



Gestion avancée du Plutonium en REP Complémentarité des cycles thorium et uranium

Marc Ernoult

► To cite this version:

Marc Ernoult. Gestion avancée du Plutonium en REP Complémentarité des cycles thorium et uranium. Physique Nucléaire Théorique [nucl-th]. Université Paris Sud - Paris XI, 2014. Français. NNT : 2014PA112333 . tel-01138550

HAL Id: tel-01138550

<https://theses.hal.science/tel-01138550>

Submitted on 2 Apr 2015

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

ERNOULT Marc

*Pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences
de l'Université Paris Sud*

Gestion avancée du Plutonium en REP Complémentarité des cycles thorium et uranium

Soutenue le 21 novembre 2014

Composition du Jury :

Président du Jury :	M. BLUMENFELD Yorick	<i>DR, CNRS/IPN-Orsay</i>
Rapporteurs :	M. DUMONTEIL Eric	<i>Ingénieur-Chercheur, CEA/SERMA</i>
	M. RUBIOLO Pablo	<i>Professeur, Grenoble-INP</i>
Examineurs :	M. GALL Benoit	<i>Professeur, Université de Strasbourg</i>
	Mme VEZZONI Barbara	<i>Chercheur, KIT</i>
Directeur de thèse :	M. DAVID Sylvain	<i>CR, CNRS/IPN-Orsay</i>
	M. VAN DEN DURPEL Luc	<i>AREVA Corporate R & D</i>

Remerciements

Remerciements

En premier lieu je tiens à remercier Faïçal Azaiez et toute l'équipe de direction de l'Institut de Physique Nucléaire d'Orsay pour m'avoir accueilli dans leur laboratoire au cours de ces trois années de thèse.

Naturellement mes remerciements les plus sincères vont à Sylvain David. Et pas seulement parce qu'il m'a proposé ce sujet de thèse plus qu'intéressant et qu'il finit par devenir mon directeur de thèse, mais aussi pour tout ce qu'il m'a appris autant sur la physique que sur le métier de chercheur. Je tiens aussi à le remercier pour les nombreuses discussions enflammées qui ont donné vie à la science pendant ma thèse ainsi que pour tous les efforts qu'il a fait lors du lancement de la collaboration avec Areva pour le financement de ma thèse. A ce propos, je ne peux pas oublier les équipes d'Areva et spécialement Luc Van Den Durpel qui non seulement ont accepté de soutenir financièrement ma thèse, mais aussi ont suivi régulièrement mon travail. Je remercie Luc pour avoir trouvé du temps pour mon travail malgré l'intensité de son emploi du temps et pour la densité scientifique qui caractérisa chacune de nos rencontres. Je remercie également Bernard Berthier qui fut un temps mon directeur de thèse et qui malgré le temps limité que lui laissait ses responsabilités auxquelles il était appelé dans des masters ou des laboratoires plus ou moins lointains, s'est toujours intéressé à moi à mon travail.

Je tiens aussi à remercier Eric Dumonteil et Pablo Rubiolo qui furent les rapporteurs de cette thèse. Les commentaires et remarques qu'ils m'ont fait et m'ont permis d'amener mon manuscrit à ce qu'il est désormais et qui sont les témoins du temps et de l'intérêt qu'ils ont porté à mon travail et dont je ne peux les remercier assez. Je remercie aussi Barbara Vezzoni, Yorick Blumenfeld et Benoit Gall pour avoir accepté d'être dans mon jury et pour l'intérêt qu'ils ont porté à mon travail même si il n'était pas forcément exactement au centre de leur domaine de recherche habituel.

Peut-être moins présents dans les papiers officiels, je n'oublie cependant pas Xavier Doligez avec qui j'ai partagé mes premiers mois dans un bureau mémorable quand il n'était encore qu'un post-doc et qui, après son retour, m'a soutenu au jour le jour dans mes questionnements et mes accomplissements et m'a permis de clarifier mes idées lors des discussions avec Sylvain. Je pense aussi à Pierre Halipré, compagnon de bureau pendant deux années entières qui m'embarquait dans des pauses salvatrices durant lesquelles nous discutons aussi bien des problèmes de science ou de code qui nous prenaient la tête que des répétitions de musiques qui nous attendaient à le soir. Je remercie aussi les autres membres du groupe PACs pour l'accueil chaleureux et sympathiques qu'ils m'ont fait, spécialement Charles-Olivier Bacri et Laurent Audoin qui n'ont jamais rechigné à signer les papiers administratifs

dont j'avais besoin même si je ne m'y prenais pas toujours spécialement à l'avance.

Même s'il cela fait un an qu'il est parti de l'IPN, je tiens aussi à remercier Baptiste Leniau avec qui j'ai partagé mes deux premières années de thèses, pauses mais aussi exploration du code source de MURE, et avec qui j'ai eut le plaisir de continuer à travailler jusqu'à la fin de ma thèse même après son départ pour Subatech. Je remercie aussi l'autre Baptiste de Subatech, Baptiste Mouginot, pour l'ensemble de son travail sur CLASS pour le code bien sur, mais aussi pour les efforts qu'il a fait pour que son code soit compréhensible et accessible, pour les discussions sur les méthodes au coeur de son code, et sa capacité à défendre ses choix sans pour autant avoir peur de tout remettre en cause et de tout recommencer quand cela était nécessaire.

Je tiens également à mentionner ici mes voisines de bureau, Aurélie, Maud et Yiman. Bien que nos sujets de thèse n'aient pas forcément beaucoup de recouvrement, on a partagé de bon moment ensemble et leur enthousiasme a permis de donner une vraie dynamique à ce petit coin du bâtiment ainsi qu'à la communauté des thésards de l'IPN. Ces thésards de l'IPN je tiens à les remercier également pour les moments passés ensemble et parce qu'ils m'ont permis de m'ouvrir à des aspects de la physique nucléaire que je ne connaissais pas.

Je remercie également les participants des projets NEEDS M2C2, DOSE et COMPRIS. Travailler au sein de ces projets fut très enrichissant et m'a fait comprendre énormément de choses.

Pour finir, je ne peux pas m'empêcher de remercier les membres du CS du groupe PACS. Gérard Lambert, Sheldav, BlindShoot, DontShoot, Tomgorb, LittlePony et Ouida qui m'ont fait découvrir une deuxième facette de leur identité lors de ces moments passés ensemble et qui ont su faire vivre ce qui est désormais une institution traditionnelle du groupe PACs et qui, j'ose y croire, continuera encore longtemps après mon départ.

Table des matières

Table des Matières	9
Introduction	11
I Cadre de L'étude	13
1 Autour de la gestion du plutonium	15
1.1 L'énergie nucléaire dans le monde	15
1.2 Gestions du combustible utilisé	16
1.2.1 Le cycle UOX ouvert	16
1.2.2 Le mono-recyclage du plutonium en REP	17
1.2.3 La stratégie française de référence : vers un parc de RNR	20
1.2.4 Difficultés du stockage du plutonium	21
1.2.5 Stratégies alternatives pour pallier aux retards possibles de la stratégie de référence : les RNR	24
1.3 Deux bases pour le multi-recyclage : uranium et thorium	26
1.3.1 Propriétés neutroniques	26
1.3.2 Propriétés thermiques	30
1.4 Résumé et Conclusions du chapitre	30
2 Scénarios de multi-recyclage	31
2.1 Scénarios électro-nucléaires	31
2.1.1 Définir un scénario	31

TABLE DES MATIÈRES

2.1.2	De la difficulté à déterminer certains paramètres	32
2.2	Le cycle du combustible de base	33
2.3	Scénarios standardisés en vue d'une comparaison	35
2.4	Les scénarios étudiés	36
2.4.1	Explorer les scénarios possibles	36
2.4.2	Recyclage homogène du plutonium : multiUePu	36
2.4.3	Séparation entre la production et la consommation de pluto- nium : multiUPu	37
2.4.4	Introduction du thorium : multiThUPu	38
2.4.5	Séparation entre la production et la consommation d'uranium : multiThU	39
2.4.6	Scénarios ouverts associés	40
2.5	Scénarios à l'équilibre	41
2.5.1	Définition d'un scénario à l'équilibre	41
2.5.2	Apports des scénarios à l'équilibre	43
2.6	Résumé et Conclusions du chapitre	43
3	Outils et Méthodes	45
3.1	MURE	45
3.1.1	Résolution numérique des équations de Bateman	45
3.1.2	Calcul du transport des neutrons par la Méthode de Monte-Carlo	47
3.1.3	Couplage	49
3.2	Calcul assemblage	50
3.2.1	Définition du calcul assemblage	50
3.2.2	Effet des hypothèses du modèle	54
3.2.3	Autres approximations effectuées	59
3.3	Résumé et Conclusions du chapitre	65

II	Étude à l'équilibre	67
4	Simuler un scénario à l'équilibre	69
4.1	Définition pratique de l'équilibre	69
4.1.1	Paramètres fixés et observables	69
4.1.2	Un indicateur unique d'équilibre	73
4.2	Calculer chi	75
4.2.1	Une formule physique pour chi	75
4.2.2	Une méthode numérique pour calculer chi	78
4.2.3	Convergence de chi et équilibre	80
4.3	Résumé et Conclusions du chapitre	82
5	Résultats avec des assemblages homogènes	83
5.1	Parcs à l'équilibre	83
5.2	Analyse neutronique	89
5.2.1	Comparaison générale	89
5.2.2	Comparaison détaillée des scénarios multiUPu et multiThUPu	91
5.3	Ressources	97
5.4	Fabrication du combustible et radioprotection	99
5.5	Analyse des paramètres de sûreté de base	101
5.5.1	Neutrons retardés	102
5.5.2	Contre-réactions	105
5.6	Déchets	106
5.7	Résumé et Conclusions du chapitre	110
6	Études d'assemblages hétérogènes	111
6.1	Présentation des scénarios avec assemblages hétérogènes	111
6.1.1	Cycle uranium seul	111
6.1.2	Cycle thorium	114
6.2	Parcs à l'équilibre	115

TABLE DES MATIÈRES

6.3	Analyse neutronique	116
6.4	Ressources	119
6.5	Analyse des paramètres de sûreté	120
6.6	Inventaires en cycle	121
6.7	Déchets	122
6.8	Résumé et Conclusions du chapitre	124
 III Vers des scénarios de transition		125
7	Le Code CLASS : : Core Library for Advanced Scenarios Simulations	127
7.1	Structure du Code	127
7.1.1	Présentation du Code	127
7.1.2	Principe général de CLASS	128
7.2	Constituer les bases d'une DataBank	130
7.2.1	Rôle et principe de base d'une DataBank	130
7.2.2	Définir les limites de la DataBank	130
7.2.3	Générer une DataBank	132
7.3	Construire un combustible : le Modèle d'équivalence	135
7.3.1	Méthode utilisant les sections efficaces : fissile équivalents	135
7.3.2	Principes généraux sur les modèles d'équivalence numériques	138
7.3.3	Modèle d'équivalence numérique par méthode linéaires directes	141
7.3.4	Modèle d'équivalence numérique par méthode itérative	143
7.3.5	Comparaison des Méthodes	144
7.4	Faire évoluer un combustible : le modèle d'irradiation	146
7.4.1	Principe du modèle d'irradiation : faire évoluer la composition isotopique sous irradiation	146
7.4.2	EvolutionData fixes	147
7.4.3	EvolutionData dynamiques	148
7.4.4	Proximité d'une <i>EvolutionData</i> à un vecteur isotopique	149

TABLE DES MATIÈRES

7.4.5	Évaluation de la qualité du modèle d'irradiation	152
7.5	Résumé et Conclusions du chapitre	160
8	Validation sur les calculs à l'équilibre	161
8.1	Scénarios simulés	161
8.1.1	Scénarios considérés	161
8.1.2	Retrouver l'équilibre	162
8.2	Les spécificités des scénarios hors équilibre	163
8.2.1	Segmentation des réacteurs	163
8.2.2	Effet du choix de la DataBank	165
8.3	Comparer les équilibres donnés par CLASS et par MURE	167
8.3.1	Les Parcs obtenus	168
8.3.2	Les combustibles au sein des réacteurs	169
8.3.3	La production d'actinides mineurs	172
8.4	Résumé et Conclusions du chapitre	174
	Conclusion	175
	Table des Tableaux	181
	Table des Figures	186
	Table des Acronymes	187
	Bibliographie	188

TABLE DES MATIÈRES

Introduction

Le dérèglement climatique, la finitude des ressources fossiles et le fort développement économique de pays émergents laissent présager un recours de plus en plus important à l'énergie nucléaire.

Néanmoins, l'accident de Fukushima a mis un coup de frein à l'enthousiasme qui existait autour de l'énergie nucléaire au début des années 2000. Dans ce cadre le futur de l'énergie nucléaire est un domaine ouvert sur lequel de nombreuses études sont effectuées.

Le recyclage du plutonium est un élément au centre des préoccupations de la majeure partie des études sur le futur de l'énergie nucléaire, aussi bien à court terme dans des combustibles MOX, qu'à plus long terme au cœur de réacteurs de quatrième génération (Gen. IV). Les quantités et la composition isotopique du plutonium sont des paramètres clés pour l'évaluation des stratégies de gestion du plutonium. Elles déterminent les possibilités qu'elles ouvrent ou qu'elles ferment pour les stratégies qui leur succéderont.

Le multi-recyclage du plutonium en réacteurs à eau pressurisé (REP) est un sujet largement étudié[1, 2]. Nous y contribuons en étudiant un panorama le plus large possible des stratégies. Pour cela un grand nombre de scénarios ont été étudiés. Ils mettent à profit les capacités de conversion non seulement de l'uranium mais aussi du thorium, seul autre actinide présent naturellement sur Terre et placent le plutonium recyclé dans des conditions variées.

La comparaison de ces scénarios entre eux dans des cadres très contrôlés permet de comprendre en profondeur leurs spécificités et de remonter aux paramètres physiques qui sont à l'origine de ces caractéristiques. Elle permet également de mener une étude objective sur les avantages et les inconvénients des différentes stratégies de multi-recyclage et de définir des pistes d'optimisation à explorer.

La présentation de ce panorama et son analyse s'organisent en trois grandes

parties.

La première partie présente le contexte et les outils utilisés lors de cette étude. Après une discussion rapide autour du statut du plutonium et des deux options uranium et thorium qui sont envisagées dans ce travail, les caractéristiques et les spécificités de l'étude de scénarios sont définies. Ensuite les huit scénarios choisis pour représenter le panorama étudié sont présentés. Cette première partie se termine par un point sur les codes de simulation utilisés et les hypothèses effectuées et une discussion sur les conséquences des simplifications proposées.

La seconde partie regroupe les résultats liés à l'étude de l'état d'équilibre des scénarios effectuée avec le code MURE. Tout d'abord, les méthodes spécifiques à la détermination et à l'étude de l'équilibre sont présentées. Ensuite, les états d'équilibre des différents scénarios utilisant des assemblages combustibles homogènes, c'est à dire où tous les crayons contiennent le même combustible, sont analysés et comparés entre eux. Les résultats obtenus montrent les limites du recyclage homogène du plutonium, notamment avec le cycle thorium et nous explorons donc l'intérêt d'assemblages hétérogènes où des crayons contenant des combustibles différents sont regroupés.

Les scénarios à l'équilibre étant calculés avec précision, nous avons participé au développement d'un code de scénario, le code CLASS, permettant l'étude des transitions. La troisième partie présente les développements que nous avons pris en charge au sein de ce code et les résultats obtenus sur des scénarios du panorama étudié. Elle commence par une présentation du code CLASS, des principes qui le sous-tendent et des algorithmes qui y sont utilisés en se concentrant notamment sur les modèles d'équivalence et d'irradiation. Nous avons en particulier construit et analysé différentes méthodes dédiées au cycle thorium en REP. Cette dernière partie se termine par la présentation de résultats de simulation avec CLASS de certains scénarios définis dans la première partie qui permet de faire ressortir les spécificités des scénarios de transitions et d'utiliser ces cas particuliers pour identifier les biais introduits par le code et identifier les points sur lesquels le développement futur devra se concentrer pour diminuer ces biais dans le futur.

Première partie

Cadre de L'étude

Chapitre 1

Autour de la gestion du plutonium

1.1 L'énergie nucléaire dans le monde

En 2011, la production d'énergie nucléaire par l'exploitation de l'énergie de fission est développée dans de nombreux pays. 440 réacteurs nucléaires répartis dans une trentaine de pays développent une puissance électrique de 375 GW [3]. Seul un nombre très limité de types de réacteur sont représentés parmi ces réacteurs nucléaires producteurs d'électricité. Les réacteurs actuellement en fonctionnement sont principalement répartis entre quatre types que sont les réacteurs à eau pressurisée, les réacteurs à eau bouillante, les réacteurs à eau lourde de modèle CANDU et les réacteurs refroidis au gaz [3]. Les Réacteurs à Eau Pressurisée (REP) constituent la grande majorité des réacteurs existants et en construction dans le monde et la totalité en France comme le montre le tableau 1.1.

	Part de la puissance	part des réacteurs
Monde 2011	67.7%	62.6%
France 2011	100%	100%
En construction 2011	94.0%	88.7%

TABLE 1.1 – les REP dans le Monde [3]

Le matériau fissile d'intérêt principal pour ces réacteurs à eau pressurisée est l' ^{235}U , seul noyau fissile naturel, c'est à dire seul noyau présent dans la nature qui peut fissionner suite à l'absorption d'un neutron de n'importe quelle énergie (et donc d'un neutron de faible énergie comme ceux présents dans les REP). Il est à l'origine de la majorité des fissions dans ces réacteurs et c'est la quantité d' ^{235}U présente dans

un combustible en début de cycle qui contrôle presque directement l'énergie qu'on peut en extraire. L' ^{235}U est disponible au sein des ressources en uranium naturel, qui en contient 0.7%. Ces ressources en uranium estimées sont aujourd'hui entre 5 et 10 millions de tonnes [4]. Cette quantité peut sembler très importante, néanmoins la consommation mondiale actuelle s'élève à un peu plus de 65 000 tonnes d'uranium par an. Cette consommation vient du fait que chaque réacteur à eau pressurisée de 1 GWe a besoin d'environ 1 tonne d' ^{235}U par an, ce qui demande l'extraction de 200 tonnes d'uranium naturel qu'il faut ensuite enrichir. Les réserves de 5 Mt correspondent donc seulement à moins d'une centaine d'années de production d'énergie avec la consommation actuelle, une consommation qui aurait plutôt tendance à augmenter avec le développement possible du nucléaire dans des pays comme la Chine ou l'Inde. Lors de la fabrication du combustible à l'uranium enrichi à partir de l'uranium naturel, environ 180 tonnes d'uranium appauvri sont produites pour chaque GWe.an. Cet uranium appauvri reste, pour la grande majorité, inutilisé ce qui a conduit à des stocks très importants qui augmentent chaque année.

1.2 Gestions du combustible utilisé

1.2.1 Le cycle UOX ouvert

Le cycle du combustible qui a été le plus mis en œuvre à travers le monde est le cycle UOX ouvert. Il a été mis en place en France depuis le démarrage des premiers REP dans les années 1970 jusqu'aux années 1990 où le plutonium commença à être recyclé [5]. Ce cycle est décrit dans la figure 1.1. L'uranium naturel extrait de la mine est enrichi en ^{235}U afin d'en faire un combustible, nommé UOX composé uniquement d'oxyde d'uranium. L'enrichissement de cet uranium est adapté afin de permettre d'atteindre le burn-up souhaité¹. Ensuite ce combustible est irradié en réacteur où il produit de l'énergie. Cette énergie est avant tout une énergie thermique, dont la puissance est mesurée en GW_{th} , puis elle est ensuite convertie en puissance électrique, dont la puissance est mesurée en GW_e , avec une efficacité proche de 33%. Après l'irradiation, ce combustible séjourne un temps dans une piscine de refroidissement. Quand sa puissance résiduelle est suffisamment basse (de l'ordre de 60 kW par chœur

1. Le burn-up est une grandeur qui mesure le taux de combustion d'un combustible. Il quantifie l'énergie thermique qui a été extraite de ce combustible. L'unité usuelle pour cette grandeur est le $\text{GW}_{th}\text{j}/t_{NL}$: le nombre de GWj d'énergie thermique produite normalisé par le nombre de tonnes de noyaux lourds présents initialement dans le combustible.

1.2. GESTIONS DU COMBUSTIBLE USÉ

de transport [6]) il peut être déplacé vers d'autres piscines d'entreposage ou pris en charge pour un traitement spécifique.

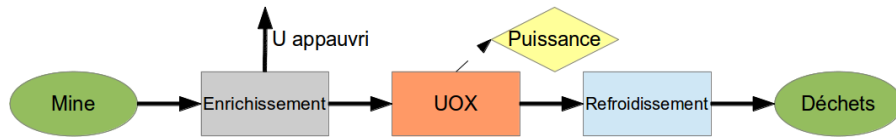


FIGURE 1.1 – Principe du cycle UOX ouvert

Lors de cette irradiation en réacteur, du plutonium, qui n'existe pas dans la nature, est produit par captures successives sur ^{238}U . Un réacteur d'une puissance électrique de 1 GW produit environ 250 kg de plutonium par an (cf. benchmark [7, 8]). Divers isotopes sont produits simultanément dans les proportions présentées dans le tableau 1.2. Deux de ces isotopes, le ^{239}Pu et le ^{241}Pu , sont des isotopes fissiles. Ces isotopes fissiles constituent la majorité des noyaux de plutonium produit par l'irradiation de combustible UOX.

^{238}Pu	^{239}Pu	^{240}Pu	^{241}Pu	^{242}Pu
2.7%	51.2%	24.2%	14.7%	7.2%

TABLE 1.2 – Vecteur isotopique typique du Plutonium issu d'un combustible UOX irradié jusqu'à 50 GWj/t[7, 8]

Dans le cycle UOX ouvert, l'uranium contenu dans les combustibles usés contient encore une part non négligeable d' ^{235}U et de nombreux acteurs du nucléaire, dont EDF en France, explorent le retraitement et l'utilisation de cet uranium de retraitement (URT) qui suite à un ré-enrichissement (URE) peut servir à fabriquer de nouveaux combustibles UOX. Ce retraitement de l'uranium n'a pas été considéré dans ce travail concentré sur la gestion du plutonium, mais son effet sur les résultats est discuté rapidement, notamment au niveau de la consommation de ressources (cf paragraphe 5.3).

1.2.2 Le mono-recyclage du plutonium en REP

Depuis les années 1990, les réacteurs français recyclent une partie du plutonium produit dans les combustibles UOX au sein de combustibles mixtes uranium-

1.2. GESTIONS DU COMBUSTIBLE USÉ

plutonium, appelés MOX (pour Mixed OXide). Ces combustibles sont fabriqués en mélangeant de l'uranium appauvri avec du plutonium obtenu par séparation chimique des combustibles UOX usés. Utilisant seulement du plutonium produit dans les combustibles UOX et de l'uranium appauvri produit en grande quantité lors de la fabrication des combustibles UOX, les combustibles MOX ne consomment aucune ressource naturelle supplémentaire. Toute énergie produite par des combustibles MOX entraîne donc une diminution de la consommation en uranium naturel du parc nucléaire considéré.

Le plutonium disponible doit être concentré à hauteur d'environ 8% au sein des combustibles MOX afin d'atteindre des burn-up compatibles avec les stratégies actuelles (de l'ordre de 40 GWj/t). Pour produire la quantité de plutonium nécessaire à la fabrication d'un assemblage MOX, il faut ainsi 7 assemblages UOX comme on le montrera par la suite dans le paragraphe 5.1. La part totale d'assemblages MOX dans le parc français s'élève ainsi autour de 12.5% ce qui conduit à une baisse de la consommation en uranium naturel de la même proportion. Ces assemblages MOX sont placés au sein des réacteurs de 900MWe qui ne constituent qu'une partie des réacteurs français. 30% de leurs assemblages sont alors remplacés par des assemblages MOX. Lors du traitement d'un combustible UOX pour en extraire le plutonium nécessaire à la construction de combustible MOX, les produits de fission et les actinides mineurs sont placés au sein de matrices de verre conçues pour être disposées directement dans les installations de stockage. Les MOX usés ne sont pas retraités et sont stockés en vue d'être valorisés au sein de réacteurs dans le futur car ils contiennent encore du plutonium.

La figure 1.2 compare la radio-toxicité par ingestion des matières d'une stratégie UOX ouvert (UOX usés) avec celle des matières produites par le mono-recyclage du plutonium. Nous représentons dans cette figure la radiotoxicité des déchets ultimes vitrifiés (les verres) ainsi que celle des MOX usés considérés aujourd'hui comme matières valorisable. Si le nucléaire devait s'arrêter à court terme, ces MOX usés deviendraient de facto des déchets, plus importants en terme de radiotoxicité que les déchets vitrifiés contenant uniquement des produits de fissions et des actinides mineurs (voir figure 1.2). Ces courbes sont bien entendu convenablement normalisées à l'énergie totale produite et sont donc directement comparable.

Les déchets potentiels de la stratégie de mono-recyclage du plutonium correspondent à la somme de ceux de l'assemblage MOX ainsi que des 7 verres issus du retraitement de 7 UOX usés. Après la phase de retraitement nécessaire pour ex-

1.2. GESTIONS DU COMBUSTIBLE USÉ

traire le plutonium des assemblages UOX, les produits de fissions et les actinides mineurs placés dans les verres sont les seuls déchets restant en provenance de ces assemblages. Les déchets totaux potentiels de cette stratégie de mono-recyclage du plutonium sont donc l'assemblage MOX usé plus les verres issus des 7 assemblages UOX associés. Les déchets équivalents produits par la stratégie UOX ouvert sont les 8 assemblages UOX usés, quantité choisie afin de produire la même quantité d'énergie que la référence d'un assemblage MOX plus 7 assemblages UOX représentant la stratégie de mono-recyclage du plutonium.

En comparant ces deux options, on remarque que la radio-toxicité issue de la stratégie MOX (assemblage MOX + 7 verres) est quasiment identique à la radio-toxicité de la stratégie UOX ouvert (8 assemblages UOX). La seule différence visible se situe après un million d'année. Il s'agit d'un artefact, du fait que nous n'ayons pas pris en compte l'uranium issu des assemblages UOX qui sont recyclés pour faire du MOX, qui ne se retrouve ni dans le MOX ni dans les verres alors qu'il est contenu dans les UOX usés. Or après un million d'année c'est l' ^{238}U et ses descendants qui dominent la radio-toxicité.

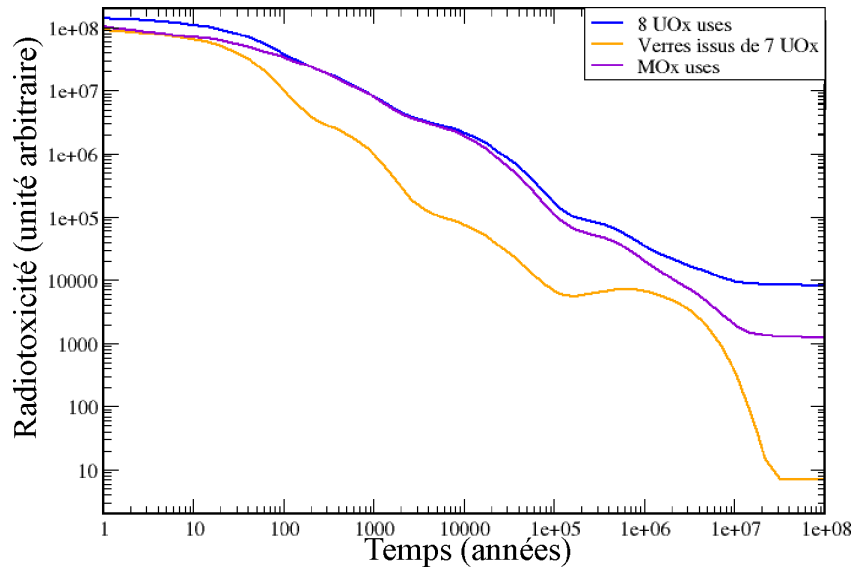


FIGURE 1.2 – Comparaison de la radio-toxicité par ingestion (en Sv) de la stratégie de mono-recyclage avec le cycle UOX ouvert selon le temps après irradiation (en années).

Cette stratégie de mono-recyclage du plutonium n'a donc pas d'effet notable sur la radio-toxicité des déchets potentiels en cas d'arrêt du nucléaire à court terme.

1.2.3 La stratégie française de référence : vers un parc de RNR

Dans l'optique d'un développement massif du nucléaire et au regard des réserves relativement limitées d'uranium naturel mentionnées au début de ce chapitre, des réacteurs ont été conçus afin d'exploiter au mieux les possibilités énergétiques de l'uranium : les réacteurs à neutrons rapides, ou RNR. Ces réacteurs ont été conçus pour pouvoir recycler à l'infini le plutonium qui y est produit et pour produire autant de plutonium qu'ils n'en consomment par capture neutronique sur l' ^{238}U . De tels réacteurs, une fois démarrés, n'ont donc plus besoin d'apport de matière fissile et consomment uniquement de l' ^{238}U . L'uranium appauvri déjà accumulé représenterait alors des ressources suffisantes pour des milliers d'années et l'uranium naturel non extrait pour des dizaines de milliers d'années. Ces réacteurs, pour démarrer, nécessitent cependant de grandes quantités de plutonium, noyau artificiel uniquement produit dans les réacteurs nucléaires. Ce plutonium est alors considéré comme une ressource de grande valeur.

Le développement d'un parc entièrement constitué de tels réacteurs, des RNR régénérateurs, est la stratégie de référence considérée en France pour le développement à long terme de l'énergie nucléaire [9, 10]. Cette stratégie n'est pas actuellement directement mise en place pour différentes raisons. Tout d'abord les RNR, même ceux de technologie sodium qui sont les mieux connus, sont des réacteurs plus complexes que les REP et ne sont pas encore disponibles au niveau industriel [11]. Construire de tels réacteurs est donc plus onéreux que de construire des REP et ne peut devenir rentable que si le prix de l'uranium augmente jusqu'à que la différence d'exploitation de cette ressource entre les deux concepts compense la différence de prix de construction. De plus, si une fois démarrés, ces réacteurs sont libérés du besoin en matériaux fissiles, il faut néanmoins charger une grosse quantité de plutonium à leur démarrage. Ainsi pour démarrer un RNR de 1 GWe, il faut disposer de 15 à 20 tonnes de plutonium [9]. Pour remplacer les 60 GWe du parc nucléaire français par des RNR, il faut alors 900 à 1200 t de plutonium [9] alors que nous ne disposons aujourd'hui que de 300 t environ. Finalement pour pouvoir tirer parti pleinement de la régénération au sein de ces réacteurs, leurs combustibles usés doivent être recyclés efficacement en récupérant l'uranium et le plutonium qui s'y trouvent. Si le développement des méthodes fabrication de ces combustibles MOX et l'expérience qui a été acquise pendant les 20 dernières années ont permis de faire de grandes avancées sur ce sujet, les processus qui devront être mis en place en cas de déploiement

1.2. GESTIONS DU COMBUSTIBLE USÉ

massif de RNR lèvent de nouvelles difficultés dues aux quantités plus importantes de plutonium manipulées, qui ne sont pas encore complètement résolues [11].

Comme le plutonium n'est pratiquement pas présent dans la nature, le seul plutonium disponible est celui produit dans les réacteurs nucléaires. Les REP utilisant du combustible UOX, qui constituent la majorité des réacteurs dans le monde, produisent environ 250 kg de plutonium par GWe.an. Avec une puissance telle que celle du parc français, on peut ainsi produire environ 15 tonnes par an. Ce qui permet de produire le plutonium suffisant en 80 à 100 ans. Le parc de REP français existe depuis près de 40 ans, cette durée est donc comparable aux réalités industrielles. Cependant pour des raisons de résistance à la prolifération et de sûreté dans les entrepôts, il n'est pas envisageable de stocker 900 tonnes de plutonium pur sur des étagères pour les utiliser des dizaines d'années plus tard dans un réacteur. Il faut donc entreposer les combustibles usés avant séparation. Dans un cycle UOX ouvert, le plutonium ne constitue que 1% du combustible usé, pour obtenir 900 t de plutonium, il faudrait donc stocker 90 000 tonnes de combustibles usés dans des entrepôts dédiés.

L'application de la stratégie de recyclage du plutonium telle qu'elle a été mise en place en France depuis plus de 20 ans, permet de concentrer le plutonium tout en maintenant une résistance à la prolifération. En effet au sein des combustibles MOX usés, on trouve 6% de plutonium, soit 6 fois plus que dans un combustible UOX usé, ce qui permet de baisser la quantité de combustible usé à recycler au moment de la fabrication des combustibles de démarrage de RNR, et donc de réduire la surcharge des installations de recyclage à ce moment là. De plus, cela réduit la quantité de combustible usé à entreposer avant de démarrer les RNR voulus de 90 000 tonnes à 15 000 tonnes environ.

1.2.4 Difficultés du stockage du plutonium

En l'absence de stratégie de recyclage, le plutonium doit être stocké sur le long terme. La radiotoxicité et la chaleur résiduelle sont deux grandeurs importantes pour caractériser la dangerosité qu'il peut exister suite à un tel stockage. La contribution du plutonium à chacune de ces grandeurs est discutée dans les paragraphes qui suivent.

1.2.4.1 La Radio-toxicité

La radio-toxicité par ingestion est une grandeur globale qui permet de quantifier la dangerosité d'un ensemble de radionucléides. Elle mesure les dégâts radiologiques que subirait un individu suite à l'ingestion de cet ensemble de radionucléides [12, 13]. Elle prend en compte l'énergie et le type de particule émise. De plus des coefficients y sont incorporés afin de prendre en compte l'interaction spécifique de chaque élément avec le corps humain, considérant que chaque élément se fixe dans des organes différents et a un temps de résidence spécifique à ses affinités chimiques et biologiques. Tous ces paramètres, qui modifient les effets qu'un radionucléide peut avoir sur le corps humain, sont intégrés au sein de la radio-toxicité permettant de construire une grandeur globale et comparable entre différents ensembles de radionucléides. Même si l'ingestion du combustible usé par un individu est peu probable, ce critère est utile pour avoir une vision globale de la dangerosité de l'ensemble des radionucléides contenus dans les déchets, à travers une valeur unique, qui permet une comparaison directe entre divers combustibles ou déchets.

Il existe plusieurs manières de décomposer l'évolution de la radiotoxicité d'un stock de radionucléides. La première consiste à comptabiliser à l'instant t la contribution des différents isotopes présents dans le stock à cet instant. La seconde consiste à comptabiliser à l'instant t la radiotoxicité induite par un isotope père présent à l'instant initial. On parle alors de radiotoxicité partielle par père [12]. Ceci permet donc de déterminer l'impact des isotopes initiaux sur la radiotoxicité à long terme même si les noyaux pères ont disparu pour laisser la place à leurs descendants. Ainsi la courbe labellisée Pu dans la figure 1.3 représente la radio-toxicité de tous les descendants des isotopes du plutonium qui sont apparus lors des décroissances ayant eu lieu entre la fin du refroidissement, soit 5 ans après la fin de l'irradiation dans le cas considéré, et la date considérée.

Sur la figure 1.3, on observe que, dans le cas du cycle UOX ouvert, le plutonium est responsable que la quasi-totalité de la radio-toxicité du combustible usé pendant une longue période s'étendant de 30 à 100 000 ans après la fin de l'irradiation.

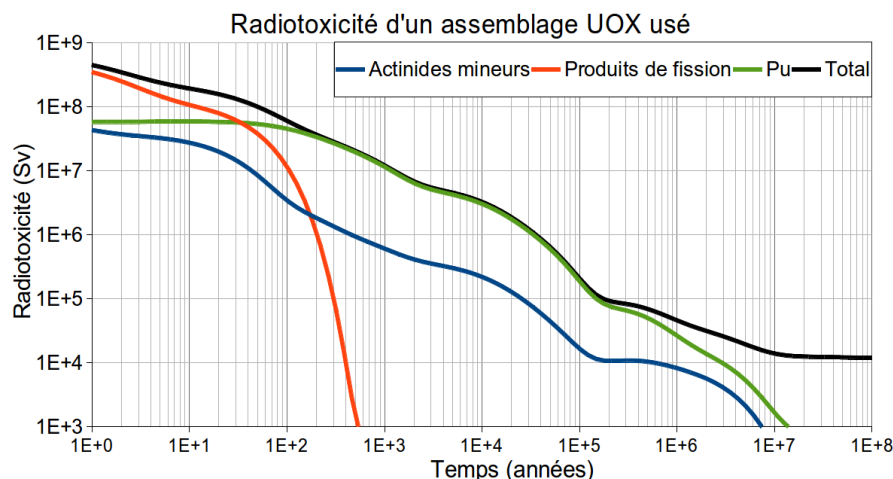


FIGURE 1.3 – Radiotoxicité par ingestion par pères d'un assemblage UOX usé

En cas d'absence de stratégie de gestion du plutonium qui conduirait à son stockage pendant une longue durée, il est donc l'élément le plus dangereux et est donc au centre des préoccupations pour la gestion des combustibles usés.

1.2.4.2 La Chaleur résiduelle

La chaleur résiduelle est la chaleur que le combustible continue à dégager par décroissance radioactive après l'arrêt de la réaction en chaîne. Au cours de l'irradiation, un grand nombre d'isotopes, de plus ou moins courtes durées de vie, sont créés dans le combustible. C'est la décroissance radioactive de ces isotopes, principalement des produits de fission et des actinides mineurs, qui a lieu une fois le combustible sorti du cœur du réacteur qui produit la chaleur résiduelle. Cette chaleur résiduelle décroît de façon approximativement exponentielle après l'arrêt du réacteur.

La chaleur résiduelle à court terme conditionne les précautions à prendre lors de la manipulation et le transport des combustibles. Elle est également responsable du risque de fusion du cœur en situation accidentelle. Sa connaissance est essentielle à la conception de ces opérations. Cependant, concernant le combustible juste à la sortie du cœur, elle n'est pas modifiée directement par les stratégies de gestion du plutonium, puisque le combustible usé séjourne plusieurs années en piscine de refroidissement avant d'envisager tout retraitement.

En revanche, la chaleur résiduelle à plus long terme, présentée dans la figure 1.4, est celle que dégageraient les éléments envoyés aux déchets si on ne faisait rien du

1.2. GESTIONS DU COMBUSTIBLE USÉ

plutonium. Elle conditionne la surface de l'espace de stockage : plus les colis sont chauds, plus ils doivent être éloignés les uns des autres dans les installations de stockages, et donc plus les surfaces nécessaires à leur stockage sont importantes. Le véritable critère pour le maintien de l'intégrité des colis est leur température dont l'évolution est directement liée à la puissance résiduelle. Suivant les conditions de stockage, cette température maximale sera atteinte entre quelques dizaines d'années et quelques siècles après la mise des colis dans l'espace de stockage. Seule la chaleur résiduelle jusqu'à cette date est donc significative. Étant donné que le colis est placé dans l'espace de stockage plusieurs dizaines d'années après la fin de l'irradiation, la chaleur résiduelle durant le premier millénaire après l'irradiation donne toutes les informations d'intérêt. Or la figure 1.4 montre que le plutonium est, à partir de 80 ans après l'irradiation, le principal émetteur de chaleur, il produit même quasiment toute la chaleur comme le montre le très faible écart dans la figure entre la courbe représentant la chaleur émise par le plutonium et la chaleur totale émise.

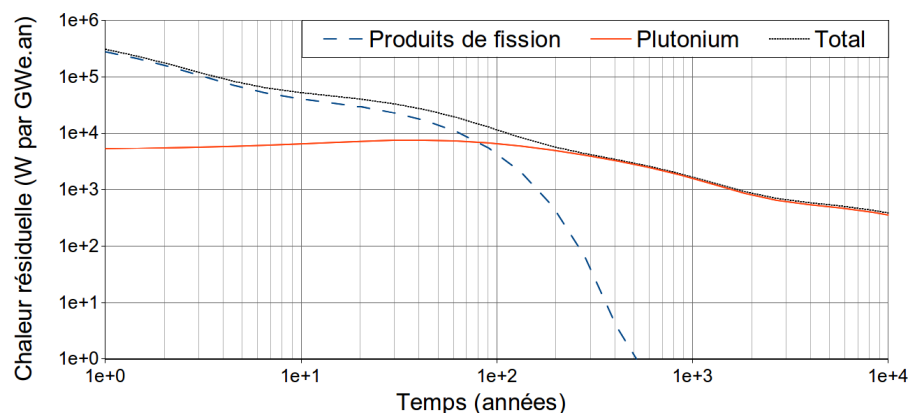


FIGURE 1.4 – Chaleur résiduelle d'un combustible UOX usé

1.2.5 Stratégies alternatives pour pallier aux retards possibles de la stratégie de référence : les RNR

La stratégie de référence a déjà fait l'objet de nombreuses études très précises et est donc très bien connue [9]. Cependant les stratégies électronucléaires se mettent en place sur des temps très longs et sont donc soumises à de nombreux imprévus, techniques et / ou politiques, qui peuvent faire obstacle à leur mise en application ou retarder des étapes clés. De plus la stratégie de référence se base sur le déploiement massif de réacteurs rapides dont le design final n'est pas encore complètement fixé

1.2. GESTIONS DU COMBUSTIBLE USÉ

et dont la rentabilité repose sur une augmentation significative du prix de l'uranium qui n'a pas encore eu lieu. En cas de retard important sur la mise en place de ces RNR, des stratégies alternatives peuvent trouver leur place.

Si l'étape intermédiaire utilisant les combustibles MOX dure plus longtemps, les 15 000 tonnes de combustibles MOX usés nécessaires au démarrage des RNR peuvent être amenées à être dépassées. Des stratégies alternatives de recyclage pourraient alors être mises en place. Si la puissance totale de RNR qu'il est prévu de déployer diminue, ce surplus de plutonium peut même arriver bien plus vite. Dans des régions du monde où le nucléaire est moins implanté, le déploiement de réacteurs de technologie très jeune comme les RNR peut être trop complexe à mettre en œuvre. De plus si l'énergie nucléaire se développe peu, la tension sur les ressources sera faible et le besoin des réacteurs régénérateurs ne sera alors pas suffisant pour compenser leur surcoût. Des stratégies alternatives pour la gestion du plutonium utilisant des réacteurs mieux connus peuvent alors se justifier.

Les stratégies alternatives de gestion du plutonium sont donc principalement nécessaires dans le cas de retard au déploiement des RNR. Il est donc pertinent de considérer des recyclages dans des réacteurs existants. Afin de concentrer notre étude sur la comparaison de différentes stratégies de recyclage et différents cycles du combustible, nous avons choisi de nous limiter à un unique type de réacteur. Les REP constituent la grande majorité des réacteurs existants et en construction dans le monde et la totalité en France (voir tableau 1.1). Dans ce cadre, les REP ont donc été sélectionnés pour notre étude.

Afin de rester dans le cadre de stratégies utilisant les réacteurs existants, aucune modification n'a été apportée aux réacteurs considérés. L'idée est de comprendre ce qu'il est possible de faire dans les réacteurs existants et disponibles sans avoir à les arrêter plusieurs années pour les adapter. Ces stratégies alternatives n'utilisant que des réacteurs connus et maîtrisés nous permettent d'identifier et de comprendre leurs avantages et leurs limitations. Il sera alors possible de dégager des voies d'amélioration pertinentes pour ces stratégies ou ces réacteurs. De telles stratégies ne permettent pas d'atteindre la régénération et nécessitent donc le maintien d'une part du combustible sous forme d'uranium enrichi afin de garantir le maintien de la quantité de fissile à un niveau raisonnable. Les stratégies alternatives étudiées se donnent par contre le droit d'exiger des modifications des installations du cycle, de telles modifications pouvant être faites en parallèle à la mise en place de la stratégie, sans avoir à stopper la production d'énergie.

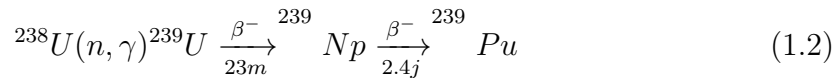
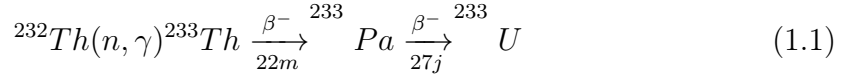
1.3 Deux bases pour le multi-recyclage : uranium et thorium

Afin d'élargir le plus possible les possibilités de cycles du combustible et de pouvoir dresser une image la plus exhaustive de l'ensemble des possibles, cette étude prend en compte les deux cycles du combustible permis par les deux seuls actinides présents dans la nature : le thorium et l'uranium.

1.3.1 Propriétés neutroniques

Conversion et régénération

Les isotopes majoritaires du thorium, ^{232}Th , et de l'uranium, ^{238}U , ont des comportements assez semblables. Ce sont des isotopes fertiles, c'est à dire qu'ils ne peuvent pas fissionner avec des neutrons de faible énergie. Mais, en capturant un neutron, ils se transforment en un isotope fissile. Ce noyau fissile, ^{233}U pour le ^{232}Th et ^{239}Pu pour l' ^{238}U , peut fissionner avec des neutrons de n'importe quelle énergie. Les chaînes de production de ces noyaux fissiles sont décrites dans les équations (1.1) et (1.2).



Cette conversion permet d'utiliser, après transformation, une partie du fertile présent dans le combustible initial comme fissile alimentant la réaction en chaîne. Elle améliore donc l'utilisation du combustible.

Afin de mesurer l'efficacité de ces processus de conversion, on peut compter le nombre de neutrons disponibles après avoir assuré le maintien de la réaction en chaîne et le remplacement des noyaux consommés dans ce processus par capture neutronique sur le noyau fertile. Pour simplifier on considère uniquement le couple fertile / fissile et on néglige les fuites. Ainsi, lors de chaque fission, ν neutrons sont créés. Pour maintenir la réaction en chaîne, 1 fission est nécessaire. Cependant pour chaque fission, il y a $\frac{\sigma_{capture}^{fissile}}{\sigma_{fission}^{fissile}}$ capture neutronique sur le noyaux fissile où $\sigma_{réaction}^{isotope}$ représente la section efficace microscopique liée à une réaction spécifique sur un

1.3. DEUX BASES POUR LE MULTI-RECYCLAGE : URANIUM ET THORIUM

isotope spécifique. Ainsi pour chaque fission, $\left(1 + \frac{\sigma_{capture}^{fissile}}{\sigma_{fission}^{fissile}}\right)$ neutrons sont absorbés par le fissile et autant de noyaux fissiles disparaissent. Il faut donc $\left(1 + \frac{\sigma_{capture}^{fissile}}{\sigma_{fission}^{fissile}}\right)$ captures sur le fertile pour remplacer ces noyaux fissiles disparus. Le nombre de neutrons disponibles après cette fission et la régénération des fissiles consommés est donc :

$$N_d = \nu - 2 \left(1 + \frac{\sigma_{capture}^{fissile}}{\sigma_{fission}^{fissile}}\right) \quad (1.3)$$

La figure 1.5 montre ce terme en fonction de l'énergie des neutrons à partir des sections efficaces du ^{239}Pu et de l' ^{233}U . On remarque tout d'abord que le nombre de neutrons disponibles est positif pour les deux cycles dans la région des neutrons rapides, ils peuvent donc potentiellement tout deux être régénérateurs avec des spectres rapides. Par contre si le nombre de neutrons disponibles dans la région des neutrons thermiques est positif pour le cycle thorium, il est clairement négatif pour le cycle uranium. Ainsi, si on utilise les sections efficaces à un groupe dans un spectre de REP UOX début de cycle, le nombre de neutrons disponibles est de 0.25 pour le cycle thorium contre -0.2 pour le cycle uranium. La régénération est donc théoriquement possible dans les réacteurs thermiques utilisant du combustible thorié. La formule simplifiée utilisée pour calculer ces neutrons disponibles ne prend en compte ni les fuites, ni les noyaux autres que le fissile et le fertile principal (autres actinides, produits de fission ou noyaux des gaines et des structures) et ne garantit donc pas la faisabilité technique d'une telle régénération. Il est d'ailleurs déjà connu que les REP standards ne permettent pas en pratique cette régénération, essentiellement à cause du haut taux de capture de l'eau légère [14]. Des modifications légères ne permettent d'ailleurs pas d'atteindre cette régénération [14], seules des modifications drastiques, avec une re-conception du cœur qui devient alors autre chose qu'un REP, et une diminution importante du burn-up arrivent à rendre le réacteur régénérateur [14, 15].

Malgré cette absence de régénération, le cycle thorium, couplé avec le cycle uranium, devrait permettre, de par cette augmentation de la conversion, d'aller vers une meilleure utilisation des ressources naturelles, et ce même en utilisant des REP standards.

1.3. DEUX BASES POUR LE MULTI-RECYCLAGE : URANIUM ET THORIUM

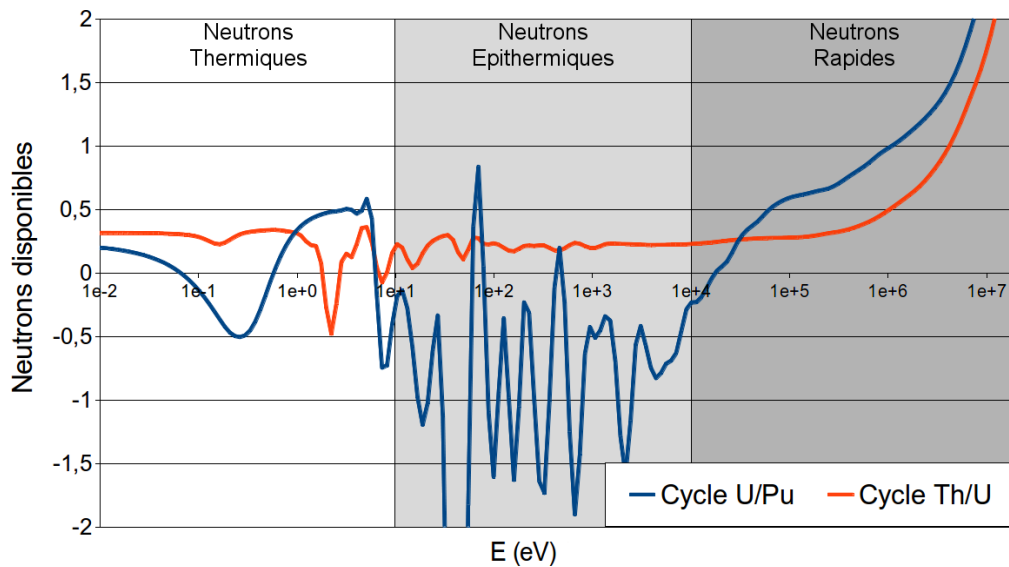


FIGURE 1.5 – Neutrons disponibles après régénération pour les cycles thorium et uranium

Intermédiaires de la conversion : ^{239}Np et ^{233}Pa

Dans le paragraphe précédent, les processus de conversion des cycles thorium et uranium ont été présentés. Dans les deux cas, le passage du noyau fertile au noyau fissile se fait par un intermédiaire créé lors de la capture qui décroît ensuite vers le noyau fissile. Le temps de décroissance du ^{233}Pa , 27 jours, intermédiaire du processus de conversion du cycle thorium, est beaucoup plus long que celui du ^{239}Np , 2,4 jours, intermédiaire du processus de conversion du cycle uranium. Cette différence de période entraîne, pour le cycle thorium, un retard à la régénération des noyaux fissiles.

