et al. *Phénix, un outil unique dans le domaine du combustible*. CLEFS CEA, 55, été 2007.
- [17] *Mise à l'arrêt définitive du réacteur Phénix*. Site <http://www.cea.fr/>, consulté en Juillet 2010.

- [18] J. MOREAU. *Les réacteurs à neutrons rapides, le sodium, le cycle du combustible : bilan de l'acquis, potentiel d'innovation et perspectives d'avenir*. Rapport technique.
- [19] *Le CEA lance son projet de réacteur nucléaire de 4^{me} génération*. Site <http://www.techniques-ingenieur.fr/>, consulté en Août 2010.
- [20] *Quatrième génération vers un nucléaire durable*. Dossier de presse, 31 mars 2010.
- [21] B. BOULLIS. *Des déchets ultimes moins radiotoxiques*. Clefs CEA, n°53, hiver 2005-2006.
- [22] CEA Energie. *Les déchets radioactifs à haute activité et à vie longue : Axes 1 et 3*. Site <http://www.cea.fr/energie/>, consulté en Avril 2010.
- [23] F. VARAINE. *Processus et faisabilité de la transmutation des déchets à vie longue*. Ecole Joliot-Curie de physique nucléaire 2006, « Le cycle électronucléaire : de la fission aux nouvelles filières », Maubuisson, France, 18-23 Septembre 2006.
- [24] F. VARAINE. *Le traitement-recyclage du combustible nucléaire usé*. Une monographie du CEA, édition LE MONITEUR, Mai 2008.
- [25] S. DAVID. *Capacités des réacteurs hybrides au plomb pour la production d'énergie et l'incinération avec multirecyclage des combustibles. Evolution des paramètres physiques. Radiotoxicités induites*. Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier-Grenoble I, 1999.
- [26] B. BOULLIS. *Plan national de gestion des déchets radioactifs et des matières valorisables*. Site de l'Agence Nationale de Sécurité, Juillet 2005.
- [27] *Un centre de stockage pour les déchets HA et MA-VL* Site <http://www.andra.fr/dechets-radioactifs/stockage-dechets-nucleaires.htm>, consulté en Juillet 2010.
- [28] O. MEPLAN. *MURE. MCNP Utility for Reactor Evolution. User Guide - Version 1.0*. Report LPSC 0912 and IPNO-09-01, Janvier 2009.
- [29] X-5 MONTE CARLO TEAM. *MCNP-A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5*. Los Alamos National Laboratory report LA-UR-03-1987, 2003.
- [30] D. Basile et E. Salina. *COBRA-EN an upgraded version of the COBRA-3C/MIT code for thermal-hydraulic transient analysis of light water reactor fuel assemblies and cores*. ENEL-CRTN compartimento di Milano, 1999.
- [31] N. CAPELLAN. *Couplage 3D neutronique thermohydraulique. Développement d'outils pour les études de sûreté des réacteurs innovants*. Thèse de doctorat, Université Paris XI, 2009.
- [32] *MURE-NEA*. Site : <http://www.nea.fr/tools/abstract/detail/nea-1845>, Mars 2009.
- [33] F. MICHEL-SENDIS. *Contributions à l'étude de la production d'²³³U en combustible MOX-ThPu en réacteur à eau sous pression. Scénarios de transition vers des concepts isogénérateurs Th/²³³U en spectre thermique. Développement du code MURE d'évolution du combustible*. Thèse de doctorat, Université Paris XI, 2006.

- [34] W. HAECK. *An Optimum Approach to Monte Carlo Burn-Up*. PhD Thesis, Univer Siteit GENT, 2006-2007.
- [35] T. TAKEDA et al. *Estimation of error propagation in Monte-Carlo burnup calculations*. Journal of Nuclear Science and Technology, Vol.36, n°9, pp. 738-745, Septembre 1999.
- [36] W. HAECK et B. VERBOOMEN. *An Optimum Approach to Monte Carlo Burn-Up*. Nuclear Science Engineering, 156, 180-196, 2007.
- [37] M. FENSIN et al. *Incorporation of a predictor-corrector methodology and 1-group reaction rate reporting scheme for the MCNPX depletion capability*. Transactions of the American Nuclear Society, Vol. 95, pp. 317-319, 2006.
- [38] N. BYUNG CHAN. *Etude de conception neutronique des coeurs de RNR visant à améliorer leur potentiel de sûreté*. Thèse de doctorat, Université Aix-Marseille I et INSTN-CEA, 1996.
- [39] L. BUIRON et al. *Innovative core design for generation IV sodium-cooled fast reactors*. Proceeding of ICAPP 2007, papier 7383, Nice (FRANCE), Mai 2007.
- [40] P. REUSS. *Base de neutronique : coefficients de réactivité dans les réacteurs nucléaires*. Ann. Phys. Fr., pp. 67-92, Vol. 25, N°2 2000.
- [41] A. E. WALTAR, A. B. REYNOLDS. *FastBreeder Reactors*. Pergamon Press, 1981.
- [42] P. BEREONNEAU et M. VANIER. *Réacteurs à neutrons rapides. Contre réactions thermiques*. Cours, DRN/DER/SPRC/LEDC, CEA Cadarache.
- [43] S. PILARSKI. *Etude du potentiel de concepts innovants de réacteurs à neutrons rapides (RNR) vis-à-vis des exigences du développement durable*. Thèse de doctorat, Université Paris XI, 2008.
- [44] S. MICHALEK et al. *MCNP5 Delayed Neutron Fraction (β_{eff}) Calculation in Training Reactor VR-1* Journal of Electrical Engineering, vol. 59, num. 4, 2008, pp 221-224.
- [45] R. K. MEULEKAMP et S. C. VAN DER MARCK. *Calculating the effective delayed neutron fraction with Monte Carlo*. Nuclear Science and Engineering, num. 152, pp 142-148, 2006.
- [46] J. VOLLAIRE et al. *Determination of β_{eff} using MCNP-4C2 and application to the CROCUS and PROTEUS reactors*. Physor 2006, ANS Topical Meeting on Reactor Physics
- [47] M. M. BRETSCHER. *Evaluation of reactor kinetic parameters without the need for perturbation codes*. International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, Jackson Hole, Wyoming, USA, October 5-10, 1997.
- [48] H. METIVIER. *Radioprotection et ingénierie nucléaire*. EDP SCIENCES, Collection GENIE ATOMIQUE, Juin 2006.
- [49] M.L. PERRIN. *Base de données de coefficients de dose. ECRIN V1 INTERNET. Manuel de référence*. Note Technique SEGR/03- 48 Indice 0, Juillet 2003.