Ce retard entraîne une baisse de fissile au début de l'irradiation. Ce manque de fissile conduit à un déficit en réactivité. Dans le cycle uranium, il ne dure que pendant quelques jours, ce qui est du même ordre de grandeur que le temps de mise en place de la réactivité négative due au Xénon, et on a donc une évolution strictement décroissante de la réactivité. Dans le cycle thorium, ce temps est beaucoup plus long, de l'ordre de quelques mois. Cela crée une chute importante de la réactivité en début de cycle. Cette chute de réactivité oblige à charger plus en fissile pour compenser.

Ce retard à l'apparition de fissile a aussi un effet après l'arrêt du réacteur. En

1.3. DEUX BASES POUR LE MULTI-RECYCLAGE : URANIUM ET THORIUM

effet après l'arrêt du réacteur, les précurseurs présents dans le combustible, ^{233}Pa et ^{239}Np , continuent à décroître et donc la quantité de fissile dans le combustible augmente. Un rebond de réactivité apparaît donc après un temps de l'ordre de la période du précurseur. La période d'un précurseur dirige aussi directement la quantité à l'équilibre de ce précurseur dans le combustible. Un précurseur avec une faible période sera ainsi présent en quantité beaucoup plus faible qu'un précurseur avec une longue période. Dans le cycle uranium on observe de cette façon un petit rebond de réactivité durant les quelques jours après l'arrêt alors que dans le cycle thorium le ressaut est plus important et d'autant plus gênant qu'il dure jusqu'à plusieurs mois.

De plus, la période, et donc le temps de présence dans le combustible, des intermédiaires influent sur les probabilités de rupture de la chaîne de conversion. En effet le ^{239}Np qui ne reste que très peu de temps exposé au flux de neutrons du réacteur avant de décroître n'aura que très peu de chance de capturer un neutron. Par exemple, dans un REP, 99.8% des noyaux de ^{239}Np décroissent en ^{239}Pu . Le ^{233}Pa qui reste plus longtemps dans le combustible a plus de chance de capturer un neutron et seulement 97.5% des noyaux de ^{233}Pa décroissent en ^{233}U [16].

Longévité des noyaux fissiles

Les noyaux fissiles principaux des cycles uranium et thorium sont le ^{239}Pu et l' ^{233}U . Ils ont des périodes radioactives très grandes devant les temps d'un cycle électronucléaire : $2.41 \cdot 10^4$ ans pour le ^{239}Pu et $1.59 \cdot 10^5$ ans pour l' ^{233}U . On peut donc négliger leur décroissance sur l'échelle de quelques dizaines d'années.

Cependant des fissiles secondaires sont produits après deux captures sur le fissile principal : le ^{241}Pu dans le cycle uranium et l' ^{235}U dans le cycle thorium. Dans le cas de l'utilisation de multi-recyclage, ces fissiles secondaires peuvent constituer une part non négligeable des vecteurs isotopiques considérés. Or, ces deux fissiles ont des périodes radioactives très différentes : $7.04 \cdot 10^8$ ans pour l' ^{235}U contre 14.3 ans pour le ^{241}Pu . L' ^{235}U est, tout comme les fissiles principaux, stable à l'échelle des stratégies considérées. Ce n'est pas le cas du ^{241}Pu qui disparaît rapidement en cas de stockage ce qui conduit à une perte de matériel fissile pendant les périodes de retraitement. Le fait que le fissile secondaire du cycle uranium soit assez éphémère complexifie la gestion des stocks lors de la conception de scénarios puisque l'âge d'un vecteur plutonium influe grandement sur sa qualité.

1.3.2 Propriétés thermiques

Les oxydes de thorium et d'uranium ont des propriétés thermiques très semblables comme le montre le tableau 1.3. Les températures de fusion de leurs formes oxydes utilisées dans les combustibles nucléaires et la conductivité de ces mêmes formes sont très semblables. Un léger avantage semble même se dégager pour le thorium, une marge qui permet d'envisager que les combustibles au thorium puissent satisfaire aux contraintes thermiques auxquelles satisfont depuis de nombreuses années les combustibles uraniums. En se basant sur ces similitudes thermiques, l'irradiation des combustibles au thorium est donc envisagée dans les mêmes géométries et les mêmes conditions que celles des combustibles uranium [17].

	UO_2	ThO_2
Température de fusion (K)	3120	3650
Conductivité thermique à 1000 K ($W.m^{-1}.K^{-1}$)	3.5	4.5

TABLE 1.3 – Comparaison des propriétés thermiques de l'uranium et du thorium [18].

1.4 Résumé et Conclusions du chapitre

Dans ce travail, on étudie des stratégies alternatives pour l'utilisation du plutonium en cas de délai à la mise en place des réacteurs de quatrième génération. Dans ce cadre on étudie le multi-recyclage dans les réacteurs existants et plus particulièrement dans les REP qui constituent la grande majorité des réacteurs dans le monde.

Afin d'envisager un panel très large de stratégies, en plus du cycle uranium traditionnellement utilisé dans ces réacteurs, on étudiera le cycle thorium qui présente des propriétés prometteuses dans les réacteurs à neutrons thermiques.

Chapitre 2

Scénarios de multi-recyclage

2.1 Scénarios électro-nucléaires

2.1.1 Définir un scénario

L'intérêt de ce travail est d'étudier un nombre assez important de scénarios de multi-recyclage du plutonium. Un scénario est avant tout la mise en application d'une stratégie de gestion à l'échelle d'un parc électronucléaire. Le but principal de l'étude d'un scénario est de comprendre l'influence et les conséquences des différents choix définissant la stratégie étudiée. Comprendre les interconnexions entre les différents choix et leurs conséquences permet de développer une compréhension du cycle du combustible dans son ensemble. Ainsi il est possible d'élaborer des stratégies innovantes tirant le meilleur parti de chaque option. De plus, une fois les différents critères évalués, les décideurs peuvent alors choisir en toute connaissance de cause ce qui correspond le mieux à leurs exigences.

Un scénario consiste à suivre l'évolution d'un grand nombre de paramètres au cours du temps. Certains de ces paramètres voient leur évolution fixée lors de la définition du scénario alors que d'autres sont calculés au cours de la simulation. Il est aussi possible de fixer la valeur de paramètres à certaines dates, comme au démarrage ou la fin d'un scénario, en les laissant libre le reste du temps, leur évolution étant calculée par le code de simulation.

Ces paramètres d'intérêt comprennent des paramètres de structure qui définissent les installations présentes dans le cycle et leurs caractéristiques :

- nombre, types et modèles des réacteurs présents dans le parc, ainsi que les caractéristiques des combustibles qui y sont irradiés ;

2.1. SCÉNARIOS ÉLECTRO-NUCLÉAIRES

- nombre, capacité et limitations isotopiques des usines de fabrication ;
- capacité et efficacité chimique des unités de séparation ;
- nombre et limitations en terme de chaleur et de radioprotection des piscines et autres lieux de stockage ;
- capacité et limitations en terme de chaleur et de radioprotection des systèmes de transport.

On y trouve aussi des paramètres relatifs au cycle du combustible et à la stratégie de recyclage :

- piscine dans lesquelles vont les combustibles usés de chaque réacteur ;
- stocks et piscines au sein desquels le combustible usé envoyé dans chaque usine de fabrication est ponctionné ;
- éléments séparés au sein des unités de séparation ;
- éléments à recycler et envoyer dans des unités d'entreposage et éléments envoyés aux déchets.

Finalement, ces paramètres d'intérêt recouvrent aussi tous les paramètres décrivant la matière dans le cycle et son évolution :

- composition isotopique, quantité et évolution de la matière dans chacune des installations du parc ;
- composition isotopique et flux entre les installations du parc.

Tous ces paramètres doivent être déterminés pour l'étude d'un scénario. On peut les définir a priori comme certains scénarios qui considèrent que les combustibles n'ont pas de temps minimum de refroidissement après irradiation. On peut aussi les calculer grâce à des codes de simulations adaptés en fonction d'autres contraintes, par exemple en considérant que le temps de refroidissement est fixé par le temps nécessaire à la puissance résiduelle du combustible usé pour passer en dessous d'un certain seuil. La période pendant laquelle est étudié un scénario est une grandeur très variable, mais souvent de l'ordre de grandeur de plusieurs fois le temps de vie d'un réacteur ce qui dépasse rapidement la centaine d'années [9, 19].

2.1.2 De la difficulté à déterminer certains paramètres

Certains des paramètres mentionnés dans le paragraphe précédent, comme l'état des stocks de matières nucléaire ou les dates de changement de modèle ou de filière de réacteurs ainsi que de mise en place de nouveaux combustibles, évoluent de manière extrêmement complexe dans les cas réels, et subissent de très nombreuses influences. Il est donc très difficile de représenter ces paramètres de manière précise lors de la

2.2. LE CYCLE DU COMBUSTIBLE DE BASE

simulation d'un scénario.

L'état des stocks de matières nucléaires est le résultat d'un historique complexe. En France, par exemple, le nombre d'assemblages usés au sein desquels se trouve de la matière nucléaire potentiellement recyclable est important et chacun d'eux a connu un historique de puissance différent au sein de réacteurs dont les burn-up et les niveaux de puissances ont évolué au cours de leurs vies, parfois même de façon assez rapide. Déterminer de façon précise les quantités et les vecteurs isotopiques des différents éléments disponibles pour la fabrication de nouveaux combustibles est donc complexe. Il n'est pas possible de rendre compte de cette complexité dans une simulation en un temps raisonnable. En outre, avoir accès à l'ensemble des données nécessaires est souvent difficile voire impossible à cause du secret industriel.

De plus cette situation initiale est très spécifique à la région et à l'époque considérée. Un scénario est donc très spécifique et chaque adaptation à un nouvel État ou à une nouvelle région nécessite un nouveau calcul. Une mise à jour d'un scénario après une évolution de la situation pendant une dizaine d'années sera de même un tout nouveau scénario de transition.

Les dates de changement de modèle ou de filière de réacteurs ainsi que de mise en place de nouveaux combustibles sont très difficiles à fixer lors de l'élaboration du scénario. En effet, ces dates dépendent de beaucoup de choix politiques et / ou industriels qui sont encore loin d'être arrêtés au moment de la simulation des scénarios prospectifs. Des dates sont souvent fixées dans les scénarios selon les tendances au moment de la simulation, mais ces dates peuvent a posteriori s'avérer très éloignées des dates effectives qui apparaîtront dans le futur.

2.2 Le cycle du combustible de base

Notre étude consiste à explorer les différentes options possibles de cycles avec les réacteurs actuels. De nombreux scénarios et de nombreux cycles du combustible différents ont donc été étudiés. Néanmoins tous ces cycles ont été construits comme des variations d'un cycle de base, une base commune sur laquelle seul un petit nombre de modifications a été fait, un petit nombre qui permet de garder les différences entre les cycles concevables et analysables.

La figure 2.1 schématise le principe de ce cycle de base dont les cycles étudiés dans ce travail sont des variations.

2.2. LE CYCLE DU COMBUSTIBLE DE BASE

- L'uranium extrait de la mine est envoyé dans une usine d'enrichissement.
- Dans cette usine, il est enrichi en ^{235}U et transformé en combustible oxyde.¹
- Le combustible ainsi créé est ensuite irradié dans un REP pour produire de l'énergie.
- Une fois utilisé, il est envoyé en piscine de refroidissement, où il repose un certain temps avant d'être envoyé dans une unité de séparation.
- Au sein de cette usine de séparation, le combustible utilisé est divisé en une partie recyclée, qui comprend principalement les éléments fissiles, et une partie envoyée aux déchets, qui comprend les produits de fissions et les actinides mineurs, qui sont les actinides produits par captures successives sur les actinides majoritaires que sont l'uranium et le plutonium.
- Les éléments fissiles sont ensuite envoyés vers une usine de fabrication qui permet de créer un nouveau combustible destiné à être irradié, en utilisant également un stock d'éléments fertiles comme du thorium ou de l'uranium appauvri.

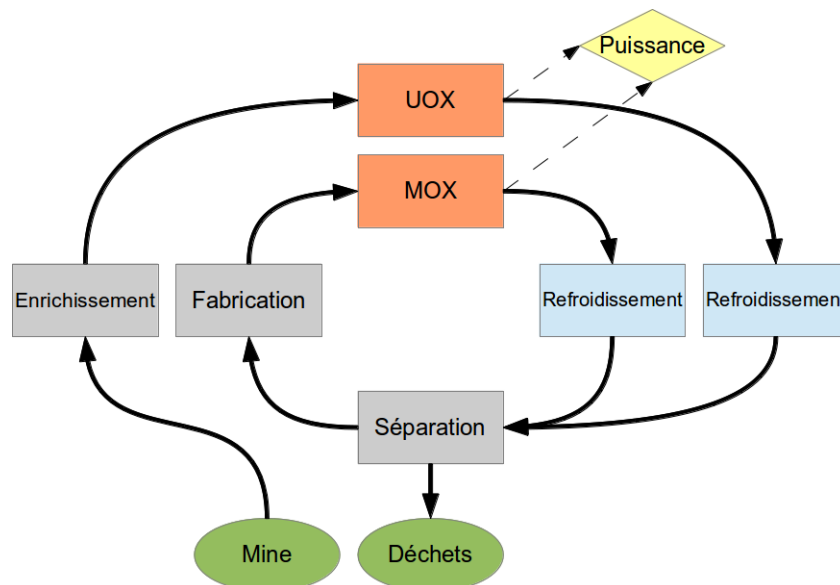


FIGURE 2.1 – Cycle du combustible mettant en jeu le recyclage du plutonium. Le combustible MOX considéré ici peut aussi bien être sur base uranium que sur base thorium

Les scénarios étudiés dans la suite et présentés dans le chapitre 2 proposent des

1. dans nos études ces deux premières étapes ne sont pas simulées en même temps que le reste, mais calculées a posteriori

variations de ce cycle de base, changeant principalement les éléments renvoyés vers les réacteurs après la phase de séparation et la façon de les répartir entre les différents combustibles et les différents réacteurs.

2.3 Scénarios standardisés en vue d'une comparaison

Pour pouvoir comparer le plus simplement possible les différentes stratégies alternatives étudiées, la grande majorité des paramètres définissant un scénario ont été fixés de manière transversale à tous les scénarios. Le but est ici de limiter les paramètres changeant d'un scénario à un autre afin de garder une clarté maximale dans les analyses et les comparaisons qui sont effectuées.

Ainsi, en reprenant l'ordre utilisé au début de ce chapitre :

- Tous les réacteurs sont des REP de facture standard, des réacteurs bien connus qui constitue la grande majorité des réacteurs nucléaires en fonctionnement à travers le monde. La géométrie simulée, basée sur le REP N4 d'Areva, est décrite dans le chapitre suivant.
- Tous les combustibles utilisés sont des combustibles oxydes ayant une densité moyenne de $10g.cm^{-3}$. Les actinides fissiles et fertiles les composants changent en fonction des scénarios, les proportions entre les différents types de combustible ne sont pas fixées mais découlent du calcul.
- Tous les combustibles sont irradiés jusqu'à un burn-up de 50 GWj/t, ce qui correspond à environ 4 ans en cœur, et ce quel que soit le type de combustible considéré. Ce burn-up a été choisi. La gestion des assemblages se fait par quart afin de tirer parti au maximum du fissile investi dans les réacteurs qui sont, rappelons-le, non régénérateurs.
- Le choix des éléments recyclés dépend du scénario considéré, cependant toutes les séparations chimiques sont effectuées avec la même efficacité qui est fixée à 99.9%, les pertes de 0.1% étant acheminées vers les déchets.
- Les combustibles sont refroidis pendant 5 ans avant d'être disponibles pour le retraitement, temps de référence utilisé pour le refroidissement des combustibles multirecyclant le plutonium dans les RNR [12].
- La séparation chimique des différents éléments au sein d'un combustible usé est considérée comme étant instantanée.

2.4. LES SCÉNARIOS ÉTUDIÉS

- Les processus de fabrication et de transport entre la séparation chimique et le chargement en réacteur durent 2 ans.

Les scénarios seront tout d’abord étudiés à l’équilibre (chapitres 4-5-6). Lors de l’étude à l’équilibre, la définition de l’état du parc au démarrage n’est pas nécessaire. Les installations présentes sont identiques pendant tout le scénario et n’ont donc ni de date de démarrage ni de date d’arrêt et les stocks sont entièrement définis par leur variation durant le cycle à l’équilibre (cf chapitre 2.5). Pour ces scénarios la période étudiée correspond à un cycle, soit environ 11 ans qui regroupe l’irradiation le refroidissement et la fabrication du combustible, puisque tous les cycles qui se succèdent sont identiques.

Une fois l’étude à l’équilibre terminée, certains scénarios seront alors étudiés hors de cet état particulier grâce au code CLASS. Ce code et les résultats associés sont présentés dans la troisième partie.

2.4 Les scénarios étudiés

2.4.1 Explorer les scénarios possibles

Dans les différents scénarios étudiés, ont été explorées différentes conditions de recyclage du plutonium, en tant que seul fissile dans l’assemblage ou en combinaison avec d’autres comme l’ ^{235}U ou l’ ^{233}U , et différents matériaux fertiles utilisés, ^{232}Th ou ^{238}U . Les 5 scénarios de multi-recyclage qui ont été choisis sont présentés dans la suite de ce chapitre.

Ces scénarios ont été conçus afin d’avoir la vision la plus exhaustive possible des options de gestion à l’équilibre du plutonium avec des REP non modifiés. Ils mettent en œuvre un multi-recyclage du plutonium, c’est-à-dire que tout le plutonium sortant des réacteurs du parc est recyclé, ainsi seul le plutonium provenant des pertes chimiques au recyclage, les produits de fission et les actinides mineurs sont envoyés vers les déchets de haute activité ou vitrifiés.

2.4.2 Recyclage homogène du plutonium : multiUePu

Le premier scénario étudié est le multi-recyclage homogène du plutonium dans un REP, similaire aux scénarios basés sur le concept MIX UE[20] : le plutonium produit dans le réacteur est recyclé littéralement dans les mêmes assemblages que

2.4. LES SCÉNARIOS ÉTUDIÉS

ceux dans lesquels il a été produit (voir figure 2.2). A l'équilibre, tous les assemblages et tous les crayons dans le parc sont identiques. Etant donné que les REP ne sont pas régénérateurs pour le cycle uranium (voir paragraphe 1.3), l'uranium auquel est mélangé le plutonium recyclé pour fabriquer le nouveau combustible doit être enrichi en ^{235}U . Le combustible est ainsi composé d'un mélange de plutonium et d'uranium enrichi. Un tel scénario est désigné par **multiUePu**.

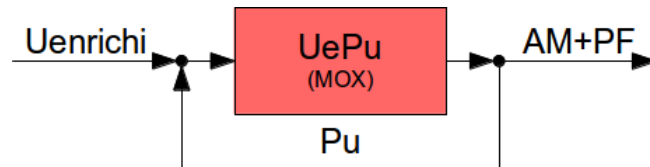


FIGURE 2.2 – Scénario multiUePu. Les flux d'actinides valorisables mais non recuclé (uranium de retraitement) ne sont pas indiqué dans ce schéma

2.4.3 Séparation entre la production et la consommation de plutonium : multiUPu

Le recyclage homogène n'est pas la seule solution pour multi-recycler le plutonium. On peut aussi envisager des méthodes de recyclage hétérogène. Ainsi on peut séparer les assemblages du parc en deux catégories d'assemblage, des assemblages produisant du plutonium et des assemblages multirecyclant ce plutonium. Les assemblages à l'uranium enrichi produisant du plutonium à partir de ressources disponibles dans la nature sont les assemblages UOX standards. Actuellement, en France, un recyclage du plutonium dans des assemblages dédiés sur une base d'uranium appauvri est mis en place, il s'agit d'un mono-recyclage MOX (qui est le scénario de référence présenté dans la figure 2.1). Ce scénario (voir figure 2.3) propose donc une solution qui s'inspire du cas français actuel en l'étendant au multi-recyclage du plutonium. Le plutonium est mélangé avec de l'uranium appauvri afin de fabriquer un assemblage critique sans nécessiter l'extraction de nouvelles ressources.

Dans notre étude, ce scénario considérant le multi-recyclage du plutonium sur uranium appauvri est désigné par **multiUPu**. Ce scénario a déjà fait l'objet de nombreuses études qui listent ses faiblesses, principalement de mauvais coefficients de sûreté, et proposent des solutions pour y remédier[21] et nous sert de référence sur le multirecyclage en REP puisqu'il s'agit du seul scénario de multirecyclage du plutonium en REP qui a été largement étudié.

2.4. LES SCÉNARIOS ÉTUDIÉS

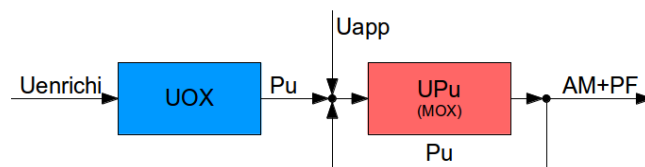


FIGURE 2.3 – Scenario multiUPu. Les flux d’actinides valorisables mais non recyclé (uranium de retraitement) ne sont pas indiqué dans ce schéma

2.4.4 Introduction du thorium : multiThUPu

Dans une optique de multi-recyclage, le mélange de thorium avec de l’uranium, appauvri, naturel ou enrichi, est à éviter. En effet, dans ce cas, l’ ^{233}U récupéré lors du recyclage se retrouverait mélangé avec les autres isotopes d’uranium, notamment avec de grandes quantités d’ ^{238}U , dans un vecteur isotopique contenant peu de noyaux fissiles. L’ ^{233}U serait donc irrécupérable par voie chimique. Un enrichissement d’un tel uranium issu d’un combustible usé est difficile à envisager du fait, notamment, de la présence d’ ^{232}U [16]. Comme le cycle thorium n’est pas régénératif en REP [14], un apport d’ ^{235}U et donc d’uranium enrichi est nécessaire à l’équilibre. Pour permettre le multi-recyclage, il faut donc au moins deux types d’assemblage : un contenant l’uranium enrichi et un contenant le thorium.

En utilisant des combustibles UOX standards pour produire du plutonium, on peut ensuite irradier ce plutonium dans des combustibles thoriés. Ces combustibles thoriés recyclent ensuite, en cycle fermé, le plutonium et l’uranium (constitué alors principalement d’ ^{233}U). Le schéma de ce scénario, appelé **multiThUPu**, est présenté en figure 2.4.

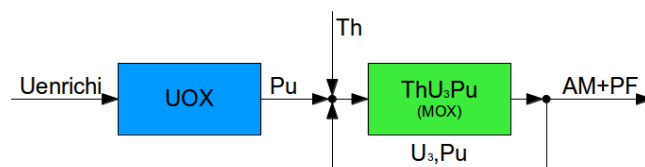


FIGURE 2.4 – Scenario multiThUPu. Les flux d’actinides valorisables mais non recyclé (uranium de retraitement et thorium irradié) ne sont pas indiqué dans ce schéma

Ce scénario est donc très similaire au scénario multiUPu dans lequel l’uranium appauvri des assemblages recyclant le plutonium est remplacé par du thorium. Il

2.4. LES SCÉNARIOS ÉTUDIÉS

est composé uniquement de deux types d'assemblage puisque le plutonium et l' ^{233}U sont multirecyclés ensemble.

2.4.5 Séparation entre la production et la consommation d'uranium : multiThU

De la même façon qu'il est possible de séparer la production et la consommation de plutonium, il est possible, dans les scénarios utilisant le thorium de séparer la production et la consommation de l' ^{233}U . L'uranium produit dans les assemblages mixtes ThPu est alors utilisé pour produire des assemblages ThU dans lesquels l' ^{233}U est multi-recyclé sur base thorium sans plutonium.

Cela conduit à la conception d'un scénario mettant en jeu trois types d'assemblage différents : des assemblages UOX produisant du plutonium, des assemblages ThPu consommant du plutonium et produisant de l' ^{233}U et des assemblages ThU multi-recyclant l' ^{233}U . Ce scénario (voir figure 2.5) est nommé **multiThU**. Il est très différent du scénario multiThUPu car il conduit à des spectres et des comportements neutroniques très différents dans les assemblages ThPu et ThU (voir paragraphe 5.2).

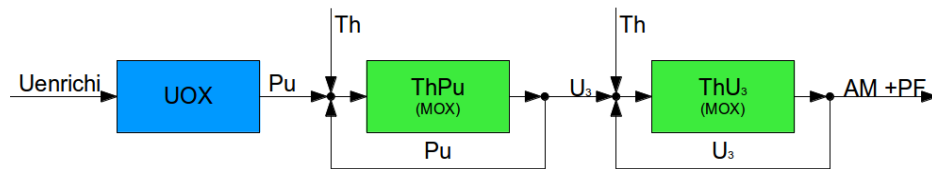


FIGURE 2.5 – Scénario multiThU. Les flux d'actinides valorisables mais non recyclé (uranium de retraitement et thorium irradié) ne sont pas indiqués dans ce schéma

Multi-recycler du plutonium dans des combustibles thoriés, au sein desquels aucune production de plutonium n'a lieu, conduit à une dégradation rapide de la qualité du plutonium et ainsi à des paramètres de sûreté défavorables (voir paragraphe 5.5). Afin que ce problème ne soit pas à l'origine d'une exclusion trop rapide de ces scénarios utilisant trois types d'assemblages, un scénario identique au multiThU, mais ne multi-recyclant pas le plutonium dans les combustibles ThPu, a été étudié. Ce scénario présenté dans la figure 2.6 est nommé **multiThU2**.

2.4. LES SCÉNARIOS ÉTUDIÉS

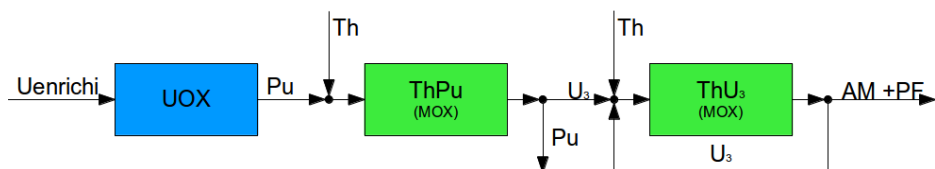


FIGURE 2.6 – Scénario multiThU2. Les flux d’actinides valorisables mais non recyclés (uranium de retraitement et thorium irradié) ne sont pas indiqués dans ce schéma

Ce dernier scénario ne multirecycle pas le plutonium. Après un unique recyclage sur base thorium, le plutonium sort alors du cycle et est considéré comme un déchet potentiel.

2.4.6 Scénarios ouverts associés

En plus de ces scénarios de multi-recyclage on simule et on étudie plusieurs scénarios sans multi-recyclage et inspirés des stratégies existantes afin d’avoir un point de comparaison : les scénarios UOX et monoUPu.

Le scénario UOX représente le cycle ouvert, un scénario où l’ensemble du combustible utilisé est de l’uranium enrichi à partir de l’uranium naturel et où tout ce qui sort d’un réacteur est considéré comme un déchet. Ce scénario a déjà été présenté dans le paragraphe 1.2.1. Il s’agit de la stratégie actuellement utilisée dans beaucoup de pays dont la Suède et les USA [22].

Le scénario monoUPu correspond à la situation française actuelle où le plutonium produit dans les crayons UOX est recyclé dans des combustibles sur base d’uranium appauvri (figure 2.1). Toute la matière sortant de ces MOX uranium-plutonium sort du cycle. Elle est potentiellement disponible pour une utilisation future, mais cette potentialité sort du cadre de nos études et n’est pas étudiée ici. Il s’agit d’une version du scénario multiUPu ne recyclant qu’une seule fois le plutonium et correspond au scénario français actuel.

Nous considérons également l’équivalent du scénario précédent utilisant du thorium comme base de recyclage du plutonium : le scénario monoThPu. Dans ce scénario, le plutonium produit dans les crayons UOX est recyclé sur une base thorium, la matière produite lors de cette deuxième irradiation sort du cycle. Il s’agit d’une version du scénario multiThUPu ne recyclant qu’une seule fois le plutonium et ne recyclant pas l’uranium produit lors de l’irradiation du thorium.

2.5. SCÉNARIOS À L'ÉQUILIBRE

Scénario	Nombre d'assemblages différents	fertile(s)	fissile(s)	multi-recyclage	
				Pu	U(233)
UOX	1	^{238}U	^{235}U	NON	-
multiUePu	1	^{238}U	$^{235}\text{U} + ^{239}\text{Pu}$	OUI	-
monoUPu	2	^{238}U	$^{235}\text{U} + ^{239}\text{Pu}$	NON	-
multiUPu	2	^{238}U	$^{235}\text{U} + ^{239}\text{Pu}$	OUI	-
monoThPu	2	$^{238}\text{U} + ^{232}\text{Th}$	$^{235}\text{U} + ^{239}\text{Pu} + ^{233}\text{U}$	NON	NON
multiThUPu	2	$^{238}\text{U} + ^{232}\text{Th}$	$^{235}\text{U} + ^{239}\text{Pu} + ^{233}\text{U}$	OUI	OUI
multiThU	3	$^{238}\text{U} + ^{232}\text{Th}$	$^{235}\text{U} + ^{239}\text{Pu} + ^{233}\text{U}$	OUI	OUI
multiThU2	3	$^{238}\text{U} + ^{232}\text{Th}$	$^{235}\text{U} + ^{239}\text{Pu} + ^{233}\text{U}$	NON	OUI

TABLE 2.1 – Récapitulatif des scénarios étudiés

2.5 Scénarios à l'équilibre

2.5.1 Définition d'un scénario à l'équilibre

Un scénario à l'équilibre est un scénario stable qui n'est pas modifié de cycle en cycle. Ainsi, dans un tel scénario, on a la même composition à chaque chargement pour le combustible neuf et pour le combustible utilisé à chaque déchargement. Les flux entre les installations sont également les mêmes à chaque cycle.

Un scénario à l'équilibre n'est cependant pas un scénario où aucune grandeur n'évolue avec le temps. En effet pour qu'il y ait production d'énergie, il faut que des actinides disparaissent par fission et donc que des produits de fissions apparaissent. Cela nécessite un apport permanent de matière et à une accumulation globale des rejets au cours du temps. De plus des scénarios utilisant des réacteurs de type REP ne peuvent fonctionner en rechargement continu, les REP fonctionnent avec des rechargements ponctuels du cœur qui conduisent à une évolution significative de la composition du cœur au cours de l'irradiation. Le caractère stationnaire est observé non pas chaque instant, mais à l'échelle du cycle du combustible qui se répète toujours à l'identique.

Plutôt qu'un équilibre plat où tout est constant, il s'agit donc d'un équilibre périodique où tout se répète à l'infini sans changer entre chaque itération.

Cette périodicité se manifeste à tous les échelons. Par exemple la figure 2.7 montre

2.5. SCÉNARIOS À L'ÉQUILIBRE

la périodicité de certains isotopes de plutonium et d'américium au sein d'un scénario à l'équilibre multi-recyclant le plutonium, le scénario multiUPu qui est défini plus tôt dans ce chapitre (2.4.3). La quantité de ces isotopes deux ans après la fabrication du combustible est exactement la même que celle qui avait été chargée en cœur au début du cycle. Entre ces deux moments, elle évolue. Les actinides à durée de vie courte, comme le ^{241}Pu , sont un parfait exemple de cette évolution. Ils voient leur quantité diminuer par décroissance durant les phases hors cœur. Quand ils sont multirecyclés, la quantité présente en fin de cycle est la même que celle présente en début de cycle, ils voient leur quantité augmenter lors de l'irradiation. Cette évolution partant toujours du même point, elle se répète de façon identique d'un cycle sur l'autre. Les stocks reçoivent ainsi le même apport à chaque cycle et sont aussi prélevés des mêmes matières. La stabilité des stocks entre les cycles imposée par l'équilibre impose alors que les apports et les prélèvements se compensent. On peut donc considérer qu'on fonctionne à flux tendu, que dès qu'un combustible est disponible, il est immédiatement utilisé pour fabriquer du nouveau combustible. Ainsi aucune matière utilisable ne s'accumule et aucune matière n'est en attente alors qu'elle pourrait être utilisée.

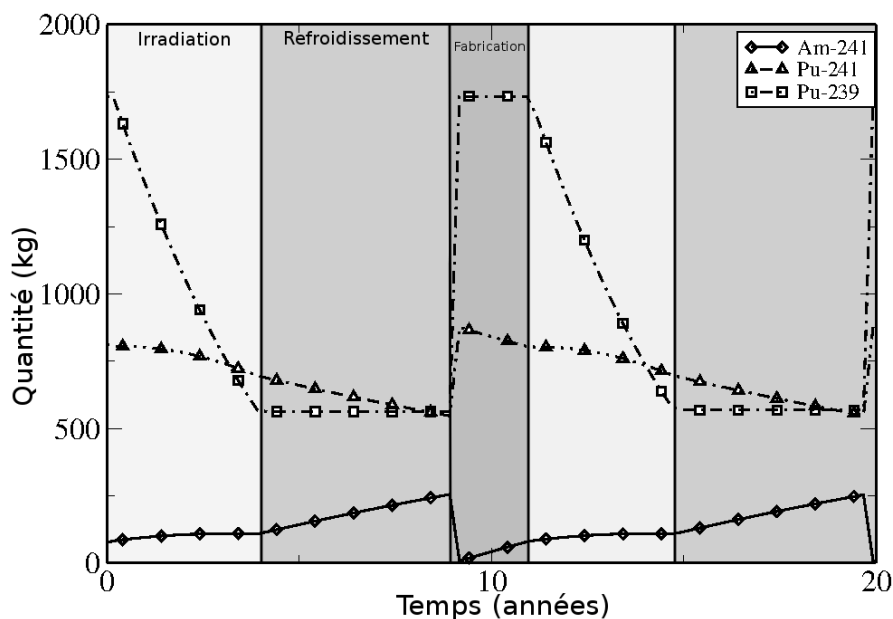


FIGURE 2.7 – Périodicité de la quantité des isotopes majeurs du Pu dans le scénario multiUPu à l'équilibre (voir 2.5.3).

2.5.2 Apports des scénarios à l'équilibre

Le caractère stationnaire et périodique des scénarios à l'équilibre permet de se libérer d'un certain nombre de contraintes qui bloquaient justement la précision de la définition du scénario tel que présentée au début du chapitre.

Tout d'abord le problème de définition de l'état initial du parc électronucléaire et des stocks disparaît car les quantités de matières dans les stocks ne dépendent que de leurs variations lors du cycle à l'équilibre.

De plus dans un scénario à l'équilibre, il n'y a aucun changement de filière ou de modèle de réacteur, ni aucune mise en place de nouveaux types de combustible. On étudie seulement une situation donnée, sans passage d'une répartition du parc à une autre ou sans introduction de nouvelles technologies au cours du scénario. On se libère donc du deuxième problème mentionné précédemment pour ce qui est de la date de démarrage des nouvelles technologies ou stratégies qui sont soumises à des influences décorréées de l'évolution du parc.

En supprimant le besoin de répondre à ces deux questions qui apportaient le plus de paramètres non contrôlables ou non déterminables dans les scénarios, le scénario à l'équilibre permet de se concentrer sur la physique des réacteurs et les conséquences des choix volontaires et maîtrisés de celui qui l'étudie.

De plus, un scénario à l'équilibre permet un gain au niveau de la simulation. En effet, puisque tous les cycles du combustible d'un scénario à l'équilibre sont identiques, seule la simulation précise d'un cycle est nécessaire pour son étude complète. Il faut cependant avoir auparavant déterminé l'état d'équilibre, ce qui est loin d'être évident. Une méthode spécifique a été développée, elle est présentée dans le chapitre 5.

2.6 Résumé et Conclusions du chapitre

Dans ce chapitre, nous avons définis 8 scénarios standardisés dont les caractéristiques sont résumées dans le tableau 2.1. Leurs différences ont été réduites au minimum afin de faciliter les comparaisons entre eux.

Ils vont être comparés à l'équilibre, défini comme un état stationnaire du scénario représenté par un seul cycle qui se répète de façon périodique, mais aussi hors équilibre en conservant les paramètres qui peuvent l'être, toujours dans l'optique de faciliter les comparaisons.

2.6. RÉSUMÉ ET CONCLUSIONS DU CHAPITRE

Chapitre 3

Outils et Méthodes

3.1 MURE

L'évolution des différents combustibles au sein du REP standard considéré a été simulée avec l'outil MURE [23]. Ce code et ses sources sont disponibles à la NEA [24]. Il est développé au sein d'une collaboration entre plusieurs équipes de l'IN2P3 depuis une dizaine d'années [16, 25, 12, 26, 27] et à fait l'objet de plusieurs benchmark qui ont permis sa validation [23, 25].

MURE simule l'évolution du combustible nucléaire au cours du temps en utilisant le code de transport statique de référence MCNP 5 [28]. Comme MURE est un code développé dans un langage orienté objet, chaque utilisateur peut définir sa propre façon d'interagir avec l'évolution. De plus, MURE propose une interface graphique facile à prendre en main qui permet de visualiser et d'analyser les résultats. Il permet également de coupler des calculs neutroniques (avec ou sans évolution de la composition isotopique du combustible) avec la thermo-hydraulique en utilisant un code simplifié intégré à MURE (BATH pour Basic Approach of Thermal-Hydraulics) ou un code 3D : COBRA-EN [26]. MURE peut aussi être simplement utilisé comme une interface à MCNP pour construire des fichiers d'entrée contenant géométries et compositions plus facilement.

3.1.1 Résolution numérique des équations de Bateman

Pour calculer l'évolution de la composition isotopique d'un combustible sous irradiation, il faut résoudre l'équation de Bateman (3.1) pour chaque isotope considéré

3.1. MURE

et pour chaque cellule évoluant :

$$\frac{\partial N_i(t)}{\partial t} = \sum_j \lambda_j^{j \rightarrow i} N_j(t) - \lambda_i N_i(t) + \sum_{j'} N_{j'}(t) < \sigma_{j'}^{j' \rightarrow i} > \phi - \sum_r N_i(t) < \sigma_i^{(r)} > \phi \quad (3.1)$$

avec

- N_i la quantité de noyau de l'isotope i ;
- $\lambda_j^{j \rightarrow i}$ la constante radioactive de l'isotope j qui décroît vers l'isotope i (en s^{-1}) ;
- $< \sigma_j^{j \rightarrow i} >$ la section efficace microscopique moyenne de la réaction sur l'isotope j qui amène sur l'isotope i calculée par un calcul neutronique statique (en cm^2) ;
- $< \sigma_j^{(r)} >$ la section efficace microscopique moyenne de la réaction (r) sur l'isotope j calculée par un calcul neutronique statique (en cm^2) ;
- ϕ la valeur du flux dans la cellule (en $n.cm^{-2}.s^{-1}$).

Pour notre étude, nous choisissons de fixer la puissance du système simulé. Le flux neutronique est alors déduit de la puissance, des sections efficaces de fission et de la composition par la relation :

$$P_{th} = \sum N_i \sigma_i^f \phi \epsilon_i \quad (3.2)$$

avec

- ϵ_i l'énergie dégagée lors de la fission d'un noyau de l'isotope i ;
- σ_i^f la section efficace microscopique de fission de l'isotope i .

Lorsque le combustible évolue, le nombre de noyaux fissiles change. Or, les quantités de différents noyaux contraignent fortement le spectre de neutrons, ce qui conduit à faire varier les sections efficaces microscopiques moyennes au cours du temps. Nous avons donc à faire à un système d'équations non linéaires puisque les sections efficaces et le flux évoluent avec le temps, ce qui complexifie la résolution.

Par ailleurs, il est possible que plusieurs réactions sur un noyau reproduisent le noyau initial et forment ainsi une boucle dans l'évolution. Ainsi, un noyau de ^{240}Pu peut, après 3 captures neutroniques, se transformer en ^{243}Pu qui décroît rapidement, avec un période de moins de 5 heures, en ^{243}Am . Ce noyau d' ^{243}Am peut encore capturer un neutron et donner un noyau d' ^{244}Am qui décroît avec une période de 10 heures en ^{244}Cm , qui décroît à son tour en ^{240}Pu . Un noyau de ^{240}Pu après 4 capture et 3 décroissances radioactives redevient alors un noyau de ^{240}Pu . Cela forme une boucle, présentée dans la figure 3.1. Cette boucle interdit toute résolution analytique exacte du système d'équation de Bateman.

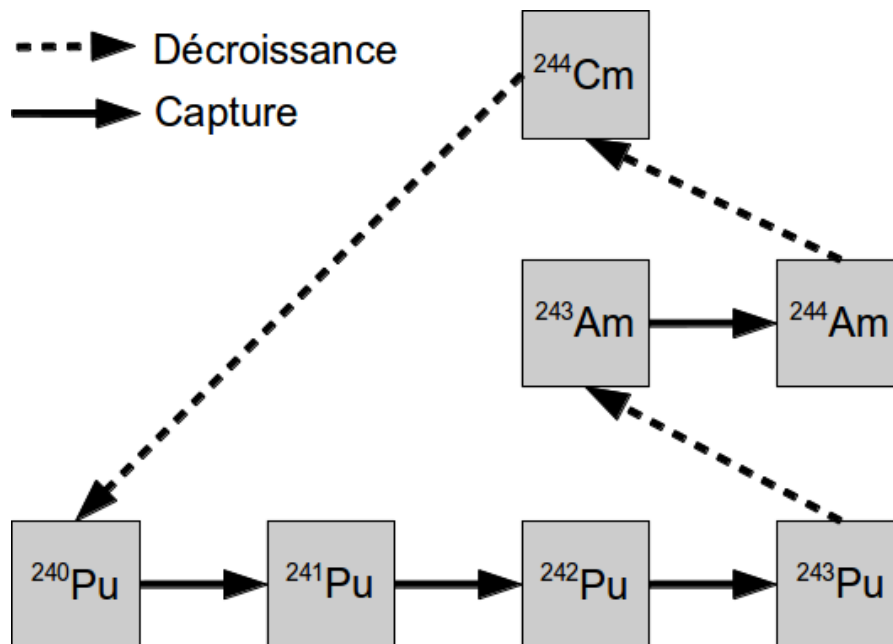


FIGURE 3.1 – Exemple de boucle dans l'évolution des noyaux sous irradiation : production de ^{240}Pu à partir de ^{240}Pu .

Pour toutes ces raisons, il est nécessaire de mettre en place une méthode de résolution numérique permettant de simuler l'ensemble de ces contraintes.

3.1.2 Calcul du transport des neutrons par la Méthode de Monte-Carlo

Dans l'équation de Bateman, on a besoin, pour chaque volume où l'équation est résolue, de la valeur moyenne des taux de réactions, $\langle N\sigma\phi \rangle$, pour les différents isotopes présents dans le combustible ainsi que de la valeur du flux. Les bases de données nucléaires fournissent les valeurs des sections efficaces pour une énergie de neutron donnée. Le calcul de la valeur moyenne $\langle \sigma\phi \rangle$ dans le réacteur qui permet d'obtenir les taux de réaction revient donc au calcul du spectre en énergie des neutrons qui nécessite de résoudre l'équation de transport des neutrons dans la géométrie simulée.

Pour résoudre l'équation de transport des neutrons, le code MURE utilise le code MCNP (Monte Carlo N Particle) [28]. MCNP est un code de transport de référence, développé au LANL (Los Alamos National Laboratory), basé sur la méthode de

3.1. MURE

Monte-Carlo. Il simule le transport de particules (neutrons, photons ou électrons bien que seuls les neutrons aient été utilisés dans cette étude) dans n'importe quelle géométrie tridimensionnelle pour une composition isotopique fixée dans chaque cellule de cette géométrie à un instant donné.

La première étape pour utiliser MCNP consiste à décrire la géométrie que l'on souhaite simuler, dans notre cas la géométrie de l'assemblage. Ainsi chaque matériau occupe un volume au sein d'une forme donnée, ce volume est appelé une cellule. Le code MCNP simule alors un grand nombre neutrons et suit l'évolution de leurs positions et de leurs énergies de façon continue grâce à des méthodes probabilistes. A partir de ces multiples traces de neutrons, diverses grandeurs moyennes peuvent être calculées dans les cellules d'intérêt.

Pour nos simulations, seul le spectre des neutrons, c'est à dire la répartition en énergie des neutrons, dans les cellules évoluant a été calculé. Pour cela l'espace en énergie a été divisé en 17900 groupes choisis afin de décrire au mieux les zones de résonances des sections efficaces principales pour la simulation d'un REP. Il est aussi possible de calculer directement avec MCNP les taux de réaction moyens sans passer par la constitution de groupes d'énergie. La méthode utilisant les groupes a été utilisée car elle permet de diminuer significativement le temps de calcul en n'apportant que de faibles déviations grâce à un découpage fin qui permet de bien prendre en compte l'autoprotection [12].

Une fois le spectre des neutrons obtenu grâce à une simulation avec MCNP, on calcule, pour chaque cellule et pour chaque groupe, la valeur ϕ_i du flux correspondant à l'intervalle en énergie du groupe i comme expliqué dans l'équation :

$$\phi_i = \frac{\sum_{E(k) \in [\text{groupe } i]} l_k}{V} \quad (3.3)$$

où :

- l_k est la longueur parcourue par le neutron k dans la cellule considérée ;
- V est le volume de la cellule considérée.

A ce stade, MCNP ne connaissant pas la puissance du système, le flux est normalisé par neutron de fission.

On obtient des sections efficaces microscopiques moyennes à un groupe qu'il est possible d'injecter dans l'équation de Bateman grâce à la formule suivante :

$$\langle \sigma \rangle = \frac{\int \sigma \phi dE}{\int \phi dE} \simeq \frac{\sum \sigma_i \phi_i \Delta E}{\sum \phi_i \Delta E} \quad (3.4)$$

3.1.3 Couplage

À partir des sections efficaces obtenues grâce à la résolution de l'équation de transport dans MCNP, on peut résoudre numériquement l'équation de Bateman en considérant que le spectre n'évolue pas sur l'intervalle de temps considéré. La résolution numérique est effectuée avec la méthode de Runge-Kutta. Cependant, même si les sections efficaces microscopiques sont considérées comme constantes, lorsque la composition du combustible change, le flux doit s'adapter à cette variation de la composition pour que la puissance reste constante.

Les sections efficaces étant impactées par ce changement de composition, il faut régulièrement les mettre à jour. Pour cela, on stoppe l'évolution et des calculs dans MCNP basés sur la nouvelle composition sont effectués. On met donc en œuvre un algorithme de résolution cyclique pour calculer l'évolution du combustible :

- MCNP calcule des sections efficaces à un temps t qui servent à calculer l'évolution de la composition du combustible entre t et $t + \Delta t$ (méthode de Runge-Kutta).
- Durant cet intervalle de temps Δt , le flux est recalculé environ 10 fois pour maintenir les variations de la puissance dans une gamme acceptable.
- La composition à $t + \Delta t$ est ensuite utilisée dans MCNP pour calculer les sections à $t + \Delta t$ et ainsi continuer le cycle.

Ce cycle, dont la durée varie de quelques minutes d'irradiations à quelques jours suivant la précision voulue, est représenté de façon synthétique dans la figure [3.2](#).

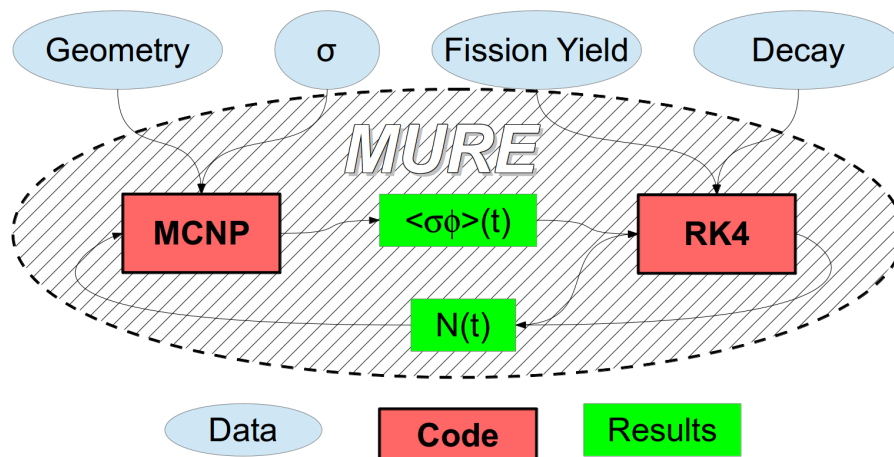


FIGURE 3.2 – Schéma de fonctionnement général de l'évolution dans MURE

3.2 Calcul assemblage

3.2.1 Définition du calcul assemblage

3.2.1.1 Principe

Le principe du calcul assemblage est de se limiter à faire le calcul neutronique sur un assemblage, ou une partie d'assemblage, placé au sein d'un réseau infini grâce à des conditions aux limites réflexives. On peut ensuite extrapoler le résultat pour en déduire le comportement neutronique du cœur complet d'un réacteur. Grâce à cette méthode, on réduit grandement la complexité du système étudié. Comme tous les assemblages du réseau infini ne sont que des images réfléchies du même assemblage, ils sont tous identiques. Dans notre modèle de calcul assemblage, on se limite même au suivi de l'évolution de la composition moyenne des crayons dans l'assemblage. Grâce aux conditions réfléchives parfaites sur toutes les surfaces externes de l'assemblage, on obtient un flux très plat dans la portion d'assemblage considérée et cela suivant toutes les dimensions, l'approximation en considérant que tous les crayons simulés voient leur composition évoluer comme la moyenne des crayons est donc assez faible. Ce suivi moyen de l'évolution de la composition conduit à une diminution directe du temps de calcul au moment du calcul de l'évolution des compositions. De plus, tous les crayons du cœur sont alors considérés comme un ensemble homogène vis à vis de leur évolution, ainsi le flux et les sections efficaces de tous les crayons sont calculés grâce aux neutrons interagissant dans tous les crayons. Sans séparation de la statis-

3.2. CALCUL ASSEMBLAGE

tique entre différentes cellules qu'il faut suivre, puisque l'ensemble des crayons est considéré comme un tout homogène, on peut ainsi atteindre une précision correcte avec beaucoup moins de neutrons dans les calculs Monte-Carlo.

Ces simplifications font que l'évolution jusqu'à un burn-up de 50 GWj/t avec la méthode du calcul assemblage se fait en environ 8 heures.processeurs contre près de 600 pour la simulation d'un cœur complet dans les mêmes conditions [29]. Les temps de calculs, qui étaient prohibitifs avec la simulation de cœurs complets, entrent donc dans des domaines qui rendent faisables les études prospectives des scénarios alternatifs présentés dans le chapitre précédent. De plus ce modèle permet de faciliter la convergence des sources au sein du volume simulé comme expliqué dans le paragraphe 3.2.1.3.

Cette simplification du problème se fait à travers plusieurs approximations dont les principales sont discutées dans la fin de ce chapitre. Ces approximations gardent néanmoins une influence suffisamment faible pour que les calculs assemblages restent représentatifs de ce qui se passe sur la globalité du cœur. De telles approximations sont cohérentes avec l'objectif des calculs de scénarios qui sont effectués dans notre travail car elles permettent de dégager des tendances et d'effectuer des comparaisons dans des temps raisonnables. Néanmoins, des études de sûreté ou de comportement neutronique et thermo-hydraulique précis d'un système nécessiteraient des simulations plus précises.

C'est pour cette rapidité de calcul et cette représentativité de qualité que les calculs assemblages sont à la base de la plupart des codes industriels [30]. Ces caractéristiques en ont aussi fait un outil privilégié dans les milieux académiques pour l'étude de cycles innovants [31, 13, 32, 27].

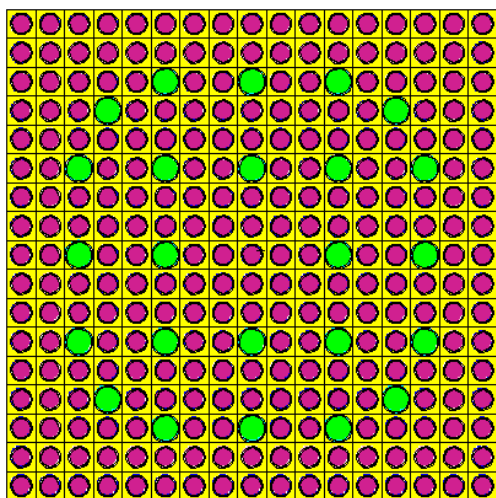
3.2.1.2 Modèle d'assemblage

Les stratégies alternatives conçues et étudiées dans ce travail ne mettent en jeu que des REP de technologie existante. De très nombreuses variantes de REP ont été développées et mises en exploitation au cours du temps par les différents industriels. Dans nos simulations nous avons utilisé une géométrie d'assemblage standard basé sur le REP N4 conçu par Areva [33] qui est le modèle de REP utilisé lors de la construction de la dernière série de réacteurs avant l'EPR, c'est à dire les REP les plus récents actuellement en fonctionnement en France. Étant donné les schémas de calcul utilisés, les résultats obtenus seront valables pour des REP de nouvelle

3.2. CALCUL ASSEMBLAGE

génération.

La figure 3.3 présente avec précision la géométrie qui a été utilisée pour nos simulations. Il s'agit d'un assemblage carré de 17 crayons de côté au sein duquel 24 crayons sont remplacés des tubes guides modélisés par des tube de zircaloy rempli d'eau. Chacun de ces crayons est constitué de pastilles de dioxyde d'actinide. La température est considérée homogène à 900 K, et ce quel que soit les actinides considérés dans le combustible. Cette température a été choisi afin que les taux de réactions moyens dans le crayons ayant une température homogène soient aussi proche que possible que ceux dans un véritable crayons avec un réelle distribution en température. Ces crayons sont entourés d'un gaine en Zircaloy-4 à une température de 600 K et avec une densité de $6.5g.cm^{-3}$. Le caloporteur est de l'eau liquide à 600K, de densité de $0.71g.cm^{-3}$.



Coté d'un assemblage	21.45cm
Coté d'une cellule	1.262cm
Rayon du crayon	0.475cm
Rayon de la pastille	0.418cm
Hauteur totale	427cm
Hauteur simulée	42.7cm
Puissance volumique moyenne dans le combustible	330W.cm ⁻³

FIGURE 3.3 – Géométrie d'assemblage utilisée lors de notre étude.
Volumes jaunes : caloporteur eau, Volumes verts : intérieurs des tubes guides rempli d'eau, Volumes rouges : combustibles

Dans notre étude, les calculs assemblages ont été effectués sur une section d'assemblage d'une hauteur correspondant à un dixième de la hauteur réelle de l'assemblage avec des surfaces réfléchissant les neutrons sur toutes les parois (latérales, supérieures et inférieures) et simulent donc l'évolution de ces assemblages dans un environnement infini dans lequel aucune fuite n'est prise en compte. La portion d'assemblage simulé se comporte comme si elle était au centre d'un cœur infini composé uniquement de copie de cette même portion d'assemblage à l'infini dans toutes les directions. Aucune mise à l'équilibre forcée des isotope à vie courte (tels le Xénon

3.2. CALCUL ASSEMBLAGE

ou le Samarium) n'est effectué et leur évolution au court du temps est calculée lors de la résolution des équations de Bateman.

3.2.1.3 Effet sur la convergence Monte-Carlo

La diminution du volume simulé permet aussi de résoudre l'une des difficultés majeures pour l'utilisation des méthodes Monte-Carlo pour la simulation de réacteurs nucléaires. En effet, lors de la simulation de cœur de REP complet, ou dans une moindre mesure lors de la simulation d'assemblages sur toute leur hauteur, les méthodes de Monte-Carlo ont de grandes difficultés à obtenir des sources convergées et ce qui pose spécifiquement de gros problèmes pour les calculs faits en couplage avec l'évolution du combustible [14]. Ce problème de convergence est principalement lié à un écart trop grand entre le libre parcours moyens des neutrons et les grandeurs caractéristiques des géométries simulées [34, 35, 36, 37]. Une comparaison entre les sources de fissions obtenues avec un code Monte-Carlo et un code déterministe pour la même géométrie montre des écarts importants lors de la simulations d'un assemblage dans toute sa hauteur, alors qu'ils sont presque inexistantes avec la simulation de seulement une portion de l'assemblage [14].

Enfin, l'utilisation d'une géométrie resserrée permet une convergence très rapide de la source de fission, c'est à dire de la répartition des sites de fission au sein de l'assemblage, lors des calculs MCNP. La détermination de la répartition spatiale des sites de fissions se fait par l'intermédiaire de calculs spécifiques pendant lesquels les neutrons sont propagés sans qu'aucune donnée (autre que celle sur ces sites de fissions) ne soit extraite du calcul. Ces calculs sont appelés des cycles inactifs. Une étude précise de cette convergence dans le REP montre que l'obtention d'une source convergée pour un assemblage simulé dans toute sa hauteur demande 50 fois plus de calculs lors de ces cycles inactifs, que pour l'obtention de la même convergence pour une portion d'assemblage [14]. Dans notre cas, une source répartie de façon homogène en volume dans les crayons a servi de source initiale à MCNP. Cette répartition a été conçue afin de représenter en première approximation une répartition homogène des fissions dans le combustible. Grâce aux indicateurs de convergence calculés par MCNP, on a pu contrôler la convergence de la source de fission dans notre assemblage. Ces indicateurs ont permis d'évaluer que 2 cycles inactifs étaient suffisant pour obtenir une convergence acceptable. Ce nombre confirme que le déplacement nécessaire des sites de fission depuis la répartition homogène vers la répartition convergée est assez faible devant le libre parcours moyen des neutrons dans notre assemblage.

Par mesure de précaution, 5 cycles inactifs ont été utilisés lors de nos calculs.

3.2.2 Effet des hypothèses du modèle

3.2.2.1 Approximation du cœur homogène

Rappelons que dans un réacteur non régénérateur, le facteur de multiplication a tendance à diminuer. Le combustible est donc initialement "surcritique" et cette surcriticité est compensée par des poisons neutroniques pour obtenir un système global critique. Le taux de combustion accessible correspond alors à un réacteur tout juste critique en fin de cycle alors que les poisons neutroniques, comme le bore soluble au sein du caloporteur eau, ont été réduits au minimum. En plaçant des assemblages peu irradiés à côté d'assemblages fortement irradiés, le rechargement partiel du cœur permet d'augmenter grandement le temps d'irradiation du combustible. En effet, dans ce cas, la sous-criticité des assemblages les plus vieux est compensée par la surcriticité des assemblages frais ce qui permet d'allonger la durée d'irradiation des anciens assemblages et de rendre l'irradiation du combustible beaucoup plus homogène et donc d'atteindre de meilleurs taux d'épuisement. Ce gain en terme de burn-up atteignable est de l'ordre de plusieurs dizaines de pourcents [27]. Il a donc été choisi de simuler des irradiations avec de tels rechargements partiels. Pour tous les scénarios étudiés, un rechargement par quart a été choisi mais les effets de chargement plus complexes comme le zonage MOX ont été éludés. Néanmoins, le calcul assemblage, en simulant un cœur infini à partir de la réflexion infinie dans toutes les directions d'une portion d'assemblage, simule en fait un cœur complètement homogène : tous les assemblages du cœur sont identiques et ont connu le même historique d'irradiation.

Pour simuler l'effet d'un rechargement partiel sans sortir du cadre du calcul assemblage, seul l'effet de lissage de la réactivité a été pris en compte. Ainsi le critère de criticité n'est plus posé sur le k_∞ d'un assemblage, mais sur le k_∞ moyenné sur les différents assemblages à différents temps d'irradiation tels qu'ils cohabiteraient dans le cœur lors de l'application du rechargement partiel. Pour calculer ce k_∞ moyen dans le cas d'un rechargement en N fois, la formule la plus couramment mentionnée dans la littérature [30] est simplement :

$$\langle k_\infty(t) \rangle = \frac{1}{N} \sum_{i \in [1;N]} k \left(t + \frac{iT}{N} \right) \quad (3.5)$$

3.2. CALCUL ASSEMBLAGE

avec

- $\langle k_\infty(t) \rangle$ le facteur de multiplication moyen des assemblages dans le cœur
- N le nombre de division du cœur pour la gestion des rechargement, par exemple $N = 4$ pour un rechargement par quart
- T le temps d'irradiation total du combustible en cœur, ainsi un combustible rechargé par quart fera 4 campagne d'irradiation d'une durée $\frac{T}{4}$ par campagne pour une durée d'irradiation totale T

Cette formule moyenne directement les k_∞ des N types d'assemblages irradiés de façon décalée. On notera que cette formule ne donne pas véritablement le k moyen du réacteur qui serait plutôt le rapport entre la totalité des productions de neutrons et la totalité des absorptions. Dans notre travail, nous avons utilisé une méthode plus proche de la définition physique du facteur de multiplication global du cœur, à savoir :

$$\langle k_\infty(t) \rangle = \frac{\sum_{i \in [1;N]} \sum_{j \in isotopes} \nu^j \Sigma_{fission}^j \left(t + \frac{iT}{N} \right) + \sum_{i \in [1;N]} \sum_{j \in isotopes} \Sigma_{n,2n}^j \left(t + \frac{iT}{N} \right)}{\sum_{i \in [1;N]} \sum_{j \in isotopes} \Sigma_a^j \left(t + \frac{iT}{N} \right)} \quad (3.6)$$

avec

- $\langle k_\infty(t) \rangle$ le facteur de multiplication moyen des assemblages dans le cœur
- $\Sigma_{fission}^j(t)$ la section efficace macroscopique de fission de l'isotope j à l'instant t
- $\Sigma_{n,2n}^j(t)$ la section efficace macroscopique de réaction $(n, 2n)$ de l'isotope j à l'instant t
- $\Sigma_a^j(t)$ la section efficace macroscopique totale d'absorption de l'isotope j à l'instant t
- ν^j le nombre moyen de neutron émis lors d'une fission de l'isotope j

Ainsi le k_∞ moyen est calculé en faisant le rapport global entre la production totale de neutrons dans tous les assemblages et l'absorption totale. Les sections efficaces pour les différents groupes d'assemblages avec des burn-up différents sont calculées au burn-up au moment du cycle considéré. Ainsi, l'évolution du spectre au cours de l'irradiation est prise en compte. L'hypothèse de simplification la plus forte se trouve alors dans les sections efficaces non prises en compte lors du calcul de ce rapport, l'absorption sur les gaines et sur le caloporteur dans notre cas. Néanmoins

3.2. CALCUL ASSEMBLAGE

ces sections efficaces sont relativement faibles comparées à celles du combustibles et varient peu au cours du cycle.

Ces deux méthodes de calcul du k_{∞} moyen ont été utilisées pour suivre la réactivité d'un cœur de REP entièrement chargé avec du combustible UOX mettant en place une stratégie de rechargement par quart, de façon à ce que tous les assemblages atteignent un burn-up de $50GWj/t_{NL}$. Le résultat de cette comparaison est présenté dans la figure 3.4.

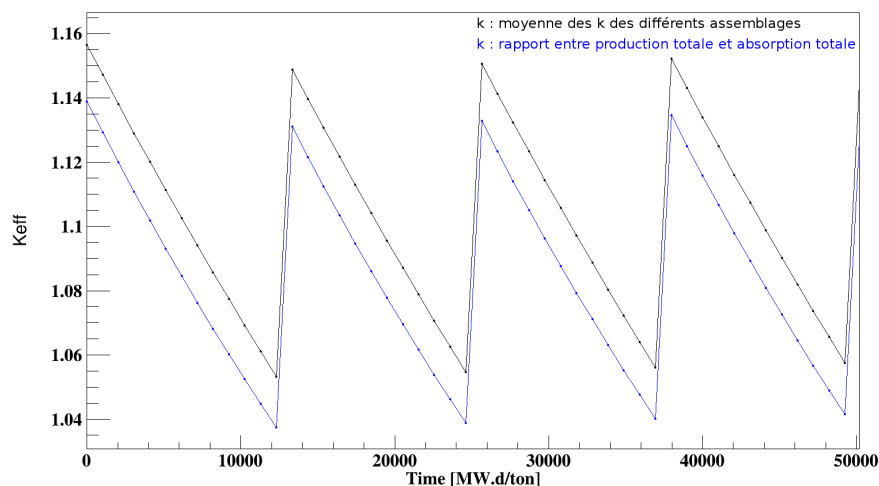


FIGURE 3.4 – Comparaison de la réactivité moyenne d'un cœur UOX rechargé par quart à partir d'un calcul assemblage et de deux méthodes de calcul du k moyen

Les deux méthodes donnent un écart sur la réactivité calculée d'environ 1000 pcm qui reste constant au cours du cycle. La méthode faisant la moyenne des k_{∞} , présentée dans l'équation (3.5), donne une réactivité plus importante que la méthode faisant le rapport des taux de réaction moyens, présentée dans l'équation (3.6), car elle conduit à une surestimation de l'efficacité des neutrons produits dans les assemblages neufs, au spectre très thermalisé, qui arrivent dans les assemblages usés, au spectre plus dur.

La méthode retenue permet de simuler l'évolution de la réactivité d'un cœur mélangeant un même type d'assemblage à différents burn-ups. Néanmoins elle ne permet pas la simulation de l'action d'un assemblage sur les spectres de ses voisins car l'évolution d'un assemblage n'est calculée qu'une seule fois et cela sans connaître au préalable l'évolution du spectre des assemblages voisins. Ainsi l'évolution d'un

3.2. CALCUL ASSEMBLAGE

assemblage MOX calculée par un calcul assemblage sera plus proche de l'évolution d'un MOX dans un cœur 100% MOX que de celle dans un cœur contenant 70% de combustible UOX et 30% de combustible MOX, comme ce qui se fait dans les réacteurs français. Dans notre étude cet effet sera négligé, conduisant à des spectres plus dur au sein des combustibles MOX. Cependant, cet effet étant présent au sein de tous les scénarios étudiés, il ne fausse pas la comparaison.

3.2.2.2 Approximation du cœur infini

Le calcul assemblage simule un cœur infini dans toutes les directions. Il n'existe donc aucun assemblage périphérique. Tous les assemblages sont virtuellement au centre de ce cœur infini et ont un flux axial complètement plat. La figure 3.5 (issue de [26]) montre que, dans un assemblage fini en z, ce flux axial est loin d'être plat : les extrémités supérieures et inférieures de l'assemblage ont des puissances inférieures à celles de son centre. Elles sont néanmoins prises en compte lors du calcul de la puissance volumique dans le combustible, la puissance considérée étant une moyenne sur la hauteur de l'assemblage et non la valeur en son centre.

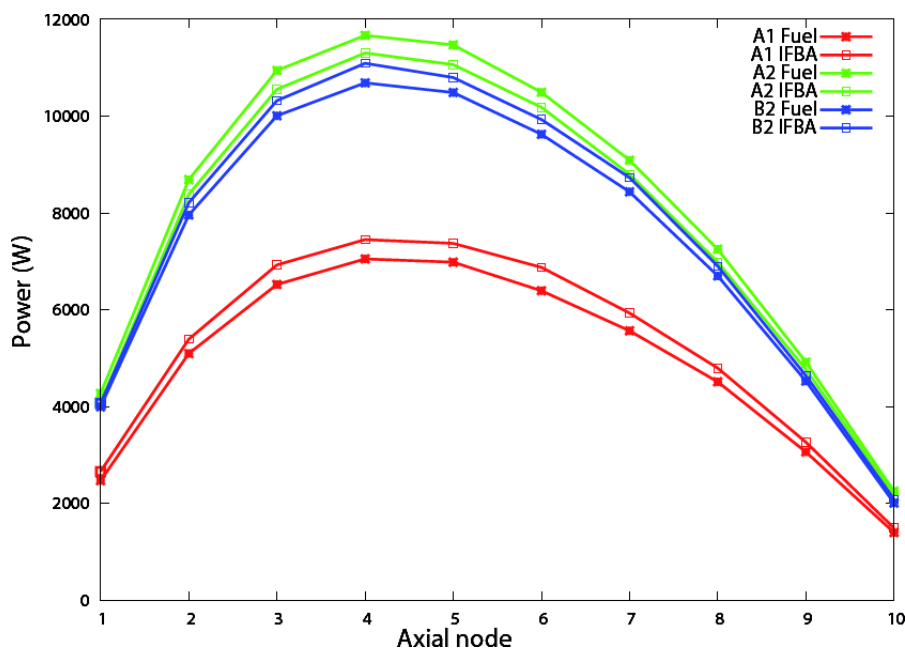


FIGURE 3.5 – Distribution de la puissance selon l'axe vertical d'un assemblage [26] La puissance totale dans chaque dixième de crayon est indiquée, la somme des puissance dans toutes les zones donne la puissance totale du crayon considéré

3.2. CALCUL ASSEMBLAGE

De plus, dans un véritable réacteur, les assemblages en périphérie du cœur voient des flux très différents et ont donc des puissances très différentes de ceux des assemblages du centre, et cela même lorsqu'on applique un plan de chargement par quart qui atténue cette différence (voir la figure 3.6). Ainsi cette disparité de puissance entre les assemblages au sein d'un réacteur peut aller jusqu'à un facteur 3 sur la puissance des assemblages entre l'assemblage avec la puissance la plus faible, qui a une puissance de 52,4% de la puissance moyenne, et l'assemblage avec la puissance la plus importante, qui voit 162,7% de la puissance moyenne. Cette inhomogénéité observée a deux principales causes : la finitude radiale du réacteur et le plan de chargement.

La finitude radiale du cœur implique que certains assemblages, en périphérie, sont entourés de l'eau des réflecteurs. Ces assemblages ont donc des fuites plus importantes car ils sont plus près du bord, mais voient un spectre de neutrons plus thermalisé car les neutrons revenant du réflecteur se sont ralentis au cours des nombreuses diffusions qu'ils y ont faites. Au contraire, les assemblages du centre sont moins sensibles aux fuites, mais, étant entourés d'assemblages déjà irradiés, ils reçoivent des neutrons avec un spectre plus dur. D'après la puissance des assemblages visibles sur la figure 3.6 (issue de [14]), la compétition entre ces deux effets semblent favoriser des puissances un peu plus importantes sur les bords qu'au centre. Dans notre travail, cet effet a été lissé en fixant, non pas le temps de résidence en irradiation, mais le burn-up vu par chaque assemblage, qui est la variable qui dirige véritablement l'évolution des compositions. Ainsi le burn-up est le même dans tous les assemblages simulés et les effets des variations d'historique de puissance sont atténués.

1.613	1.570							
1.171	1.462	1.627	1.298					
1.525	1.137	0.977	1.098	0.957	0.846			
0.815	0.842	1.272	0.797	0.801	0.879	0.846		
0.824	0.952	0.856	0.910	0.791	0.801	0.957		
0.857	0.754	0.648	0.639	0.910	0.797	1.098	1.298	
0.590	0.720	0.975	0.648	0.856	1.272	0.977	1.627	
0.624	0.763	0.720	0.754	0.952	0.842	1.137	1.462	1.570
0.524	0.624	0.590	0.857	0.824	0.815	1.525	1.171	1.613

FIGURE 3.6 – Distribution de la puissance entre les différents assemblages d'un quart de cœur de REP chargé par quart [14]. Le centre se trouve dans le coin inférieur gauche.

3.2.3 Autres approximations effectuées

3.2.3.1 Contrôle de la réactivité

Dans un REP, le k_∞ du combustible diminue de façon importante au cours de l'irradiation suite à la diminution de quantité de matière fissile et à l'empoisonnement par les produits de fission. Pour permettre l'irradiation du combustible dans un cœur critique pendant un temps raisonnable, le combustible est donc conçu de façon à ce que son k_∞ soit strictement supérieur à 1 en début d'irradiation. Cette sur-réactivité du combustible est compensée par l'addition d'un poison neutronique en début de cycle qui doit être retiré au fur et à mesure de l'irradiation. Le poison qui joue le rôle le plus important dans ce suivi de la réactivité est le bore qui est introduit dans l'eau, sous forme d'acide borique. L'action de poison neutronique du bore vient principalement des réactions d'absorption de neutrons (n, α) sur le ^{10}B . L'ajustement de la concentration de bore dans l'eau permet d'ajuster le niveau de cette anti-réactivité et ainsi de compenser la baisse du k_∞ du combustible afin de maintenir un cœur critique tout au long de l'irradiation.

La simulation de cette méthode de gestion de la réactivité pose une difficulté lors de l'utilisation du calcul assemblage. En effet la concentration de bore est à peu près homogène dans tout le cœur et est ajustée pour que l'ensemble du cœur soit critique. On ne peut utiliser le même critère de criticité lors d'un calcul assemblage. En effet au sein d'un cœur complet, des assemblages avec des burn-up différents cohabitent, suite à la mise en place des plans de chargement et des rechargements partiels de cœur. La sur-réactivité due au combustible dans chaque assemblage n'est donc pas la même et ne correspond pas à la moyenne sur le cœur. Pour rendre compte dans un calcul assemblage de cette gestion de réactivité à l'échelle du cœur, de nombreuses méthodes peuvent être envisagées, parmi lesquelles on trouve l'utilisation d'une concentration de bore moyenne, l'utilisation d'itérations de calculs assemblage complets pour calculer la concentration de bore, ou encore le suivi d'une réactivité hypothétique du cœur ou l'alternance de calculs cœur et de calculs assemblage pour ajuster cette concentration [14]. Pour la simulation de cycles innovants dans des REP, la méthode souvent choisie est de négliger l'influence du bore [14, 16, 27]. Cette hypothèse revient à faire l'approximation que le bore n'a que peu d'influence sur le spectre de neutrons, et donc sur les taux de réaction, et que son influence peut se résumer à une anti-réactivité brute proportionnelle à sa concentration.

Afin de vérifier la validité de cette hypothèse, nous avons mené une petite étude

3.2. CALCUL ASSEMBLAGE

spécifique pour comprendre et décomposer les diverses façons avec lesquelles le bore influe sur la réactivité. Plusieurs calculs ont ainsi été effectués sur un combustible UOX en début d'irradiation avec des concentrations de bore différentes. Ces calculs ont ensuite été analysés et les différences de réactivité ont été décomposées entre les diverses influences. Pour cela, on commence par écrire k en fonction des paramètres qui nous intéressent :

$$k_{\infty} = \frac{\nu \Sigma_f}{\Sigma_a} = \frac{\nu \Sigma_f}{\Sigma_a^{fuel} + \Sigma_a^{Bore} + \Sigma_a^{autres}} \quad (3.7)$$

avec

- $\Sigma_f = \sum N_i \sigma_i^f$ la section efficace macroscopique de fission.
- $\Sigma_a = \sum N_i \sigma_i^a$ la section efficace macroscopique d'absorption.

On décompose ensuite les variations de k en fonction de ces différents paramètres :

$$\begin{aligned} \frac{dk}{k} &= \frac{d(\nu \Sigma_f)}{\nu \Sigma_f} - \frac{d(\Sigma_a)}{\Sigma_a} \\ \frac{dk}{k} &= \frac{d(\nu \Sigma_f)}{\nu \Sigma_f} - \frac{d(\Sigma_a^{fuel})}{\Sigma_a} - \frac{d(\Sigma_a^{Bore})}{\Sigma_a} - \frac{d(\Sigma_a^{autres})}{\Sigma_a} \end{aligned} \quad (3.8)$$

Pour regrouper sous un seul paramètre l'évolution de comportement du combustible, on introduit le paramètre $\eta = \frac{\nu \Sigma_f^{fuel}}{\Sigma_a^{fuel}}$, et on regarde ses variations :

$$\frac{d\eta}{\eta} = \frac{d(\nu \Sigma_f)}{\nu \Sigma_f} - \frac{d(\Sigma_a^{fuel})}{\Sigma_a^{fuel}} \quad (3.9)$$

Les variations de k se décomposent alors de la manière suivante :

$$\begin{aligned} \frac{dk}{k} &= \frac{d\eta}{\eta} + \frac{d(\Sigma_a^{fuel})}{\Sigma_a^{fuel}} - \frac{d(\Sigma_a^{fuel})}{\Sigma_a} - \frac{d(\Sigma_a^{Bore})}{\Sigma_a} - \frac{d(\Sigma_a^{autres})}{\Sigma_a} \\ \frac{dk}{k} &= \frac{d\eta}{\eta} - \frac{d(\Sigma_a^{fuel})}{\Sigma_a} \frac{(\Sigma_a^{fuel} - \Sigma_a)}{\Sigma_a^{fuel}} - \frac{d(\Sigma_a^{Bore})}{\Sigma_a} - \frac{d(\Sigma_a^{autres})}{\Sigma_a} \end{aligned} \quad (3.10)$$

Le tableau 3.1 résume la répartition des effets du bore dans les différentes parties de cette équation pour différentes concentrations de bore. On remarque que la modification du spectre causée par la présence de bore est loin d'être négligeable, puisqu'elle représente plus de la moitié de l'effet total du bore (en ajoutant l'influence sur le combustible et sur les autres éléments de l'assemblage). Cette influence du spectre est principalement concentrée sur le combustible, ce qui laisse présager une influence non négligeable sur son évolution.

3.2. CALCUL ASSEMBLAGE

Concentration de Bore		1000 ppm	2000 ppm	3000 ppm	4000 ppm
Combustible (pcm)	$\frac{d\eta}{\eta} - \frac{d(\Sigma_a^{fuel})}{\Sigma_a} \frac{(\Sigma_a^{fuel} - \Sigma_a)}{\Sigma_a^{fuel}}$	-4381	-8823	-13772	-18418
	% du total	49%	51%	54%	56%
Bore (pcm)	$\frac{d(\Sigma_a^{Bore})}{\Sigma_a}$	-4000	-7342	-10147	-12593
	% du total	45%	43%	40%	38%
Reste (pcm)	$\frac{d(\Sigma_a^{autres})}{\Sigma_a}$	-563	-1012	-1407	-1736
	% du total	6%	6%	6%	5%
Effet total (pcm)	$\frac{dk}{k}$	-8944	-17176	-25326	-32747

TABLE 3.1 – Décomposition de l’effet du bore sur la réactivité

Comme le bore a une influence forte sur les sections efficaces, il est nécessaire de simuler la bonne concentration de bore pour obtenir des résultats précis sur l’évolution des différents isotopes. Cependant, cette concentration de bore ne peut être fixée que grâce à un suivi précis de la réactivité globale du cœur qui ne peut être effectué dans un calcul assemblage qui contient déjà intrinsèquement des approximations. De plus, pour les combustibles innovants que nous étudions, il n’existe aucune valeur tabulée de concentration de bore au cours de l’irradiation, ni même de valeur moyenne de celle-ci. Il nous est donc impossible de prendre en compte de manière précise l’influence du bore sur l’évolution du combustible.

Afin de tout de même simuler, de façon approchée, l’effet du bore, on fait le choix de fixer un niveau de bore constant. La concentration de 700 ppm, correspondant au niveau qui permet de rendre correctement l’évolution des isotopes principaux dans un REP [29], a été choisie. Cette concentration qui convient pour l’évolution des combustibles UOX n’est certainement pas optimale dans les autres combustibles à cause des différences de spectres et d’évolution de la criticité du combustible. Des valeurs différentes sont notamment utilisées lors de la simulation de MOX tels qu’utilisé dans la stratégie française monoUPu. Néanmoins l’ajustement de cette quantité ne peut être faite pour chacun des combustibles étudiés, afin de ne pas introduire de biais dans la comparaison en optimisant certains scénarios plus que d’autre, il a été choisi d’utiliser cette valeur de 700 ppm pour tous les combustibles étudiés.

Cette concentration de bore constante au cours du cycle conduit à une anti-réactivité négative en fin de cycle, due au bore qui artificiellement maintenu à un niveau élevé et qui ne représente par la réalité. Cette anti-réactivité doit être prise en compte pour la détermination de la fin de cycle. Pour cela il faut calculer l’anti-

3.2. CALCUL ASSEMBLAGE

réactivité en fin de cycle due au bore pour un combustible dont la fin de cycle est déjà connue, un combustible UOX pour notre cas. Ensuite cette anti-réactivité est rajoutée à la réactivité de l'assemblage pour reconstruire le k_∞ fin de cycle.

Là encore, cette approximation nous semble compatible avec l'objectif d'effectuer des calculs de scénarios, mais devrait être revue pour des calculs de sureté.

3.2.3.2 Détermination de la fin de cycle

Lors de la simulation d'un cœur complet réaliste, la fin de cycle est déterminée par le moment où le k_{eff} du cœur atteint 1. Dans le cadre du calcul assemblage la situation est moins directe car le cœur infini qui est simulé ne prend en compte aucune fuite de neutrons. Prendre la même condition de fin de cycle que dans le cadre de la simulation d'une géométrie réaliste de cœur conduirait ainsi à une surévaluation du burn-up atteignable. Pour réintroduire l'effet des fuites au niveau de la limitation du temps d'irradiation, on fixe un niveau de fuite représentatif de ce qui se passe en fin de cycle et on détermine la fin de cycle par la vérification de la condition : $k_\infty = 1 + fuites$.

Pour calculer ce niveau de fuite, une méthode a été mise en place par P. Guillemin dans la cadre d'un travail couplé entre MURE et le code déterministe DRAGON [14]. Élaborée initialement pour des réacteurs CANDU et appliquée ensuite à des REP, cette méthode consiste à faire un calcul d'évolution d'un cœur complet et de comparer le facteur de multiplication k au sein d'un assemblage de ce cœur à celui obtenu dans un calcul assemblage avec des conditions miroir. La différence en réactivité est alors utilisée comme valeur fixe à soustraire à la réactivité de l'assemblage pour représenter les fuites. Cette valeur a été calculée pour les REP à 3000 pcm. De la même façon, l'influence des barres de contrôle a été évaluée à une anti-réactivité de 1000 pcm, amenant l'anti-réactivité à ajouter à la valeur calculée par MCNP dans notre calcul assemblage à 4000 pcm.

Cette valeur de 4000 pcm, calculée pour un combustible UOX, a été utilisée pour tous les assemblages simulés même si les scénarios que nous étudions mettent en jeu des types de combustible différents, dont la composition peut varier très significativement d'une stratégie à l'autre. Ces compositions différentes entraînent des spectres neutroniques différents au sein du réacteurs qui conduisent à des taux de fuites différents. Mais ces scénarios mettent en jeu des isotopes aux sections efficaces moins connues et aucun calcul cœur les mettant en jeu n'a été réalisé. Obtenir une

3.2. CALCUL ASSEMBLAGE

configuration réaliste de chargement d'un cœur contenant ces combustibles puis faire la simulation du cœur complet pour chacun d'entre eux afin de calculer cette anti-réactivité serait beaucoup trop long et supprimerait tout le gain obtenu en réalisant des calculs assemblage. Nous avons décidé de prendre la même anti-réactivité que pour le combustible UOX, même si cela conduit à une imprécision. Des calculs ont été faits avec MURE pour évaluer l'effet d'une variation de cette valeur du seuil sur le k fin de cycle sur le burn-up atteignable. Sur la figure 3.7, qui montre les résultats obtenus, on voit que pour avoir une précision de 5% sur le burn-up, cette anti-réactivité doit être calculée avec une précision de plus ou moins 500pcm.

Obtenir une telle précision est déjà une difficulté lors de la simulation d'un cœur complet à la configuration connue, mais la figure 3.7 montre que le burn-up est encore plus sensible à cette anti-réactivité pour les combustibles recyclant le plutonium comme les MOX UPu ou ThPu. Avec une précision du même ordre que pour l'UOX, on double l'incertitude sur le burn-up. En utilisant la valeur calculée sur un cœur UOX, pour des combustibles différents, on fait une erreur sur ce seuil dont on ne maîtrise pas totalement l'amplitude et qui a d'autant plus d'influence que la sensibilité de ce seuil est plus élevée au sein des combustibles recyclant le plutonium. On peut donc obtenir une incertitude assez importante sur le burn-up atteignable.

Cependant, on voit que l'influence d'une variation de cette anti-réactivité va toujours dans le même sens et qu'elle est de la même amplitude pour les combustibles à base thorium (ThPu) ou uranium (MOX UPu). Cette incertitude importante sur le burn-up ne remet donc pas totalement en cause les comparaisons qui pourront être faites entre les différentes stratégies : même si les combustibles ne sont pas irradiés exactement jusqu'à 50 GWj/t, l'analyse quantitative des écarts reste pertinente.

3.2. CALCUL ASSEMBLAGE

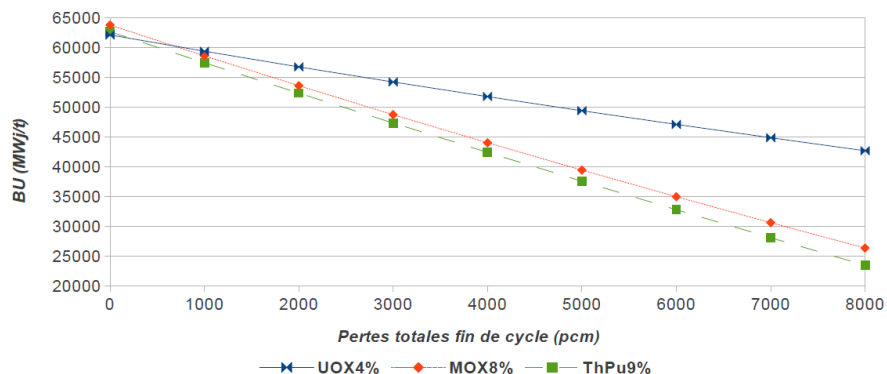


FIGURE 3.7 – Sensibilité au seuil en réactivité fin de cycle pour différents combustibles irradiés avec une gestion du cœur par quart

Toutes les approximations et les incertitudes causées par l'utilisation du calcul assemblage sont un sujet de préoccupation important pour la communauté scientifique. Des études spécifiques sont d'ailleurs menées à leur sujet, en général et pour les codes Monte-Carlo en particulier, dans le cadre de différents projets de collaboration comme des workgroups de l'OECD, ou le projet nommé M2C2 (Multiphysics and Monte Carlo Convergence issues in neutronic calculations) financé par NEEDS / Système, programme de recherche du CNRS en collaboration avec le CEA, l'IRSN, Areva et EDF [38].

3.3 Résumé et Conclusions du chapitre

Dans ce chapitre, on a présenté le code utilisé pour effectuer les simulations, MURE, et on a détaillé le modèle retenu pour simuler les réacteurs au sein des scénarios étudiés, le calcul assemblage.

Le code MURE simule l'évolution du combustible sous irradiation grâce à un couplage entre le code de transport utilisant la méthode de Monte-Carlo MCNP et une résolution numérique des équations de Bateman par la méthode de Runge-Kutta.

Ce code est utilisé pour réaliser des calculs assemblage et prévoir l'évolution du combustibles cœur pour les différents scénarios étudiés.

Le calcul assemblage permet de prédire l'évolution du combustible beaucoup plus rapidement que la simulation d'un cœur complet. Cela se fait en faisant l'approximation d'un cœur infini et homogène, ce qui apporte quelques déviations par rapport au cas réel, déviations qui sont discutées dans ce chapitre. De plus lors des calculs effectués dans ce travail, la prise en compte du contrôle de la réactivité et la détermination de la limite de fin d'irradiation a été effectuée grâce à des modèles simplifiés dont les avantages et les inconvénients ont été discutés dans ce chapitre.

3.3. RÉSUMÉ ET CONCLUSIONS DU CHAPITRE

Deuxième partie

Étude à l'équilibre

Chapitre 4

Simuler un scénario à l'équilibre

4.1 Définition pratique de l'équilibre

4.1.1 Paramètres fixés et observables

Comme expliqué dans le chapitre 2, un scénario à l'équilibre permet de limiter le nombre d'hypothèses d'entrée. En particulier, on ne prends pas en compte les inventaires accumulés par un parc existant. Parmi les paramètres restant, nous avons fixé, pour tous les scénarios à l'équilibre utilisés :

- **Les types de réacteurs présents** : seuls des REP sont utilisés dans nos scénarios.
- **Les types de combustibles différents** : de 1 à 3 types de combustibles sont considérés selon les scénarios, le nombre exact et le type de combustibles sont fixés dans chaque scénario.
- **Le burn-up** est fixé à 50 GWj/t pour tous les types d'assemblage de chacun des scénarios.
- **Le temps de refroidissement après irradiation** est fixé à 5 ans pour tous les assemblages dans tous les scénarios.
- **Le temps entre la séparation et l'irradiation**, aussi appelé temps de fabrication, est fixé à deux ans pour nos scénarios, c'est à dire que le chargement d'un réacteur avec un combustible neuf se fait 2 ans après la séparation chimique des éléments utilisés lors de la fabrication de celui-ci.

Ces paramètres définissent un cadre commun à tous les scénarios à l'équilibre étudiés. Il sont fixés et pris avec la même valeur pour les tous combustibles étudiés afin d'éviter les biais dans la comparaison dus à la meilleur connaissance d'un type

4.1. DÉFINITION PRATIQUE DE L'ÉQUILIBRE

de combustible ou d'un autre. En effet s'il serait possible de choisir des paramètres plus ajustés pour des combustibles bien connus comme les combustibles UOX ou monoUPu, les connaissances sur les combustibles tels que les multiThUPu ou multiThPu sont peu nombreuses et ne permettent pas un ajustement aussi fin de ces paramètres. Afin d'éviter de pénaliser les stratégies thoriées juste à cause du plus petit nombre d'études d'optimisation qui ont été faites à leur sujet, il a été choisi de fixer ces paramètres à ces valeurs génériques pour tous les combustibles.

Chacun des scénarios étudiés est alors constitué d'un cycle du combustible qui se répète à l'identique. Étudier un scénario à l'équilibre est équivalent à étudier ce cycle du combustible unique. Pour le simuler, il faut avoir accès à la valeur convergée de deux grandeurs : la proportion des différents assemblages au sein du parc et les vecteurs isotopiques des différents éléments présents au début de l'irradiation dans ces assemblages. Ces deux valeurs sont les principales observables qui sont regardées après la simulation des différents scénarios à l'équilibre et c'est l'équilibre de ces paramètres qui est contrôlé. D'autres observables, comme la production de déchets ou la consommation de ressources, constituent également des résultats intéressants et sont présentées dans les chapitres suivants. Elles découlent directement de la simulation du cycle à l'équilibre entièrement défini par les paramètres fixés ci-dessus et les deux observables principales qui sont la proportion des différents réacteurs au sein du parc et les vecteurs isotopiques des différents éléments présents au début de l'irradiation dans ces réacteurs. Nous présenterons dans cette partie la méthodologie mise au point pour déterminer avec précision les valeurs des deux observables définissant les conditions d'un scénario à l'équilibre : la proportion des différents réacteurs au sein du parc et les vecteurs isotopiques des différents éléments présents au début de l'irradiation dans ces réacteurs.

4.1.1.1 Équilibre des vecteurs isotopiques

Pour étudier un scénario, il faut donc calculer les vecteurs isotopiques des différents éléments présents en début d'irradiation dans chacun des combustibles considérés. Ces vecteurs isotopiques sont fixés par la condition d'équilibre qui veut que le cycle se répète à l'identique. Il faut donc que chaque isotope i vérifie l'équation (4.1)

$$\forall i, N^i(t = 0) = N^i(t = T_i + T_r + T_f) \quad (4.1)$$

où

4.1. DÉFINITION PRATIQUE DE L'ÉQUILIBRE

- N^i représente la quantité de l'isotope i dans le combustible considéré
- T_i représente le temps d'irradiation
- T_r représente le temps de refroidissement après irradiation
- T_f représente le temps entre la séparation chimique et le début de l'irradiation du nouveau combustible, aussi appelé temps de fabrication.

Le lien entre ces deux valeurs est donné par les équations physiques d'évolution des compositions en irradiation et hors irradiation. En réécrivant l'équation de Bateman (présentée en (3.1)) sous forme matricielle, on obtient :

$$\frac{d\vec{N}}{dt} = A\vec{N} \quad (4.2)$$

où $\vec{N}$ est le vecteur rassemblant les quantités de tous les isotopes i et A est la matrice de Bateman où sont regroupées les sections efficaces et les constantes de décroissances :

$$A_{i,j} = \lambda_j^{j \rightarrow i} - \delta_{i,i} \lambda_i + \langle \sigma_j^{j \rightarrow i} \rangle \phi - \delta_{i,i} \langle \sigma_i^a \rangle \phi \quad (4.3)$$

On a donc, après l'irradiation d'un combustible pendant un temps T_i :

$$\vec{N}(t = T_i) = e^{AT_i} \vec{N}(t = 0) \quad (4.4)$$

Dans cette équation, e^{AT_i} représente l'exponentielle de la matrice AT_i et non une matrice construite en prenant l'exponentielle des coefficients de la matrice A . Rappelons toutefois que, en réalité, la matrice A n'est pas constante durant l'irradiation (cf 3.1), ce qui complique la résolution exacte de cette équation.

Lors du refroidissement avant la séparation et la fabrication, le combustible continue d'évoluer suivant une équation de Bateman avec un flux neutronique nul. La matrice associée, notée B , ne contient donc que les constantes de décroissance :

$$B_{i,j} = \lambda_j^{j \rightarrow i} - \delta_{i,i} \lambda_i \quad (4.5)$$

On obtient une relation similaire à la précédente et après un refroidissement durant un temps T_r :

$$\vec{N}(t = T_i + T_r) = e^{BT_r} \vec{N}(t = T_i) \quad (4.6)$$

4.1. DÉFINITION PRATIQUE DE L'ÉQUILIBRE

Lors de la phase de séparation, un certain nombre d'éléments disparaissent totalement, les autres restent dans la proportion de l'efficacité chimique qui leur est associée, 99.9% pour tous les éléments recyclés. Cette matrice, notée C , est ainsi définie :

$$C = \text{Diag}(\epsilon_i) \quad (4.7)$$

où $\epsilon_i = 0.999$ si l'isotope i fait partie d'un élément recyclé ; $\epsilon_i = 0$ sinon.

En prenant en compte l'ajout de matière, noté $\vec{N}_{Ajouté}$, provenant d'une autre strate lors de la fabrication du combustible, on obtient :

$$\vec{N}(t = T_i + T_r + 1s) = C\vec{N}(t = T_i + T_r) + \vec{N}_{Ajouté} \quad (4.8)$$

où la seconde ajouté à $\vec{N}(t = T_i + T_r + 1s)$ représente le temps à l'exécution de toutes les opérations de séparation et de fabrication. $\vec{N}(t = T_i + T_r)$ est ainsi la matière juste à la fin du refroidissement et $\vec{N}(t = T_i + T_r + 1s)$ la matière juste après un séparation et une fabrication quasi-instantannée.

Notons que la première strate de la quasi-totalité des scénarios est une strate UOX. Cette strate, n'utilisant aucun combustible recyclé, est calculée une fois pour toute. Ainsi le fissile issu de la première strate est du plutonium dont la composition isotopique est connue. Construire $\vec{N}_{Ajouté}$ revient donc à calculer la part du plutonium et la part de l'élément fertile en son sein, paramètre qui sera fixé lors de la détermination de l'équilibre. Pour le scénario multiUePu, $\vec{N}_{Ajouté}$ ne provient pas d'une strate précédente, mais est de l'uranium enrichi dont l'enrichissement en ^{235}U est déterminé par le calcul de l'équilibre.

À la fin du cycle, après les deux ans décroissance prévus par nos scénarios, notés T_f dans l'équation, on obtient :

$$\vec{N}(t = T_i + T_r + T_f) = e^{BT_f} C \vec{N}(t = T_i + T_r) + e^{BT_f} \vec{N}_{Ajouté} \quad (4.9)$$

L'équation (4.1) se réécrit donc :

$$\vec{N}(t = 0) = e^{BT_f} \vec{N}_{Ajouté} + e^{BT_f} C e^{BT_r} e^{AT_i} \vec{N}(t = 0) \quad (4.10)$$

Trouver la valeur d'équilibre des vecteurs isotopiques des différents éléments revient donc à résoudre l'équation (4.10). Cependant comme les éléments de la matrice

4.1. DÉFINITION PRATIQUE DE L'ÉQUILIBRE

A dépendent des éléments du vecteurs $\vec{N}(t = 0)$ de façon très complexe via la détermination du spectre neutronique dans le combustible, cette équation ne peut être donc être résolue directement.

4.1.1.2 Équilibre des proportions entre les types de combustible

La proportion entre les différents types de combustible utilisés dans le scénario fixe la quantité de matière qui est transmise d'une strate à une autre. En effet, comme les scénarios à l'équilibre fonctionnent avec des stocks stables, la totalité de la matière d'intérêt produite par la strate (n-1) est utilisée pour la fabrication du combustible de la strate n. Ainsi la proportion d'assemblages UOX dans le scénario multiUPu (présenté dans la figure 2.3) dicte la quantité de plutonium qui doit être ajouté à chaque cycle, mélangé avec de l'uranium appauvri, aux éléments recyclés des assemblages multiUPu. La proportion du parc constituée par la strate (n-1) dicte donc la norme des éléments fissiles au sein du vecteur $\vec{N}_{Ajouté}$ présent dans les équations d'évolution de la matière de la strate n. Ces équations qui, après application de la condition d'équilibre, donnent l'équation (4.10), qui dicte la composition isotopique du combustible neuf à l'équilibre. Cette quantité, la partie fissile $\vec{N}_{Ajouté}$, qui est déterminée par la proportion entre les strates, est cependant aussi complètement déterminée par la composition initiale $\vec{N}_{Début\ d'Irradiation}$ et les données nucléaires présentes dans les matrices utilisées dans le paragraphe précédent.

Pour pouvoir simuler un cycle à l'équilibre, il faut donc déterminer la proportion des différents combustibles dans le parc et le vecteur isotopique des éléments recyclés. Ces deux valeurs s'influencent l'une l'autre et nous proposons une méthode pour les déterminer en même temps dans le paragraphe 4.2.

4.1.2 Un indicateur unique d'équilibre

χ est défini comme étant la part du fissile issu de la strate (n-1) dans le mélange fissile-fertile ajouté à la totalité des éléments recyclés de la strate n, afin de fabriquer le nouveau combustible (voir figure 4.1). Comme il s'agit d'une proportion : $\chi < 1$. Aucuns des assemblages considérés dans les scénarios étudiés n'étant régénérateur, l'ajout de matière fissile provenant d'ailleurs est toujours nécessaire et donc $\chi > 0$.

4.1. DÉFINITION PRATIQUE DE L'ÉQUILIBRE

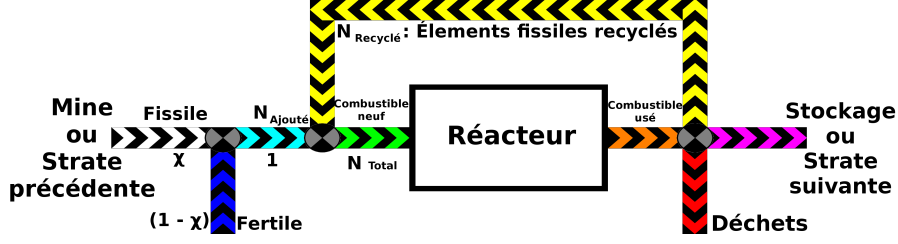


FIGURE 4.1 – Schéma du cycle avec recyclage illustrant le paramètre χ

On définit pour chaque strate n , les quantités de matières $\vec{N}_{Total}^n$, $\vec{N}_{Recyclé}^n$ et $\vec{N}_{Ajouté}^n$ normalisées à la puissance de l'assemblage telles que présentées dans la figure 4.1, c'est à dire :

- $\vec{N}_{Total}^n$ est la quantité totale de noyaux lourds dans le combustible neuf de la strate n correspondant à une puissance électrique de 1GWe pendant 50 GWj/t,
- $\vec{N}_{Recyclé}^n$ est la quantité de noyaux lourds issus du recyclage d'un combustible usé de la strate n correspondant à une puissance de 1GWe pendant 50 GWj/t,
- $\vec{N}_{Ajouté}^n$ est la quantité de noyaux lourds d'éléments qui sont ajoutés au combustible de la strate n en provenance d'une autre strate pour produire du combustible capable d'être irradié jusqu'à 50 GWj/t à une puissance 1 GWe.

Dans un parc mettant en jeu plusieurs strates, comme le scénario multiUPu, les éléments recyclés issus de la strate n , par exemple la strate UOX pour le scénario multiUPu, composent la partie fissile du vecteur $\vec{N}_{Ajouté}^{n+1}$ de la strate $(n+1)$. Si la strate n occupe une portion p_n de la puissance totale et envoie tous les éléments qu'elle recycle vers la strate $(n+1)$, on a donc :

$$p_n \vec{N}_{Recyclé}^n = \chi p_{n+1} \left(\vec{N}_{Total}^{n+1} - \vec{N}_{Recyclé}^{n+1} \right) \quad (4.11)$$

Les valeurs des différents vecteurs $\vec{N}$ sont fixées par les équations de la physique d'évolution du combustible, résolues dans nos simulations. L'information sur χ est donc équivalente à celle sur le rapport $\frac{p_{n+1}}{p_n}$. La somme des proportions des différents types de combustible étant de 1, les proportions au sein d'un scénario à 2 strates sont entièrement définies par le calcul de la valeur de χ .

Pour un scénario à 3 strates, la proportion entre les deux premières strates est tout d'abord calculée comme précédemment ; l'ensemble de ces deux strates est alors considéré comme une seule strate qui fournit de la matière fissile à la troisième strate.