- [50] *Colis de déchets vitrifiés PIVER*. Site <http://www.andra.fr/>, consulté en Juin 2010.
- [51] *Stockage des déchets HA*. Site <http://www.laradioactivite.com/fr/>, consulté en Juillet 2010.
- [52] *Les résultats des études sur les procédés de conditionnement*. Site <http://www.cea.fr/>, consulté en Juillet 2010.
- [53] *Agence Nationale pour la gestion des Déchets Radioactifs*. Site http://www.andra.fr, consulté en Juin 2010.
- [54] B. BOULLIS. *Le programme transmutation, enjeux et limites*. Commission Nationale d'Evaluation, Audition du 18 décembre 2008 - « Les enjeux de la transmutation », Paris.
- [55] S. MASSARA. *Etude et amélioration du comportement cinétique de cœurs rapides dédiés à la transmutation de déchets à vie longue*. Thèse de doctorat, Université Louis Pasteur de Strasbourg, 2002.
- [56] J.P. SCHPIRA. *Les déchets nucléaires : un dossier scientifique. Le rôle potentiel du cycle du combustible à base de thorium*. Editeur R. Turlay, SFP, 1997.
- [57] Y. CASSAGNOU. *Le nucléaire expliqué par les physiciens. La filière thorium*. EDP Sciences, 2002.
- [58] J.P. CRETTE. *Réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium*. Techniques de l'ingénieur, BN3170.
- [59] *FICHE RADIONUCLÉIDE : ^{231}Pa et environnement*. Site <http://www.irsn.fr/>, consulté en Juin 2010.
- [60] *Inventaire national des matières et déchets radioactifs. Rapport de synthèse 2009*. Site <http://www.andra.fr/download/Site-principal/document/inventaire/351.pdf>, consulté en Juin 2010.
- [61] Agence Nationale pour la gestion des Déchets RadioActifs. *Un centre de stockage pour les déchets HA et MA-VL*. Site <http://www.andra.fr/>, consulté en Juin 2010.
- [62] A. LEUDET. *Transmutation et thermique du stockage*. Audition CNE, Les enjeux de la transmutation, 18 Décembre 2008.
- [63] S. DAVID et al. *Déchets radioactifs à vie longue. Quels scénarios pour le futur?* Présentation au Débat Public sur les Déchets Radioactifs, Octobre 2005.
- [64] *OCDE* Site <http://www.oecd.org>, consulté en Juillet 2010.
- [65] *La loi "déchets"*. Site <http://www.asn.fr/index.php/S-informer/Dossiers/>, consulté en Juillet 2010.
- [66] A. VASILE et al. *Fast reactors fuel cycle core physics results from the CAPRA-CADRA programme*. Proceedings of Global 1995, Paper FP095, 1995.
- [67] J. ROUAULT et al. *The design of U free large fast reactor cores. The CAPRA programme trends*. International Conference on the Physics of Reactors, pp. H11-H20, MITO, Japon, 1996.

- [68] K.G. ALLEN et al. *Neutronics and safety studies of a CAPRA uranium free*. International Conference on the Physics of Reactors, pp. H21-H30, MITO, Japon, 1996.
- [69] J.C. GARNIER et al. *CAPRA oxide core updating of the feasibility assessment*. International Conference on the Physics of Reactors, pp. H31-H40, MITO, Japon, 1996.
- [70] A. LANGUILLE et al. *CAPRA core studies. The oxide reference option*. Proceedings of Global 1995, Versailles, FRANCE, 1995.