4.2. CALCULER CHI

La proportion entre cette strate virtuelle et la troisième strate du scénario est alors définie par un autre χ . Un scénario à 3 strates nécessite donc deux calculs de χ différents.

Le vecteur isotopique d'entrée n'est pas directement donné par ce paramètre. Cependant ce dernier l'influence puisqu'en fixant la quantité de matière importée du combustible de la strate précédente, la composition du combustible neuf est modifiée. Cette grandeur est donc amenée à l'équilibre par la simulation en même temps que le paramètre χ .

La valeur de χ à l'équilibre est fixée par le nombre d'assemblages de la première strate pour produire le fissile à ajouter aux fissiles recyclés de la deuxième strate pour construire un combustible correspondant au burn-up fixé. La quantité d'éléments fissiles nécessaire pour atteindre le burn-up fixé dépend de la composition isotopique moyenne de cet élément et dépend donc du vecteur isotopique et de la quantité des éléments recyclés produits dans un réacteur de la deuxième strate. Ce vecteur isotopique et cette quantité dépendent du combustible chargé dans le réacteur dont la composition dépend grandement de la valeur de χ . Le calcul de ce paramètre χ représente donc une difficulté puisque toutes les caractéristiques d'un parc donné sont interdépendantes. Pour la surmonter, il nous a fallu développer des méthodes spécifiques.

4.2 Calculer χ

Les différentes méthodes présentées ici consistent à déterminer la valeur de χ à l'équilibre afin de déterminer la composition d'un parc mixte de réacteurs à l'équilibre. Nous avons tout d'abord testé une méthode basée sur un modèle physique simplifié qui s'est avérée insuffisamment précise. Nous avons donc eu recours à une résolution numérique par itération.

4.2.1 Une formule physique pour χ

Afin de calculer χ en limitant le nombre de calculs Monte-Carlo intermédiaires nécessaires, on extrait des données physiques d'un calcul Monte-Carlo unique correspondant à une composition arbitraire n'étant pas forcément à la composition d'équilibre. Ensuite on utilise ces données au sein d'un modèle physique simplifié pour tenter de prédire la valeur de χ à l'équilibre sans nouveau calcul Monte-Carlo.

4.2. CALCULER CHI

Pour calculer χ ainsi, il nous a fallu séparer le problème en deux parties.

Tout d’abord, prédire l’évolution de la réactivité durant l’irradiation et prédire le facteur de multiplication k nécessaire en début de cycle afin que le combustible puisse être irradié jusqu’au burn-up voulu, c’est-à-dire 50 GWj/t. Pour cela on considère que k suit une droite, ce qui est approximation assez raisonnable pour les combustibles étudiés comme le montre la figure 4.2. L’évolution de k est donc donnée par 2 paramètres. Le fait que le burn-up final de notre combustible soit fixé, nous donne la valeur de k en ce point. Si on considère que la pente de k en fonction du burn-up est constante et ne varie pas de façon significative en fonction de la composition initiale, on peut calculer cette pente à partir d’un cas caractéristique. Il est alors possible de prévoir le k_{∞}^{BOC} , c’est à dire le facteur de multiplication infini en début d’irradiation (Beginning Of Cycle).

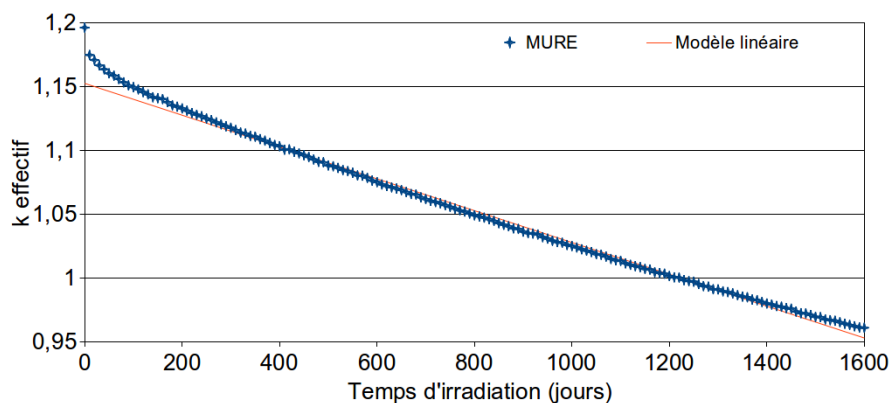


FIGURE 4.2 – Modèle de prévision de l’évolution de k dans un combustible ThUPu (avec 0 ppm de bore)

Pour prédire la valeur d’équilibre de χ pour des scénarios de multiUPu et multiThUPu présentés dans le chapitre précédent, nous avons calculé les pentes de k pour ces combustibles à partir de combustibles témoins : les combustibles monoUPu et monoThPu qui sont présentés dans le tableau 4.1

	Combustible UPu	Combustible ThPu
Pente du k (pcm par GWj/t)	-343	-319

TABLE 4.1 – Pente donnant l’évolution de k en fonction du Burn-up calculées à partir de la simulation de combustibles monoUPu et monoThPu.

4.2. CALCULER CHI

En utilisant ces pentes et en fixant que k atteint la valeur 1.04 en fin d'irradiation jusqu'à 50 GWj/t (rechargement par quart), on peut calculer la valeur de k_{∞}^{BOC} pour les combustibles considérés : 1.211 pour le multiUPu et 1.200 pour le multiThUPu.

En exprimant k_{∞}^{BOC} comme le rapport des neutrons produits par fissions et des neutrons absorbés, en faisant apparaître le facteur χ représentatif du mélange des combustibles recyclés et ajoutés, on peut écrire :

$$k_{\infty}^{BOC} = \frac{\sum_{recyclé} N_i \nu \sigma_i^{fission} \Phi + \sum_{recyclé} N_i 2\sigma_i^{n2n} \Phi + \chi \left(\sum_{fissile} N_i \nu \sigma_i^{fission} \Phi + \sum_{fissile} N_i 2\sigma_i^{n2n} \Phi \right) + (1-\chi) \left(\sum_{fertile} N_i \nu \sigma_i^{fission} \Phi + \sum_{fertile} N_i 2\sigma_i^{n2n} \Phi \right)}{\sum_{recyclé} N_i \sigma_i^a \Phi + \chi \sum_{fissile} N_i \sigma_i^a \Phi + (1-\chi) \sum_{fertile} N_i \sigma_i^a \Phi} \quad (4.12)$$

On obtient alors une formule pour χ :

$$\chi = \frac{k_{\infty}^{BOC} \left(\sum_{recyclé} N_i \sigma_i^a \Phi + \sum_{fertile} N_i \sigma_i^a \Phi \right) - \sum_{recyclé} N_i \nu \sigma_i^{fission} \Phi - \sum_{fertile} N_i \nu \sigma_i^{fission} \Phi - \sum_{recyclé} N_i 2\sigma_i^{n2n} \Phi - \sum_{fertile} N_i 2\sigma_i^{n2n} \Phi}{\sum_{fissile} N_i \nu \sigma_i^{fission} \Phi + \sum_{fissile} N_i 2\sigma_i^{n2n} \Phi - \sum_{fertile} N_i \nu \sigma_i^{fission} \Phi - \sum_{fertile} N_i 2\sigma_i^{n2n} \Phi - k_{\infty}^{BOC} \left(\sum_{fissile} N_i \sigma_i^a \Phi - \sum_{fertile} N_i \sigma_i^a \Phi \right)} \quad (4.13)$$

Cette équation est assez complexe et demande beaucoup d'informations sur les sections efficaces. Néanmoins en utilisant un calcul Monte-Carlo pour extraire ces sections efficaces, on peut calculer une valeur pour χ . Le tableau 4.2 donne les valeurs de χ calculées pour obtenir un burn-up de 50 GWj/t au sein des scénarios multiUPu et multiThUPu.

	Combustible UPu	Combustible ThPu
χ par le modèle physique	0.172	0.127
Burn-up accessible (GWj/t)	150	117

TABLE 4.2 – χ pour les combustibles monoUPu et monoThPu obtenu par application du modèle physique

Pour vérifier la pertinence du χ ainsi obtenu, le burn-up accessible à des combustibles créés en utilisant ce χ a été calculé avec MURE. Alors que l'objectif était d'atteindre des burn-up de 50 Gwj/t, on observe des burn-up bien supérieurs (voir tableau 4.2). La différence entre le burn-up visé et le burn-up obtenu, montre que ce modèle physique pour χ n'est pas satisfaisant. Cet écart est causé par l'utilisation de sections efficaces moyennes et de k_{∞}^{BOC} calculés à partir d'une composition différente de la composition d'équilibre. Pour atténuer ce problème, il faudrait effectuer un calcul Monte-Carlo à partir de la composition approximative calculée par

4.2. CALCULER CHI

une première approximation de ce modèle afin d'extraire des sections efficaces plus proches de celles de la composition d'équilibre. On a alors besoin, malgré l'utilisation d'un modèle physique simple, de nombreux calculs Monte-Carlo pour obtenir une composition d'équilibre satisfaisante.

D'autres méthodes simplifiées ont été testées sans plus de succès. Même si ces méthodes n'ont pas abouti, elles ont permis de mettre en évidence l'extrême sensibilité des sections efficaces moyennes à la composition des combustibles. Elles nous ont ainsi guidés vers le développement d'une méthode précise permettant de prendre en compte l'ensemble de ces paramètres en même temps.

4.2.2 Une méthode numérique pour calculer χ

La méthode proposée ici permet de calculer χ de façon itérative. Comme expliqué précédemment, calculer χ signifie aussi de calculer le vecteur isotopique et la concentration du fissile, le plus souvent du Pu, en début de cycle. Ce fissile résulte du mélange du fissile provenant de la strate précédente avec le fissile recyclé dans la strate considérée. Pour obtenir un problème soluble, il a été nécessaire de relâcher une contrainte. Nous avons ainsi relâché la contrainte sur le burn-up, lui permettant de varier entre les itérations. Une fois cette contrainte levée, la méthode itérative, présentée dans la figure 4.3, a été conçue. Elle permet d'assurer que chaque itération rapproche χ et le vecteur isotopique des éléments recyclés de la valeur d'équilibre tout en s'assurant que le burn-up converge petit à petit vers la valeur cible de 50 GWj/t.

Pour initialiser cet algorithme, une valeur de χ quelconque est choisie et on fixe à 0 la quantité de fissile provenant du recyclage. Le fissile utilisé provient alors seulement de la strate précédente. Une fois le premier combustible créé en suivant ce processus, on effectue la première irradiation.

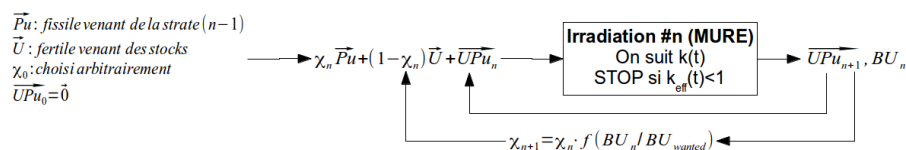


FIGURE 4.3 – Algorithme numérique de calcul de χ . Passage de l'itération n à l'itération $n+1$ pour une strate donnée

Ensuite, à chaque itération, un combustible est créé avec le χ calculé lors de

4.2. CALCULER CHI

l'itération précédente. L'évolution de ce combustible sous irradiation est alors précisément simulée par MURE. Pendant cette simulation on suit l'évolution du facteur de multiplication à chaque calcul MCNP effectué lors de la simulation MURE, comme décrit dans le paragraphe 3.1. Lorsque celui-ci descend trop bas pour permettre le maintien de la criticité du cœur, la simulation de l'irradiation est arrêtée et on obtient le burn-up correspondant au vecteur initial et à sa concentration. Cette limite basse de réactivité est fixée de la même façon que le seuil de réactivité déterminant la fin de l'irradiation d'un calcul assemblage décrit dans la partie 1.4. L'écart entre le burn-up atteint lors de cette irradiation et le burn-up souhaité à l'équilibre sert alors à calculer une nouvelle valeur de χ grâce à une fonction numérique f qui doit vérifier quelques règles intuitives :

- si le burn-up atteint est le burn-up voulu, χ doit garder la même valeur à l'itération suivante : $f(1) = 1$
- si le burn-up atteint est trop grand, χ doit diminuer afin de diminuer la quantité de fissile placée dans le combustible en début de cycle.
- si le burn-up atteint est trop petit, χ doit augmenter.

Ces conditions ne sont pas très difficiles à remplir, il suffit en effet de prendre une fonction monotone décroissante du rapport entre le burn-up atteint et le burn-up voulu et qui prend la valeur de 1 en 1. La pente d'une telle fonction conditionne la vitesse de convergence, une pente trop forte conduisant à des oscillations et une pente trop faible à une perte de temps à cause de la simulation d'itérations inutiles. Après de nombreux tests, nous avons choisi la fonction puissance présentée dans la figure 4.4. Plusieurs exposants ont été testés, celui permettant la convergence la plus rapide sans faire apparaître d'oscillation a été choisi : $f(x) = 0.01 * x^{0.045}$. Le χ calculé par cette formule est utilisé pour créer un nouveau combustible et passer à l'itération suivante.

4.2. CALCULER CHI



FIGURE 4.4 – Fonction numérique utilisée pour l’ajustement de χ

L’algorithme numérique général est représenté de façon schématique dans la figure 4.3.

La figure 4.5 montre la convergence des χ différents pour les différents scénarios à l’équilibre étudiés. On remarque l’absence d’oscillations assurant que la pente de la fonction $f(\frac{BU}{BU_{wanted}})$ n’est pas trop importante.

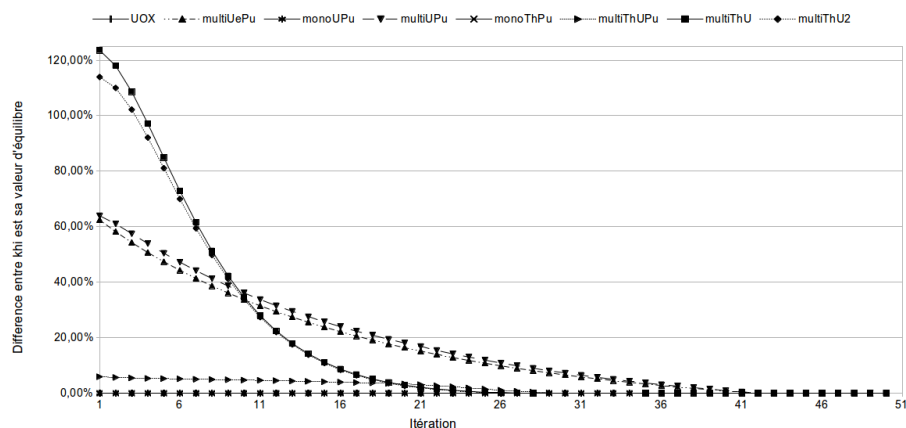


FIGURE 4.5 – Convergence de la valeur de χ pour l’ensemble des scénarios étudiés

4.2.3 Convergence de χ et équilibre

Grâce à une méthode numérique itérative, une valeur convergée de χ est donc obtenue. Or la convergence de χ de par sa définition et les correspondances données

4.2. CALCULER CHI

au début de ce chapitre impliquent directement la convergence de la proportion entre les différents types de combustibles. La stabilité de χ impose aussi que le burn-up est bien stabilisé au niveau du burn-up voulu. Dans le cas contraire, par construction de cette méthode, la valeur de χ changerait.

Cette méthode permet donc de faire converger ensemble χ et le vecteur isotopique vers leurs valeurs d'équilibre. Il se peut que le hasard du processus conduise à l'atteinte du burn-up voulu avec une composition isotopique n'ayant pas encore atteint l'équilibre. Dans ce cas χ reste stable entre deux itérations consécutives. Néanmoins la composition isotopique du combustible change entre ces deux itérations et le burn-up de la deuxième itération avec le même χ n'est alors plus le burn-up voulu ce qui conduit à une modification de χ . Ainsi, si la convergence du vecteur isotopique n'est pas assurée par la stabilité de χ entre deux itérations, mais la stabilité de χ sur plusieurs itérations successives, au moins 3, nous assure que l'équilibre est bien atteint.

L'application de la méthode décrite dans ce chapitre, parce qu'elle recycle dans une itération le combustible issu de l'irradiation précédente, permet de soumettre les éléments recyclés à un très grand temps d'irradiation. Ce temps d'irradiation nécessaire à la convergence vers la valeur d'équilibre des proportions des différents isotopes peut être évalué par un rapide calcul. En effet l'évolution d'un isotope est géré par l'équation de Bateman (équation (3.1)). Si les quantités de tous les isotopes mis en jeu sont à peu près équivalentes, le temps caractéristique d'évolution de l'isotope i est [39]¹ :

$$\frac{1}{\lambda_i + \sigma_i^a \Phi \frac{T_i}{T_i + T_r + T_f}} \quad (4.14)$$

En ne considérant que les isotopes recyclés et en prenant pour Φ la valeur caractéristique du flux de neutrons dans un REP de $3.10^{14} n.cm^{-2}.s^{-1}$, on trouve un temps caractéristique de 45 ans pour l' ^{236}U et de 35 ans pour le ^{242}Pu . Pour l'évolution des isotopes dans un combustible sous irradiation, on considère que les valeurs d'équilibre sont atteintes au bout d'un temps égal à environ 5 fois ce temps caractéristique. En considérant que les temps d'irradiation au cours de l'application de la méthode de convergence du χ sont de 4 ans environ, on obtient une convergence satisfaisante

1. T_i, T_r et T_f sont les temps d'irradiation, de refroidissement et de fabrication définis dans le paragraphe 4.1

4.3. RÉSUMÉ ET CONCLUSIONS DU CHAPITRE

au bout d'une quarantaine d'itérations, ce qui est de l'ordre de grandeur du nombre d'itérations nécessaires à la convergence de χ avec la fonction f choisie. Le nombre d'itérations effectuées est donc proche du minimum nécessaire avec notre méthode et il n'y a donc guère de temps de calcul superflu.

Pour obtenir ces valeurs à l'équilibre de χ et de la composition, un grand nombre de cycles (irradiation, refroidissement et fabrication) a été simulé. Cependant, ces cycles ne sont pas représentatifs d'une réelle transition. En effet pour rendre possible la méthode itérative, il a été nécessaire de relâcher la contrainte sur le burn-up. Pendant la phase de convergence, le combustible n'est donc pas irradié jusqu'à 50GWj/t, mais jusqu'à des burn-up variables compris entre 30 et 70 GWj/t et non prévu à l'avance, loin de ce qui serait possible dans un scénario de transition réaliste.

4.3 Résumé et Conclusions du chapitre

Dans ce chapitre, des méthodes permettant de résoudre le problème complexe qu'est la détermination de l'état d'équilibre d'un parc sont présentées. Tout d'abord, est défini un paramètre χ qui permet de suivre l'évolution de l'état d'un parc vers son état d'équilibre. Une fois ce paramètre convergé, il permet d'assurer que le parc simulé a effectivement atteint son état d'équilibre. Les méthodes présentées ont pour but de calculer la valeur d'équilibre de ce paramètre.

Une méthode basée sur un modèle physique simplifié est présentée. Malgré sa complexité, elle ne permet pas de calculer la valeur d'équilibre de χ sans effectuer de nombreux calculs Monte-Carlo.

Une méthode numérique itérative conçue lors de cette étude est ensuite décrite. Elle permet de faire converger χ en un nombre raisonnable d'itérations.

Chapitre 5

Résultats avec des assemblages homogènes

Grâce à la méthode présentée dans le chapitre précédent, les états d'équilibre des scénarios présentés dans le chapitre 1.2 ont été calculés. Dans ce chapitre, seuls des assemblages homogènes ont été considérés. Dans les scénarios faisant intervenir plusieurs types de combustible, nous considérons donc que chaque type de combustible est utilisé dans un assemblage homogène spécifique, c'est à dire un type d'assemblage par type de combustible, dans chaque assemblage tous les crayons sont contenant le même type de combustible. Ce chapitre présente ces états d'équilibre et les compare entre eux tout en analysant leurs différences. Cette analyse et cette comparaison ont lieu à travers tout le cycle en s'attardant sur quelques résultats importants que sont : la consommation de ressources, le comportement en cœur des combustibles et quelques paramètres de sûreté, la production de déchets à longue durée de vie, la radioprotection dans les usines de fabrication du combustible et l'inventaire stocké en cœur.

5.1 Parcs à l'équilibre

Pour se représenter les parcs à l'équilibre correspondant aux différents scénarios étudiés, avant de regarder les différentes étapes du cycle du combustible, il convient de s'attarder sur la composition de ces parcs, c'est-à-dire la répartition entre les différents types d'assemblage mis en jeu.

On voit dans la figure 5.1 et dans le tableau 5.1 que la majorité des assemblages dans tous les scénarios, à l'exception du scénario multiUePu, sont des assemblages

5.1. PARCS À L'ÉQUILIBRE

UOX. Ces assemblages au comportement bien connus sont nécessaires à la production des éléments fissiles qui servent dans les autres assemblages. Le thorium ayant été introduit dans les scénarios étudiés au regard de propriétés neutroniques prometteuses, on s'attendait à observer une proportion d'assemblage UOX dans le parc plus faible pour les scénarios thoriés. Cependant les scénarios multirecyclant le plutonium dans des assemblages dédiés (multiUPu, multiThUPu et multiThU) ont tous des proportions d'assemblages UOX très semblables autour de 80% (entre 78 et 83%). Cette proximité des résultats entre les scénarios thoriés et les scénarios non-thoriés est assez surprenante.

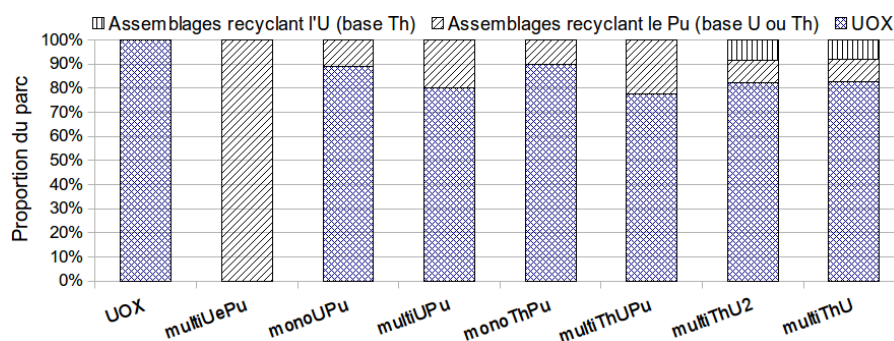


FIGURE 5.1 – Répartition entre les différents types d'assemblage à l'équilibre

Scénario	Assemblages UOX	Assemblages re-cyclant le Pu	Assemblages re-cyclant l'U
UOX	100%	-	-
multiUePu	-	100%	-
monoUPu	89.14%	10.86%	-
multiUPu	79.97%	20.03%	-
monoThPu	89.95%	10.05%	
multiThUPu	77.80%	22.20%	
multiThU	82.64%	9.23%	8.12%
multiThU2	82.31%	9.20%	8.50%

TABLE 5.1 – Tableau de la répartition entre les différents types d'assemblage à l'équilibre

La prédominance des assemblages UOX au sein des scénarios étudiés a deux effets majeurs. Le premier c'est qu'aucune modification révolutionnaire n'est à espérer sur

5.1. PARCS À L'ÉQUILIBRE

aucun point : la majorité des assemblages étant les mêmes entre les différentes stratégies, les écarts ne peuvent être que marginaux. Les écarts importants qui peuvent apparaître sur les assemblages innovants sont gommés par la moyenne sur un parc composé majoritairement d'assemblages UOX. Le second est que toutes les optimisations sur les assemblages UOX, comme le ré-enrichissement de l'uranium de retraitement ou la réduction de l' ^{235}U dans l'uranium appauvri, sont encore utilisables à leur plein potentiel dans les stratégies considérées et que les gains obtenus ne sont pas en concurrence avec les gains obtenus par une meilleure gestion des assemblages UOX mais bien complémentaires.

Pour un certain nombre d'analyses, l'étude séparée de chaque type d'assemblage est nécessaire. Afin de pouvoir les identifier rapidement, chaque type d'assemblage se voit attribuer un nom en rapport avec le scénario dont il fait partie, ces noms sont résumés dans le tableau 5.2. Pour les scénarios utilisant un seul type d'assemblage, les scénarios UOX et multiUePu, le type d'assemblage porte le même nom que le scénario dont il fait partie.

Pour les scénarios utilisant deux types d'assemblages, l'assemblage recyclant le plutonium portent le même nom que le scénario dans lequel il est impliqué, l'autre type d'assemblages étant l'assemblage UOX.

Pour les scénarios à trois types d'assemblages c'est le troisième type d'assemblage, celui qui recycle l'uranium produit par réaction sur le thorium, qui porte le nom du scénario. L'assemblage intermédiaire, qui irradie du plutonium sur base thorium pour produire de l' ^{233}U , porte un autre nom. Pour le scénario multiThU, ce second type d'assemblage, qui multi-recycle le plutonium sur base thorium sans y laisser l' ^{233}U produit, est appelé multiThPu. Pour le scénario multiThU2 qui ne met pas en jeu le multi-recyclage du plutonium, ce second type d'assemblage qui irradie, sur base thorium, une seule fois le plutonium provenant des assemblages UOX est exactement identique aux assemblages recyclant le plutonium dans le scénario monoThPu, il est porte donc le même nom et est représenté par les mêmes données.

5.1. PARCS À L'ÉQUILIBRE

Scénario	Types d'assemblages	Assem. produisant le Pu	Assem. recyclant le Pu	Assem. recyclant l'U
UOX	1	UOX	-	-
multiUePu	1	multiUePu		-
monoUPu	2	UOX	monoUPu	-
multiUPu	2	UOX	multiUPu	-
monoThPu	2	UOX	monoThPu	-
multiThUPu	2	UOX	multiThUPu	
multiThU	3	UOX	multiThPu	multiThU
multiThU2	3	UOX	monoThPu	multiThU2

TABLE 5.2 – Types d'assemblages au sein des scénarios étudiés

Le tableau 5.3 présente les vecteurs isotopiques au début de l'irradiation d'un cycle à l'équilibre pour les différents éléments recyclés. Les proportions de chaque isotope sont données en pourcentage des noyaux de l'élément considéré et la proportion totale d'uranium et de plutonium en pourcentage des noyaux lourds présents dans les assemblages concernés. Les proportions de plutonium sont données dans les assemblages recyclant le plutonium tels que présentés dans le tableau 5.2. Les proportions d'uranium dans les assemblages recyclant l'uranium pour les scénarios thoriés et dans les assemblages recyclant le plutonium dans les autres. Ainsi les proportions de plutonium données pour les scénarios multiThU et multiThU2 sont les proportions qui existent dans les combustibles qui recyclent le plutonium dans ces scénarios, soit respectivement les assemblages de type multiThPu et monoThPu. La proportion de thorium dans les assemblages thoriés n'est pas donnée car il serait alors nécessaire de l'indiquer à la fois pour les combustibles recyclant le plutonium sur base thorium et les combustibles ThU. Cependant elle peut être facilement calculée avec les proportions données. Par exemple, l'assemblage multiThPu, qui recycle le plutonium au sein du scénario multiThU, contient 34.4% de plutonium et donc 63.6% de thorium et l'assemblage multiThU, qui recycle l'uranium dans le scénario multiThU, contient 6.75% d'uranium et donc 93.25% de thorium.

5.1. PARCS À L'ÉQUILIBRE

	multiUePu	monoUPu	multiUPu	monoThPu	multiThUPu	multiThU	multiThU2
^{238}Pu	4.38%	2.70%	4.19%	2.70%	5.58%	5.02%	2.70%
^{239}Pu	41.82%	51.05%	31.78%	51.05%	23.91%	25.83%	51.05%
^{240}Pu	22.33%	24.22%	29.42%	24.22%	24.51%	31.61%	24.22%
^{241}Pu	11.08%	12.81%	9.83%	12.81%	11.16%	10.13%	12.81%
^{242}Pu	19.35%	7.30%	23.80%	7.30%	33.80%	26.38%	7.30%
^{241}Am	1.03%	1.92%	0.97%	1.92%	1.04%	1.02%	1.92%
Total Pu	2.04%	12.13%	24.34%	13.14%	13.72%	36.40%	13.14%
^{232}U	-	-	-	-	0.21%	0.37%	0.31%
^{233}U	-	-	-	-	52.59%	53.09%	49.79%
^{234}U	-	-	-	-	26.45%	28.27%	29.63%
^{235}U	4.27%	0.20%	0.20%	-	11.69%	6.81%	7.21%
^{236}U	-	-	-	-	9.03%	11.38%	12.97%
^{238}U	95.76%	99.80%	99.80%	-	0.03%	0.08%	0.09%
Total U	97.96%	87.87%	75.66%	-	5.00%	6.75%	6.97%

TABLE 5.3 – Vecteurs isotopiques au sein des scénarios étudiés en début d’irradiation (voir texte).

Nos scénarios de multi-recyclage en REP mettent en jeu le multi-recyclage du plutonium n’envoyant aux déchets à chaque cycle que les produits de fission, les actinides mineurs et les résidus de séparations du plutonium (0.1% de la quantité séparée). Le plutonium ne va donc pas aux déchets, mais il circule dans les installations du cycle. La quantité totale de ce plutonium présent dans le cycle, et celle d’uranium dans les scénarios thoriés qui le multirecyclent également, est appelée "inventaire en cycle".

L’inventaire en cycle est une mesure de la quantité d’actinides qui est gérée chaque année par les installations du cycle, comme le transport, les piscines de refroidissement ou les usines de fabrication. Mais cet inventaire représente aussi un déchet potentiel le jour où la filière s’arrêterait (un cas de figure qui est étudié dans les scénarios fin de jeu). Il est d’ailleurs étudié la possibilité d’incinérer ces inventaires en fin de jeu afin de réduire les risques associés (radiotoxicité, prolifération, criticité ...)[40].

Dans tous les scénarios étudiés, ces actinides sont les isotopes du plutonium ainsi que, pour les scénarios thoriés, l’uranium, comprenant de grandes proportions d’ ^{233}U . Au cours du cycle à l’équilibre, les inventaires de ces différents actinides varient et retournent finalement à la fin du cycle à la valeur qu’ils avaient en début de cycle. Afin d’avoir une valeur unique pour faciliter les comparaisons, ce sont les inventaires début de cycle qui sont considérés dans ce paragraphe.

La figure 5.2 montre que tous les scénarios de multi-recyclage du plutonium en REP ont des inventaires en cycle bien inférieurs à celui d’un scénario RNR complet

5.1. PARCS À L'ÉQUILIBRE

sans recyclage d'actinides mineurs [12]. Ainsi, si les RNR régénérateurs ont un net avantage au niveau de la consommation de ressources, les scénarios utilisant des REP ont des inventaires en cycle plus faibles.

Le recyclage homogène du scénario multiUePu est la stratégie avec l'inventaire plutonium à l'équilibre le plus faible, atteignant la moitié de la plupart des autres scénarios de multi-recyclage et le cinquième de celui des RNR. La raison de ce très faible inventaire est la dilution du plutonium recyclé. Les faibles concentrations de plutonium qui en résultent conduisent à un spectre beaucoup plus thermalisé (cf tableau 5.4), qui entraîne de faibles concentrations de plutonium à l'équilibre.

Les scénarios séparant la production et le recyclage du plutonium (comme multiUPu, multiThUPu et multiThU) conduisent à la mise en place d'assemblages dont le plutonium constitue le fissile majoritaire et où il y est concentré. Le spectre de ces assemblages est donc plus dur. On y obtient ainsi des concentrations de plutonium élevées qui conduisent à des inventaires importants. La séparation de la production et du recyclage de l' ^{233}U atténue cet effet en diminuant le nombre d'assemblages contenant du plutonium. Les assemblages recyclant l'uranium sur base thorium sans présence de plutonium n'ont pas le problème des assemblages au plutonium. En effet les isotopes de l'uranium n'ont pas les fortes résonances dans le domaine thermique qui font que la présence d'isotopes du plutonium durcit le spectre.

Finalement, le thorium permet de faire diminuer l'inventaire en cycle de plutonium par rapport au scénario similaire utilisant la base uranium. Même l'inventaire en cycle global, regroupant le plutonium et l'uranium, est plus faible dans ces scénarios thoriés car les quantités d'uranium dans le cycle sont moins importantes que le gain obtenu sur les quantités de plutonium. Cependant le thorium interdit le recyclage homogène qui conduit à thermaliser le spectre vu par le plutonium (cf tableau 5.4) et à minimiser l'inventaire à l'équilibre comme le montre la figure 5.2. Les stratégies thoriées accusent ainsi des inventaires en cycle bien plus importants que la meilleure des stratégies sur base uranium, le scénario multiUePu. Ce résultat peut paraître surprenant puisque l'utilisation du thorium devrait aider à limiter la production de plutonium, mais les effets de spectre prédominent, ce qui illustre une fois de plus l'intérêt de déterminer précisément ces spectres au sein notre méthode numérique de calcul de l'équilibre.

5.2. ANALYSE NEUTRONIQUE

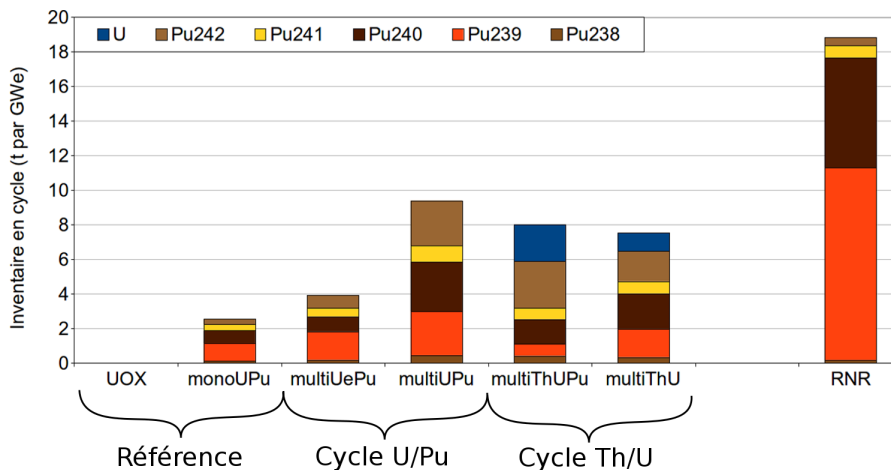


FIGURE 5.2 – Inventaire d’actinide dans le cycle à l’équilibre pour les différents scénarios étudiés ainsi que pour le cas d’un parc 100% composé de réacteurs à neutrons rapides régénateurs (FBR pour Fast Breeder Reactors)

5.2 Analyse neutronique

5.2.1 Comparaison générale

La figure 5.3 montre la partie thermique des spectres neutroniques présents au sein des différents assemblages impliqués dans les scénarios à l’équilibre étudiés.

Le creux à 0.3 eV est le signe de la présence de ^{239}Pu et sa profondeur renseigne sur la quantité de cet isotope, les assemblages multiUPu et multiThPu contenant beaucoup de ^{239}Pu et les assemblages multiThU et multiThU2 quasiment pas. Le marquage de ce creux pour l’assemblage UOX est dû à la production de ^{239}Pu durant l’irradiation et donc à sa présence au milieu de l’irradiation, date à laquelle ces spectres ont été calculés.

5.2. ANALYSE NEUTRONIQUE

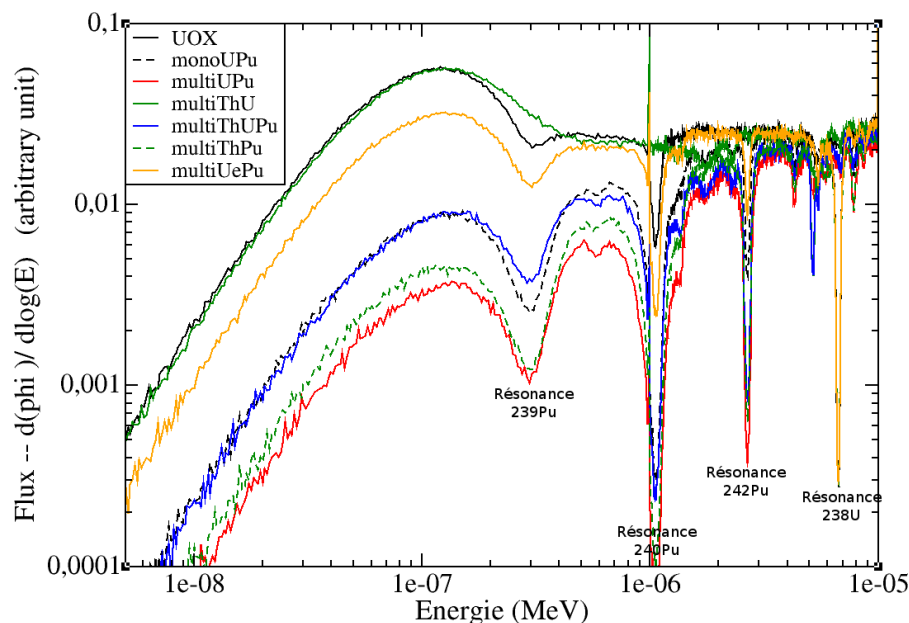


FIGURE 5.3 – Comparaison des spectres neutroniques au milieu du cycle à l'équilibre

Le tableau 5.4 présente les sections efficaces moyennées à un groupe pour les différents assemblages des scénarios étudiés. Le durcissement du spectre dans les assemblages à haute teneur en plutonium (sur base uranium comme sur base thorium) est très visible via les faibles sections efficaces moyennes qui y sont associées. L'utilisation du thorium dans un combustible homogène $Th + Pu + {}^{233}U$ conduit à un durcissement moins important du spectre que pour les combustibles sur base uranium.

Scénario	Assem. (% parc)	${}^{232}Th$		${}^{233}U$		${}^{235}U$		${}^{238}U$		${}^{239}Pu$		${}^{240}Pu$
		c	f	c	f	c	f	c	f	c	f	c
UOX	UOX	/	/	/	/	8.85	38.5	0.80	0.10	57.5	101	228
multiUePu	UePu (100%)	/	/	/	/	6.37	23.8	0.85	0.11	31.3	55.3	67.6
monoUPu	Upu (11%)	/	/	/	/	/	/	0.81	0.11	9.94	18.2	21.3
multiUPu	Upu (20%)	/	/	/	/	/	/	0.80	0.13	7.03	12.8	11.3
monoThPu	ThPu (10%)	0.71	0.029	3.64	21.9	/	/	/	/	9.45	17.3	20.7
multiThUPu	ThUPu (22%)	0.73	0.029	3.00	19.3	/	/	/	/	11.1	19.5	17.9
multiThU	ThPu (9%)	0.71	0.031	2.57	15.3	/	/	/	/	9.45	17.3	20.5
	ThU (9%)	0.98	0.025	5.88	46.4	/	/	/	/	/	/	/
multiThU2	ThPu (9%)	0.71	0.029	3.64	21.9	/	/	/	/	9.45	17.3	20.7
	ThU (8%)	1.06	0.025	6.72	54.5	/	/	/	/	/	/	/

TABLE 5.4 – Sections efficaces principales à l'équilibre (en barns) en milieu d'irradiation ($c = (n, \gamma)$, $f = (n, fission)$)

Pour les stratégies utilisant le thorium, il est impossible de diluer le thorium et

5.2. ANALYSE NEUTRONIQUE

le plutonium dans tout le combustible. En effet ceci impliquerait de les mélanger avec l'uranium enrichi et il serait alors impossible de récupérer l' ^{233}U mélangé à la masse importante d' ^{238}U présent dans l'uranium enrichi. Les sections efficaces de capture et de fission des isotopes du plutonium sont alors obligatoirement faibles comme dans les stratégies utilisant l'uranium et la séparation de la production et du recyclage du plutonium. On a donc des concentrations importantes en plutonium ce qui limite fortement les bénéfices de l'utilisation du thorium.

5.2.2 Comparaison détaillée des scénarios multiUPu et multiThUPu

L'étude des proportions des différents assemblages dans le parc a montré que l'effet du thorium était moins important que celui à lequel on pourrait s'attendre. Afin de mieux comprendre cet effet et pourquoi il est si faible sur les proportions finales dans le parc, nous concentrons notre analyse sur deux scénarios très similaires, dont la différence réside sur l'utilisation ou non du thorium : les scénarios multiUPu et multiThUPu. Cette analyse nécessite d'utiliser les résultats de ces simulations complexes dans un modèle simplifié décrivant les capacités de régénération d'un système donné.

Dans le chapitre 1, le potentiel de régénération des cycles thorium et uranium avait été évalué en se basant sur le nombre de neutrons disponibles, $N_d = \nu - 2(1 + \frac{\sigma^c}{\sigma^f})$, calculé à l'énergie des neutrons thermiques. Le nombre de neutrons disponibles calculé de cette façon est alors de +0.25 pour le cycle thorium et de -0.2 pour le cycle uranium. Le grand écart entre ces deux valeurs laissait présager un grand écart de comportement.

Grâce aux calculs effectués, les spectres neutroniques vus à l'équilibre par les différents combustibles ont été calculés. En recalculant le nombre de neutrons disponibles pour les deux cycles en utilisant des sections efficaces moyennées sur le spectre (plutôt que leur valeur à l'énergie des neutrons thermiques), et en utilisant tous les actinides présents dans les combustibles plutôt que simplement le couple fertile-fissile principal, on obtient +0.16 pour le scénario multiThUPu et -0.18 pour le scénario multiUPu. L'écart observé entre le comportement neutronique au sein des deux cycles se réduit en utilisant un modèle plus précis, mais reste largement en faveur du thorium.

Le nombre de neutrons disponibles permet de mesurer la capacité d'un cycle

5.2. ANALYSE NEUTRONIQUE

à assurer la criticité et la régénération en même temps dans une situation idéale. Cependant, il ne permet pas vraiment de prédire l'efficacité de la conversion. Pour évaluer la capacité de conversion d'un combustible, un indicateur plus factuel est utilisé : le Fissile Inventory Ratio (FIR) [14]. Le FIR mesure le rapport entre la quantité de matériaux fissile présente au début de l'irradiation et celle présente en fin d'irradiation. Ainsi un FIR supérieur à 1 représente un réacteur surgénérateur et un FIR inférieur à 1 un réacteur sous-générateur.

Afin de comprendre quels sont les paramètres qui gouvernent le FIR d'un réacteur, mettons en place un modèle simplifié. Pour cela on considère un réacteur dont le combustible est constitué uniquement d'un isotope fertile et du fissile associé. Pour la simplicité de l'écriture, nous utiliserons le couple thorium-uranium dans les équations, mais le raisonnement s'applique aussi au couple uranium-plutonium.

On néglige au sein de ce réacteur toute absorption de l'eau, des gaines ou des structures ainsi que celle des produits de fissions. L'évolution des deux isotopes d'intérêt est alors gouvernée par les équations suivantes :

$$\frac{dN_U}{dt} = -\sigma_U^a \phi N_U + \sigma_{Th}^c \phi N_{Th} \quad (5.1)$$

$$\frac{dN_{Th}}{dt} = -\sigma_{Th}^c \phi N_{Th} \quad (5.2)$$

avec

- N_U le nombre de noyaux d' ^{233}U ;
- N_{Th} le nombre de noyaux de ^{232}Th ;
- σ_U^a la section efficace d'absorption sur l' ^{233}U ;
- σ_{Th}^c la section efficace de capture neutronique sur le ^{232}Th .

En supposant que le flux ϕ et que les sections efficaces sont constantes au cours de l'irradiation, il est possible de résoudre analytiquement ces équations. Ainsi l'évolution de la quantité de thorium en fonction du temps est :

$$N_{Th}(t) = N_{Th}(0) e^{-\sigma_{Th}^c \phi t} \quad (5.3)$$

En introduisant cette formule dans l'équation d'évolution de l'uranium on obtient :

$$\frac{dN_U}{dt} + \sigma_U^a \phi N_U = \sigma_{Th}^c \phi N_{Th}(0) e^{-\sigma_{Th}^c \phi t} \quad (5.4)$$

Ce qui donne une évolution de la quantité d'uranium de la forme suivante

$$N_U(t) = e^{-\sigma_U^a \phi t} \left(K + \int_0^t c(\tau) e^{\sigma_U^a \phi \tau} d\tau \right) \quad (5.5)$$

5.2. ANALYSE NEUTRONIQUE

avec

$$c(\tau)e^{\sigma_U^a \phi \tau} = \sigma_{Th}^c \phi N_{Th}(0)e^{(\sigma_U^a \phi - \sigma_{Th}^c \phi) \tau} \quad (5.6)$$

On obtient alors

$$N_U(t) = e^{-\sigma_U^a \phi t} \left(K + \frac{\sigma_{Th}^c N_{Th}(0)}{(\sigma_U^a - \sigma_{Th}^c)} e^{(\sigma_U^a \phi - \sigma_{Th}^c \phi) t} \right) \quad (5.7)$$

En notant $N_U(0)$ la quantité d'uranium au début de l'irradiation on a :

$$N_U(0) = K + \frac{\sigma_{Th}^c N_{Th}(0)}{(\sigma_U^a - \sigma_{Th}^c)} \quad (5.8)$$

On obtient alors l'expression explicite de l'évolution de la quantité d'uranium au cours de l'irradiation :

$$N_U(t) = N_U(0)e^{-\sigma_U^a \phi t} + \frac{\sigma_{Th}^c N_{Th}(0)}{(\sigma_U^a - \sigma_{Th}^c)} (e^{-\sigma_{Th}^c \phi t} - e^{-\sigma_U^a \phi t}) \quad (5.9)$$

Pour calculer la proportion d'uranium dans le combustible de départ, on utilise le fait que le combustible est critique, dans le cadre de notre modèle simplifié, cela s'écrit :

$$1 = \frac{\nu N_U(0) \sigma_U^f}{N_U(0) \sigma_U^a + N_{Th}(0) \sigma_{Th}^c} \quad (5.10)$$

C'est à dire :

$$\frac{N_U(0)}{N_{Th}(0)} = \frac{\sigma_{Th}^c}{\nu \sigma_U^f - \sigma_U^a} \quad (5.11)$$

La quantité d'uranium dans le combustible évolue donc suivant la fonction suivante :

$$N_U(t) = N_U(0)e^{-\sigma_U^a \phi t} + \frac{\sigma_{Th}^c}{\sigma_U^a - \sigma_{Th}^c} \frac{\nu \sigma_U^f - \sigma_U^a}{\sigma_{Th}^c} N_U(0) (e^{-\sigma_{Th}^c \phi t} - e^{-\sigma_U^a \phi t}) \quad (5.12)$$

$$N_U(t) = N_U(0)e^{-\sigma_U^a \phi t} + \frac{\nu \sigma_U^f - \sigma_U^a}{\sigma_U^a - \sigma_{Th}^c} N_U(0) (e^{-\sigma_{Th}^c \phi t} - e^{-\sigma_U^a \phi t}) \quad (5.13)$$

Grâce à cette formule, on peut calculer le FIR de ce réacteur simplifié pour n'importe quel temps d'irradiation :

$$FIR(t_f) = \frac{N_U(t_f)}{N_U(0)} = e^{-\sigma_U^a \phi t} + \frac{\nu \sigma_U^f - \sigma_U^a}{\sigma_U^a - \sigma_{Th}^c} (e^{-\sigma_{Th}^c \phi t} - e^{-\sigma_U^a \phi t}) \quad (5.14)$$

5.2. ANALYSE NEUTRONIQUE

Dans cette expression il est possible d'introduire le nombre de neutrons disponibles (donné par la formule (1.3)) , faisant apparaître un lien évident avec les considérations du début du paragraphe :

$$FIR(t_f) = e^{-\sigma_U^a \phi t} + \frac{N_d \sigma_U^f + \sigma_U^a}{\sigma_U^a - \sigma_{Th}^c} (e^{-\sigma_{Th}^c \phi t} - e^{-\sigma_U^a \phi t}) \quad (5.15)$$

Dans cette formule, le premier terme représente la consommation de l'uranium présent en début d'irradiation et le second l'apparition d'uranium produit à partir du thorium. Pour les burn-up considérés, c'est le deuxième terme qui domine. La valeur du coefficient devant les exponentielles $\frac{N_d \sigma_U^f + \sigma_U^a}{\sigma_U^a - \sigma_{Th}^c}$ est directement liée à la vitesse d'évolution du FIR pendant l'irradiation. Plus il est élevé, plus la production nette d'uranium est élevée et plus le FIR final est important. En utilisant les sections efficaces obtenues lors de la simulation des cycles à l'équilibre, on peut calculer ce facteur d'évolution du FIR qui vaut 1.18 pour le scénario multiThUPu et 0.88 pour le scénario multiUPu, soit seulement 29% de différence, bien loin des écarts qui étaient observés sur le nombre de neutrons disponibles. Cette grosse atténuation de la différence vient du fait que le nombre de neutrons disponibles a une valeur absolue relativement petite devant 1. Le numérateur est donc dominé par σ_U^a qui est deux à trois fois plus important que $N_d \sigma_U^f$. Comme les sections efficaces totales d'absorption de ^{233}U et de ^{239}Pu sont assez proches (respectivement 25.54 et 20.83 soit seulement 20% d'écart), le facteur d'évolution du FIR sont beaucoup plus proche que les nombres de neutrons disponibles.

	multiThUPu	multiUPu	Ecart relatif
$\sigma_{fissile}^a$	12.8	19.3	40%
$\sigma_{fertile}^c$	0.80	0.73	9%
Facteur d'évolution du FIR	1.18	0.88	29%

TABLE 5.5 – Sections efficaces d'intérêt pour la régénération dans les scénarios multiThUPu et multiThU

En prenant un temps d'irradiation représentatif des temps d'irradiation des scénarios à l'équilibre, 4 ans, on peut aussi calculer la valeur totale du FIR obtenue à partir du modèle simplifié. Les différences entre les sections efficaces sur le fertile et sur le fissile ajoutent alors encore un biais via les valeurs des termes en exponentielles. Les FIR calculés par ce modèle sont de 1.07 pour le scénario multiThUPu et

5.2. ANALYSE NEUTRONIQUE

0.91 pour le scénario multiUPu, soit à peine 16% d'écart. Cet écart est cependant toujours très significatif puisque le FIR du scénario multiThUPu supérieur à 1 laisse présager une possibilité de régénération alors que le FIR inférieur à 1 du scénario multiUPu l'interdit.

Pour obtenir le FIR réel des assemblages multiThUPu et multiUPu, il est nécessaire de prendre en compte les absorptions négligées dans notre modèle simplifié (gainés, eau et produits de fission principalement) qui vont faire descendre les FIR considérés à des valeurs plus réalistes. De plus la prise en compte de l'évolution des sections efficaces des actinides au cours du cycle joue aussi un grand rôle dans le FIR réel. L'évolution calculée par MURE qui prend en compte toutes ces absorptions ainsi que l'évolution des sections efficaces nous permet de calculer un FIR de 0.68 pour le multiThUPu et un FIR de 0.62 pour le multiUPu, soit seulement 8% de différence. Lors de ce passage du FIR simplifié au FIR réel, le FIR du scénario multiThUPu chute de 0.39 alors que celui du scénario multiUPu ne chute que de 0.29. Le spectre neutronique plus dur des assemblages multiUPu permet de diminuer les captures parasites sur les produits de fissions. Les captures parasites ont ainsi plus d'impact sur la conversion en cycle thorium qu'en cycle uranium. Cet effet diminue grandement l'avantage que le calcul des neutrons disponibles laissait présager pour le cycle thorium.

	multiThUPu	multiUPu
N_d mono énergétique	0.25	-0.2
N_d moyennés sur le spectre	0.16	-0.18
Facteur d'évolution du FIR	1.18	0.88
FIR simplifié	1.07	0.91
FIR réel	0.68	0.62

TABLE 5.6 – Indicateurs de Régénération dans les scénarios multiThUPu et multi-ThU

L'écart sur le FIR est donc beaucoup moins drastique que celui sur le nombre de neutrons disponibles, cependant il reste encore plus important que l'écart observé sur la proportion d'assemblage UOX dans le parc observé au début de ce chapitre qui peut être calculée à partir du FIR par la formule suivante en considérant que la première strate (*PuUOX*) doit produire exactement assez de plutonium pour remplacer le plutonium perdu lors de l'irradiation des combustibles de la seconde

5.2. ANALYSE NEUTRONIQUE

strate ($(1 - FIR)PuS2$) :

$$p = \frac{(1 - FIR) \frac{PuUOX}{PuS2}}{1 + (1 - FIR) \frac{PuUOX}{PuS2}} \quad (5.16)$$

où

- p est la proportion d'assemblage UOX dans le parc.
- FIR est le FIR de la strate multirecyclant le plutonium.
- $PuUOX$ est la quantité de plutonium produite lors de l'irradiation d'un combustible UOX jusqu'à 50GWj/t.
- $PuS2$ est la quantité de plutonium nécessaire dans un combustible neuf de la strate multirecyclant le plutonium pour atteindre un burn-up de 50GWj/t.

En dehors des FIR s'approchant beaucoup de 1, seules des grandes différences de FIR conduisent à une différence significative sur la proportion d'assemblage UOX dans le parc (cf figure 5.4). En effet quand le FIR d'un réacteur passe de 0.9 à 0.96, la quantité de fissile qu'il lui manque est plus que divisée par 2, alors qu'entre des FIR de 0.62 et 0.68, pour un même écart en FIR, la quantité de fissile nécessaire ne bouge que de 17%. Cet effet fait qu'une différence de 8% sur les FIR autour de 0.6 conduit à seulement 3% de différence relative sur les proportions d'assemblages UOX dans le parc.

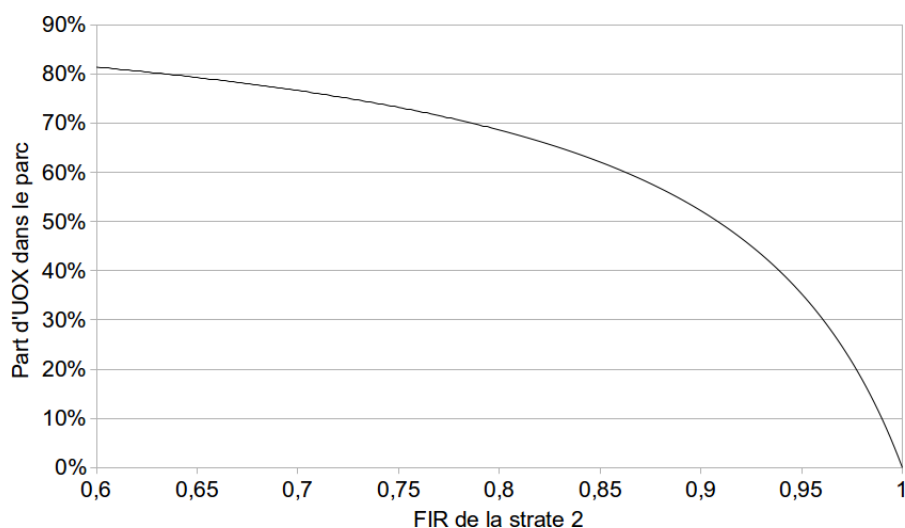


FIGURE 5.4 – Relation entre le FIR de la deuxième strate et la proportion de la strate UOX dans le parc

5.3 Ressources

Même si les scénarios étudiés sont loin de la régénération et ne permettent donc pas de réduire très significativement (d'un facteur 10 ou 100) la consommation de ressources, il est intéressant de quantifier et de comparer les cycles uranium et thorium sur l'intérêt du multi recyclage du plutonium en terme de consommation d'uranium.

La figure 5.5 présente les consommations d'uranium naturel des différents scénarios en supposant un rejet d'uranium appauvri à 0.2% lors de l'enrichissement. On peut voir que le scénario multiUePu consomme 7% de ressources en plus par rapport au scénario UOX ouvert, ce qui est assez étonnant pour un scénario recyclant le plutonium. Pour comprendre ce résultat, il faut prendre en compte les deux principaux effets du recyclage du plutonium de façon homogène :

- Le vecteur isotopique du plutonium est principalement constitué d'isotopes fissiles et en comparant les sections efficaces de capture et de fission (présentées dans le tableau 5.4) on peut voir que le nombre de neutrons produit lors de fission sur les isotopes du plutonium est plus important que celui des neutrons absorbés par des captures sur les isotopes du plutonium. Pour mesurer cet effet le paramètre $\eta = \frac{\sum N_i \nu_i \sigma_i^f}{\sum N_i \sigma_i^a}$ est calculé à partir des sections efficaces obtenues et des vecteurs isotopiques donnés dans le tableau 5.3. Le plutonium a un η de 1.16, supérieur à 1, ce qui signifie que le nombre de neutrons produits lors des fissions du plutonium est supérieur à celui absorbé sur les noyaux de plutonium. Cet effet du plutonium multi-recyclé est donc positif du bilan neutronique, et donc de la consommation des ressources.
- Les résonances dans le domaine thermique des différentes sections efficaces des isotopes du plutonium conduisent à un durcissement du spectre qui est visible sur la figure 5.3. Ce durcissement dégrade les performances de l'uranium enrichi. Ainsi de l'uranium enrichi à 4% a un $\eta = 1.48$ dans un assemblage UOX alors que le même uranium enrichi à 4% a un $\eta = 1.28$ dans un assemblage multiUePu. Cet effet secondaire du multi-recyclage du plutonium dégrade le bilan neutronique et a un impact négatif sur la consommation de ressources.

L'effet indirect du plutonium sur le spectre neutronique est si important que la dégradation du facteur η de l'uranium fait plus que compenser l'apport du multirecyclage du plutonium et, au final, la consommation de ressources augmente.

Ce résultat est cependant à analyser avec précaution. En effet les scénarios consi-

5.3. RESSOURCES

dérés ici sont des scénarios qui ne prennent pas en compte le recyclage et le ré-enrichissement de l'uranium. Or, le combustible utilisé d'un assemblage multiUePu contient deux fois plus d' ^{235}U qu'un combustible UOX utilisé. Le premier recyclage de l'uranium serait donc beaucoup plus efficace pour le multiUePu. Cette différence de concentration en ^{235}U dans l'uranium de retraitement est telle qu'elle pourrait compenser la surconsommation présentée ci-dessus. Une étude spécifique des scénarios multiUePu et UOX avec un mono-recyclage de l'uranium serait nécessaire pour statuer sur ce sujet.

Pour les autres scénarios, les approximations utilisées pour le calcul assemblage font que les assemblages UOX sont dans des conditions strictement identiques à ceux dans un scénario entièrement UOX puisque le plutonium (ou l' ^{233}U) est recyclé dans d'autres assemblages, simulés indépendamment des UOX. De plus, les assemblages recyclant le plutonium utilisent soit du thorium dans des quantités tellement faibles qu'elles sont presque invisibles sur la figure 5.5, soit de l'uranium appauvri dans des proportions moindres que ce qu'il est produit lors de l'enrichissement de l'uranium nécessaire à l'alimentation des assemblages UOX. Recycler le plutonium a alors un effet toujours positif sur la consommation globale d'uranium.

Dans le scénario multiUPu, le plutonium est concentré dans des assemblages dédiés. Le spectre γ est plus dur et l'autoprotection importante. La quantité de plutonium nécessaire pour que les assemblages multiUPu atteignent le burn-up souhaité est très importante. Ce scénario permet tout de même une diminution de la consommation de 18% par rapport à l'UOX.

La figure 5.5 montre aussi que l'utilisation du thorium ne permet aucun gain significatif sur la consommation de ressources naturelles. L'effet du remplacement de l'uranium par le thorium (c'est-à-dire l'écart entre les scénarios multiThUPu and multiUPu) est une économie relative de 5% seulement. Ce manque d'effet a déjà été observé lors de l'analyse des proportions des différents assemblages et a les mêmes origines.

La séparation entre la production et le recyclage de l' ^{233}U dans deux assemblages différents (multiThU) n'apporte rien de mieux sur ce plan. En effet, la mauvaise qualité du plutonium dans les assemblages de la deuxième strate (peu de fissile et beaucoup de ^{242}Pu), qui mélange thorium et plutonium, nécessite des grandes quantités de plutonium pour atteindre le burn-up souhaité.

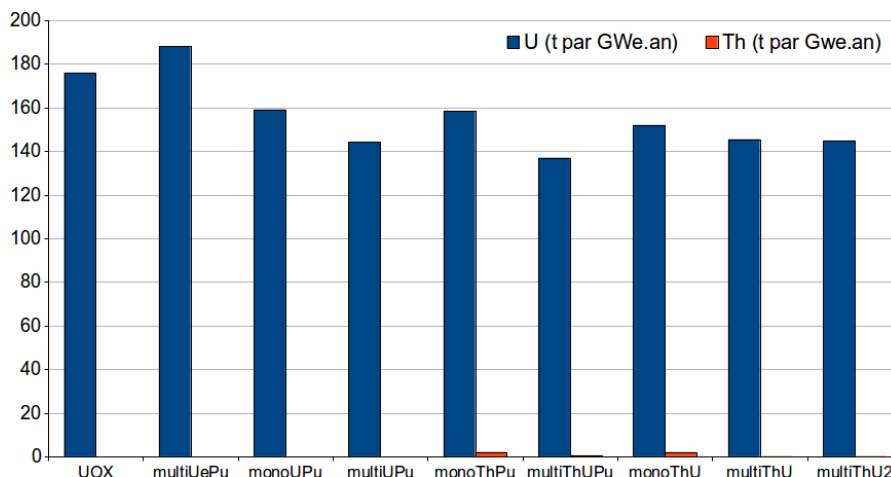


FIGURE 5.5 – Consommation de ressources naturelles à l’équilibre pour l’ensemble des scénarios étudiés.

5.4 Fabrication du combustible et radioprotection

La deuxième étape du cycle sur laquelle nous allons nous arrêter est la fabrication du combustible. Deux principaux sujets sont à regarder pour cette étape : premièrement, l’enrichissement de l’uranium et deuxièmement, l’augmentation des besoins en radioprotection lors de la fabrication des combustibles recyclés.

Seuls les assemblages UOX et multiUePu contiennent de l’uranium enrichi. Ils sont donc les seuls concernés par le sujet de l’enrichissement. L’uranium appauvri produit lors de ces enrichissements est utilisé pour la fabrication des MOX à base uranium (monoUPu et multiUPu). L’effort nécessaire à l’enrichissement de l’uranium nécessaire à la fabrication de ces combustibles se mesure en d’unité de travail de séparation (UTS) [41]. Cet effort est proportionnel à la quantité de matière traité et est d’autant plus grand que l’enrichissement final de l’uranium est élevé. Le scénario multiUePu demande 168k UTS pour produire le combustible nécessaire à la production de 1 GWe.an contre 153k pour le scénario UOX en cycle ouvert, ce qui représente une augmentation de 20%. Cette augmentation a la même origine que celle présentée dans la partie sur les ressources, à savoir que l’uranium doit être plus enrichi pour compenser l’effet de spectre dû à la présence de Pu. Le sur-enrichissement de l’uranium qui était partiellement compensé par la diminution de la quantité d’uranium enrichi nécessaire, l’est encore moins pour les UTS car le

5.4. FABRICATION DU COMBUSTIBLE ET RADIOPROTECTION

besoin en UTS pour produire une tonne d'uranium enrichi augmente grandement quand on augmente l'enrichissement final[41].

Pour les autres scénarios, il y a une réduction des UTS nécessaires en proportion de la diminution des assemblages UOX dans le parc.

Pour ce qui est de la fabrication des assemblages recyclés, quelques isotopes spécifiques dominent les contraintes sur le processus de fabrication en matière de radioprotection : ^{238}Pu , ^{241}Am et ^{232}U [16]. La figure 5.6 présente la proportion de ces isotopes dans les combustibles frais. Ces proportions sont présentées au moment de la séparation chimique et peuvent évoluer durant les 2 ans de la phase de fabrication du combustible. Pour les scénarios multiThU et multiThU2, les proportions de ^{238}Pu et d' ^{241}Am sont données dans les assemblages où le plutonium est recyclé et celle de l' ^{232}U dans les assemblages où l'uranium est recyclé. Le scénario monoUPu représente la stratégie française actuelle en matière de recyclage du plutonium et nous la considérons comme référence du point de vue de la fabrication du combustible.

Dans les combustibles actuels, la majorité des émissions γ qui posent problème sont dues à l' ^{241}Am . La figure 5.6 montre que les scénarios multi-recyclant le plutonium dans des assemblages dédiés (multiUPu, multiThUPu et multiThU) ont des concentrations légèrement supérieures d' ^{241}Am à celle du scénario monoUPu. Cependant le surplus est très faible et la concentration d'équilibre de l' ^{241}Am est dans tous les cas inférieure à 0.36% (valeur pour les assemblages recyclant le plutonium dans le scénario multiThU), en dessous du seuil d'acceptabilité pour MELOX (installation française de fabrication des combustibles MOX) qui est de 0.5% du combustible total.

Dans les combustibles thoriés, la présence d' ^{232}U dans l'uranium recyclé est un sujet de préoccupation. En effet cet isotope à vie relativement courte, moins de 70 ans, a dans sa chaîne de décroissance un émetteur d'un rayon γ de 2.6 MeV (^{208}Pb). La proportion de cet isotope dans le combustible reste très faible (moins de 0.025% du combustible neuf) mais requiert la mise en place de cellules blindées pour la fabrication [16].

Pour l'émission de neutrons lors de la fabrication du nouveau combustible, le principal contributeur est le ^{238}Pu . On voit dans la figure 5.6 que sa proportion dans les scénarios étudiés peut être jusqu'à 5 fois supérieure à celle dans le scénario monoUPu (0.32% du combustible neuf). Pour multiThUPu, et pour tous les scénarios multi-recyclant le plutonium, cette proportion est supérieure au double de

5.5. ANALYSE DES PARAMÈTRES DE SÛRETÉ DE BASE

celle des scénarios ne recyclant le plutonium qu'une seule fois. La radioprotection neutron est donc un obstacle important pour la mise en place de ces scénarios de multi-recyclage, mais il est à noter que les flux de neutrons en jeu dans ces combustibles restent très inférieurs à ceux de combustibles recyclant les actinides mineurs et notamment le curium [42].

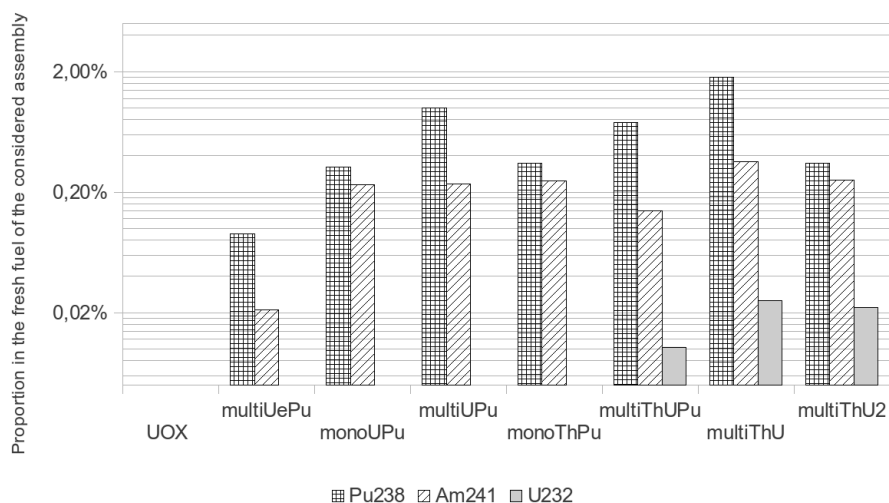


FIGURE 5.6 – Proportion des actinides d'intérêt pour la radioprotection dans les différents combustibles neufs à l'équilibre

Notons enfin que dans nos scénarios, le temps de refroidissement avant la fabrication a été fixé à 5 ans, qui est la durée couramment utilisée pour les scénarios multi-recyclant le plutonium dans des réacteurs à neutrons rapides [12], même si des durées plus courtes peuvent être considérées pour des cas particuliers. Des études plus approfondies et plus détaillées sur la puissance résiduelle et les conditions des processus de séparation chimiques seraient nécessaires pour adapter ce temps au mieux pour chaque scénario et évaluer ensuite l'impact que cela aurait sur les résultats des scénarios.

5.5 Analyse des paramètres de sûreté de base

Si des études complètes de sûreté de chacune des strates des scénarios considérés n'ont pas été faites, des paramètres basiques de sûreté ont été calculés afin de donner des premières indications sur les points forts et les faiblesses de chacun des scénarios

5.5. ANALYSE DES PARAMÈTRES DE SÛRETÉ DE BASE

dans ce domaine. Ainsi ont été calculés : la fraction effective de neutrons retardés, la réactivité de vidange totale et les coefficients de température associés au combustible et au modérateur.

5.5.1 Neutrons retardés

La fraction effective de neutrons retardés, notée β_{eff} , est l'un des paramètres clés pour mesurer la manœuvrabilité d'un réacteur. Elle représente la proportion des fissions induites par des neutrons retardés. Contrairement aux neutrons prompts émis moins de 10^{-14} secondes après la fission, les neutrons retardés sont émis plusieurs secondes ou dizaines de secondes plus tard, lors de la décroissance de certains produits de fissions, les durées de vie des précurseurs, qui ont été réunis en 6 familles pour les calculs effectués, allant de 0.12 à 78 secondes.

β_{eff} se calcule en faisant le rapport du nombre de fissions issues des neutrons retardés sur le nombre total de fissions :

$$\beta_{eff} = \frac{P_{d,eff}}{P_{eff}} \quad (5.17)$$

avec, P_{eff} le nombre de fission issues de l'ensemble des neutrons et $P_{d,eff}$ le nombre de fissions issues des neutrons retardés.

Le nombre total de fissions dans un réacteur peut se calculer de la façon suivante :

$$P_{eff} = \int \left(\int \psi(\vec{r}, E', \vec{\Omega}') \chi(E') dE' d\vec{\Omega}' \right) \nu(E) \Sigma_f(\vec{r}, E) \phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}) dE d\vec{\Omega} d\vec{r} \quad (5.18)$$

où

E est l'énergie du neutron,

$\vec{\Omega}$ donne la direction de déplacement du neutron,

$\vec{r}$ est la position du neutron,

ϕ le flux de neutron dans le volume considéré,

Σ_f la section efficace macroscopique de fission des matériaux à la position $\vec{r}$,

ν le nombre moyen de neutrons créés par fission,

$\psi(\vec{r}, E, \vec{\Omega})$ le flux adjoint du neutron dans le spectre considéré,

$\chi(E)$ le spectre en énergie des neutrons.

Un indice p ou d est ajouté à χ et à ν quand seuls les neutrons prompts (p) ou retardés (d) sont considérés.

5.5. ANALYSE DES PARAMÈTRES DE SÛRETÉ DE BASE

$P_{d,eff}$ le nombre de fissions issues des neutrons retardés est calculé de la même manière en remplaçant $\chi(E)$ par $\chi_d(E)$, le spectre en énergie des neutron retardés, et ν par ν_d , le nombre retardé émis lors d'une fission.

P_{eff} et $P_{d,eff}$ sont très similaires, pour le calcul de β_{eff} on peut simplifier leur écriture en notant A la partie commune, il s'écrivent alors $\int A\chi\nu$ et $\int A\chi_d\nu_d$. β_{eff} s'écrit alors :

$$\beta_{eff} = \frac{\int A\chi_d\nu_d}{\int A\chi\nu} = 1 - \frac{\int A(\chi\nu - \chi_d\nu_d)}{\int A\chi\nu} \quad (5.19)$$

$$\beta_{eff} = 1 - \frac{\int A(\chi(\nu - \nu_d) - \nu_d(\chi_d - \chi))}{\int A\chi\nu} \quad (5.20)$$

On défini $\nu_p = \nu - \nu_d$ le nombre moyen de neutrons prompts par fission. Comme $\nu_d \ll \nu$ et $\nu_d \ll \nu_p$, on peut négliger $\nu_d(\chi_d - \chi)$ devant $\nu_p\chi$. On obtient donc :

$$\beta_{eff} = 1 - \frac{\int A\chi\nu_p}{\int A\chi\nu} \quad (5.21)$$

Ensuite la très grande proximité entre χ et χ_p (le spectre des neutrons prompts émis lors d'une fissions) permet de faire l'approximation suivante :

$$\beta_{eff} = 1 - \frac{\int A\chi_p\nu_p}{\int A\chi\nu} \quad (5.22)$$

L'absorption moyenne de tous les neutrons étant très proche de l'absorption des neutrons prompts, on peut écrire :

$$\beta_{eff} = 1 - \frac{k_{prompt}}{k_{total}} \quad (5.23)$$

avec

- k_{prompt} le facteur de multiplication prompt,
- k_{total} le facteur de multiplication total.

Les deux facteurs de multiplication sont calculés par MCNP. Lors du calcul du k_{prompt} , seuls les neutrons prompts sont considérés et ils sont émis avec une énergie tirée selon le spectre des neutrons prompts. Lors du calcul du k_{total} , en plus des neutrons prompts sont émis β_0 neutrons retardés, où β_0 est la fraction de neutrons retardés du noyau fissionnant, selon le spectre d'émission des neutrons retardés du noyau considéré. Le k_{total} donne ainsi le facteur de multiplication prenant en compte à la fois les neutrons prompts et les neutrons retardés.

5.5. ANALYSE DES PARAMÈTRES DE SÛRETÉ DE BASE

Le tableau 5.7 montre que cette fraction est significativement plus basse dans tous les scénarios étudiés que dans le scénario de référence UOX. Le scénario monoUPu peut servir de référence, puisqu'il a déjà été mis en application de façon industrielle en mélangeant les assemblages UOX et monoUPu dans un même réacteur, il correspond en effet à la stratégie française actuelle. De plus l'EPR assure la faisabilité d'un cœur entièrement chargé avec des combustibles semblables aux assemblages monoUPu [43]. La plupart des assemblages considérés ont des fractions de neutrons retardés supérieures à celle du monoUPu, tous sauf les assemblages multiThPu. Et même pour les assemblages multiThPu, l'écart entre la fraction de neutrons retardés, 251 pcm, et celle du monoUPu, 321 pcm, est si faible devant l'écart entre celle du monoUPu et de l'UOX que le scénario associé ne peut être exclu avant une étude approfondie.

Scénario	Assem.	β_{eff}	Coeff. Temp. Fuel	Coeff. Temp. Mod.	Réactivité de vidange totale	
	(% parc)	(pcm)	(pcm/K)	(pcm/K)	pcm	\$
UOX	UOX	703	-1.69	-0.99	-83 145	-118.3
multiUePu	UePu (100%)	501	-2.58	-2.34	-47 808	-95.5
monoUPu	Upu (11%)	321	-2.41	-2.50	-6 290	-19.6
multiUPu	Upu (20%)	372	-2.37	-1.50	+15 498	+41.6
monoThPu	ThPu (10%)	251	-3.29	-2.08	-18 840	-75.1
multiThUPu	ThUPu (22%)	372	-3.49	-0.88	-4 537	-12.2
multiThU	ThPu (9%)	391	-2.72	-0.99	+18 180	+46.5
	ThU (9%)	331	-2.54	+0.82	-88 400	-266.8
mutiThU2	ThPu (9%)	251	-3.29	-2.08	-18 840	-75.1
	ThU (9%)	383	-2.47	+0.79	-91 520	-238.6

TABLE 5.7 – Paramètres basiques de sûreté à l'équilibre

La fission des noyaux fertiles du combustible est responsable d'une grande part de la fraction effective de neutrons retardés. En effet, même s'ils ne sont responsables que d'une minorité des fissions, le tableau 5.8 montre que la proportion des neutrons émis lors d'une fission de l' ^{238}U ou du ^{232}Th est vraiment beaucoup plus importante que pour les noyaux fissiles. Or, malgré une fraction de neutrons retardés du ^{232}Th plus élevée que celle de l' ^{238}U , on remarque que les combustibles thoriés ont en

5.5. ANALYSE DES PARAMÈTRES DE SÛRETÉ DE BASE

moyenne un β_{eff} plus faible que les combustibles à base uranium. Cela est dû au fait que la part des fissions provenant du ^{232}Th (1.1 à 1.5%) est très inférieur à la part de fissions provenant de l' ^{238}U (6% en UOX) car, même si le seuil de fission est quasi-identique pour ces deux isotopes, la section efficace de fission du thorium est beaucoup plus faible sur toute la gamme d'énergie et a donc une valeur moyenne bien plus faible.

Les combustibles dont les seuls noyaux fissiles présents en quantité significative sont des isotopes du plutonium (monoUPu, multiUPu, monoThPu, multiThPu) ont des β_{eff} plus faibles que ceux contenant des isotopes d'uraniums, ^{233}U ou ^{235}U , car les fractions de neutrons retardés des isotopes de l'uranium sont en moyenne plus élevées que celles des isotopes de plutonium (voir tableau 5.8).

Isotope	^{233}U	^{235}U	^{238}U	^{239}Pu	^{241}Pu	^{232}Th
Fraction de neutrons retardés (pcm)	296	615	1766	226	550	2507

TABLE 5.8 – Fractions de neutrons retardés pour les isotopes principaux des cycles étudiés[44].

5.5.2 Contre-réactions

Les coefficients de température sont essentiels pour prédire le comportement et la stabilité du cœur en cas d'incident qui entraînerait une augmentation de la température ainsi que pour le pilotage des réacteurs au démarrage. Il mesure la variation de réactivité causée par la modification de température du matériel associé : le combustible ou le modérateur. Ils sont présentés dans le tableau 5.7.

Le coefficient de température du combustible reste significativement négatif dans tous les assemblages étudiés et dans le même ordre de grandeur. Le coefficient de température du modérateur, lui, varie plus. Ce coefficient ne considère ici que l'effet neutronique de la variation de la température de l'eau sans prendre en compte la modification de sa densité qui est elle prise en compte dans le coefficient de vide. Ce coefficient reste négatif, conformément aux exigences de sûreté, dans tous les assemblages sauf pour le multiThU et le multiThU2. Des calculs de sûreté globaux et plus détaillés seraient nécessaires pour statuer sur la sûreté de réacteurs chargés avec de tels combustibles. On note toutefois que le coefficient de température global (combustible + modérateur) reste négatif.

5.6. DÉCHETS

La réactivité de vidange totale est la variation de réactivité induite par la vidange totale du modérateur du réacteur. Elle est calculée en faisant la différence entre un assemblage normal et un assemblage totalement vidé de son eau, sauf l'eau retenue au sein des tubes guides. Dans la plupart des assemblages considérés, cette réactivité reste fortement négative conformément aux exigences de base de sûreté. Les assemblages multiThUPu ont une réactivité de vidange assez petite, mais elle reste très proche de celle des assemblages monoUPu qui sont déjà utilisés.

Les assemblages multiUPu et multiThPu ont des réactivités de vidange positives, et valant plus de quarante fois leur fractions effectives de neutrons retardés. C'est très problématique d'un point de vue de la sûreté et il est a priori impossible de charger un réacteur à 100% avec ce type de combustible. Cependant la proportion de ces assemblages dans le parc total est assez faible (20% pour le multiUPu et 9% pour le multiThPu), il est donc envisageable qu'une gestion optimisée de cœurs mélangeant ces assemblages avec des assemblages UOX puisse permettre des niveaux de sûreté acceptables. Ce résultat est la principale raison qui nous a poussés à envisager le scénario multiThU2, variation du scénario multiThU, qui tente de limiter ce problème de réactivité de vidange positive en ne multi-recyclant pas le plutonium dans la strate intermédiaire.

5.6 Déchets

Chronologiquement, la dernière étape du cycle du combustible est l'envoi de certaines matières aux déchets. Dans les scénarios étudiés tous les produits de fission et tous les actinides mineurs présents dans les combustibles usés après 5 ans de refroidissement sont envoyés aux déchets au moment de la séparation chimique du combustible usé. Les pertes chimiques des processus de fabrication (fixées à 0.1% des quantités recyclées) sont aussi envoyées aux déchets. Pour comparer les scénarios, les résultats ont été normalisés à la quantité d'électricité produite (1GWe.an). La quantité de produits de fission est donc extrêmement proche. De plus comme la majorité des fissions du parc global sont des fissions de l' ^{235}U provenant de l'uranium enrichi qui compose plus de trois quart du combustible de chacun des scénarios considérés, la composition globale de ces produits de fissions est aussi très similaire ¹.

Le tableau 5.9 résume les quantités d'actinides mineurs produits par les différents

1. Même si l' ^{233}U produit plus de ^{137}Cs et de ^{90}Sr que le ^{239}Pu [12].

5.6. DÉCHETS

scénarios. Les scénarios multi-recyclant le plutonium produisent de façon assez attendue plus d'actinides mineurs que ceux qui ne recyclent pas le plutonium. Le ^{241}Pu stocké décroît en ^{241}Am avec une demi-vie de 14 ans. Si le plutonium est utilisé après une longue période de stockage, la totalité du ^{241}Pu se sera transformé en ^{241}Am qui sera un déchet à gérer à ce moment-là. Nous indiquons donc dans le tableau, entre parenthèses, la quantité maximum d' ^{241}Am potentiellement produite pendant l'entreposage du plutonium non recyclé. Si un spectre plus dur est en général favorable et conduit à une moins grande production d'actinides mineurs [45], on voit assez directement l'impact des grands inventaires en cycle de plutonium de ces scénarios avec des assemblages dans des spectres neutroniques durs. En effet en comparant le tableau 5.9 et la figure 5.2 on voit que la production d' ^{241}Am est directement proportionnelle à l'inventaire en cycle de plutonium. Ceci est dû au fait que l' ^{241}Am est essentiellement produit hors irradiation par la décroissance β^- du ^{241}Pu . Tout comme pour les inventaires de plutonium en cœur, la production d' ^{241}Am est donc maximale pour le scénario multiUPu et minimale pour le scénario multiUePu. Les scénarios thoriés occupent des positions intermédiaires.

La production d' ^{243}Am ne suit pas cette tendance et est relativement constante entre les scénarios multi-recyclant le plutonium. Les taux de réaction sur l' ^{243}Am sont élevés et l' ^{243}Am atteint donc assez vite sa quantité d'équilibre durant l'irradiation, tout en étant stable durant le refroidissement grâce à sa longue durée de vie. La masse d' ^{243}Am envoyée aux déchets est donc proportionnelle à $\frac{N_{239\text{Pu}}\sigma_{239\text{Pu}}^c}{\sigma_{243\text{Am}}^a}$ qui se trouve être sensiblement le même dans tous les scénarios multi-recyclant le plutonium même si chaque terme est différent.

Le cas du ^{244}Cm est très proche de celui de l' ^{243}Am à partir duquel il est produit. Sa production est assez similaire dans tous les scénarios multi-recyclant le plutonium. La seule exception étant le scénario multiUePu où le spectre thermalisé conduit à un grand taux de capture de l' ^{243}Am . Cette surproduction de curium est la principale faiblesse de ce scénario de recyclage homogène.

Les scénarios thoriés n'ont aucun effet global significatif sur la production des différents actinides mineurs à part l'effet sur l' ^{241}Am dû au faible inventaire en plutonium. Ils sont néanmoins, quoi que de peu, les scénarios multirecyclant le plutonium produisant le moins d'actinides mineurs (2kg par GWe.an de moins que le meilleur des scénarios sans thorium : le multiUePu).

5.6. DÉCHETS

Scénario	multi-recyclage Pu	^{237}Np	^{241}Am	^{243}Am	^{244}Cm	Total A.M.
UOX	NON	14.6	9.0 (+29.3)	5.1	1.7	30.7 (60.0)
multiUePu	OUI	15.9	23.9	26.4	13.4	86.4
monoUPu	NON	13.5	18.4 (+23.6)	9.5	3.7	45.7 (69.3)
multiUPu	OUI	12.8	49.5	29.8	9.3	103.5
monoThPu	NON	13.2	18.2 (+22.0)	9.6	3.7	45.4 (67.4)
multiThUPu	OUI	14.7	30.7	28.0	8.9	84.2
multiThU	OUI	14.2	36.1	23.5	7.8	83.6
mutiThU2	NON	13.7	16.7 (+20.2)	8.8	3.3	43.2 (63.4)
RNR	OUI	4.6	29.0	5.6	1.2	40.4

TABLE 5.9 – Production d’actinides mineurs à l’équilibre en kg par GWe.an du parc entier (avec la production d’ ^{241}Am produite par décroissance du ^{241}Pu au bout d’un temps très long)

En comparant avec des études similaires sur des scénarios de parcs de RNR complets de type EFR régénérateurs [12], mettant en jeu le multi-recyclage du plutonium mais aucun recyclage des actinides mineurs, il est possible d’évaluer l’efficacité globale des scénarios étudiés en matière de production de déchets. Même si l’inventaire en cycle de plutonium d’un scénario RNR est très élevé, la production d’américium est assez faible. Cette faible production d’ ^{241}Am dans les RNR malgré un inventaire élevé est due à la faible proportion de ^{241}Pu dans le vecteur isotopique du plutonium d’un RNR (3.7% comparé aux 10-12% de nos scénarios)[12]. Il y a deux fois plus de plutonium dans un RNR, mais la proportion de ^{241}Pu est trois fois plus faible. Ainsi au niveau de la quantité de ^{241}Pu et donc de la production d’ ^{241}Am les stratégies REP et RNR sont assez équivalentes. En revanche, les RNR sont clairement avantageux pour la production d’ ^{243}Am et de ^{244}Cm en cas de multirecyclage du plutonium. Ces analyses ne concernent que les stratégies de multi-recyclage du plutonium sans recyclage des actinides mineurs, la mise en place du recyclage des actinides mineurs conduit à des situations bien plus complexes[45].

Dans les scénarios ne multi-recyclant pas le plutonium, tels que le scénario UOX ouvert et les scénarios monoUPu, monoThPu et multiThU2, il y a du plutonium qui est rejeté hors du cycle (voir tableau 5.10). Si ce plutonium n’est pas forcément un déchet, puisqu’il reste possible de le valoriser ultérieurement, il le deviendrait dans le cas de scénarios de fin de jeu. Il est alors intéressant de se pencher sur ces rejets de

5.6. DÉCHETS

plutonium et notamment d'analyser l'effet de l'utilisation du thorium en comparant les scénarios monoUPu et monoThPu. Tout d'abord, on observe que les rejets de plutonium dans ces scénarios sans multirecyclage correspondent à des masses plus importantes que les rejets d'actinides mineurs mentionnés précédemment. De plus, les vecteurs plutonium rejetés gardent des quantités raisonnables d'isotopes fissiles (49% pour le monoUPu et 40% pour les scénarios thoriés) qui permettent d'envisager une possible valorisation future. Dans un tel cadre, le plutonium issu de scénarios thoriés semble moins intéressant car il contient une moins grande proportion d'isotopes fissiles, et surtout parce qu'une très grande partie des isotopes fissiles qu'il contient est du ^{241}Pu , à courte durée de vie, qui risque de décroître avant la mise en place de la valorisation. Les rejets de plutonium produit dans les assemblages multiThU du scénario multiThU ne sont pas mentionnés dans ce tableau car, restant en dessous de 1kg par GWe.an, ils sont inférieurs aux pertes lors du recyclage des combustibles multirecyclant le plutonium dans ce scénarios.

Scénario	^{238}Pu	^{239}Pu	^{240}Pu	^{241}Pu	^{242}Pu	Total Pu
UOX	6.9	128.8	60.9	29.3	18.2	244
monoUPu	21.7	66.8	51.2	23.6	21.7	185
monoThPu	8.5	31.1	46.0	22.0	23.0	130.6
mutiThU2	8.5	28.5	42.2	20.2	21.1	120.5

TABLE 5.10 – Rejet de plutonium à l'équilibre en kg par GWe.an du parc entier pour les scénarios ne multirecyclant pas le plutonium.

5.7 Résumé et Conclusions du chapitre

Dans ce chapitre, sont comparés les parcs à l'équilibre des scénarios présentés dans le chapitre 2 obtenus grâce à la méthode décrite dans le chapitre 4. L'analyse et la comparaison de ces différents scénarios permet de montrer que la faible conversion des combustibles thorium-uranium conduit à une faible proportion de ces assemblages au sein du parc à l'équilibre. Ainsi, le cycle thorium ne permet pas un gain de plus de 22% sur la consommation de ressource par rapport au scénario UOX. Ce gain est très proche des 20% obtenus avec des scénarios comparables utilisant le cycle uranium et beaucoup plus faible que le gain typique de 50% présenté dans [31] qui utilise une technologie optimisée pour la conversion. On remarque aussi que l'utilisation d'assemblages homogènes force l'utilisation d'assemblages thoriés où les isotopes du plutonium constituent la majorité des noyaux fissiles. Dans de tels assemblages, le spectre est fortement durci ce qui conduit à diminuer les performances du cycle thorium au niveau des inventaires en cycle et de la production d'américium. Les assemblages hétérogènes, étudiés au chapitre suivant, tentent d'améliorer ce point.

Chapitre 6

Études d'assemblages hétérogènes

6.1 Présentation des scénarios avec assemblages hétérogènes

Dans le chapitre précédent, il a été montré que le recyclage homogène permettait d'obtenir les inventaires en cycles et les productions d'actinides mineurs les plus bas parmi tous les scénarios étudiés. Cependant l'utilisation du thorium interdit un recyclage homogène du plutonium. Or, quand il est utilisé pour recycler le plutonium dans des assemblages spécifiques, il apporte des gains au niveau de la consommation de ressources et de la production d'actinides mineurs par rapport aux situations semblables utilisant une base uranium. Dans ce chapitre, des scénarios mettant jeu des hétérogénéités au sein de l'assemblage sont présentés et étudiés. Le but est de tenter de thermaliser le spectre des crayons ThPu tout en gardant séparés l' ^{238}U et l' ^{233}U produit par conversion du thorium. En mélangeant les crayons UOX et ThPu au sein d'un même assemblage, on espère donc profiter du spectre thermalisé d'un UOX pour adoucir le spectre des ThPu et réduire ainsi l'inventaire à l'équilibre ainsi que les productions d'actinides mineurs.

6.1.1 Cycle uranium seul

Le recyclage totalement homogène n'est possible que si seul le cycle uranium est utilisé puisque l'utilisation du thorium nécessite la séparation de l'uranium enrichi et des combustibles thoriés si l'on veut recycler l' ^{233}U produit par conversion sur le thorium. Les scénarios n'utilisant que le cycle uranium sont donc les seuls où toute la gamme d'hétérogénéité est disponible.

6.1. PRÉSENTATION DES SCÉNARIOS AVEC ASSEMBLAGES HÉTÉROGÈNES

Le scénario mettant en jeu le recyclage homogène du plutonium est le scénario multiUePu présenté dans la figure 2.2. La figure 6.1 reprend la définition de ce scénario d'une façon plus visuelle. Dans ce scénario tous les crayons ont la même composition et résultent du même processus de fabrication. Il s'agit du multi-recyclage du plutonium sur une base d'uranium enrichi.

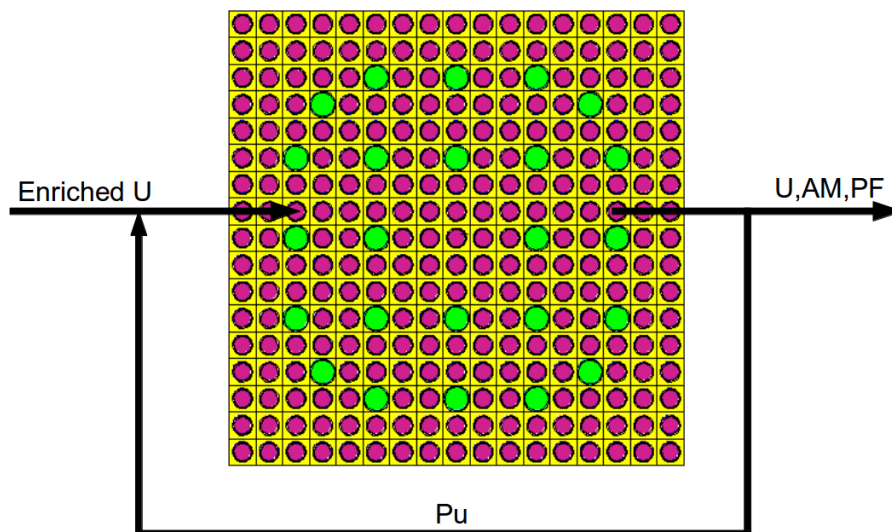


FIGURE 6.1 – Scénario UPU avec une homogénéité totale du combustible : multiUePu. Scénario déjà présenté en figure 2.2.

Le scénario multiUPu défini dans la figure 2.3 et représenté graphiquement dans la figure 6.2, met en jeu le recyclage du plutonium avec une hétérogénéité au niveau des assemblages. En effet, comme tous les scénarios étudiés précédemment, il ne comporte que des assemblages homogènes. Cependant il existe différents types d'assemblage qui se côtoient dans le parc. On parle d'une hétérogénéité au niveau de l'assemblage pour désigner l'état de ce parc où les combustibles sont différents d'un assemblage à l'autre mais où les crayons sont identiques au sein d'un même assemblage. Dans le cadre de ce chapitre, pour le différencier des scénarios avec d'autre niveau d'hétérogénéité, il sera noté "multiUPu assemblage".

6.1. PRÉSENTATION DES SCÉNARIOS AVEC ASSEMBLAGES HÉTÉROGÈNES

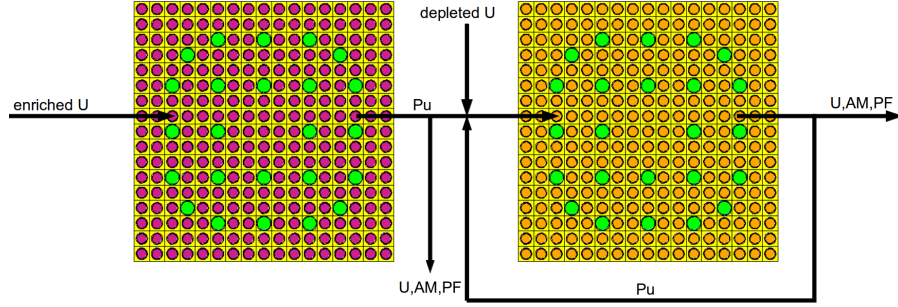


FIGURE 6.2 – Scénario UPu avec une hétérogénéité au niveau de l’assemblage : multiUPu assemblage. Scénario équivalent au multiUPu du chapitre précédent 2.3.

Le troisième scénario, présenté dans la figure 6.3, est une variation du scénario multiUPu dans lequel les différents combustibles, au lieu d’être séparés dans des assemblages différents, sont répartis au sein du même assemblage, mais dans des crayons différents afin de permettre un retraitement différencié. Les crayons recyclant le plutonium ont été placés au sein d’une couronne comme de façon similaire à la majorité des assemblages hétérogènes étudiés en REP [46, 47]. Cet agencement permet une gestion plus facile des différents types de crayon après irradiation que s’ils étaient répartis dans tout l’assemblage. Les crayons recyclant le plutonium sont en grande majorité entourés par des crayons UOX, la communication neutronique entre les différents types de combustible est donc très forte et cette hétérogénéité au niveau du crayon rend possible une plus grande similitude entre les environnements vus par les différents combustibles. La proportion des crayons recyclant le plutonium est fixé, de la même façon que la proportion des assemblages recyclant le plutonium dans l’étude précédente, afin que la quantité de plutonium qu’il est nécessaire d’y ajouter à chaque cycle soit la même que la quantité de plutonium qui est produit dans les crayons UOX. Dans un tel scénario il n’y a donc aucun apport extérieur de plutonium et tous les assemblages du parc sont identiques. Ce scénario est nommé "multiUPu crayon", pour rappeler sa similitude avec le scénario multiUPu et sa spécificité d’amener les différents combustibles dans des crayons voisins. On a donc trois scénarios pour le cycle uranium qui seront étudiés dans ce chapitre : multiUePu, "multiUPu assemblage" et "multiUPu crayon".

6.1. PRÉSENTATION DES SCÉNARIOS AVEC ASSEMBLAGES HÉTÉROGÈNES

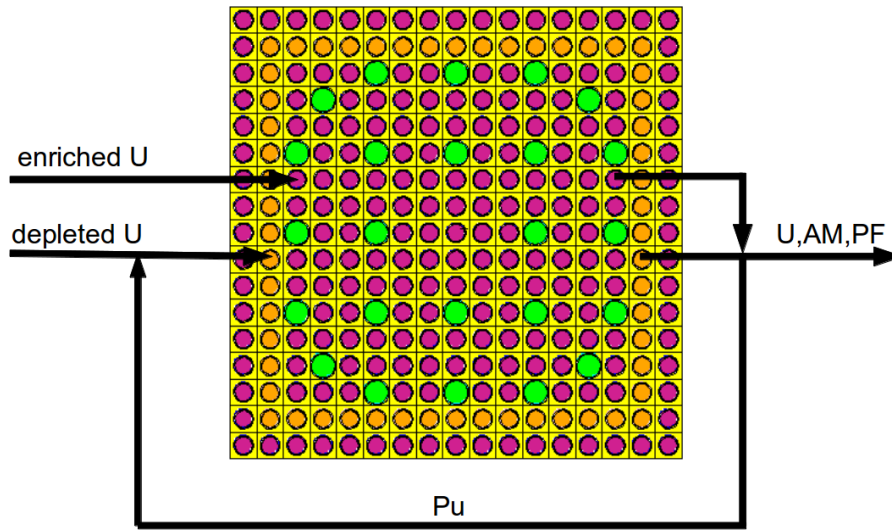


FIGURE 6.3 – Scénario UPu avec une hétérogénéité au niveau du crayon : multiUPu crayon.

6.1.2 Cycle thorium

Il n'existe pas de scénario de recyclage totalement homogène du plutonium utilisant le thorium. Cependant suivant un cheminement similaire à celui décrit dans le paragraphe précédent pour les scénarios uranium, on obtient deux scénarios utilisant le thorium qui sont intéressants pour étudier l'effet de l'hétérogénéité :

- le scénario "multiThUPu assemblage" qui n'est rien d'autre que le scénario multiThUPu déjà analysé dans le chapitre précédent. Il est décrit dans la figure 6.4.

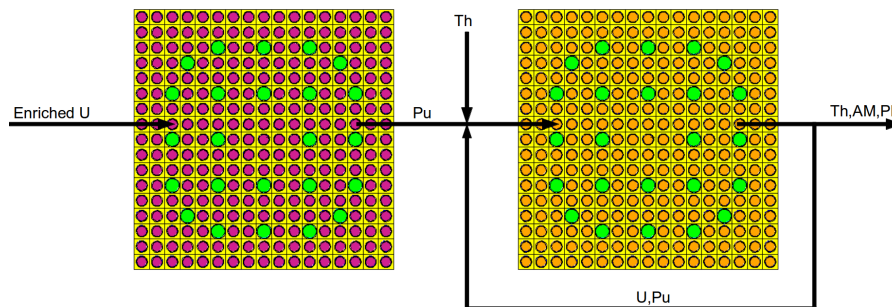


FIGURE 6.4 – Scénario ThUPu avec une hétérogénéité au niveau de l'assemblage : multiThUPu assemblage. Scénario équivalent au multiThUPu du chapitre précédent 2.4.

- le scénario "multiThUPu crayon" qui est la transposition du scénario multi-ThUPu en abaissant l'hétérogénéité à l'intérieur de l'assemblage, au niveau du crayon (figure 6.5). Il est au multiThUPu ce que le "multiUPu crayon" est au multiUPu.

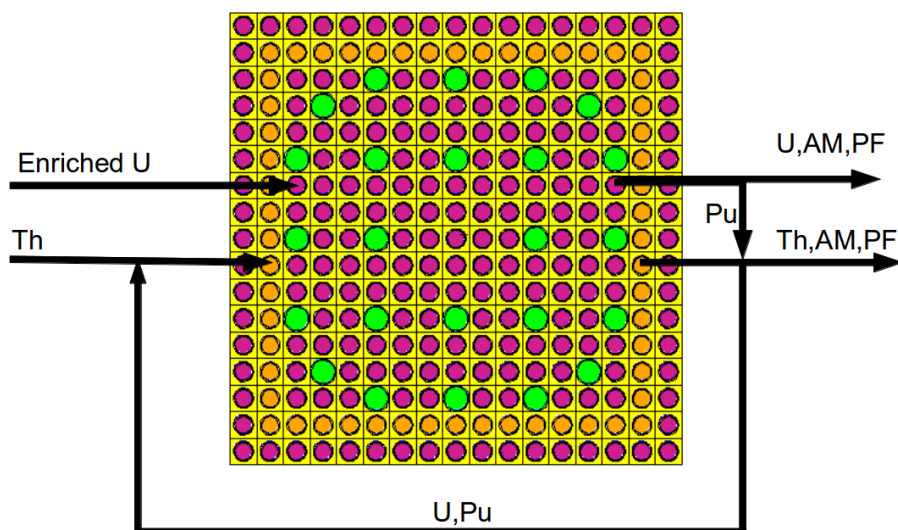


FIGURE 6.5 – Scénario ThUPu avec une hétérogénéité au niveau du crayon : multi-ThUPu crayon

6.2 Parcs à l'équilibre

Le fait de gérer l'hétérogénéité au niveau des crayons par l'introduction de couronnes de crayons recyclant le plutonium au sein d'un assemblage contenant majoritairement des crayons UOX ne permet pas d'être aussi précis sur la proportion entre les différents types de combustible dans le parc que dans le cas de la gestion par assemblage. En effet pour produire 1 GWe, il faut plus de 150 assemblages ; dans un parc de la taille du parc français la gestion par assemblage permet d'avoir une précision de 0.01% sur les proportions entre les différents types de combustibles (donc quasicontinue). L'organisation en couronnes des crayons dans l'assemblage ne permet que des sauts de 2.77%. Pour ne pas surévaluer le bénéfice, c'est la couronne juste en dessous du pourcentage de crayons optimal qui a été choisie. Selon ces hypothèses la part maximale de crayons recyclant le plutonium et permettant d'atteindre 50 GWj/t est de 21% pour le scénario multiUPu crayon (voir tableau 6.1). Avec 23.77% de crayons recyclant le plutonium, il n'est pas possible d'atteindre les 50

6.3. ANALYSE NEUTRONIQUE

GWj/t voulus dans le scénario multiUPu crayon.

Le tableau 6.1 montre ainsi que les proportions entre les différents types de combustible sont sensiblement les mêmes pour les scénarios utilisant une hétérogénéité au niveau de l'assemblage ou au niveau du crayon avec des gains relatifs de l'ordre de 5% entre la version assemblage et la version crayon en termes d'économie de ressources.

	Proportion de crayon recyclant le plutonium	Consommation d'uranium naturel
multiUePu	100%	188.06 t par GWe.an
multiUPu crayon	21%	142.37 t par GWe.an
multiUPu assemblage	20.03%	144.12 t par GWe.an
multiThUPu crayon	23.77%	134.14 t par GWe.an
multiThUPu assemblage	22.20%	136.9 t par GWe.an

TABLE 6.1 – Répartition entre les différents types de crayons à l'équilibre avec des assemblages hétérogènes

6.3 Analyse neutronique

Le tableau 6.2 récapitule les principales sections efficaces des différents scénarios. Comme on pouvait s'y attendre, les sections efficaces des scénarios avec une hétérogénéité au niveau des crayons ont des valeurs intermédiaires entre les sections efficaces des scénarios homologues avec une hétérogénéité au niveau des assemblages et le scénario homogène multiUePu. Cette situation est particulièrement visible pour la section efficace de capture du ^{240}Pu : de 67.6 barns en homogène, sur support uranium, elle passe à 10.31 barns en hétérogène "assemblage" et à 46 barns en hétérogène "crayon". De même sur support thorium, cette section efficace passe de 17.9 à 35.7 barns. On mesure donc ici le fait que l'hétérogénéité au niveau des crayons permet d'adoucir le spectre des neutrons dans les crayons multirecyclant le plutonium tout en assurant une séparation entre l'uranium enrichi et le plutonium multirecyclé, essentiel surtout pour le cycle thorium.

Dans tous les cas de recyclage hétérogène (crayon ou assemblage), l' ^{235}U reste irradié dans des crayons standards UOX et on observe que le spectre varie peu selon la stratégie puisque sa section efficace microscopique moyenne de fission dans les crayons contenant de l'uranium enrichi passe de 38.5 barns en assemblage UOX à 36.4

6.3. ANALYSE NEUTRONIQUE

ou 34.8 dans des crayons UOX au sein d'assemblages hétérogènes. On s'attend donc à ne pas dégrader significativement les performances de l'uranium enrichi comme cela a été le cas en multiUePu (voir paragraphe 5.3).

Scénario	Assem. (% parc)	^{232}Th		^{233}U		^{235}U		^{238}U		^{239}Pu		^{240}Pu
		c	f	c	f	c	f	c	f	c	f	c
UOX	UOX	/	/	/	/	8.85	38.5	0.80	0.10	57.5	101	228
multiUePu	UePu (100%)	/	/	/	/	6.37	23.8	0.85	0.11	31.3	55.3	67.6
multiUPu Crayon	UPu (21%)	/	/	/	/	8.66	36.4	0.89	0.11	30.4	57.1	46.0
multiUPu Assemblage	UPu (20%)	/	/	/	/	/	/	0.80	0.13	7.03	12.8	10.3
multiThUPu Crayon	ThPu (21%)	0.77	0.027	3.87	26.8	8.88	34.8	/	/	22.0	40.0	35.7
multiThUPu Assemblage	ThUPu (22%)	0.73	0.029	3.00	19.3	/	/	/	/	11.1	19.5	17.9

TABLE 6.2 – Sections efficaces principales à l'équilibre avec des assemblages hétérogènes (en barns).

Afin de quantifier l'effet sur les performances de l'uranium enrichi qui a été discuté dans le chapitre précédent, les η des différents éléments considérés ont été calculés et récapitulés dans le tableau 6.3.

Scénario	Crayons	η_U	η_{Pu}
multiUePu		1.266	1.159
multiUPu Crayon	U enr.	1.382	/
	UPu	/	1.189
multiUPu Assemblage	U enr.	1.489	/
	UPu	/	1.158
multiThUPu Crayon	U enr.	1.382	/
	ThUPu	1.844	1.171
multiThUPu Assemblage	U enr.	1.489	/
	ThUPu	1.792	1.108

TABLE 6.3 – η à l'équilibre avec des assemblages hétérogènes.

Dans le cas du recyclage homogène, le plutonium, complètement mélangé à l'uranium enrichi, modifie beaucoup le spectre et donc le facteur η de l'uranium enrichi (cf. tableau 6.3). Ce dernier est alors beaucoup moins à même de remplir son rôle de fissile car son η a baissé jusqu'à 1.27 contre 1.49 pour l'UOX (qui constitue non

6.3. ANALYSE NEUTRONIQUE

seulement les assemblages du scénario UOX mais aussi les assemblages à l'uranium enrichi des scénarios avec une hétérogénéité au niveau des assemblages).

Pour ce qui est des scénarios avec une hétérogénéité au niveau des assemblages, la séparation entre le plutonium et l'uranium est vraiment très forte. En effet, avec les hypothèses effectuées lors des simulations, il n'y a même aucun couplage neutronique entre les différents assemblages. L'uranium enrichi au sein de ces scénarios se comporte donc exactement comme des combustibles UOX. L'uranium enrichi a donc une valeur de η très élevée (1.489), plus haute que dans tous les autres scénarios de multi-recyclage du plutonium. En parallèle, le plutonium est concentré dans des assemblages où il est le seul fissile. Le spectre neutronique est donc très dur dans ces assemblages. Les performances du plutonium y sont alors moins bonnes que dans les autres scénarios avec des η descendant à 1.158 et 1.108.

Pour le recyclage avec une hétérogénéité au niveau des crayons, le plutonium est séparé de l'uranium enrichi puisqu'il est placé dans des crayons différents. Les deux types de combustible sont placés dans des crayons voisins. Le spectre neutronique au sein de chaque type de combustible est donc influencé par les crayons de l'autre type. Etant donné la répartition géométrique des crayons recyclant le plutonium au sein de l'assemblage, les assemblages UOX sont en grande majorité entourés d'autres crayons UOX, l'influence des crayons recyclant le plutonium sur le comportement de l'uranium enrichi reste ainsi faible, bien plus faible que dans le cas du scénario multiUePu, diminuant non plus jusqu'à 1.27 le facteur η de l'uranium mais seulement jusqu'à 1.38. De même, en cycle thorium, le facteur η de l'uranium enrichi dans les crayons UOX est de 1.38. On remarque par contre que les crayons contenant du plutonium, étant entourés de crayons UOX, gardent des spectres thermalisés qui leur permettent de maintenir des η très hauts. Ces η sont même plus élevés que pour le scénario multiUePu grâce au spectre très thermalisé de neutrons qui provient des crayons voisins sans plutonium, un spectre plus thermalisé que celui présent dans les assemblages multiUePu.

Les performances de l'uranium issu du thorium évoluent peu d'une stratégie à l'autre : son facteur η reste de l'ordre de 1.8.

6.4 Ressources

Le tableau 6.1, en plus de décrire les parcs à l'équilibre des scénarios avec différents niveaux d'hétérogénéité, donne la consommation de ressources naturelles associée à chacun de ces scénarios. On remarque que les scénarios avec une hétérogénéité au niveau des crayons demandent moins de ressources que les scénarios avec une hétérogénéité au niveau des assemblages. Au sein de ces assemblages, la présence du plutonium a deux effets qui sont les mêmes que ceux décrits pour le multiUePu dans le chapitre précédent :

- le plutonium produit plus de neutrons qu'il n'en consomme et contribue donc positivement au bilan neutronique permettant une meilleure utilisation du combustible ;
- le plutonium modifie le spectre et diminue ainsi les performances de l'uranium enrichi conduisant à une moins bonne utilisation du combustible.

Dans le paragraphe précédent, on a vu que la diminution de performance de l'uranium enrichi était limitée dans les scénarios avec une hétérogénéité au niveau des crayons et que les performances fissiles du plutonium y sont meilleures. On gagne donc sur les deux tableaux, de sorte que ces scénarios permettent une économie réelle de ressources par rapport au cycle ouvert.

Au final, cette stratégie permet une économie supérieure à celle des scénarios avec une hétérogénéité au niveau des assemblages. Cette proportion de ressource économisée, directement reliée à la proportion des différents types de combustible dans le parc, n'est pas reliée aux performances neutroniques du plutonium mais à l'efficacité de la conversion. En effet, les crayons UOX, qu'ils soient regroupés au sein d'assemblages spécifiques ou non, servent à compenser le plutonium perdu dans les crayons recyclant du plutonium (puisque'ils sont pas régénérateurs). Ce manque de plutonium après recyclage, proportionnellement à la quantité de plutonium dans les crayons, est moins important pour les scénarios avec une hétérogénéité au niveau des crayons que pour ceux avec une hétérogénéité au niveau des assemblages. La proportion de crayons UOX nécessaire est ainsi plus faible et les scénarios "multiUPu crayon" et multiThUPu crayon" consomment moins de ressources que les scénarios "multiUPu assemblage" et multiThUPu assemblage". Ce gain reste cependant limité à quelques pourcents, au prix d'une complexité de gestion plus élevée des assemblages hétérogènes.

6.5 Analyse des paramètres de sûreté

En reprenant les mêmes paramètres et les mêmes méthodes de calcul que pour les scénarios avec des assemblages homogènes, on peut évaluer l'impact de l'hétérogénéité du recyclage sur ces quelques paramètres basiques de sûreté. Comme pour les étapes précédentes, on remarque, grâce aux valeurs données dans le tableau 6.4, que la situation dans les scénarios avec une hétérogénéité au niveau des crayons est intermédiaire entre les scénarios avec une hétérogénéité au niveau des assemblages et le scénario homogène multiUePu. Le fait de mélanger au sein du même assemblage des crayons UOX et des crayons recyclant le plutonium permet de moyenner les paramètres de sûreté et ainsi de se rapprocher des conditions favorables des combustibles UOX. Ainsi le scénario "multiUPu crayon" a une réactivité de vidange totale négative. Ainsi, alors que pour statuer sur les paramètres de sûreté au sein du scénario "multiUPu assemblage", une étude globale d'un cœur hétérogène fait d'un mélange d'assemblages homogènes UOX et multiUPu est nécessaire en plus des études effectués dans le cadre de ce travail (voir paragraphe 5.5), l'étude du seul assemblage hétérogène du scénario "multiUPu crayon" permet de lever ce point d'achoppement. De même, les β_{eff} sont significativement plus élevés dans les scénarios avec une hétérogénéité au niveau des crayons que dans les assemblages recyclant le plutonium des scénarios avec une hétérogénéité au niveau des assemblages. Ils sont même plus importants que celui du scénario multiUePu, grâce à la plus grande efficacité de l'uranium enrichi qui permet que les fissions sur l' ^{235}U occupent une plus grande proportion dans le cas hétérogène que dans le cas homogène.

Scénario	Assem.	β_{eff}	Coeff. Temp. Fuel	Coeff. Temp. Mod.	Réactivité de vidange totale	
	(% parc)	(pcm)	(pcm/K)	(pcm/K)	pcm	\$
UOX	UOX	703	-1.69	-0.99	-83 145	-118.3
multiUePu	UePu (100%)	501	-2.58	-2.34	-47 808	-95.5
multiUPu Crayon	Upu (21%)	551	-1.59	-0.66	-49 325	-89.5
multiUPu Assemblage	Upu (20%)	372	-2.37	-1.50	+15 498	+41.6
multiThUPu Crayon	ThPu (24%)	565	-1.78	-0.48	-57 711	-102.1
multiThUPu Assemblage	ThUPu (22%)	372	-3.49	-0.88	-4 537	-12.2

TABLE 6.4 – Paramètres basiques de sûreté à l'équilibre avec des assemblages hétérogènes.

6.6 Inventaires en cycle

Encore une fois, les scénarios avec une hétérogénéité au niveau du crayon ont des inventaires en cycle (plutonium et uranium issu de la conversion sur le thorium) intermédiaires entre leurs scénarios homologues avec une hétérogénéité au niveau des assemblages et le scénario homogène multiUePu (voir figure 6.6). Comme expliqué dans le paragraphe 5.1, le scénario multiUePu doit son faible inventaire de plutonium en cycle aux forts taux de réactions sur le plutonium qui le font disparaître rapidement alors que la production par capture sur l'uranium reste à peu près constante. Les taux de réaction sur le plutonium dans les scénarios avec une hétérogénéité au niveau des crayons sont supérieurs à ceux dans les scénarios avec une hétérogénéité au niveau des assemblages alors que la capture sur l' ^{238}U reste constante (voir tableau 6.2). Leurs inventaires en cycle sont donc plus faibles. Par contre ces taux de réaction restant inférieurs à ceux dans les assemblages multiUePu, l'inventaire reste également supérieur.

Il est intéressant de remarquer que l'inventaire en cycle d'uranium dans le combustible thorié diminue lui aussi entre les scénarios "multiThUPu assemblage" et "multiThUPu crayon", bien que de façon moins importante que celui de plutonium. Les causes sont cependant les mêmes : à la vue des sections efficaces de l' ^{233}U (ta-

6.7. DÉCHETS

bleau 6.2), on remarque qu'elles augmentent aussi avec la thermalisation du spectre causée par le mélange des crayons UOX et multiThUPu de 32%. Cela conduit logiquement à diminuer l'inventaire en cycle puisque la production via les captures sur le thorium ne change quasiment pas.

On remarque ainsi qu'augmenter l'homogénéité du recyclage (où diminuer l'échelle de l'hétérogénéité) permet de faire diminuer l'inventaire en cycle des principaux éléments fissiles, que ce soit en cycle uranium ou en cycle thorium.

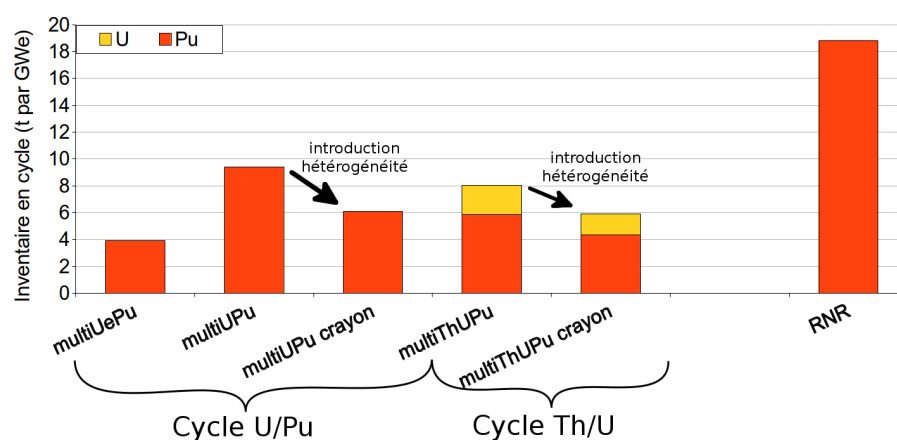


FIGURE 6.6 – Comparaison des inventaires de fissiles dans le cycle à l'équilibre avec des assemblages homogènes et hétérogènes.

6.7 Déchets

Comme pour les autres étapes du cycle, la production d'actinides mineurs des scénarios avec une hétérogénéité des crayons est à mi-chemin entre celle du scénario homogène et celle des scénarios avec une hétérogénéité au niveau des assemblages (voir figure 6.7). Les scénarios "multiUPu crayon" et "multiThUPu crayon" produisent significativement moins d'américium, spécifiquement d' ^{241}Am , ce qui est positif pour la problématique du stockage des déchets mais un peu plus de ^{244}Cm que leur homologue "multiUPu assemblage" et multiThUPu assemblage" ce qui peut être un problème pour la manipulation des combustible utilisé avant la séparation. Mais ils produisent toujours plus d'américium et moins de curium que le scénario homogène multiUePu.

On remarque que la production totale d'actinides mineurs du scénario "multiThUPu crayon" est assez faible et descend à 69 kg par GWe.an. Cela permet

6.7. DÉCHETS

aux scénarios thoriés de descendre bien en dessous de tous les autres scénarios de multi-recyclage de plutonium et d'atteindre des niveaux de production d'actinides mineurs du même niveau que les scénarios de mono-recyclage que sont le monoUPu et le monoThUPu (dont les productions d'actinides mineurs sont indiquées dans le tableau 5.9). Cette production reste cependant toujours supérieure à celle d'un RNR d'un facteur 1.7.

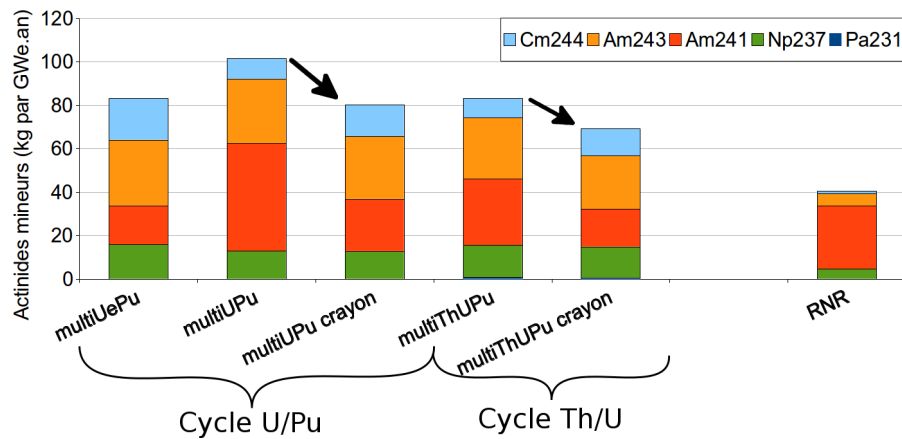


FIGURE 6.7 – Production d'actinides mineurs à l'équilibre avec des assemblages hétérogènes

6.8 Résumé et Conclusions du chapitre

L'étude des scénarios à l'équilibre utilisant des assemblages hétérogènes permet d'obtenir des résultats intermédiaires entre le scénario totalement homogène multiUePu et les scénarios avec des assemblages homogènes mais différents entre eux que sont le multiUPu et le multiThUPu présentés dans le chapitre précédent.

Grâce à la thermalisation du flux vu par le plutonium recyclé, le scénario "multiThUPu" crayon, permet d'atténuer très fortement le désavantage pointé dans le chapitre précédent dû à l'impossibilité de faire un recyclage complètement homogène du plutonium en utilisant le cycle thorium. Ainsi ce scénario permet d'obtenir une production d'actinides mineurs plus faible que le scénario multiUePu qui était le meilleur sur ce point parmi les scénarios utilisant des assemblages homogènes, tels que présentés dans le chapitre précédent.

Cependant, les assemblages hétérogènes ne permettent pas de résoudre le problème du faible taux de conversion du cycle thorium. Les proportions de crayons contenant du combustible thorié restent proches des celles obtenues avec des assemblages homogènes et le thorium n'apporte pas non plus dans ce cas un gain significatif sur la consommation de ressources par rapport au cycle uranium. Et même si on arrive à des productions d'actinides mineurs plus faibles que celles des scénarios similaires utilisant le cycle uranium, le gain sur ce point n'est pas non plus gigantesque et la production d'actinides mineurs reste largement supérieure à celle des scénarios RNR. L'hétérogénéité permet de gommer le désavantage de non miscibilité du thorium pointé dans le chapitre précédent.

Troisième partie

Vers des scénarios de transition

Chapitre 7

Le Code CLASS : : Core Library for Advanced Scenarios Simulations

7.1 Structure du Code

7.1.1 Présentation du Code

Les résultats présentés dans les chapitres précédents correspondent à des scénarios à l'équilibre. Ces analyses ont permis de comprendre précisément la physique qui gouverne les différences entre les stratégies de multirecyclage du plutonium sur support uranium ou thorium. Mais pour étudier de façon réaliste comment ces différentes stratégies peuvent être progressivement mises en place dans un parc existant (contenant un inventaire de fissile déjà constitué), il est nécessaire de pouvoir calculer des scénarios de transition. Cette partie concerne donc les études que nous avons menées dans cette optique. Elles ont été faites dans le cadre du développement du code CLASS (Core Library for Advance Scenario Simulation)[48].

CLASS est développé de manière transversale par plusieurs équipes au sein du CNRS/IN2P3, situées à Subatech, à l'IPNO et au LPSC. Ce développement fait également l'objet d'une collaboration forte entre ces équipes et le LNC de l'IRSN.

L'ensemble des sources de CLASS est disponible à chacun des utilisateurs dans le but de leur permettre de maîtriser les méthodes employées, leurs points forts et leurs faiblesses, ainsi que de leur donner l'opportunité de les modifier pour les adapter aux spécificités des scénarios qu'ils étudient. De même, les bases de données nécessaires au fonctionnement de CLASS sont dans un format clair et lisible afin de garantir la transparence des méthodes et la facilité pour les utilisateurs d'en créer de nouvelles.

7.1.2 Principe général de CLASS

CLASS est un ensemble de bibliothèques C++ permettant à ses utilisateurs de simuler les scénarios électronucléaires de leur choix. Cette simulation se fait par l'écriture d'un fichier d'entrée en C++ qui définit les éléments clés et les paramètres d'entrée d'un scénario électronucléaire par l'intermédiaire des objets et des fonctions définies dans les bibliothèques.

Lorsque l'on simule un scénario électronucléaire avec CLASS, on détermine, au cours de la vie du parc, l'évolution de la matière présente dans les principales installations du cycle, tant au niveau de sa quantité globale que de sa composition isotopique.

La figure 7.1 présente un cycle du combustible représentatif de ceux qu'il est possible de simuler avec CLASS. On peut y voir les différentes installations du cycle qui sont simulées par ce code : réacteurs, piscines de refroidissement, usines de fabrication et de séparation. Des installations de stockage hors piscine de refroidissement sont aussi prises en compte afin de permettre une plus grande flexibilité dans les directions et la synchronisation des transferts de matière.

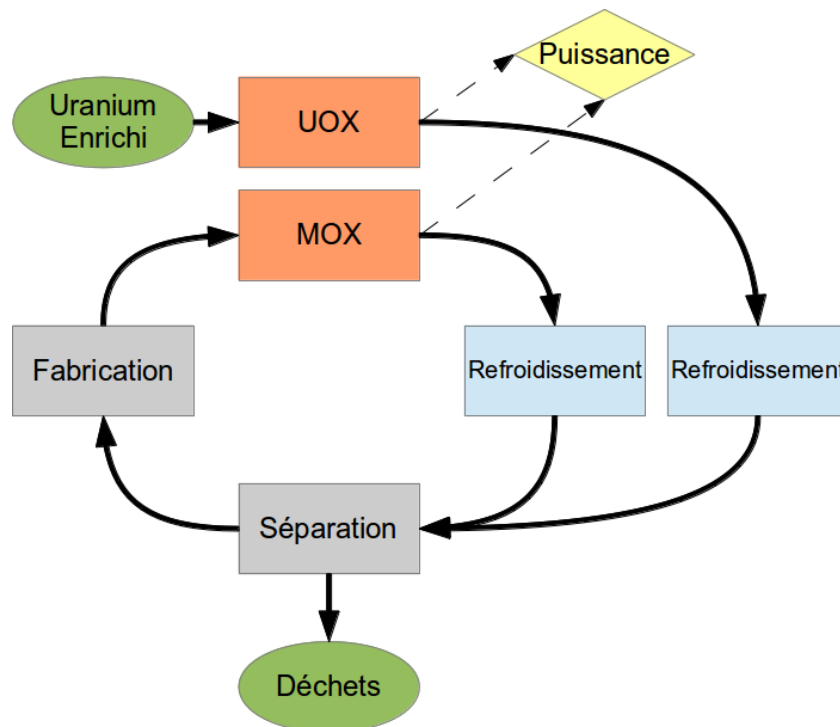


FIGURE 7.1 – Exemple de cycle du combustible étudié avec CLASS.

7.1. STRUCTURE DU CODE

Les installations simulées par CLASS sont celles où une transformation significative de la matière a lieu. Ainsi sont simulés :

- **Les piscines de refroidissement** (en bleu dans la figure 7.1) où des matières radioactives sont stockées en attendant que la dangerosité de leur manipulation redescende à un niveau acceptable (la décroissance radioactive des radio-isotopes durant le temps de résidence y fait évoluer les compositions isotopiques). Tant que ces matières sont dans ces piscines, elles ne sont pas disponibles.
- **Les stocks** qui sont équivalents à des piscines de refroidissement mais dans lesquelles la matière est disponible pour être prélevée et envoyée dans d'autres installations du cycle.
- **Les réacteurs** (en rouge dans la figure 7.1) au sein desquels le combustible, irradié pour produire de l'énergie, est le siège d'une multitude de réactions nucléaires faisant apparaître de nombreux isotopes dont la plupart sont radioactifs et dont l'évolution est régie par les équations de Bateman (cf chapitre 3).
- **Les usines de séparation et de fabrication** qui gèrent la séparation chimique des différents éléments du combustible usé, permettant notamment de séparer le plutonium réutilisable des produits de fission qui seront envoyés aux déchets, ainsi que la fabrication des combustibles frais. La séparation chimique est instantanée, le combustible séparé est alors stocké au sein de l'usine pendant une durée de 2 ans qui simule la durée des divers processus de fabrication.

Le transport de matière se fait de façon instantanée et sans limitation sur les flux transportés. La décroissance des radionucléides pendant le transport est cependant prise en compte grâce à une adaptation du temps de résidence dans les piscines de refroidissement et les usines de fabrication et de séparation.

Une fois les installations du parc définies, le code CLASS permet de calculer l'évolution de la composition isotopiques de la matière au sein de chacune des installations grâce à deux principaux modèles :

- le modèle d'équivalence qui permet de déterminer la composition d'un combustible frais fabriqué à partir de la matière disponible, primordial pour les combustibles contenant du plutonium pouvant avoir différentes origines, et compatible avec les caractéristiques du réacteur dans lequel il va être irradié,
- le modèle d'irradiation qui permet de prédire l'évolution de la composition

d'un combustible au cours de son irradiation en réacteur.

7.2 Constituer les bases d'une DataBank

7.2.1 Rôle et principe de base d'une DataBank

Pour extraire les données physiques ou statistiques nécessaires à la constitution des modèles au cœur de CLASS, il convient de constituer un ensemble d'exemples simulés avec un code précis et validé qui sera considéré par la suite comme représentant la vérité des comportements et des évolutions que l'on cherche à reproduire avec CLASS. Pour assurer que les modèles soient valable sur l'ensemble d'une gamme de combustibles possibles, ces évolutions témoins doivent être nombreuses et parcourir l'ensemble des combustibles rendus possibles par la stratégie envisagée.

Cet ensemble d'évolutions qui est, dans les cas qui concernent notre étude, simulé avec le code MURE sera nommé par la suite *DataBank*.

Il permettra de construire les deux modèles principaux : le modèle d'équivalence qui définit la composition du combustible en début d'irradiation et le modèle d'irradiation qui modélise son évolution en réacteur sans recourir à un calcul d'évolution de type MURE tel que présenté dans le chapitre 3. Ces modèles et la façon dont la *DataBank* permet de les ajuster sont présentés dans la suite de ce chapitre. Un changement de type de réacteur ou de combustible conduit à des changements drastiques de comportement et d'évolution, aussi à chaque couple de type de réacteur et de type de combustible sera consacré une *DataBank* spécifique : une pour les combustibles MOX uranium-plutonium dans des REP, une autre pour les combustibles MOX thorium-plutonium.

7.2.2 Définir les limites de la DataBank

Pour s'assurer qu'une *DataBank* recouvre bien l'ensemble des combustibles lors de la mise en application d'une stratégie, nous avons considéré des cas extrêmes qui doivent obligatoirement être pris en compte, puis nous avons parcouru l'espace entre ces extrêmes. Les combustibles considérés dans cette partie sont des combustibles utilisant une base fertile d'oxyde de thorium à laquelle est mixée un élément majoritairement fissile : de l'uranium ou du plutonium. Le thorium considéré est simplement du ^{232}Th pur.

7.2. CONSTITUER LES BASES D'UNE DATABANK

C'est la composition isotopique de l'élément fissile, très variable en fonction de l'origine de cette matière fissile issue de retraitement de combustible usé, qui définit la diversité des combustibles intervenant lors de la simulation d'un scénario. Et c'est donc la diversité de cette composition isotopique qu'il faut évaluer et rendre compte lors de la création d'une *DataBank*.

Parce qu'une *DataBank* doit couvrir l'espace des combustibles possibles, il est nécessaire que certains vecteurs isotopiques typiques soient dans l'espace considéré. Les plus simples sont les vecteurs isotopiques purs, c'est-à-dire contenant seulement du ^{239}Pu ou seulement de l' ^{233}U . En effet l'irradiation de matières fertiles (dans des couvertures par exemple), respectivement uranium appauvri et ^{232}Th , peuvent produire des vecteurs dominés par le premier fissile, ^{239}Pu ou ^{233}U . Fixer des limites sur des vecteurs isotopiques plus dégradés, c'est à dire contenant plus d'isotopes non fissiles comme le ^{240}Pu et le ^{242}Pu ou l' ^{234}U et l' ^{236}U , est plus délicat. En effet le multi-recyclage en REP de l'uranium et du plutonium a tendance à faire monter la proportion des isotopes avec beaucoup de neutrons que sont le ^{242}Pu et l' ^{236}U à cause de leur faible section efficace d'absorption et des faibles vitesses de disparition qui en découlent. Pour ne pas trop restreindre l'espace considéré en restant autour de combustibles réalistes, nous nous sommes basés sur les vecteurs isotopiques présents dans les scénarios à l'équilibre présentés dans le chapitre 6. Afin de prendre de la marge, les proportions maximales des isotopes ont été arrondies à 5% par excès (voir tableau 7.1). À partir de ces limites, un pavage de l'espace multidimensionnel considéré a été effectué avec un pas de 5%. Les vecteurs ont ensuite été complétés avec le fissile majoritaire, ^{239}Pu pour le plutonium et ^{233}U pour l'uranium, de sorte que la somme des proportions isotopiques soit de 100%. Enfin, les vecteurs contenant moins de 40% de fissile ont été éliminés devant la faible chance que de tels vecteurs soient utilisés comme fissile principal de notre combustible.

ThU		ThPu	
^{234}U	35%	^{238}Pu	15%
^{235}U	15%	^{240}Pu	35%
^{236}U	20%	^{241}Pu	25%
		^{242}Pu	45%

TABLE 7.1 – Limites considérées sur les vecteurs isotopiques utilisés pour générer les *DataBank* ThU et ThPu en REP.

A posteriori, il est facile de vérifier que le plutonium issu de l'irradiation d'un combustible UOX est bien compris dans l'espace parcouru.

Dans CLASS, le choix a été fait de fixer le burn-up au sein d'une *DataBank*. Il faut donc créer une *DataBank* qui correspond à un burn-up choisi par l'utilisateur. Comme pour les chapitres précédents, nous travaillons avec des combustibles qui subissent un taux de combustion de 50GWj/t. Pour simuler des réacteurs irradiant leur combustible jusqu'à un autre burn-up, la construction d'une autre *DataBank* est donc nécessaire.

7.2.3 Générer une DataBank

Une fois l'ensemble de vecteurs isotopiques choisi afin d'être représentatif des combustibles associés à la *DataBank*, la génération de la *DataBank* à proprement parler peut commencer. Le but est alors d'obtenir un ensemble d'évolutions jusqu'au burn-up souhaité, ici 50 GWj/t. La concentration adéquate de matière fissile doit donc y être fixée pour atteindre le burn-up le plus précisément possible.

Pour simplifier et clarifier la présentation du processus de génération de *DataBank*, seule la *DataBank* ThU sera mentionnée dans les différentes figures. Dans ce travail la *DataBank* ThPu a été également générée avec un processus totalement similaire.

Pour la génération de nos *DataBank*, la méthode présentée dans la figure 7.2 a été utilisée. La première étape de cette méthode consiste à calculer, via des calculs assemblage, l'évolution de combustibles tests construits à partir des vecteurs isotopiques considérés. Pour construire ces combustibles, c'est à dire pour déterminer la concentration $\frac{U}{Th + U}$ nécessaire pour atteindre le burn-up recherché, sans avoir de modèle d'équivalence, on estime grossièrement des concentrations plausibles. Le but n'est pas d'avoir quelque chose de précis mais un point de référence dont on pourra se servir plus tard pour calculer la concentration nécessaire précisément. On réalise ainsi un calcul avec une hypothèse haute de concentration et un calcul avec une hypothèse basse de concentration. Une analyse simple de quelques combustibles ThU typique a conduit à fixer comme estimation basse 3% de noyaux fissiles au sein du combustible, et comme estimation haute 4.5%.

Pour la *DataBank* ThPu, l'estimation basse était à 4% de noyaux fissiles et l'estimation haute à 8%.

7.2. CONSTITUER LES BASES D'UNE DATABANK

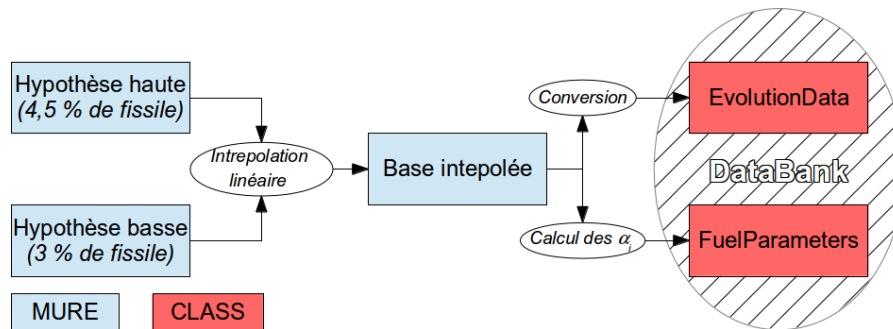


FIGURE 7.2 – Algorithme de génération d'une *DataBank*.

Pour chacun des vecteurs isotopiques sélectionnés, deux calculs assemblage en évolution sont alors réalisés avec MURE, un avec l'estimation basse et un avec l'estimation haute afin de déterminer leur burn-up. La figure 7.3 montre quels burn-up ont été atteints par les compositions simulées. On vérifie que les hypothèses hautes et basses permettent effectivement d'encadrer la concentration nécessaire pour atteindre le burn-up souhaité de 50 GWj/t. On calcule alors cette concentration grâce à une simple interpolation linéaire.

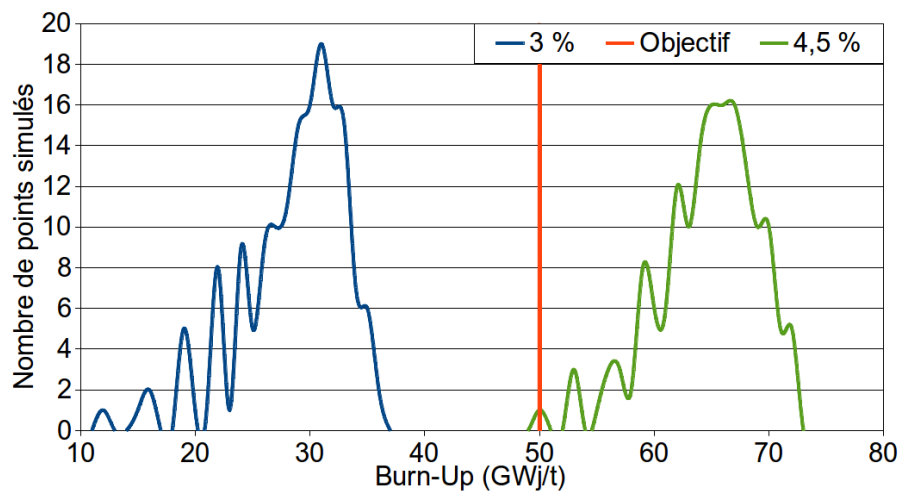


FIGURE 7.3 – Générer une *DataBank* avec un Burn-Up fixé

Une fois cette nouvelle concentration obtenue, un nouveau calcul assemblage est réalisé afin de vérifier la validité de l'interpolation et d'obtenir l'évolution de toutes les quantités nécessaires à la création des *EvolutionData*. La figure 7.4 montre les burn-ups réellement obtenus par les combustibles définis par interpolation. On

7.2. CONSTITUER LES BASES D'UNE DATABANK

remarque que la distribution est très resserrée avec un écart type de l'ordre de 0.3 GWj/t, soit 0.6% de la valeur moyenne. Cependant la valeur moyenne n'est pas exactement celle souhaité de 50GWj/t, elle est de 51.1 GWj/t. Ce léger décalage présent de façon très homogène dans tous les combustibles simulés vient du fait que l'évolution du burn-up que peut atteindre un combustible ThU n'est pas linéaire avec la concentration en uranium. Ces évolutions sont tout de même conservées et utilisées pour construire la *DataBank* qui servira à simuler des combustibles allant jusqu'à 50GWj/t car l'écart de cette valeur moyenne à la valeur attendue est de l'ordre de quelques pourcents, un écart bien moindre que l'incertitude sur le burn-up lors des calculs assemblages, notamment à cause des approximations de l'anti-réactivité fin de cycle mentionnées dans le chapitre 4.2.

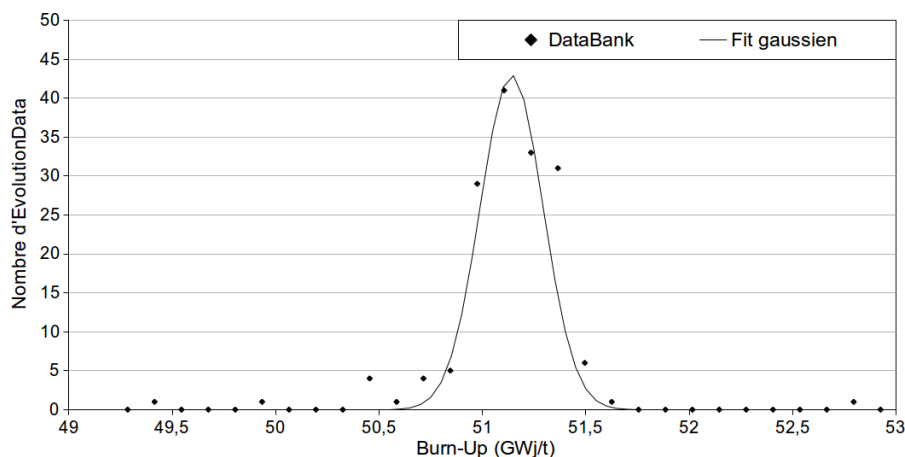


FIGURE 7.4 – Répartition en Burn-up de la *DataBank* ThU finale. En comparaison des distributions montrée sur la figure 7.3, cette distribution est très resserrée

Trois calculs assemblages ont donc été nécessaires pour chaque vecteur isotopique considéré. La *DataBank* ThU contient 160 vecteurs isotopiques d'uranium, l'utilisation de calculs cœur aurait demandé des temps de calculs prohibitifs que l'utilisation de calculs assemblages permet d'éviter. La *DataBank* ThPu contient 930 vecteurs isotopiques de plutonium.

A partir des résultats de ces calculs assemblage, les données nécessaires aux deux modèles qui sont au cœur du code CLASS peuvent être obtenues. Ainsi le modèle d'équivalence utilise les proportions de matière fissile dans les différents combustibles de la *DataBank* qui atteignent tous, de par la méthode de génération, 50 GWj/t. Et le modèle d'irradiation utilise les évolutions des sections efficaces et des compositions

7.3. CONSTRUIRE UN COMBUSTIBLE : LE MODÈLE D'ÉQUIVALENCE

obtenues lors de la simulation de ces combustibles de la *DataBank*.

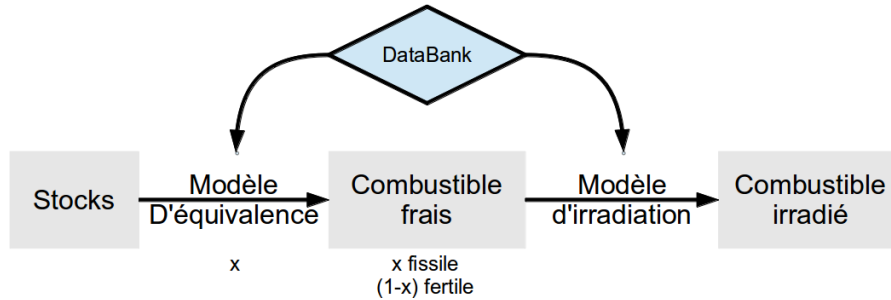


FIGURE 7.5 – Schéma de principe du cœur de CLASS et apport de la *DataBank* pour construire un combustible et calculer son évolution

7.3 Construire un combustible : le Modèle d'équivalence

Comme mentionné dans le paragraphe décrivant le fonctionnement de l'usine de fabrication du combustible, la proportion des différents éléments au sein d'un combustible neuf doit être définie. Nous décrivons ici les différentes méthodes développées pour créer ce modèle d'équivalence.

Un modèle d'équivalence a pour fonction de prédire la proportion entre l'élément fertile, thorium ou uranium appauvri, et l'élément fissile, plutonium ou uranium (principalement constitué d' ^{233}U dans les cas étudiés), au sein du combustible neuf. La proportion de l'élément fissile doit être telle qu'elle permet de tenir l'irradiation jusqu'au burn-up voulu. Le burn-up atteignable est conditionné par la valeur de certains paramètres en fin d'irradiation. Pour un REP, il s'agit principalement de la criticité en fin de cycle, mais la tenue des gaines et des structures du réacteur sont aussi des paramètres importants.

7.3.1 Méthode utilisant les sections efficaces : fissile équivalents

Il a tout d'abord été envisagé d'évaluer la proportion d'élément fissile à partir de la compréhension de la physique mise en jeu à travers un modèle physique simplifié. Le principal critère pour la détermination du burn-up atteignable par un combustible dans un REP est le suivi de sa criticité. La méthode physique la plus connue pour

7.3. CONSTRUIRE UN COMBUSTIBLE : LE MODÈLE D'ÉQUIVALENCE

estimer ces paramètres se base sur l'étude de cette criticité. L'étude est faite en début de cycle pour éviter d'avoir à simuler l'évolution du combustible et des sections efficaces. Cette criticité début de cycle ne dépend que des sections efficaces des actinides présents à ce moment, qui sont en nombre limités, et a donc une formulation suffisamment simple pour servir de base à un modèle d'équivalence.

A partir de quelques simulations, on commence donc par déterminer la proportion de plutonium nécessaire dans le cas d'un plutonium entièrement constitué de ^{239}Pu et le coefficient de multiplication des neutrons début de cycle qui y correspond dans nos simulations. Cette proportion servira de référence pour l'évaluation de la proportion de plutonium nécessaire au début de cycle. Nos simulations donnent qu'une valeur de 4.8% de ^{239}Pu pur permet d'atteindre un burn-up de 50 GWj/t.

Ensuite, à partir des différences entre les sections efficaces des autres isotopes du plutonium et celles du ^{239}Pu , on calcule la modification de réactivité qu'entraîne un remplacement d'une partie de ce ^{239}Pu par un autre isotope du plutonium [49]. Ces coefficients de variation de réactivité sont donnés par la formule :

$$\omega^{j/239\text{Pu}} = \frac{\bar{\nu}_j \sigma_j^f - \sigma_j^a}{\bar{\nu}_9 \sigma_9^f - \sigma_9^a} \quad (7.1)$$

où :

- $\bar{\nu}_j$ est le nombre moyen de neutrons (prompts et retardés) émis lors d'une fission de l'isotope j ;
- σ_j^f est la section efficace de fission de l'isotope j moyennée sur le spectre du réacteur considéré ;
- σ_j^a est la section efficace d'absorption totale de l'isotope j moyennée sur le spectre du réacteur considéré.

Dans le cas d'un REP utilisant des combustibles mixant du thorium et du plutonium tels que ceux présentés précédemment, ces coefficients prennent les valeurs présentées dans le tableau 7.2. Le coefficient associé au ^{239}Pu est par définition égal à 1. Les isotopes du plutonium ayant moins tendance à fissionner que le ^{239}Pu , comme le ^{238}Pu , le ^{240}Pu ou le ^{242}Pu ont logiquement des coefficients inférieurs à 1. Les coefficients associés à ces isotopes sont même négatifs. Cela provient du fait que le facteur η de ces isotopes est inférieur à 1. Un combustible entièrement constitué de l'un de ces isotopes aurait donc $k_\infty < 1$, ils ont tous une contribution négative à la criticité début de cycle. Le ^{241}Pu a un coefficient supérieur à 1 qui illustre le fait que remplacer du ^{239}Pu par du ^{241}Pu conduit à une augmentation de la criticité.

7.3. CONSTRUIRE UN COMBUSTIBLE : LE MODÈLE D'ÉQUIVALENCE

Isotope	Equivalent ^{239}Pu
^{238}Pu	-0.177
^{239}Pu	1
^{240}Pu	-0.711
^{241}Pu	1.484
^{242}Pu	-0.149

TABLE 7.2 – Coefficients d'équivalence entre les isotopes du Pu pour la *DataBank* ThPu

Un ensemble statistiquement représentatif de 930 vecteurs Pu a été constitué. Ce modèle a été utilisé pour calculer la quantité de plutonium nécessaire pour que des combustibles créés avec ces vecteurs isotopiques très différents puissent atteindre le burn-up de 50 GWj/t. Si le vecteur isotopique considéré contient peu de ^{239}Pu (de l'ordre de 15%) et ce même s'il y a une bonne proportion de ^{241}Pu (de l'ordre de 30%), ce modèle prédit un besoin de plus de 100% de plutonium dans le combustible. Dans ce cas, le modèle est trivialement non applicable. Cela vient du fait que le facteur η de tels vecteurs isotopiques est inférieur à 1 quand il est calculé avec les sections efficaces utilisées par ce modèle, on a alors $k_\infty < 1$ quelle que soit la proportion de plutonium au sein du combustible.

Le tableau 7.3 présente quatre vecteurs isotopiques différents pour lesquels cette méthode prédit le besoin d'une même proportion de plutonium dans le combustible (18% pour atteindre un burn-up de 50 GWj/t). L'évolution de ces combustibles a été simulée par le biais de calculs assemblages réalisés avec MURE et le burn-up atteignable a été calculé par la méthode décrite dans la partie sur le calcul assemblage. On remarque que les burn-up obtenus pour ces combustibles sont très différents et très éloignés du burn-up cible pour lequel la méthode de calcul de proportion de plutonium avait été calculée. Avec des burn-up atteignables allant de deux fois le burn-up cible à la moitié de celui-ci, les résultats de cette méthode basée sur les sections efficaces ne sont pas satisfaisants.

7.3. CONSTRUIRE UN COMBUSTIBLE : LE MODÈLE D'ÉQUIVALENCE

^{238}Pu	5%	15%	10%	15%	0%
^{239}Pu	35%	35%	35%	35%	35%
^{240}Pu	5%	15%	35%	15%	20%
^{241}Pu	25%	15%	10%	5%	5%
^{242}Pu	30%	20%	10%	30%	40%
^{239}Pu équivalent	0,27	0,27	0,27	0,27	0,27
Proportion de Pu calculé par la méthode des sections efficaces	0,18	0,18	0,18	0,18	0,18
Burn-up calculé par MURE (GWj/t)	92,8	69,2	42,9	29,8	27,2

TABLE 7.3 – Illustration de la limite de la méthode des sections efficaces. 5 vecteurs plutonium différents aboutissent à la même concentration pour atteindre 50GWj/t alors que le burn-up réel, calculé par MURE, est très différent

La méthode des sections efficaces, se concentrant uniquement sur la modification de la criticité début de cycle ne donne donc pas des résultats satisfaisants. Pour améliorer cette méthode, il faudrait prendre en compte les modifications de spectre et de taux de réaction. En effet, en modifiant la proportion de l'élément fissile dans le combustible, le spectre de neutrons dans le réacteur est modifié. Cela conduit à une évolution différente de la composition isotopique de ce combustible au cours de l'irradiation, et donc à des valeurs différentes des paramètres d'intérêt. Cette modification de l'évolution n'est pas prise en compte par la méthode des sections efficaces. De plus, comme le spectre de neutrons dans un réacteur est le résultat d'un équilibre global entre l'influence de tous les isotopes, tous ces paramètres sont fortement corrélés entre eux. Il n'existe ainsi pas de solution analytique au problème du calcul de la proportion de l'élément fissile dans un combustible neuf.

7.3.2 Principes généraux sur les modèles d'équivalence numériques

Le calcul de la proportion de fissile dans un combustible de REP étant trop complexe pour être effectué par la méthode des sections efficaces présentée ci-dessus, il a été décidé d'utiliser des méthodes numériques pour minimiser l'écart entre la proportion prédite par le modèle d'équivalence et la proportion réellement nécessaire pour atteindre le burn-up voulu. On cherche donc des paramètres numériques per-

7.3. CONSTRUIRE UN COMBUSTIBLE : LE MODÈLE D'ÉQUIVALENCE

mettant de prédire la proportion d'élément fissile à mettre dans un combustible pour atteindre un burn-up cible. Pour cela, on a conçu la formule suivante qui exprime le burn-up réel en fonction de la composition du combustible pour un combustible au plutonium :

$$BU = \alpha_0 N_{fertile} + \sum_{i \in [1;5]} (\alpha_i N_{237+iPu}) + \alpha_6 \quad (7.2)$$

où

- BU est le burn-up cible,
- les α_i sont les paramètres numériques ajustés lors de la construction du modèle,
- $N_{237+iPu}$ est le nombre de noyaux de l'isotope du plutonium ayant $237 + i$ nucléons.

Pour avoir un modèle d'équivalence fonctionnel il suffit alors de trouver les valeurs des paramètres α_i tels que le burn-up prédit par la formule (7.2) soit le plus proche possible du burn-up réellement atteignable.

Cette formule générique se base sur le nombre de noyaux dans un assemblage ou un réacteur, mais elle permet après de rapides transformations présentées dans les équations suivantes d'avoir accès à la proportion massique de plutonium parmi les noyaux lourds. On a en effet :

$$BU = \alpha_0 \frac{M_{fertile} \mathcal{N}_a}{m_{fertile}} + M_{Pu} \mathcal{N}_a \sum_{i \in [1;5]} \left(\frac{\alpha_i}{m_{(237+i)Pu}} \%_{(237+i)Pu} \right) + \alpha_6 \quad (7.3)$$

où

- $M_{fertile}$ est la masse totale de l'élément fertile dans le combustible, uranium appauvri ou thorium,
- M_{Pu} est la masse totale de plutonium dans le combustible,
- m_X est la masse molaire de l'isotope X.

On définit p comme étant la proportion massique de plutonium dans le combustible. En insérant ce paramètre dans la formule (7.3), on aboutit à son expression en fonction des paramètres du modèle :

$$p = \frac{BU - \alpha_6 - \alpha_0 \frac{M_{TOT} \mathcal{N}_a}{m_{fertile}}}{\mathcal{N}_a M_{TOT} \sum_{i \in [1;5]} \left(\frac{\alpha_i}{m_{(237+i)Pu}} \%_{(237+i)Pu} - \frac{\alpha_0}{m_{fertile}} \right)} \quad (7.4)$$

où :

7.3. CONSTRUIRE UN COMBUSTIBLE : LE MODÈLE D'ÉQUIVALENCE

- $\%_{iPu}$ est la proportion massique de l'isotope i dans l'élément Pu disponible,
- m_X est la masse molaire de l'isotope X ,
- M_{TOT} est la masse d'éléments lourds dans le combustible,
- BU le burn-up cible,
- p la proportion massique de plutonium dans le combustible.

Cette formule permet de calculer la proportion de plutonium dans un combustible neuf à partir du vecteur isotopique disponible.

Si tout le plutonium utilisé pour fabriquer le combustible provient du même stock avec un vecteur isotopique donné, cette formule peut être directement utilisée pour déterminer la quantité de plutonium qu'il faut extraire de ce stock pour construire le combustible. Cependant si la quantité de plutonium au sein d'un stock est insuffisante pour fabriquer entièrement le combustible, il faut alors prendre du plutonium dans plusieurs stocks différents ce qui complexifie le processus de calcul. Par exemple si la masse de plutonium calculée avec la formule (7.4) est supérieure à la masse de plutonium dans le stock 1, il faut compléter cette quantité avec du plutonium issu du stock 2. La proportion du plutonium du stock 2 utilisée étant déterminée en faisant en sorte que, dans la formule (7.5), BU prennent la valeur voulue. La valeur de r qui permet cette concordance est la proportion du plutonium contenu dans le stock 2 qu'il faut utiliser pour fabriquer le combustible, en plus de la totalité du plutonium contenu dans le stock 1. Le paramètre r se calcul alors à partir de :

$$\begin{aligned}
 BU = & \alpha_0 \frac{M_{fertile} \mathcal{N}_a}{m_{fertile}} + M_{Pu}^{stock1} \mathcal{N}_a \sum_{i \in [1;5]} \left(\frac{\alpha_i}{m_{(237+i)Pu}} \%_{0(237+i)Pu}^{stock1} \right) \\
 & + r \times M_{Pu}^{stock2} \mathcal{N}_a \sum_{i \in [1;5]} \left(\frac{\alpha_i}{m_{(237+i)Pu}} \%_{0(237+i)Pu}^{stock2} \right) + \alpha_6
 \end{aligned} \tag{7.5}$$

Enfin si le second stock n'est pas suffisant pour atteindre le burn-up cible, on réitère le calcul avec un troisième stock et ainsi de suite.

Ces formules sont présentées pour un combustible formé d'un mélange d'élément fertile et de plutonium, la création de combustible mélangeant thorium et uranium peut se faire de façon extrêmement similaire. Il suffit de remplacer à chaque fois les isotopes de plutonium dont le nombre de nucléons va de 238 à 242 par ceux de l'uranium avec un nombre de nucléons allant de 232 à 236.

L'ensemble statistiquement représentatif de 930 vecteurs Pu, mentionné dans le paragraphe précédent, a été utilisé comme base d'extrapolation et de test pour

7.3. CONSTRUIRE UN COMBUSTIBLE : LE MODÈLE D'ÉQUIVALENCE

les méthodes numériques. Pour chacun de ces 930 vecteurs, des simulations ont été effectuées afin de déterminer avec précision la proportion de fissile nécessaire pour atteindre un burn-up, toujours fixé dans notre cas à $50GWj/t_{NL}$. À partir de ces vecteurs isotopiques et des quantités de plutonium associées, on calcule un fit linéaire du burn-up sous la forme donnée par la formule (7.2). Les coefficients retenus étant ceux qui minimisent l'écart entre ces burn-up calculés et le burn-up réellement atteint.

Pour cela on reformule le problème global sous la forme d'un seul produit de matrice à minimiser (équation (7.6)) qui peut être réduit sous la forme $AB = 0$, où A est la matrice de données issues des vecteurs isotopiques considérés et B le vecteur contenant les α_i :

$$\begin{bmatrix} N_{fertile}^0 & N_{238Pu}^0 & N_{239Pu}^0 & N_{240Pu}^0 & N_{241Pu}^0 & N_{242Pu}^0 & 1 & BU^0 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ N_{fertile}^n & N_{238Pu}^n & N_{239Pu}^n & N_{240Pu}^n & N_{241Pu}^n & N_{242Pu}^n & 1 & BU^n \end{bmatrix} \times \begin{bmatrix} \alpha_0 \\ \alpha_1 \\ \alpha_2 \\ \alpha_3 \\ \alpha_4 \\ \alpha_5 \\ \alpha_6 \\ -1 \end{bmatrix} = [0] \quad (7.6)$$

En appelant f l'application linéaire associé à la matrice A , ce problème revient à chercher le minimum de cette fonction en faisant varier B , et ainsi trouver les α_i optimaux qui seront utilisé par la suite dans la formule (7.2).

7.3.3 Modèle d'équivalence numérique par méthode linéaires directes

Trouver le minimum d'une fonction consiste à trouver les points où la dérivée de cette fonction s'annule. Pour cela on résout l'équation :

$$\frac{df}{dB} = 0 \quad (7.7)$$

Cette équation est un système de sept équations linéaires indépendantes avec sept inconnues et l'existence d'une solution est acquise. Cependant le calcul de cette dérivée peut présenter certaines difficultés.

7.3. CONSTRUIRE UN COMBUSTIBLE : LE MODÈLE D'ÉQUIVALENCE

Si on ne prend pas en compte les corrélations entre les α_i on obtient :

$$\frac{df}{dB} = \frac{\partial N_{fertile}}{\partial \alpha_0} + \sum_{i \in [1;5]} \frac{\partial N_{237+i Pu}}{\partial \alpha_i} \quad (7.8)$$

En annulant séparément chaque dérivée partielle, on obtient 6 équations indépendantes que l'on peut résoudre de manière exacte simplement et rapidement. Le septième paramètre α_6 peut alors être déterminé en extrapolant à partir de la réduction du burn-up atteignable par un combustible lorsqu'on y diminue la proportion d'élément fissile, le burn-up que pourrait virtuellement atteindre un combustible entièrement composé de fertile. Ce burn-up virtuel est négatif puisqu'il faut une quantité strictement positive d'élément fissile pour obtenir un combustible critique en REP.

Cependant des corrélations entre ces paramètres existent puisque la proportion d'un isotope impacte le poids en réactivité et le comportement en irradiation des autres isotopes. Prendre en compte ces corrélations revient à ajouter un terme à l'équation (7.8) qui devient :

$$\frac{df}{dB} = \sum_{i \in [0;6]} \left(\frac{\partial N_{fertile}}{\partial \alpha_i} + \sum_{j \in [1;5]} \frac{\partial N_{237+j Pu}}{\partial \alpha_i} \right) \quad (7.9)$$

Ces dérivées croisées $\frac{\partial N_{237+j Pu}}{\partial \alpha_i}$ avec $i \neq j$ peuvent être regroupées dans une matrice de covariance. Pour calculer ces matrices de covariances à partir de l'échantillon utilisé comme base de l'optimisation numérique on doit utiliser des méthodes spécifiques comme la méthode PLS [50]. Cette méthode itérative fait converger la matrice de corrélation ainsi que les directions principales de dérivation qui sont choisies de manière à être celles le long desquelles la variance est la plus grande (comme le fait la méthode par composante principale). À chaque itération, cette méthode permet d'obtenir un unique jeu d' α_i qui correspond au minimum exact dans le cas où la matrice de corrélation serait celle utilisée par l'algorithme à ce pas itératif. Cette matrice de corrélation étant une approximation de la véritable matrice de covariance, il s'agit néanmoins d'une approximation du jeu d' α_i optimal.

Puisque les α_i optimaux ne peuvent être obtenus de manière exacte, des méthodes numériques itératives beaucoup plus robustes et mieux adaptées à un grand nombre de vecteurs plutonium peuvent être utilisées.

7.3.4 Modèle d'équivalence numérique par méthode itérative

Parmi les méthodes numériques itératives, nous nous sommes concentrés dans ce cadre sur des méthodes de suivi de gradient. Ces méthodes consistent à parcourir l'espace des paramètres α_i possibles en suivant le gradient négatif. En effet, tant que le gradient est négatif, on se rapproche d'un minimum. Des méthodes correctives sont mises en place afin d'éviter les minima locaux et d'être certain d'atteindre le minimum global. Dans les outils fournis avec CLASS pour calculer les paramètres α_i associés à un type de combustible, c'est la méthode Migrad, variation stable de l'algorithme de Davidon-Fletcher-Powell [51] qui a été implémentée.

Cette méthode a été appliquée à la *DataBank* ThU dont la construction est présentée en début de chapitre, les coefficients obtenus sont présentés dans le tableau 7.4 et peuvent donc être utilisés pour utiliser la formule (7.2) afin de prévoir la quantité d'uranium à mettre dans un combustible ThU.

Paramètre	Grandeur associée	Valeur
α_0	^{232}Th	-13.484
α_1	^{232}U	0
α_2	^{233}U	2020.02
α_3	^{234}U	-135.236
α_4	^{235}U	1524.81
α_5	^{236}U	-376.228
α_6	Burn-up	-9.55266

TABLE 7.4 – Coefficients du modèle d'équivalence obtenus avec la méthode numérique itérative choisie pour la *DataBank* ThU.

Les coefficients obtenus en appliquant la méthode à la *DataBank* ThPu sont présentés dans le tableau 7.5. Ils peuvent donc être utilisés pour utiliser la formule (7.2) afin de prévoir la quantité de plutonium à mettre dans un combustible ThPu

7.3. CONSTRUIRE UN COMBUSTIBLE : LE MODÈLE D'ÉQUIVALENCE

Paramètre	Grandeur associée	Valeur
α_0	^{232}Th	-11.0425
α_1	^{238}Pu	-143.444
α_2	^{239}Pu	1287.59
α_3	^{240}Pu	-569.568
α_4	^{241}Pu	1622.98
α_5	^{242}Pu	-364.488
α_6	Burn-up	-5.31571

TABLE 7.5 – Coefficients du modèle d'équivalence obtenus avec la méthode numérique itérative choisie pour la *DataBank* ThPu.

7.3.5 Comparaison des Méthodes

Le tableau 7.6 montre les proportions de plutonium dans le combustible obtenues avec la méthode numérique choisie pour les mêmes vecteurs isotopiques que ceux présentés dans la table 7.3. On remarque que la méthode numérique va dans le sens d'une amélioration de la prévision de la proportion de plutonium. En effet, les vecteurs isotopiques à la gauche du tableau, qui atteignaient des burn-up trop élevés avec la proportion donnée par la méthode basée sur les sections efficaces, voient leur proportion en plutonium diminuer. De même la méthode numérique prédit des proportions plus importantes pour les vecteurs à droite du tableau, qui avaient des burn-up bien trop faibles. Grâce à cela on obtient des burn-up réels bien plus centrés avec la méthode numérique, passant d'un écart supérieur à 100% par rapport à la moyenne, à des valeurs ne s'éloignant pas plus de 15% de cette valeur moyenne. Par contre on remarque que la moyenne des burn-up atteints sur ces vecteurs particuliers est de 40 GWj/t au lieu des 50 GWj/t attendus. Cette méthode est donc plus efficace mais ne permet toujours pas une prévision précise de la proportion de plutonium nécessaire pour atteindre un burn-up donné.

7.3. CONSTRUIRE UN COMBUSTIBLE : LE MODÈLE D'ÉQUIVALENCE

Pu238	5%	15%	10%	15%	0%
Pu239	35%	35%	35%	35%	35%
Pu240	5%	15%	35%	15%	20%
Pu241	25%	15%	10%	5%	5%
Pu242	30%	20%	10%	30%	40%
Méthode des sections efficaces	0,18	0,18	0,18	0,18	0,18
Méthode Numérique	0,09	0,13	0,17	0,2	0,23
Burn-up calculé par MURE (GWj/t)	39.5	39.2	34.0	41.6	45.5

TABLE 7.6 – Équivalence par la méthode numérique itérative pour les vecteurs équivalents par la méthode des sections efficaces

La figure 7.6 présente les proportions de plutonium prédites par le modèle utilisant les sections efficaces et la méthode numérique itérative. Pour l'élaboration de cette courbe, une précision de 1% sur les proportions calculées a été utilisée. Les 930 vecteurs isotopiques utilisés comme échantillons pour les méthodes numériques ont été utilisés pour cette comparaison. Grâce à ce nombre important de vecteurs différents, l'erreur statistique sur les valeurs présentées dans cette courbe est inférieure à 3% d'erreur relative.

Les concentrations de plutonium au sein des combustibles obtenues pour tous ces vecteurs sont réparties sur une assez grande gamme de valeur. Ceci est parfaitement compréhensible. En effet, pour atteindre un même taux de combustion, il faut de façon évidente une proportion plus grande de plutonium lorsque son vecteur isotopique contient 40% de ^{242}Pu et 60% de ^{239}Pu que lorsqu'il ne contient que du ^{239}Pu . En revanche, les pics qui se dessinent dans la courbe de la méthode utilisant les sections efficaces ne semblent refléter aucune réalité physique. En effet, tous les mécanismes d'influence des isotopes de plutonium sur le spectre neutronique du réacteur sont continus et il n'y a donc aucune raison que les 930 vecteurs, qui ont été choisis homogènement sur l'espace de paramètres considérés, fassent apparaître des irrégularités aussi fortes. Des effets, comme le grand nombre de vecteurs conduisant à une proportion de 18% ou 23% de plutonium dans le combustible mais seulement un conduisant à 20%, semblent plutôt des artefacts créés par les approximations de la méthode.

La méthode numérique n'est donc pas parfaite, mais elle est bien meilleure que

7.4. FAIRE ÉVOLUER UN COMBUSTIBLE : LE MODÈLE D'IRRADIATION

la méthode basée sur les sections efficaces et c'est donc elle qui a été implémentée pour l'instant dans le code CLASS. D'autres pistes sont actuellement à l'étude au sein du laboratoire de Subatech, comme l'utilisation de réseaux de neurones.

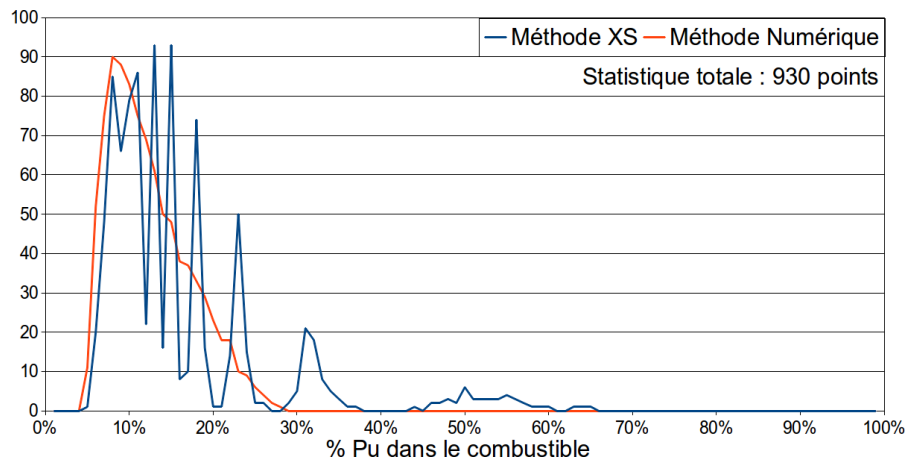


FIGURE 7.6 – Comparaison des Modèle d'équivalence : proportion de plutonium dans le combustible pour atteindre 50GWj/t

7.4 Faire évoluer un combustible : le modèle d'irradiation

7.4.1 Principe du modèle d'irradiation : faire évoluer la composition isotopique sous irradiation

L'évolution de la matière lors de l'irradiation est simulée grâce à un modèle spécifique appelé le modèle d'irradiation. Il permet de prédire la composition du combustible qui sort d'un réacteur en fonction de la composition qu'il avait en entrant et du burn-up auquel il a été irradié.

Dans CLASS, l'évolution de la matière au cours de l'irradiation est calculée à partir de bases de données nommées *EvolutionData*. Ces *EvolutionData* regroupent l'ensemble des informations nécessaires au calcul de la composition isotopique de la matière en sortie d'un réacteur à partir de celle en entrée. Elles ont une structure explicite qui est écrite en clair dans un fichier en suivant le modèle présenté dans la figure 7.7. Le premier mot de chaque ligne décrit le type d'information qui se trouve dans le reste de la ligne. La ligne *time* donne des pas de temps allant de

7.4. FAIRE ÉVOLUER UN COMBUSTIBLE : LE MODÈLE D'IRRADIATION

l'entrée de la matière dans l'installation jusqu'à sa sortie. Les lignes *Inv* donnent les quantités de matière à chacun de ces temps. Une ligne *Inv* est présente pour chaque isotope pris en compte. Les lignes *XSFis*, *XSCap* et *XSn2n* donnent les valeurs des sections efficaces à un groupe dans l'installation considérée pour les réactions de fission, capture radiative et $(n, 2n)$. Pour chacun de ces trois types de lignes, on a aussi une ligne par isotope pris en compte.

$$\begin{bmatrix} time & & & & t_1 & \dots & t_N \\ Inv & Z^1 & A^1 & I^1 & n_1^1 & \dots & n_N^1 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ Inv & Z^k & A^k & I^k & n_1^k & \dots & n_N^k \\ XSFis & Z^1 & A^1 & I^1 & XSFis_1^1 & \dots & XSFis_N^1 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ XSFis & Z^k & A^k & I^k & XSFis_1^k & \dots & XSFis_N^k \\ XSCap & Z^1 & A^1 & I^1 & XSCap_1^1 & \dots & XSCap_N^1 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ XSCap & Z^k & A^k & I^k & XSCap_1^k & \dots & XSCap_N^k \\ XSn2n & Z^1 & A^1 & I^1 & XSn2n_1^1 & \dots & XSn2n_N^1 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ XSn2n & Z^k & A^k & I^k & XSn2n_1^k & \dots & XSn2n_N^k \end{bmatrix}$$

FIGURE 7.7 – Structure interne d'une *EvolutionData*.

Chaque évolution de la *DataBank* est donc liée à une *EvolutionData*. Celles-ci sont réparties entre deux types : les fixes et les dynamiques. Chacun de ces types correspond à un type particulier de rechargement et de réacteur.

7.4.2 EvolutionData fixes

Les *EvolutionData* fixes sont utilisées quand le déroulement des processus d'évolution mis en jeu dans un réacteur sont identiques à chaque irradiation. C'est le cas des réacteurs dans lequel il n'y a pas de recyclage, comme les réacteurs utilisant de l'uranium naturel ou de l'uranium enrichi à partir de l'uranium naturel, l'enrichissement de ces derniers étant fixé par le taux de combustion souhaité. Cet enrichissement est donc fixe puisque le taux de combustion ne peut changer durant la vie d'un réacteur dans CLASS. Ces *EvolutionData* sont aussi adaptées à la simulation de couvertures fertiles dont la composition initiale est toujours la même,

7.4. FAIRE ÉVOLUER UN COMBUSTIBLE : LE MODÈLE D'IRRADIATION

souvent de l'uranium appauvri ou du thorium.

Dans une *EvolutionData* fixe, seuls sont utilisés le temps et la composition isotopique à chaque pas en temps, qui est renseignée dans les lignes commençant par le mot clef *Inv*. Les autres lignes ne sont pas utilisées. A chaque mise à jour de la composition à l'intérieur du réacteur, une interpolation linéaire est faite entre les deux pas en temps de l'*EvolutionData* qui encadrent le temps auquel la mise à jour doit être faite. Le résultat de cette interpolation est directement utilisé comme étant la composition au sein du réacteur.

Des faibles variations de puissance d'un réacteur peuvent conduire notamment à le faire fonctionner en moyenne un peu en dessous de sa puissance nominale et ainsi à baisser son facteur de charge. Pour prendre cela en compte sans avoir à créer une *EvolutionData* différente pour chaque part de la puissance nominale utilisée, l'évolution est faite par suivi du burn-up du combustible et non pas par suivi du temps d'irradiation. Néanmoins, cette astuce qui permet d'éviter un trop grand besoin d'*EvolutionData* différentes n'amène des imprécisions que sur des observables qui ne sont pas nos observables d'intérêt.

7.4.3 EvolutionData dynamiques

Les *EvolutionData* dynamiques sont utilisées dans les autres cas, c'est à dire dans les cas où l'entrée d'une installation varie et où le déroulement des processus d'évolution dépend de la composition isotopique de l'entrée. Tous les réacteurs utilisant des combustibles issus du recyclage sont concernés.

Pour les *EvolutionData* dynamiques, ce n'est non pas une seule *EvolutionData* mais un ensemble d'*EvolutionData*, nommé *DataBank*, qui est lié à un réacteur. Lors de chaque chargement de combustible au sein du réacteur, l'une des *EvolutionData* de cette *DataBank* est choisie et est associée au réacteur pour la durée de l'irradiation. Cette *EvolutionData* choisie est donc différente lors de chaque chargement en combustible du réacteur. Elle a pour rôle de fournir des sections efficaces variant au cours de l'irradiation à un module numérique. La méthode de choix utilisée, décrite dans le chapitre 7.4.4 fait en sorte que les sections efficaces ainsi sélectionnées soient le plus proche possible des sections efficaces réelles. Le module numérique résout ensuite les équations de Bateman pour les différents isotopes suivis grâce à la méthode de Runge-Kutta à l'ordre 4. Cette résolution fournit la composition isotopique du combustible à l'intérieur du réacteur à chaque instant.

7.4. FAIRE ÉVOLUER UN COMBUSTIBLE : LE MODÈLE D'IRRADIATION

Les réacteurs sont simulés à puissance constante. Le flux de neutrons au sein du réacteur est calculé à chaque pas de temps à partir de l'inventaire en cœur et des sections efficaces de fission. Cette mise à jour du flux a ainsi lieu plus fréquemment que la mise à jours de section efficaces.

Lorsqu'on utilise une *EvolutionData* dynamique pour prédire la composition de sortie d'une installation nucléaire, il faut donc construire une *EvolutionData* à partir de celles contenues dans la *DataBank* associée à l'installation. Rappelons qu'une *DataBank* est un ensemble d'*EvolutionData* calculés à l'avance, par un mécanisme explicité dans le chapitre suivant, sensé recouvrir le champs des possibles pour ce type d'installation.

Une *EvolutionData* est composée d'un grand nombre de variables inter-corrélées que sont les sections efficaces. Plutôt que de mettre en place des méthodes d'interpolations qui seraient rendues très coûteuses en temps de calcul et auraient des difficultés à rendre leurs corrélations, il a été choisi de construire l'*EvolutionData* dynamique en copiant, sans les modifier, les section efficaces de l'*EvolutionData* de la *DataBank* ayant la composition initiale la plus proche de celle d'entrée de l'installation pour laquelle on crée l'*EvolutionData* dynamique.

7.4.4 Proximité d'une *EvolutionData* à un vecteur isotopique

L'*EvolutionData* choisie comme étant la plus proche va uniquement fournir des sections efficaces qui sont utilisées pour faire évoluer la composition du combustible. Le véritable but est donc de choisir une *EvolutionData* avec les sections efficaces moyennes les plus proches possible de celles qui seraient obtenues en faisant un calcul précis à partir de la composition d'entrée de l'installation.

Pour évaluer la distance entre la composition initiale d'une *EvolutionData* de la *DataBank* et la composition d'entrée de l'installation, il faut définir une distance. La première distance implémentée dans CLASS est la distance entre deux compositions isotopiques telle que présentée dans l'équation (7.10). Il s'agit simplement de calculer la distance classique entre les deux vecteurs isotopiques considérés.

$$D_{i,j} = \sqrt{\sum_{k \in \text{actinides}} (N_k^i - N_k^j)^2} \quad (7.10)$$

Au sein de notre travail une étude spécifique a été faite autour de la définition de cette norme pour développer des distances plus adaptées afin de quantifier la

7.4. FAIRE ÉVOLUER UN COMBUSTIBLE : LE MODÈLE D'IRRADIATION

proximité d'une *EvolutionData* à un vecteur isotopique.

Tous les isotopes n'influent pas de la même façon sur les sections efficaces moyennes des autres isotopes qui sont stockées dans les *EvolutionData* et utilisées lors du calcul de la composition de sortie de l'installation. Les quantités d'isotopes, comme le ^{240}Pu ou le ^{242}Pu , dont les sections efficaces ont de fortes résonances aux environs de la bosse thermique du spectre neutroniques vont immanquablement donner plus d'information sur la proximité globale des sections efficaces que celles d'isotopes avec des sections efficaces faibles et assez plates, comme l' ^{238}U . Afin de refléter ces différences d'influence, une distance qui ajoute des poids associés à chaque isotope a été développée. Elle est définie dans l'équation (7.11). Plus l'isotope a une influence sur le spectre neutronique, et donc sur les sections efficaces, plus le coefficient λ qui lui est associé doit être grand.

$$D_{i,j} = \sqrt{\sum_{k \in \text{actinides}} \lambda_k (N_k^i - N_k^j)^2} \quad (7.11)$$

L'influence de la quantité d'un isotope sur l'ensemble des sections efficaces n'est pas quelque chose d'évident à quantifier. De plus, il existe évidemment des corrélations entre les influences de différents isotopes. Ainsi, une grande quantité de ^{242}Pu , en diminuant significativement le nombre de neutrons à moins de 2.7 eV, réduit l'influence de la quantité de ^{240}Pu , dont la principale résonance est à 1.1 eV. Pour obtenir ces coefficients, nous avons donc utilisé une méthode numérique semblable à celle choisie pour le modèle d'équivalence. Cependant, le nombre de variables de sortie était trop grand, il a donc fallu faire un choix. Afin d'évaluer l'influence du choix de ces variables de sortie, l'optimisation a été faite avec les sections efficaces du ^{239}Pu et celle du ^{242}Pu .

Le résultat de ces optimisations est présenté dans la figure 7.8. Les coefficients calculés afin d'optimiser la prédiction des sections efficaces du ^{239}Pu ou du ^{242}Pu suivent des tendances communes, comme des coefficients élevés pour les ^{240}Pu et le ^{241}Pu , ainsi que des coefficients faibles pour le ^{242}Pu et le ^{238}Pu . Cependant, on remarque qu'il y a aussi une variabilité non négligeable, due au choix arbitraire des sections efficaces sur lesquelles sont faites les optimisations. En regardant les coefficients de la dernière série, on remarque qu'ils se situent autour des mêmes valeurs que ceux des séries optimisées en regardant les sections efficaces des isotopes du plutonium. Or, cette dernière série de coefficients est juste une renormalisation des sections efficaces totales d'absorption au début de l'irradiation de chaque isotope

7.4. FAIRE ÉVOLUER UN COMBUSTIBLE : LE MODÈLE D'IRRADIATION

moyennées sur l'ensemble des *EvolutionData* de la *DataBank*. L'influence d'un isotope sur le spectre est donc quasiment proportionnelle à sa probabilité d'interagir avec les neutrons.

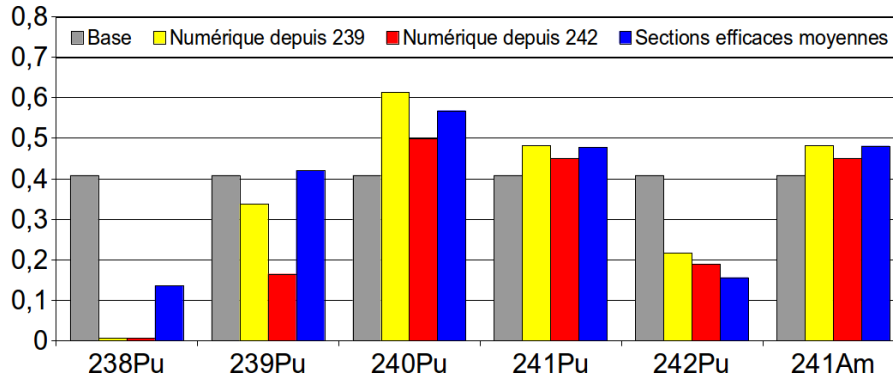


FIGURE 7.8 – Comparaison entre les coefficients de distance et les sections efficaces normalisées.

Pour la suite, plutôt que d'utiliser des coefficients dépendants d'un choix arbitraire de variables de sortie optimisées, il a été choisi d'utiliser les sections efficaces moyennes comme poids de distance pour tester si cette modification de la distance avait un effet significatif sur la qualité du choix de l'*EvolutionData* dont on prend les sections efficaces.

Pour tester l'influence de l'usage ou non de ces coefficients d'ajustement lors du choix de l'*EvolutionData* sur laquelle baser l'*EvolutionData* dynamique, on extrait tour à tour chaque *EvolutionData* de la *DataBank*. Ensuite on calcule l'évolution en réacteur d'un combustible ayant exactement comme composition en début d'irradiation celle inscrite dans l'*EvolutionData* extraite. Pour calculer cette évolution, on utilise la *DataBank* de laquelle on a retiré spécifiquement cette *EvolutionData*. Ensuite on calcule la distance entre la composition recalculée et la composition stockée dans l'*EvolutionData*.

Le type de distance défini pour choisir les *EvolutionData* et pour comparer l'écart entre les compositions est la même, soit la distance standard pour les deux, soit la distance basée sur les sections efficaces pour les deux. Le tableau 7.7 présente la valeur de la moyenne des distances relatives entre la composition des *EvolutionData* et celle calculée à partir des sections efficaces extraite de leur plus proche voisine. Ainsi on observe que la distance en début d'irradiation est de l'ordre de 0.1% pour les deux types de distance et que celle en fin d'irradiation s'élève à plus de 9% pour

7.4. FAIRE ÉVOLUER UN COMBUSTIBLE : LE MODÈLE D'IRRADIATION

les deux types de distance.

Le fait que les distances en fin d'irradiation soient identiques avec les deux types de distance est surprenant. En effet, on s'attendrait à ce que l'utilisation d'une distance prenant en compte la spécificité des différents isotopes vis à vis de leur influence sur le spectre neutronique permette d'obtenir des sections efficaces ; et donc une évolution du combustible, plus représentatives.

	Début d'irradiation	Fin d'irradiation
Distance standard	$1.3 \cdot 10^{-3}$	$9.1 \cdot 10^{-1}$
Distance utilisant les sections efficaces	$1.6 \cdot 10^{-3}$	$9.1 \cdot 10^{-1}$

TABLE 7.7 – Comparaison des erreurs moyennes sur la composition en fonction de la distance utilisée

L'utilisation des distances basées sur les sections efficaces n'est pas coûteuse en temps de calcul, les calculs ont donc, malgré l'absence de gain de précision, utilisé cette distance plus proche des processus physiques mis en jeu.

7.4.5 Évaluation de la qualité du modèle d'irradiation

7.4.5.1 Méthodes pour l'évaluation de la qualité

La qualité du modèle d'irradiation se mesure à la précision avec laquelle elle permet d'obtenir la composition en fin d'irradiation d'un combustible dont on connaît la composition en début d'irradiation.

Pour évaluer cette qualité, il faut donc calculer l'évolution d'un combustible et comparer le résultat donné par CLASS avec le résultat d'un calcul d'évolution par un code précis et validé comme MURE. Pour que cette comparaison ait du sens, il faut l'effectuer sur un combustible qui n'est pas directement dans la *DataBank* utilisée par la modèle d'irradiation. Le modèle d'irradiation repose très fortement sur les informations comprises dans les *EvolutionData* au sein de la *DataBank* utilisée. La qualité du modèle d'irradiation évalué en utilisant une *DataBank* ne sera donc valable que pour les irradiations simulées avec cette *DataBank*.

Pour avoir une image globale de la qualité, il faut effectuer cette opération un grand nombre de fois et avec des combustibles dont la composition parcourt l'ensemble des compositions couvertes par la *DataBank*.

7.4. FAIRE ÉVOLUER UN COMBUSTIBLE : LE MODÈLE D'IRRADIATION

Afin de s'assurer de bien parcourir l'espace de vecteurs isotopiques permis par la *DataBank* et de ne pas avoir besoin d'effectuer trop de calculs supplémentaires avec MURE qui pourraient s'avérer très coûteux en temps de calcul, c'est l'évolution des combustibles déjà présents dans la *DataBank* qui a été utilisée.

Ainsi, chaque *EvolutionData*, qui contient le résultat d'une évolution calculée avec MURE, a été extraite de la *DataBank*. Ensuite l'évolution d'un combustible avec la même composition initiale a été calculée par CLASS en utilisant une *DataBank* réduite construite à partir de la *DataBank* initiale, mais de laquelle l'*EvolutionData* concernée avait été préalablement retirée. L'écart entre la composition finale recalculée par CLASS et celle stockée dans l'*EvolutionData*, qui était celle obtenue lors du calcul MURE pour la création de la *DataBank* correspond alors à l'écart induit par le modèle d'irradiation de CLASS utilisant la *DataBank* choisie. Pour évaluer cet écart, la distance standard entre les vecteurs isotopiques a été utilisée, l'équation (7.12).

$$D_{i,j} = \sqrt{\sum_{k \in \text{actinides}} (N_k^i - N_k^j)^2} \quad (7.12)$$

Ce choix de distance, la distance standard et non la distance pondérée par les sections efficaces, est ici justifié par le fait que nous cherchons à comparer la précision avec laquelle sont calculés les inventaires de sortie. Pour ces inventaires les isotopes avec des sections efficaces importantes ne sont pas forcément plus significatifs que les autres.

La moyenne des distances entre la composition fin d'irradiation contenue dans chaque *EvolutionData* et celle recalculée par CLASS pour la même composition permet d'évaluer rapidement la qualité d'une *DataBank* et la comparaison entre les qualités de plusieurs *DataBank*.

Dans le cadre du modèle d'irradiation de CLASS, l'*EvolutionData* ayant la composition initiale la plus proche de celle du combustible chargé dans le réacteur fournit les sections efficaces. Du fait du maillage régulier des vecteurs isotopiques utilisé lors de la fabrication de la *DataBank*, une composition réelle se trouve obligatoirement à une distance d'un point de la *DataBank* inférieure au pas du maillage isotopique. Lors de l'évaluation de la qualité de la *DataBank* présentée dans cette partie, les *EvolutionData* utilisées comme témoins sont des points de la *DataBank*, ils sont donc plus loin des autres points de la *DataBank* que n'importe quel autre point de celle-ci. Les erreurs présentées dans cette partie sont donc des bornes supérieures des erreurs

7.4. FAIRE ÉVOLUER UN COMBUSTIBLE : LE MODÈLE D'IRRADIATION

obtenues lors de l'utilisation effective du code.

7.4.5.2 Densité de la base

Pour estimer si le nombre d'*EvolutionData* utilisées pour construire la *DataBank* est suffisant, des *DataBank* plus petites ont été construites en sélectionnant aléatoirement des *EvolutionData* de la *DataBank* considérée. En calculant la moyenne des distances en fonction du nombre d'*EvolutionData* sélectionnées, on obtient une évolution de cette distance. Le faible nombre de points considérés conduit à une incertitude statistique importante. Néanmoins, la figure 7.9 montre clairement une évolution selon une fonction puissance décroissante : la distance moyenne est proportionnelle à $\frac{1}{N^d}$ avec $0 < d < 1$. La qualité d'une *DataBank* construite selon la méthode présentée précédemment s'améliore donc avec le nombre d'*EvolutionData* qu'elle comprends, cependant l'augmentation de la qualité apportée par chaque *EvolutionData* est d'autant plus faible que le nombre d'*EvolutionData* dans la *DataBank* est élevé. On voit dans la figure 7.9 que la *DataBank* considérée n'aurait que peu perdu en qualité en limitant le nombre d'*EvolutionData* à 100 ou 120, mais qu'une réduction en dessous de 100 aurait des effets importants.

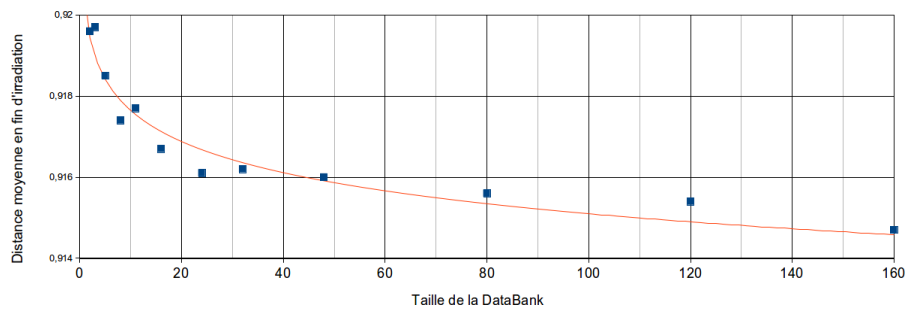


FIGURE 7.9 – Comparaison entre la qualité de *DataBank* ThU avec des densités différentes

7.4.5.3 Corrélation entre erreur initiale et qualité

Le choix de l'*EvolutionData* d'où seront tirées les sections efficaces pour simuler l'évolution d'un combustible dépend de la distance entre les vecteurs isotopiques en début de cycle. Pour être précis lors de la simulation d'un scénario, c'est l'écart entre les vecteurs isotopiques fin de cycle qui doit être minimisé.

7.4. FAIRE ÉVOLUER UN COMBUSTIBLE : LE MODÈLE D'IRRADIATION

Dans le cadre d'un calcul standard de scénario, la composition exacte des combustibles en fin d'irradiation n'est pas disponible et il n'est donc pas possible de vérifier que le choix a été pertinent. Lors de l'évaluation de la qualité de notre *DataBank*, on simule avec CLASS l'évolution de combustibles dont on connaît l'évolution réelle, on peut donc comparer la distance entre la composition réelle et celle de l'*EvolutionData* choisie en début et en fin d'irradiation.

La figure 7.10 montre une anti-corrélation entre la distance des compositions en fin et en début d'irradiation. Ce résultat est assez contre-intuitif, il est cependant explicable. Les distances mentionnées en début d'irradiation sont celles entre un *EvolutionData* et celle de son plus proche voisin dans la *DataBank*. Les *EvolutionData* qui conduisent à des distances importantes en début d'irradiation sont donc des *EvolutionData* aux marges de la *DataBank*. Elles sont peu nombreuses comme le montre la clarté de la partie droite de la courbe de la figure 7.10. Ces *EvolutionData* ont toutes des vecteurs isotopiques d'uranium en début de cycle assez extrêmes. La faible distance en fin d'irradiation entre la véritable composition et celle recalculée à partir des sections efficaces de leur plus proche voisin vient du fait que la plupart des effets sur les sections efficaces connaissent des phénomènes de saturation. L'apparition d'un isotope change grandement les sections efficaces dans leur ensemble de par le creusement du spectre neutronique au niveau des résonances de cet isotope. Cependant l'augmentation de la quantité d'un isotope déjà présent aura moins d'impact parce que ce creusement est déjà présent, il ne fait que s'amplifier. Dans les combustibles aux marges de la *DataBank*, les situations extrêmes n'apportent que peu de modification du spectre par rapport aux situations presque extrêmes qui leur sont voisines. Au cœur, au contraire, les variations se font dans des domaines beaucoup plus loin de la saturation et de plus petites variations entraînent de plus grandes modifications des sections efficaces.

7.4. FAIRE ÉVOLUER UN COMBUSTIBLE : LE MODÈLE D'IRRADIATION

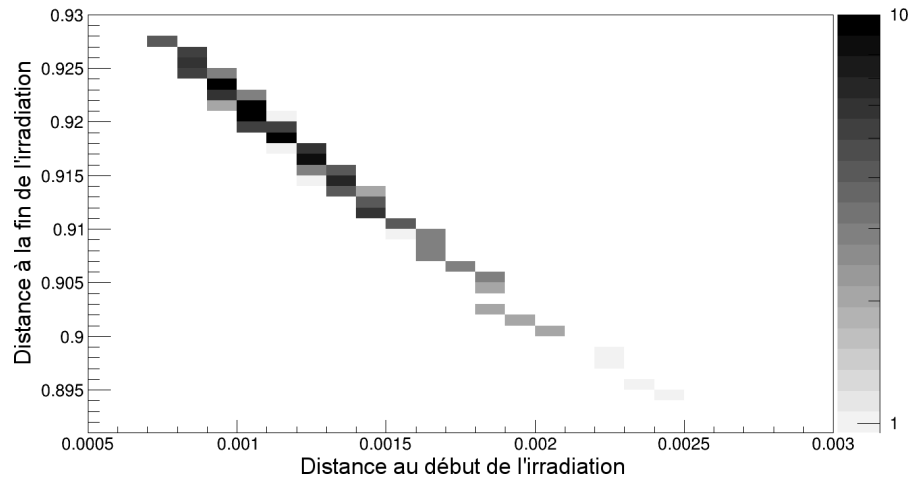


FIGURE 7.10 – Corrélation entre l'erreur en début et en fin d'irradiation.

7.4.5.4 Erreur en fonction des isotopes considérés

Afin de regarder avec plus de précision la divergence sur la composition finale des combustibles simulés avec CLASS, il est possible de regarder chaque isotope indépendamment. Ainsi, lors de la "re-simulation" avec CLASS de chaque *EvolutionData*, l'écart en fin de cycle entre la composition de l'*EvolutionData* et celle du combustible simulé avec le reste de la *DataBank* a été calculé selon la formule (7.13) :

$$\tau(i) = \frac{|N_{CLASS}(i) - N_{MURE}(i)|}{N_{MURE}(i)} \quad (7.13)$$

avec

- $N_{MURE}(i)$ la quantité de l'isotope i en fin d'irradiation dans le calcul MURE utilisé pour créer l'*EvolutionData*,
- $N_{CLASS}(i)$ la quantité de l'isotope i en fin d'irradiation dans le calcul CLASS utilisant la *DataBank* à laquelle on a retiré l'*EvolutionData* en question.

La figure 7.11 montre la valeur de ces τ pour chaque isotope et pour chaque *EvolutionData* de la *DataBank* ThU présentée dans les parties précédente. Elles sont organisées en fonction de la proportion de ces isotopes dans le calcul final. A gauche du graphe on a les isotopes qui sont bien rendu par CLASS. En haut se trouvent ceux qui sont présents en grande quantité dans le combustible en fin d'irradiation.

En observant de façon globale la figure 7.11, on voit que les isotopes avec une forte proportion sont vers la gauche, ce qui signifie que l'on parvient à rendre avec

7.4. FAIRE ÉVOLUER UN COMBUSTIBLE : LE MODÈLE D'IRRADIATION

un bonne précision les isotopes présents en grande quantité dans le combustible. Comme les seuls points qui sont à droite sont en bas, les seuls isotopes vraiment mal reconstruits par CLASS sont les isotopes présents en faible quantité.

En prêtant attention à la répartition des points selon les isotopes qu'ils concernent, on peut évaluer indépendamment l'erreur obtenue sur chaque isotope. Ainsi, on a une erreur faible sur la quantité de ^{232}Th en fin de cycle, inférieure à 0.1%, grâce aux α_i et au burn-up qui est bien rendu. L'erreur sur l' ^{233}U est faible elle aussi puisqu'elle est d'environ 0.5%.

On remarque aussi que l'erreur sur l' ^{236}U en fin d'irradiation est plus importante quand les quantités sont plus faibles. Le groupe de point le plus à gauche représente les combustibles contenant déjà de l' ^{236}U dans leur combustible de départ. Ces points ont des erreurs acceptables, inférieures à 0.5%. Le deuxième ensemble de point regroupe les combustibles qui ne contiennent pas d' ^{236}U au départ mais contiennent de l' ^{235}U qui va produire de l' ^{236}U par capture neutronique durant l'irradiation. Pour ces points on obtient des erreurs très importantes, de l'ordre de la dizaine de pourcents sur les quantités d' ^{236}U produites. Les erreurs sont encore plus grandes pour le troisième groupe de points, qui regroupent les combustible ne contenant ni ^{236}U ni ^{235}U en début d'irradiation. Ces erreurs s'approchent des 100%. Ceci est très pénalisant même s'il s'agit de quantités faibles d' ^{236}U , car cela implique une grosse erreur sur l'évolution du vecteur uranium au cours du scénario surtout après plusieurs recyclages. Or, le suivi de cette évolution est l'un des buts premiers des calculs de scénarios.

L' ^{235}U est dans une situation très semblable à l' ^{236}U . Les groupes disjoints représentent des combustibles avec des isotopes présents différents au début de l'irradiation. L'ensemble le plus à gauche regroupe les combustibles contenant de l' ^{235}U au début de l'irradiation. Le second regroupe les combustibles ne contenant pas d' ^{235}U mais contenant de l' ^{234}U qui produit de l' ^{235}U par capture neutronique. Le troisième et le quatrième regroupent les combustibles ne contenant ni ^{235}U ni ^{234}U au début de l'irradiation. Comme pour l' ^{236}U les derniers groupes accusent des erreurs très importantes allant jusqu'à la dizaine de pour-cent et au-delà, sans atteindre l'extrême du dernier groupe de point de l' ^{236}U . Et de la même façon des erreurs de cet ordre sont très gênantes pour suivre l'évolution des stocks et de la qualité de la matière fissile au cours d'un scénario.

La situation de l' ^{234}U est très particulière puisque les points sont très dispersés. Certaines *EvolutionData* peuvent être reproduites avec des erreurs inférieures à

7.4. FAIRE ÉVOLUER UN COMBUSTIBLE : LE MODÈLE D'IRRADIATION

0.01% alors que d'autres accusent des écarts allant jusqu'à 5% et ce, sans nette séparation entre différentes catégories de combustible, même si les combustibles contenant de fortes quantités d' ^{234}U en début d'irradiation ont tendance à conduire à des erreurs faibles en fin d'irradiation.

L'incertitude sur le ^{238}Pu qui reste autour de quelques pourcents, 3% en moyenne, est beaucoup plus acceptable, surtout que contrairement aux erreurs sur les isotopes de l'uranium, celle-ci n'a que peu de chance d'être amplifiée au cours de multi-recyclage car le plutonium issu des combustibles ThU est le plus souvent considéré comme un déchet.

En revanche, les erreurs sur les actinides mineurs atteignent des valeurs très proches de 100%, qui rendent toute prévision de la production d'actinides mineurs par cette *DataBank* plus que hasardeuse ce qui semble indiquer qu'une *DataBank* plus dense ou l'utilisation d'un modèle plus complexe que le choix du plus proche voisin est nécessaire pour prévoir les quantités de ces noyaux produits suite à de nombreuses réactions successives. La *DataBank* considérée regroupe des combustibles ThU qui ne produisent que des quantités très limitées d'actinides mineurs, cependant des erreurs de cet ordre sont très embêtantes car elles ne permettent pas d'évaluer l'impact des déchets des scénarios.

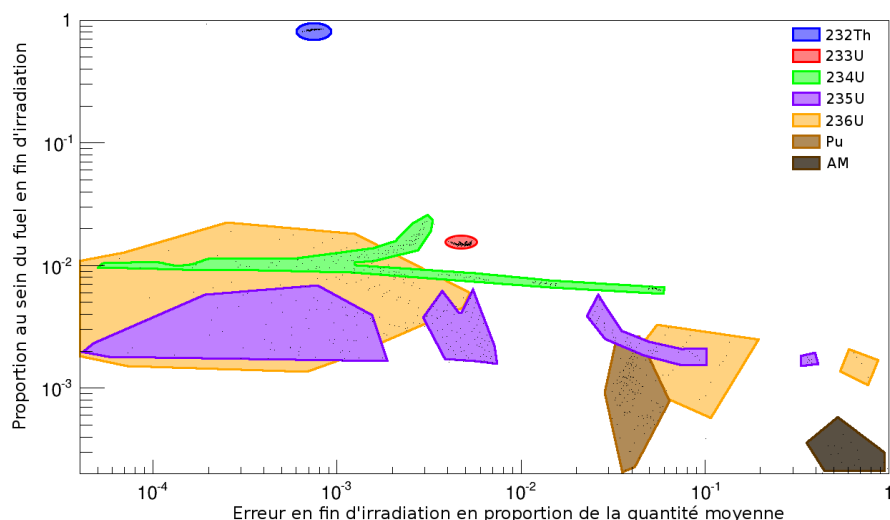


FIGURE 7.11 – Répartition de l'erreur entre les isotopes

En plus des erreurs, cette figure nous donne accès à des informations sur la composition des combustibles en fin d'irradiation. On remarque ainsi que la proportion

7.4. FAIRE ÉVOLUER UN COMBUSTIBLE : LE MODÈLE D'IRRADIATION

d' ^{233}U en fin d'irradiation est quasiment tout le temps la même, autour de 1.5% des noyaux lourds. L' ^{235}U reste lui aussi assez stable dans des proportions plus faibles, allant de 0.2% à 0.6%. Cette stabilité fin de cycle provient des fortes sections efficaces de ces isotopes de l'uranium dans les spectres considérés en ThU. Les forts taux de réactions conduisent, à chaque cycle, ces isotopes à des valeurs proches de l'équilibre. L' ^{234}U arrive aussi, bien que d'une façon moins resserrée, à des proportions peu dispersées dans les combustibles irradiés. Dans la majorité des cas, il reste entre 0.7% et 1% des noyaux lourds en fin d'irradiation, sauf un lot de compositions qui conduisent à des concentrations variant de 1 à 3%.

On remarque aussi que le plutonium est produit en très faible quantité dans ces combustibles. Seul le ^{238}Pu est présent en quantité significative est reste en dessous de 0.3% des noyaux lourds en fin d'irradiation. Les autres isotopes du plutonium et les actinides mineurs composent moins de 0.1% des noyaux lourds en fin d'irradiation.

L' ^{236}U atteint des proportions très variables en fin d'irradiation. Il varie sur plus d'un ordre de grandeur entre moins de 0.1% et quasiment 2% des noyaux lourds.

7.5 Résumé et Conclusions du chapitre

CLASS est présenté dans ce chapitre. Il s'agit d'un code développé au sein d'une collaboration entre les laboratoires Subatech Nantes, IPN Orsay et LPSC Nantes de l'IN2P3 ainsi que le LNC de l'IRSN.

Ce code repose sur deux modèles principaux qui sont décrits dans ce chapitre : le modèle d'équivalence et le modèle d'irradiation. Le modèle d'équivalence permet de prédire la composition d'un combustible entrant dans un réacteur en fonction des matières disponibles. Le modèle d'irradiation permet de prédire la composition du combustible sortant d'un réacteur en fonction de la composition du combustible d'entrée.

Les modèles d'équivalence basés sur des modèles physiques simples ne permettent pas d'obtenir des résultats utilisables. Un modèle numérique a été développé afin de permettre une prédiction acceptable de la composition d'un combustible entrant dans un réacteur pour déterminer la composition du parc. Ce modèle reste néanmoins un point sur lequel des progrès sont encore nécessaires.

Le modèle d'irradiation de CLASS repose fortement sur la constitution de *DataBank* spécifiques à chaque couple réacteur-combustible simulé. Dans ce chapitre a été présentée une méthode pour construire ces *DataBank* à travers l'exemple de la *DataBank* ThU qui permet de construire un ensemble de points de référence balayant une large gamme de vecteurs isotopiques au sein de combustibles atteignant un burn-up fixe.

Des méthodes d'évaluation ont été conçues afin de mesurer la qualité des *DataBank* produites et d'évaluer l'erreur faite quand elles sont utilisées dans CLASS. Le cas de la *DataBank* ThU est étudié précisément.

Chapitre 8

Validation sur les calculs à l'équilibre

Afin d'évaluer la pertinence de CLASS et des DataBank générées pour la simulation des scénarios de notre étude, des calculs ont été réalisés afin de retrouver avec CLASS les états d'équilibres calculés avec les méthodes très précises présentées dans la partie II.

8.1 Scénarios simulés

8.1.1 Scénarios considérés

À ce stade, CLASS n'est pas capable de simuler des scénarios mettant en jeu des combustibles avec des fissiles provenant de plusieurs origines. Les modèles d'équivalence développés ne peuvent en effet calculer la composition du combustible au début d'irradiation que si un seul paramètre reste à déterminer : la concentration de fissile. Dans le cas de combustibles mettant en jeu deux éléments fissiles ou plus en proportions variables, CLASS ne peut pas déterminer la répartition entre ces différents fissiles. Les scénarios multiUePu et multiThUPu ne peuvent donc pas être simulés à l'heure actuelle.

Les scénarios de mono-recyclage n'étant étudiés qu'en tant que référence pour les scénarios de multi-recyclage du plutonium, il ne reste que 3 scénarios d'intérêt :

- le scénario multiUPu dont la structure est rappelée dans la figure [8.1](#)
- le scénario multiThU
- le scénario multiThU2

Les scénarios multiThU et multiThU2 étant très similaires au niveau de la structure du parc, un seul d'entre eux a été choisi. Le choix s'est porté sur le scénario

8.1. SCÉNARIOS SIMULÉS

multiThU2, dont la structure est rappelée dans la figure 8.2, en raison des grosses incertitudes sur l'acceptabilité des niveaux de sûreté des assemblages recyclant le plutonium dans le scénario multiThU (voir chapitre 5).

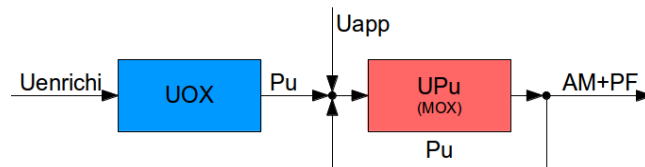


FIGURE 8.1 – Scénario multiUPu utilisé avec CLASS

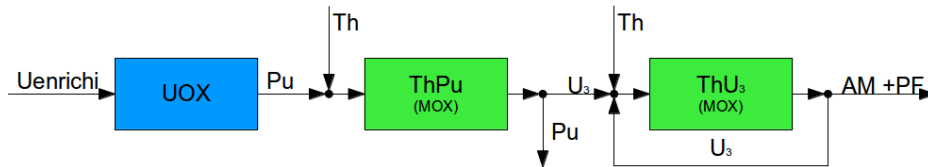


FIGURE 8.2 – Scénario multiThU2 utilisé avec CLASS

8.1.2 Retrouver l'équilibre

Afin de pouvoir comparer les résultats des scénarios simulés avec CLASS avec les scénarios à l'équilibre présentés dans la partie II sur l'équilibre, les calculs de scénarios de transitions ont été poussés jusqu'à l'atteinte de l'équilibre, c'est à dire jusqu'au moment où la composition en cœur de tous les réacteurs du parc devient périodique, répétant le même cycle à l'infini.

Tous les scénarios simulés avec CLASS dans le cadre de cette étude partent de la situation de référence qu'est un parc entièrement constitué de réacteurs UOX. Après quelques années nécessaires à la constitution d'un petit stock, le recyclage du plutonium démarre. Des réacteurs UOX sont alors arrêtés pour laisser la place aux réacteurs recyclant le plutonium de façon à garder constante la puissance globale du parc.

Pour le scénario multiThU2, le recyclage de l'uranium dans le troisième type d'assemblage arrive dans un troisième temps. Des réacteurs UOX sont encore une fois arrêtés pour laisser la place aux réacteurs recyclant l'uranium issu des réacteurs thoriés afin de maintenir la puissance globale.

Une fois tous les réacteurs mis en place, l'évolution du parc est calculée pendant plusieurs centaines d'années. Si les stocks de matière recyclée sont asymptotiquement stables, cela signifie que les proportions utilisées lors du calcul sont bien les proportions d'équilibre. Si les stocks diminuent et mènent à l'impossibilité d'approvisionner les réacteurs, la part d'UOX est augmentée. Si les stocks augmentent, la part d'UOX est diminuée. Ce processus itératif permet d'obtenir l'équilibre assez rapidement car les simulations avec le code CLASS sont peu gourmandes en temps de calcul.

Les proportions à l'équilibre obtenues lors des calculs MURE, présentés dans le chapitre 6, sont utilisées pour initialiser ce processus.

8.2 Les spécificités des scénarios hors équilibre

8.2.1 Segmentation des réacteurs

Dans les scénarios à l'équilibre, l'ajustement des proportions entre les différents réacteurs se fait par la multiplication des quantités de matière obtenues lors d'une simulation normalisée. Tous les assemblages d'un même type sont donc strictement identiques, leur multiplication n'est que numérique. Cela revient à considérer un seul gros réacteur par type d'assemblage. Des réacteurs de ce type ont des puissances importantes et totalement arbitraires sans aucune relation avec aucune réalité industrielle.

Cette option est toujours possible dans CLASS. Néanmoins, lors de la simulation de scénarios de transition, on cherche à avoir une image du parc simulé plus ancrée dans la réalité. Dans cette optique, il est logique de simuler, non pas de grands réacteurs avec une puissance arbitraire mais des réacteurs réalistes avec une puissance proche des réacteurs industriels. Afin de mesurer l'écart entre ces deux méthodes, le réacteur moyen et les réacteurs individuels, deux parcs identiques basés sur le scénario multiUPu ont été simulés, chacun utilisant l'une des deux options. Les résultats obtenus, et spécialement les vecteur plutonium des combustibles en début d'irradiation présentés dans le tableau 8.3, montrent clairement que ces deux options ne sont pas équivalentes.

On observe que les trois réacteurs individuels sont très différents entre eux alors qu'ils jouent des rôles parfaitement symétriques dans le scénario. Cette différence vient d'une particularité du code CLASS. En effet, lors de la fabrication, les combus-

8.2. LES SPÉCIFICITÉS DES SCÉNARIOS HORS ÉQUILIBRE

tibles de chaque réacteur sont fabriqués indépendamment et de manière séquentielle. Ainsi même si l'usine de fabrication fabrique les combustibles des trois réacteurs le même jour, lors de la fabrication du combustible du réacteur 1, l'usine construit ce combustible comme s'il était le seul à devoir être construit. Les stocks avec les compositions isotopiques du plutonium les plus jeunes sont donc utilisées. Lors de la fabrication du combustible du réacteur 2, les stocks de plutonium disponibles sont donc de moins bonne qualité et c'est encore pire pour le réacteur 3. Ce mécanisme conduit à de très grandes proportions de ^{242}Pu dans le combustible du réacteur 3 et conduit à des combustibles à forte proportion de plutonium dégradant ainsi les paramètres de sûreté.

De plus, une telle gestion du plutonium n'est pas réaliste. En effet, dans une réalité industrielle, le fabricant de combustible sait à l'avance quelle quantité totale de combustible MOX sera nécessaire à une date donnée et les assemblages se dirigeant vers les différents réacteurs ont de forte chance d'être fabriqués en même temps, au cours d'un processus continu, les vecteurs plutonium étant sélectionnés au fur et à mesure et non pas de façon totalement séquentielle comme dans CLASS. Cela conduirait alors à des combustibles moins extrêmes et surtout beaucoup plus semblables entre les réacteurs.

	Réacteur moyen	Moyenne des Réacteurs 1 à 3	Réacteur 1	Réacteur 2	Réacteur 3
^{238}Pu	4.62%	4.70%	2.77%	3.59%	5.66%
^{239}Pu	42.01%	40.81%	56.12%	49.32%	33.23%
^{240}Pu	27.76%	28.49%	22.54%	26.36%	31.01%
^{241}Pu	10.77%	10.66%	11.29%	11.50%	10.17%
^{242}Pu	14.84%	15.34%	7.28%	11.50%	10.17%
Total Pu	17.76%	19.06%	10.12%	12.55%	34.50%

FIGURE 8.3 – Effet du nombre de réacteurs utilisés lors de la simulation du parc

Afin de contrer cet effet, une sorte de mélange entre les différents réacteurs a été effectuée. Cela a été fait par la rupture de l'ordre immuable entre les réacteurs qui existait auparavant depuis leur déclaration dans le code. Ainsi, lors de chaque chargement, l'ordre dans lequel les combustibles sont fabriqués est tiré aléatoirement. Le résultat de cette méthode est présenté dans le tableau 8.4. On observe que les vecteur moyens au sein des réacteurs sont quasiment inchangés, la différence avec

8.2. LES SPÉCIFICITÉS DES SCÉNARIOS HORS ÉQUILIBRE

l'option des réacteurs moyens est donc toujours très importante. Cette absence d'effet provient du fait que si les combustibles créés avec le plutonium le plus jeune ou le plus vieux changent effectivement de réacteur au cours de la vie du parc, l'évolution en irradiation des combustibles change au final peu car ils sont toujours irradiés seul au sein de réacteurs MOX donc ils dictent le comportement. Le problème d'asymétrie forte entre ces réacteurs n'est donc pas résolu.

	Réacteurs ordonnés			
	Moyenne des Réacteurs 1 à 3	Réacteur 1	Réacteur 2	Réacteur 3
^{238}Pu	4.70%	2.77%	3.59%	5.66%
^{239}Pu	40.81%	56.12%	49.32%	33.23%
^{240}Pu	28.49%	22.54%	26.36%	31.01%
^{241}Pu	10.66%	11.29%	11.50%	10.17%
^{242}Pu	15.34%	7.28%	11.50%	19.92%
Total Pu	19.06%	10.12%	12.55%	34.50%

	Réacteurs mélangés			
	Moyenne des Réacteurs 1 à 3	Réacteur 1	Réacteur 2	Réacteur 3
^{238}Pu	4.66%	4.35%	2.73%	5.46%
^{239}Pu	40.73%	43.35%	56.26%	34.26%
^{240}Pu	28.03%	29.37%	22.61%	29.08%
^{241}Pu	10.71%	11.10%	11.23%	10.33%
^{242}Pu	15.87%	11.83%	7.16%	20.86%
Total Pu	19.09%	16.35%	10.08%	30.84%

FIGURE 8.4 – Effet d'un assouplissement de l'ordre de chargement des réacteurs lors de la simulation du parc.

Dans la suite, on travaillera avec des réacteurs moyens. Un seul réacteur représentera alors tous les réacteurs de la même strate. La puissance de ces réacteurs sera ajustée pour représenter la proportion de chaque strate dans la puissance totale du parc.

8.2.2 Effet du choix de la DataBank

Lors de la simulation d'un scénario avec CLASS, à chaque couple regroupant un type de réacteur avec un type de combustible est associée une *DataBank*. Un protocole de génération de ces *DataBank* est présenté dans le chapitre 7. Cependant lorsque plusieurs *DataBank* sont disponibles pour un même couple réacteur-

8.2. LES SPÉCIFICITÉS DES SCÉNARIOS HORS ÉQUILIBRE

combustible, un choix est nécessaire au moment de la simulation du scénario. Dans le cadre de l'évaluation des erreurs qui peuvent être mises en jeu dans la simulation de nos scénarios et afin de savoir si les comparaisons effectuées avec des scénarios simulés avec CLASS ont un sens, il est nécessaire de connaître la portée du choix de la *DataBank* sur nos résultats et la sensibilité aux paramètres de base qui ont servi à la définir lors de sa création.

Afin d'évaluer cet effet, on a calculé avec plusieurs *DataBank* un des paramètres clés de notre étude, la proportion entre les différents type de combustibles au sein du parc. Sur la figure 8.5, on peut voir l'évolution de la proportion de combustible MOX dans un parc du scénario multiUPu en fonction de différentes options. La courbe principale, nommée "coefficient associé à la DB", présente cette proportion à l'équilibre obtenue en utilisant des *DataBank* construites autour de burn-up cibles très différents, allant d'un burn-up moyen de 32.5 GWj/t à 67.5 GWj/t. Cette courbe montre que la proportion de combustible MOX dans le parc diminue de 0.52% lors que le burn-up moyen augmente de 1 GWj/t. Pour cette étude, on a utilisé des *DataBank* pour des REP utilisant des MOX à base d'uranium appauvri d'une largeur de 5GWj/t. La pente de la courbe permet donc d'affirmer que la proportion de combustible MOX calculée avec CLASS grâce à ces *DataBank* dans des réacteurs irradiant leurs combustibles jusqu'à 50GWj/t est obtenue à plus ou moins 1.3%. Pour comparaison, l'utilisation d'une *DataBank* très centrée en burn-up comme celle dont la construction est présentée dans le chapitre 7, et qui a une largeur de 0.6 GWj/t, conduirait à une proportion de combustible ThU précise à plus ou moins 0.16%

On voit donc que le burn-up moyen et les limites en burn-up fixées lors de la génération d'une *DataBank* ont un grand impact sur notre observable la plus générale : la proportion des types de combustible dans le parc. Or une *DataBank* est constituée, comme expliqué dans le chapitre 7, d'un jeu de paramètre α_i utilisé dans le modèle d'équivalence et d'un ensemble d'*EvolutionData*, servant principalement comme jeu de sections efficaces utilisées lors de la résolution des équations de Bateman. Afin de comprendre l'importance relative de ces deux parties de la *DataBank* dans l'évolution de la proportion de combustible MOX à l'équilibre, les deux autres courbes présentées dans la figure 8.5 ont été calculées. Pour obtenir ces courbes, les paramètres du modèle d'équivalence ont été maintenus constants alors que seules les *EvolutionData* et leur sections efficaces variaient d'une *DataBank* à l'autre. Pour maximiser l'effet, les paramètres α_i des *DataBank* ont été choisis, celle avec un burn-up moyen de 32.5 GWj/t et celle avec un burn-up moyen de 67.5 GWj/t. On

8.3. COMPARER LES ÉQUILIBRES DONNÉS PAR CLASS ET PAR MURE

remarque que les pentes de ces deux courbes sont très faibles devant celle de la courbe originale mais que ces deux courbes sont très éloignées entre elles. Cela signifie que l'influence des sections efficaces présentes au sein des *EvolutionData* est faible devant celle des paramètres du modèle d'équivalence. Ainsi, seuls 12 à 35 % de la modification de la proportion à l'équilibre entre les différents combustibles provient du changement de jeu de sections efficaces. De plus la grande variabilité entre les équilibres obtenus avec les différents paramètres de modèles d'équivalence assurent que l'utilisation d'une *DataBank* avec un burn-up moyen proche de celui des réacteurs présents dans le parc simulé est essentielle pour une bonne détermination de cette proportion.

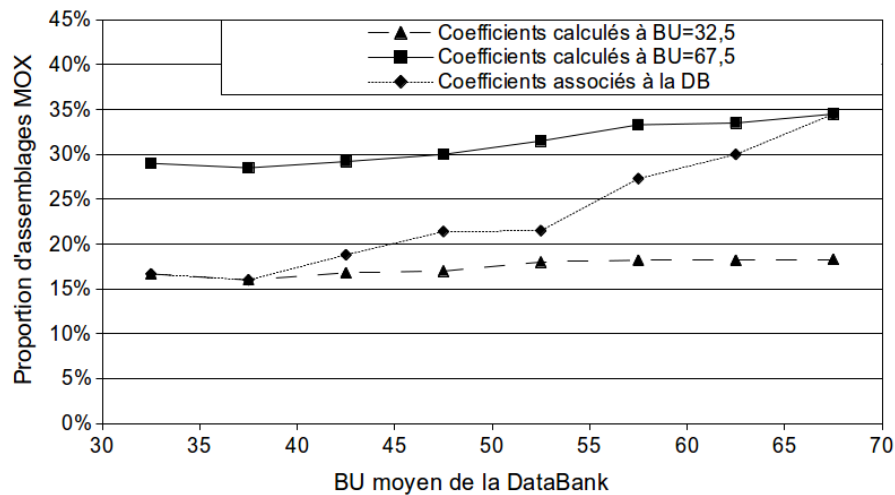


FIGURE 8.5 – Effet du Burn Up utilisé lors de la génération de la DataBank

8.3 Comparer les équilibres donnés par CLASS et par MURE

En utilisant CLASS, l'équilibre des deux scénarios multiUPu et multiThU2 présentés au début de ce chapitre ont été recalculés. La simulation de ces scénarios a été effectuée pendant plusieurs siècles jusqu'à ce que le même cycle, avec la même évolution du combustible au sein des réacteurs, ait eu lieu plusieurs fois tout en maintenant la quantité moyenne de matière dans les stocks à un niveau stable. Dans les paragraphes qui suivent, ces équilibres sont comparés avec ceux calculés grâce aux méthodes décrites dans la partie II. La comparaison n'est effectuée que sur une par-

8.3. COMPARER LES ÉQUILIBRES DONNÉS PAR CLASS ET PAR MURE

tie des critères utilisés pour ces scénarios calculés avec MURE, car certains critères comme les paramètres de sûreté ne sont pas accessible pour les scénarios simulés avec CLASS. Ainsi, les scénarios simulés avec CLASS et avec MURE sont comparés au niveau de la composition du parc à l'équilibre, de la composition des combustibles en début de cycle ainsi qu'au niveau de la production d'actinide mineurs.

8.3.1 Les Parcs obtenus

Les proportions à l'équilibre des divers assemblages pour le scénario multiUPu calculés avec CLASS sont présentées dans le tableau 8.1 à côté d'un rappel de celles calculées avec MURE. Ces proportions sont très similaires et la différence entre les deux valeurs est inférieure à l'incertitude de 1.3% due au découpage des *DataBank* utilisées qui a été calculée dans le paragraphe précédent.

	CLASS	MURE
Assemblage UOX	80.07%	79.97%
Assemblage UPu	19.93%	20.03%

TABLE 8.1 – Comparaison de la composition des parcs pour le scénario multiUPu à l'équilibre MURE et CLASS.

Le tableau 8.2 présente la même comparaison obtenue pour le scénario multi-ThU2. On remarque un très net sur-dimensionnement de la proportion d'assemblages ThPu dans le parc en comparaison avec l'équilibre calculé avec MURE. Nous supposons un problème au niveau du modèle d'équivalence de la *DataBank* ThPu utilisée qui semble sous-estimer la quantité de plutonium nécessaire dans un combustible ThPu et ainsi sous-estimer la quantité d'assemblages UOX nécessaire pour produire le plutonium alimentant les assemblages ThPu. Ce problème est détaillé dans le paragraphe suivant à la lumière du vecteur isotopique du plutonium dans ces combustibles.

8.3. COMPARER LES ÉQUILIBRES DONNÉS PAR CLASS ET PAR MURE

	CLASS	MURE
Assemblage UOX	80.31%	82.031%
Assemblage ThPu	11.34%	9.20%
Assemblage ThU	8.35%	8.50%

TABLE 8.2 – Comparaison de la composition des parcs pour le scénario multiThU à l'équilibre MURE et CLASS.

8.3.2 Les combustibles au sein des réacteurs

Le tableau 8.3 résume la composition des combustibles du scénario multiUPu à l'équilibre telle qu'elle est calculée avec CLASS et avec MURE. On remarque que la proportion de ^{242}Pu calculée avec CLASS est très inférieure à celle calculée avec MURE. Or, le ^{242}Pu est produit par capture sur le ^{241}Pu dont les proportions sont assez proche dans les deux vecteurs isotopiques. Une telle différence dans la proportion de ^{242}Pu à l'équilibre suggère donc une section efficace d'absorption sur le ^{242}Pu plus élevée dans la simulation CLASS que dans la simulation MURE. Cet écart est sûrement dû à une *DataBank* ne contenant pas de points avec suffisamment de ^{242}Pu . CLASS choisirait alors une *EvolutionData* avec une proportion trop faible de ^{242}Pu , une telle base ayant une section efficace d'absorption du ^{242}Pu trop élevé car calculée sur un spectre trop peu impacté par la résonance du ^{242}Pu dans le thermique. Cette sous-estimation de la quantité de ^{242}Pu conduit à une sous-estimation de la quantité de plutonium nécessaire dans les assemblages recyclant le plutonium. Il est surprenant qu'une telle différence dans la quantité de plutonium et dans la qualité de son vecteur isotopique ait si peu d'influence sur la quantité de plutonium devant être fourni par les assemblages UOX du parc.

En regardant le tableau 8.3, on voit qu'avec la simulation de plusieurs réacteurs séparés recyclant le plutonium, on obtient des vecteurs isotopiques moyens plus proches de celui calculé par MURE. Dans de tels cas, une grande proportion du combustible recyclant le plutonium contient du plutonium avec un vecteur isotopique plus proche des vecteurs isotopiques vus dans le scénario monoUPu, scénario mieux connu et utilisé comme référence lors de la construction de la *DataBank* utilisée dans ces simulations. Une plus faible part du plutonium recyclé étant soumise à l'erreur sur la section efficace du ^{242}Pu , l'erreur sur la quantité de plutonium dans le combustible est donc plus faible.

8.3. COMPARER LES ÉQUILIBRES DONNÉS PAR CLASS ET PAR MURE

	CLASS	MURE	Différence relative
^{238}Pu	4.62%	4.19%	1.04%
^{239}Pu	42.01%	31.78%	27.73%
^{240}Pu	27.76%	29.42%	2.84%
^{241}Pu	10.77%	9.83%	9.13%
^{242}Pu	14.84%	23.80%	46.37%
^{241}Am	1.06%	0.97%	8.87%
Total Pu	17.76%	24.34%	16.25%

TABLE 8.3 – Comparaison de la composition des combustibles pour le scénario multiUPu à l'équilibre MURE et CLASS.

Pour le scénario multiThU2, les vecteurs isotopiques au sein des assemblages ThPu calculés avec CLASS et avec MURE sont très proches. Néanmoins, on remarque une grosse différence sur la proportion de plutonium calculée avec ces deux codes. Cette différence renforce la suspicion sur le modèle d'équivalence du ThPu mentionnée dans le paragraphe précédent. Afin de vérifier cette hypothèse, on calcule, grâce à la formule (7.4), la quantité de plutonium avec un vecteur isotopique égal à celui de la composition d'équilibre calculée par MURE donnée par l'application du modèle d'équivalence de la *DataBank* ThPu dont les coefficients sont les suivants :

- $\alpha_0 = -11.0425$
- $\alpha_1 = -143.444$
- $\alpha_2 = 1287.559$
- $\alpha_3 = -569.568$
- $\alpha_4 = 1622.98$
- $\alpha_5 = -364.488$
- $\alpha_6 = -5.31571$

On obtient 9.06 % de plutonium dans le combustible ce qui est très inférieur aux 13.14% calculés avec MURE. L'erreur vient donc du modèle d'équivalence qui est très imprécis dans la région explorée par la simulation CLASS. Cette sous-évaluation de la proportion de plutonium nécessaire dans un combustible ThPu va dans le même sens que les trop faibles burn-up observés pour les proportions prédites par le modèle qui ont été observés lors de l'évaluation du modèle d'équivalence dans le chapitre 7.2.

La validité des modèles d'équivalence et l'évaluation de l'erreur sur la teneur

8.3. COMPARER LES ÉQUILIBRES DONNÉS PAR CLASS ET PAR MURE

en plutonium au sein des combustibles simulés par un code de scénario sont des problèmes connus qui sont notamment regardés actuellement dans le cadre d'un projet commun entre plusieurs codes de scénarios, le projet COMPRIS financé par NEEDS. Dans le cadre de ce projet des nouveaux modèles sont testés et évalués. Leur performances pour réstituer des situations connues ainsi que pour évaluer la teneur de plutonium à la composition aléatoire sont analysés et décortiquées afin de remonter aux origines des écarts et de dégager les voies optimales d'amélioration.

La composition du vecteur isotopique dans les assemblages ThU simulés par CLASS et MURE sont très proches. La proportion d' ^{233}U est légèrement plus importante dans la composition calculée avec CLASS. C'est une conséquence du problème avec la proportion d'assemblage ThPu dans le parc qui conduit à un apport légèrement plus important en uranium à chaque cycle. L'uranium provenant de la strate ThPu étant moins riche en ^{234}U et en ^{236}U que l'uranium issu du recyclage d'un ThU, on obtient un vecteur uranium légèrement plus riche en ^{233}U .

L' ^{232}U et de l' ^{238}U sont présents en tellement petite quantité que leur erreur relative est assez forte, on voit néanmoins que les deux codes sont en accord sur l'ordre de grandeur des proportions, ce qui correspond à des erreurs absolues très faible.

8.3. COMPARER LES ÉQUILIBRES DONNÉS PAR CLASS ET PAR MURE

	CLASS	MURE	Différence relative
^{238}Pu	2.80%	2.70%	3.64%
^{239}Pu	53.81%	51.05%	5.26%
^{240}Pu	23.15%	24.22%	4.52%
^{241}Pu	11.06%	12.81%	1.47%
^{242}Pu	7.52%	7.30%	2.97%
^{241}Am	1.66%	1.92%	1.45%
Total Pu	8.96%	13.14%	37,82%
	CLASS	MURE	Différence relative
^{232}U	0.25%	0.31%	21.43%
^{233}U	52.61%	49.79%	5.51%
^{234}U	28.52%	29.63%	3.82%
^{235}U	6.76%	7.21%	6.44%
^{236}U	11.82%	12.97%	9.28%
^{238}U	0.04%	0.09%	76.92%
Total U	6.40%	6.97%	8.53%

FIGURE 8.6 – Comparaison de la composition des combustibles pour le scénario multiThU2 à l'équilibre MURE et CLASS.

8.3.3 La production d'actinides mineurs

Le tableau 8.7 compare les productions d'actinides mineurs calculées à partir des simulations MURE et CLASS pour le scénario multiUPu à l'équilibre. CLASS sous-estime globalement de cette production. La sous-estimation d'environ 16% de la production de ^{237}Np et d' ^{241}Am est directement liée à la sous-estimation de 16% de la quantité de Pu en cœur montrée dans le paragraphe précédent. La sous-estimation importante de la production de Cm provient d'un défaut des *DataBank* utilisées pour la simulation des assemblages UPU qui ne prenaient pas en compte cet isotope. Dans les simulations CLASS effectuées, il n'y a donc pas de production de Cm dans ces assemblages. La production par les assemblages UOX est par contre proche dans les deux cas. La production d' ^{243}Am est extrêmement proche avec les deux codes et cela malgré les différences qui existent sur les isotopes qui sont à l'origine de la formation. Cette stabilité est révélatrice du fait que l' ^{243}Am atteint sa valeur d'équilibre au cours de l'irradiation d'un combustible multiUPu comme cela avait déjà été observé dans la partie II.

8.3. COMPARER LES ÉQUILIBRES DONNÉS PAR CLASS ET PAR MURE

	CLASS	MURE	Différence relative
^{237}Np	11.02	12.8	15.4%
^{241}Am	41.66	49.5	17.2%
^{243}Am	28.70	29.8	3.8%
^{244}Cm	1.4	9.3	147.7%
Total	84.5	103.5	20.1%

FIGURE 8.7 – Comparaison de la production d’actinides mineurs pour le scénario multiUPu à l’équilibre MURE et CLASS (kg par GWe.an).

Dans le scénario multiThU2, une grande partie des actinides mineurs est produite dans les assemblages ThPu. Ainsi il n’est pas étonnant de voir que la simulation CLASS qui a une plus grande proportion d’assemblage ThPu dans son parc produit plus d’actinides mineurs. On remarque néanmoins que l’augmentation de la production d’actinides mineurs très liés au plutonium comme le ^{237}Np et l’ ^{241}Am est inférieure à l’augmentation de la proportion d’assemblage ThPu, qui s’élève à près de 20%, car les assemblages UOX produisent une part non négligeable de ces actinides.

Les *DataBank* ThPu utilisées prenant en compte le Cm, la différence sur la production de cet isotope est moins catastrophique que dans le cas du multiUPu, néanmoins l’erreur reste importante à cause de la longue chaîne de réactions nécessaires à la transformation de plutonium en curium.

On remarque, comme dans le scénario multiUPu et malgré des écarts importants dans beaucoup d’autres domaines, que la production d’ ^{243}Am calculée par les deux codes est très proche. L’ ^{243}Am est ainsi également à l’équilibre à la fin de l’irradiation d’un combustible ThPu.

	CLASS	MURE	Différence relative
^{237}Np	15.7	13.7	13.6%
^{241}Am	19.6 (+20.2)	16.7 (+20.2)	16.0%
^{243}Am	8.6	8.8	2.3%
^{244}Cm	2.4	3.3	31.6%
Total	47.3 (67.5)	43.2 (63.4)	9.1%

TABLE 8.4 – Comparaison de la production d’actinides mineurs pour le scénario multiThU à l’équilibre MURE et CLASS (kg par GWe.an)

8.4 Résumé et Conclusions du chapitre

Deux scénarios dont l'équilibre avait été calculé et présenté dans les chapitres précédents ont été simulés avec CLASS et MURE, et comparés. Malgré des différences importantes, les ordres de grandeur sur la constitution du parc et la composition isotopique des combustibles sont retrouvés. Les écarts sont expliqués par les limites des modèles et des *DataBank* utilisées. La faiblesse du modèle d'équivalence joue un très grand rôle dans les erreurs effectuées sur le calcul de l'équilibre avec CLASS. L'amélioration de ce modèle est un sujet de préoccupation de la collaboration des développeurs et utilisateurs de CLASS qui conçoivent et testent de nouveaux modèles d'équivalence et d'irradiation afin de mettre au point des méthodes permettant de réduire ces erreurs trop importantes.

Conclusion

Après avoir discuté des principales stratégies de gestion du plutonium mises en place ou envisagées dans le monde en général et en France en particulier, nous avons situé le cœur de notre travail dans l'étude de stratégies de multirecyclage en réacteur de type REP. Ces stratégies dont le but est l'étude des possibilités de gestion avancée du plutonium sans réacteur de quatrième génération en utilisant le cycle uranium ou thorium. L'étude, théorique et hors de tout contexte réacteur, des propriétés neutroniques du thorium le rendant prometteur dans le cadre d'une utilisation en réacteur à neutrons thermiques, il est utilisé de façon conjointe avec le cycle uranium dans une partie des stratégies étudiées.

Au total, huit stratégies de gestion du plutonium ont été définies. Seules quatre d'entre elles mettent en jeu le multi-recyclage du plutonium, les quatre autres servent de point de comparaison pour évaluer l'apport du multi-recyclage dans les différents cas. Afin de rendre la comparaison entre ces scénarios la plus légitime et compréhensible possible, ils ont été construits par l'introduction de modifications minimales dans un cycle de référence calqué sur la situation française actuelle. La comparaison principale entre ces scénarios a été faite à l'équilibre, un état périodique de ces scénarios qui a été caractérisé précisément. Les propriétés générales de cet équilibre permettent d'en faire un outil de choix pour la comparaison de scénarios entre eux et l'analyse fine de leur différence.

Ces huit scénarios étudiés ont été simulés grâce au code MURE, un code couplant l'évolution des isotopes sous irradiation avec la résolution de l'équation de transport des neutrons par la méthode de Monte-Carlo. Devant l'ampleur des calculs nécessaires à la simulation de tous les scénarios considérés, seuls des calculs assemblages ont été effectués. Ce modèle simplifié permet des gains en temps de calculs très importants grâce à des simplifications dont l'effet sur les résultats et la physique des phénomènes étudiés a été quantifié. Ces simplifications ainsi que les quelques autres approximations effectuées induisent des biais non-négligeables sur les résultats de la

CONCLUSION

simulation de chaque scénario qui ont été analysés. Ces biais étant constants d’une stratégie à l’autre, la comparaison des résultats reste possible.

Devant l’amplitude des stratégies étudiées dans ce travail, nécessaire pour obtenir un panorama des possibilités de multi-recyclage du plutonium en REP, des hypothèses fortes ont été effectuées lors de leur construction et leur simulation afin de rendre leur comparaison la plus compréhensible possible.

Le cœur de la comparaison entre ces huit scénarios a été effectuée à l’équilibre. Calculer l’état de chacun des scénarios étudiés à l’équilibre est un problème complexe. Un indicateur numérique, χ , a été conçu afin de mesurer si un scénario est à l’équilibre. Suite à l’échec des méthodes basés sur des modèles physiques simplifiés pour calculer la valeur de ce paramètre à l’équilibre, une méthode numérique itérative a été développée et utilisée. Grâce à cette méthode nécessitant la simulation de plusieurs cycles par scénarios jusqu’à convergence de ceux-ci, l’état d’équilibre de chacun des huit scénarios étudiés a été calculé.

A partir de ces états d’équilibre, une comparaison des différents scénarios a été effectuée. Dans un premier temps, seuls des assemblages rassemblant des crayons combustibles identiques entre eux ont été utilisés. Dans ce cas, il a été observé que le faible taux de conversion des combustibles Thorium-Uranium conduit à une proportion faible de ce type d’assemblages dans le parc, ce qui conduit à un gain faible sur la consommation de ressource : seulement 22% avec le plus performant des cycles thoriés par rapport au cycle UOX ouvert, ce qui est très proche des 20% accessibles avec des stratégies comparables n’utilisant que le cycle uranium. L’utilisation d’assemblages homogènes conduit à l’utilisation d’assemblages thoriés où les isotopes de plutonium sont les fissiles majoritaires. Dans ces assemblages, le spectre est fortement durci, ce qui conduit à des inventaires importants en plutonium et à une production élevée d’américium. A cause de cet effet, le thorium ne permet pas de gain sur ces critères par rapport au cycle uranium seul. La stratégie utilisant seulement le cycle uranium qui a les inventaires les plus faibles et la production d’américium la plus faibles est le scénario multiUePu, qui met en œuvre un recyclage homogène du plutonium. Les inventaires et les productions d’américium de ce scénario sont plus faibles que ceux de tous les scénarios thoriés.

Les scénarios multiUPu et multiThUPu ont été transposés dans une stratégie de recyclage répartissant les différents types de combustible du parc au sein du

CONCLUSION

même assemblage, bien que restant dans des crayons séparés. Ces scénarios utilisant des assemblages hétérogènes permettent effectivement d'obtenir des résultats intermédiaires entre le scénario totalement homogène multiUePu et les scénarios avec des assemblages homogènes. Grâce à la thermalisation du flux neutronique vu par le plutonium recyclé, le scénario "multiThUPu crayon", permet d'outrepasser les effets inhérents à l'impossibilité de recycler le plutonium de façon homogène en utilisant le cycle thorium. Ce scénario permet d'obtenir des inventaires en cycle et des productions d'actinides mineurs plus faibles que le scénario multiUePu qui était le meilleur sur ces points parmi les scénarios utilisant des assemblages homogènes. Mais, les assemblages hétérogènes ne permettent pas de résoudre le problème du faible taux de conversion du cycle thorium. Les proportions de crayons contenant du combustible thorié restent proches des celles obtenues avec des assemblages homogènes et le thorium n'apporte pas non plus dans ce cas un gain significatif sur la consommation de ressource par rapport au cycle uranium.

Il n'est donc pas possible de tirer pleinement parti des avantages du thorium au niveau de la régénération et de la production d'actinides mineurs au sein de REP standards. Pour cela il est nécessaire d'utiliser des REP fortement modifiés afin d'optimiser leur possibilité de régénération en faisant varier significativement leur rapport de modération ou même de réacteurs complètement différents comme des réacteurs hyper-thermalisés tels que les CANDU.

Dans le but de permettre d'étendre la comparaison au-delà de l'état d'équilibre, nous avons pris part activement au développement du code CLASS. Dans le cadre de ce développement collaboratif, les deux difficultés majeures à la simulation de scénarios électronucléaire ont été étudiées : le modèle d'équivalence et le modèle d'irradiation. Le modèle d'équivalence permet de calculer la proportion d'élément fissile dans un combustible en fonction du vecteur isotopique de cet élément fissile, du burn-up voulu et du type de réacteur dans lequel le combustible sera irradié. Le modèle implémenté dans CLASS est basé sur une interpolation linéaire. Le modèle d'irradiation permet de calculer l'évolution de la composition du combustible lors de l'irradiation. Le modèle implémenté dans CLASS résout numériquement les équations de Bateman en utilisant des sections efficaces issues de bases de données nommées *DataBank*.

Ces *DataBank*, qui sont au cœur du modèle d'irradiation de CLASS, ont fait l'objet d'une étude spécifique. Un protocole de création a été mis en place afin

CONCLUSION

d'assurer que la *DataBank* ait une bonne représentativité des possibilités offertes par le cycle qu'elle recouvre. Ce protocole nécessite un long temps de calcul et le calcul assemblage a donc été utilisé pour les simulations d'irradiation. Il a été appliqué pour créer des *DataBank* associées à l'irradiation de combustible ThPu et ThU dans des REP. Des méthodes d'évaluation de la qualité de *DataBank* au sein du modèle d'irradiation de CLASS ont été développées. Elles ont été appliquées à la base ThU créée et ont montré que l'association de la *DataBank* avec le modèle d'irradiation de CLASS permet une bonne simulation des actinides majoritaires, mais que des écarts sont obtenus sur les actinides plus rares.

Grâce à ces *DataBank*, deux scénarios parmi ceux étudiés ont été simulés avec CLASS : les scénarios multiUPu et multiThU2. Des sources d'incertitude sont identifiées au sein des simplifications des modèles d'équivalence et d'irradiation ainsi que dans la façon dont les installations du parc sont reliées entre elles dans CLASS. Malgré ces erreurs induites par les modèles simplifiés, les parcs à l'équilibre calculés avec CLASS sont relativement proches de ceux obtenus avec la méthode itérative n'utilisant que MURE. De gros écarts sont tout de même observés surtout sur les isotopes nécessitant de nombreuses réactions pour être produits comme le ^{242}Pu ou les *Cm*. Grâce à l'analyse de ces écarts, on montre qu'ils proviennent principalement de la défaillance du modèle d'équivalence de la *DataBank* ThPu.

Même si le code CLASS est encore en développement et que des améliorations sont encore nécessaires, notamment au niveau du modèle d'équivalence, les modèles et les méthodes développés permettent déjà des premières analyses de scénarios qui mettent en lumière des problématiques spécifiques aux simulations de scénarios.

Liste des tableaux

1.1	les REP dans le Monde [3]	15
1.2	Vecteur isotopique typique du Plutonium issu d'un combustible UOX irradié jusqu'à 50 GWj/t[7, 8]	17
1.3	Comparaison des propriétés thermiques de l'uranium et du thorium [18].	30
2.1	Récapitulatif des scénarios étudiés	41
3.1	Décomposition de l'effet du bore sur la réactivité	61
4.1	Pente donnant l'évolution de k en fonction du Burn-up calculées à partir de la simulation de combustibles monoUPu et monoThPu. . . .	76
4.2	χ pour les combustibles monoUPu et monoThPu obtenu par application du modèle physique	77
5.1	Tableau de la répartition entre les différents types d'assemblage à l'équilibre	84
5.2	Types d'assemblages au sein des scénarios étudiés	86
5.3	Vecteurs isotopiques au sein des scénarios étudiés en début d'irradiation (voir texte).	87
5.4	Sections efficaces principales à l'équilibre (en barns) en milieu d'irradiation ($c = (n, \gamma)$, $f = (n, fission)$)	90
5.5	Sections efficaces d'intérêt pour la régénération dans les scénarios multiThUPu et multiThU	94

LISTE DES TABLEAUX

5.6	Indicateurs de Régénération dans les scénarios multiThUPu et multiThU	95
5.7	Paramètres basiques de sûreté à l'équilibre	104
5.8	Fractions de neutrons retardés pour les isotopes principaux des cycles étudiés[44].	105
5.9	Production d'actinides mineurs à l'équilibre en kg par GWe.an du parc entier (avec la production d' ^{241}Am produite par décroissance du ^{241}Pu au bout d'un temps très long)	108
5.10	Rejet de plutonium à l'équilibre en kg par GWe.an du parc entier pour les scénarios ne multirecyclant pas le plutonium.	109
6.1	Répartition entre les différents types de crayons à l'équilibre avec des assemblages hétérogènes	116
6.2	Sections efficaces principales à l'équilibre avec des assemblages hétérogènes (en barns).	117
6.3	η à l'équilibre avec des assemblages hétérogènes.	117
6.4	Paramètres basiques de sûreté à l'équilibre avec des assemblages hétérogènes.	121
7.1	Limites considérées sur les vecteurs isotopiques utilisés pour générer les <i>DataBank</i> ThU et ThPu en REP.	131
7.2	Coefficients d'équivalence entre les isotopes du Pu pour la <i>DataBank</i> ThPu	137
7.3	Illustration de la limite de la méthode des sections efficaces. 5 vecteurs plutonium différents aboutissent à la même concentration pour atteindre 50GWj/t alors que le burn-up réel, calculé par MURE, est très différent	138
7.4	Coefficients du modèle d'équivalence obtenus avec la méthode numérique itérative choisie pour la <i>DataBank</i> ThU.	143
7.5	Coefficients du modèle d'équivalence obtenus avec la méthode numérique itérative choisie pour la <i>DataBank</i> ThPu.	144
7.6	Équivalence par la méthode numérique itérative pour les vecteurs équivalents par la méthode des sections efficaces	145

TABLE DES TABLEAUX

7.7	Comparaison des erreurs moyennes sur la composition en fonction de la distance utilisée	152
8.1	Comparaison de la composition des parcs pour le scénario multiUPu à l'équilibre MURE et CLASS.	168
8.2	Comparaison de la composition des parcs pour le scénario multiThU à l'équilibre MURE et CLASS.	169
8.3	Comparaison de la composition des combustibles pour le scénario multiUPu à l'équilibre MURE et CLASS.	170
8.4	Comparaison de la production d'actinides mineurs pour le scénario multiThU à l'équilibre MURE et CLASS (kg par GWe.an)	173

TABLE DES TABLEAUX

Table des figures

1.1	Principe du cycle UOX ouvert	17
1.2	Comparaison de la radio-toxicité par ingestion (en Sv) de la stratégie de mono-recyclage avec le cycle UOX ouvert selon le temps après irradiation (en années).	19
1.3	Radiotoxicité par ingestion par pères d'un assemblage UOX utilisé	23
1.4	Chaleur résiduelle d'un combustible UOX utilisé	24
1.5	Neutrons disponibles après régénération pour les cycles thorium et uranium	28
2.1	Cycle du combustible mettant en jeu le recyclage du plutonium. Le combustible MOX considéré ici peut aussi bien être sur base uranium que sur base thorium	34
2.2	Scénario multiUePu. Les flux d'actinides valorisables mais non recyclé (uranium de retraitement) ne sont pas indiqués dans ce schéma	37
2.3	Scénario multiUPu. Les flux d'actinides valorisables mais non recyclé (uranium de retraitement) ne sont pas indiqués dans ce schéma	38
2.4	Scénario multiThUPu. Les flux d'actinides valorisables mais non recyclé (uranium de retraitement et thorium irradié) ne sont pas indiqués dans ce schéma	38
2.5	Scénario multiThU. Les flux d'actinides valorisables mais non recyclé (uranium de retraitement et thorium irradié) ne sont pas indiqués dans ce schéma	39
2.6	Scénario multiThU2. Les flux d'actinides valorisables mais non recyclé (uranium de retraitement et thorium irradié) ne sont pas indiqués dans ce schéma	40

TABLE DES FIGURES

2.7	Périodicité de la quantité des isotopes majeurs du Pu dans le scénario multiUPu à l'équilibre (voir 2.5.3).	42
3.1	Exemple de boucle dans l'évolution des noyaux sous irradiation : production de ^{240}Pu à partir de ^{240}Pu	47
3.2	Schéma de fonctionnement général de l'évolution dans MURE	50
3.3	Géométrie d'assemblage utilisée lors de notre étude. Volumes jaunes : caloporteur eau, Volumes verts : intérieurs des tubes guides rempli d'eau, Volumes rouges : combustibles	52
3.4	Comparaison de la réactivité moyenne d'un cœur UOX rechargé par quart à partir d'un calcul assemblage et de deux méthodes de calcul du k moyen	56
3.5	Distribution de la puissance selon l'axe vertical d'un assemblage [26] La puissance totale dans chaque dixième de crayon est indiquée, la somme des puissance dans toutes les zones donne la puissance totale du crayon considéré	57
3.6	Distribution de la puissance entre les différents assemblages d'un quart de cœur de REP chargé par quart [14]. Le centre se trouve dans le coin inférieur gauche.	58
3.7	Sensibilité au seuil en réactivité fin de cycle pour différents combustibles irradiés avec une gestion du cœur par quart	64
4.1	Schéma du cycle avec recyclage illustrant le paramètre χ	74
4.2	Modèle de prévision de l'évolution de k dans un combustible ThUPu (avec 0 ppm de bore)	76
4.3	Algorithme numérique de calcul de χ . Passage de l'itération n à l'itération n+1 pour une strate donnée	78
4.4	Fonction numérique utilisée pour l'ajustement de χ	80
4.5	Convergence de la valeur de χ pour l'ensemble des scénarios étudiés .	80
5.1	Répartition entre les différents types d'assemblage à l'équilibre	84
5.2	Inventaire d'actinide dans le cycle à l'équilibre pour les différents scénarios étudiés ainsi que pour le cas d'un parc 100% composé de réacteurs à neutrons rapides régénateurs (FBR pour Fast Breeder Reactors)	89

TABLE DES FIGURES

5.3	Comparaison des spectres neutroniques au milieu du cycle à l'équilibre	90
5.4	Relation entre le FIR de la deuxième strate et la proportion de la strate UOX dans le parc	96
5.5	Consommation de ressources naturelles à l'équilibre pour l'ensemble des scénarios étudiés.	99
5.6	Proportion des actinides d'intérêt pour la radioprotection dans les différents combustibles neufs à l'équilibre	101
6.1	Scénario UPu avec une homogénéité totale du combustible : multiUePu. Scénario déjà présenté en figure 2.2.	112
6.2	Scénario UPu avec une hétérogénéité au niveau de l'assemblage : multiUPu assemblage. Scénario équivalent au multiUPu du chapitre précédent 2.3.	113
6.3	Scénario UPu avec une hétérogénéité au niveau du crayon : multiUPu crayon.	114
6.4	Scénario ThUPu avec une hétérogénéité au niveau de l'assemblage : multiThUPu assemblage. Scénario équivalent au multiThUPu du chapitre précédent 2.4.	114
6.5	Scénario ThUPu avec une hétérogénéité au niveau du crayon : multiThUPu crayon	115
6.6	Comparaison des inventaires de fissiles dans le cycle à l'équilibre avec des assemblages homogènes et hétérogènes.	122
6.7	Production d'actinides mineurs à l'équilibre avec des assemblages hétérogènes	123
7.1	Exemple de cycle du combustible étudié avec CLASS.	128
7.2	Algorithme de génération d'une <i>DataBank</i>	133
7.3	Générer une <i>DataBank</i> avec un Burn-Up fixé	133
7.4	Répartition en Burn-up de la <i>DataBank</i> ThU finale. En comparaison des distributions montrée sur la figure 7.3, cette distribution est très resserrée	134
7.5	Schéma de principe du cœur de CLASS et apport de la <i>DataBank</i> pour construire un combustible et calculer son évolution	135

TABLE DES FIGURES

7.6	Comparaison des Modèle d'équivalence : proportion de plutonium dans le combustible pour atteindre 50GWj/t	146
7.7	Structure interne d'une EvolutionData.	147
7.8	Comparaison entre les coefficients de distance et les sections efficaces normalisées.	151
7.9	Comparaison entre la qualité de <i>DataBank</i> ThU avec des densités différentes	154
7.10	Corrélation entre l'erreur en début et en fin d'irradiation.	156
7.11	Répartition de l'erreur entre les isotopes	158
8.1	Scénario multiUPu utilisé avec CLASS	162
8.2	Scénario multiThU2 utilisé avec CLASS	162
8.3	Effet du nombre de réacteurs utilisés lors de la simulation du parc	164
8.4	Effet d'un assouplissement de l'ordre de chargement des réacteurs lors de la simulation du parc.	165
8.5	Effet du Burn Up utilisé lors de la génération de la DataBank	167
8.6	Comparaison de la composition des combustibles pour le scénario multiThU2 à l'équilibre MURE et CLASS.	172
8.7	Comparaison de la production d'actinides mineurs pour le scénario multiUPu à l'équilibre MURE et CLASS (kg par GWe.an).	173

Table des Acronymes

Areva : multinationale française du secteur de l'énergie, œuvrant principalement dans les métiers du nucléaire

BATH : Basic Approach of Thermal-Hydraulics (code de thermo-hydraulique intégré à MURE)

CANDU : CANada Deuterium Uranium

CEA : Commissariat à l'Energie Atomique et aux Energies Alternatives

CLASS : Core Library for Advanced Scenario Simulations

CNRS : Centre National de la Recherche Scientifique

COMPRIS : COMparaison des Modèles et PROpagation des Incertitudes dans les Scénarios (projet financé dans le cadre de NEEDS)

DRAGON : Code neutronique déterministe développé à l'École Polytechnique de Montréal, Canada

EDF : Electricité De France

EPR : European Pressurized Reactor

FIR : Fissile Inventory Ratio

IN2P3 : Institut National de Physique Nucléaire et de Physique des Particules

IPNO : Institut de Physique Nucléaire d'Orsay (CNRS/IN2P3)

IRSN : Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire

LNC : Laboratoire de Neutronique du Cycle (IRSN)

LPSC : Laboratoire de Physique Subatomique et Corpusculaire (CNRS/IN2P3)

M2C2 : Multiphysic and Monte Carlo Convergence issues in neutronic calculation (projet financé dans le cadre de NEEDS)

MCNP : Monte-Carlo N Particle

monoThPu : scénario mono-recyclant le plutonium venant d'UOX utilisé sur base thorium. 2 types d'assemblage dans le parc

monoThU : scénario mono-recyclant l'uranium venant de monoThPu utilisé sur base thorium. 3 types d'assemblage dans le parc

TABLE DES ACRONYMES

monoUPu	: scénario mono-recyclant le plutonium venant d'UOX utilisé sur base uranium appauvri. 2 types d'assemblage dans le parc
MOX	: Mixed OXyde
multiThPu	: scénario multi-recyclant le plutonium venant d'UOX utilisé mais pas l'uranium issu de la conversion sur base thorium. 2 types d'assemblage dans le parc
multiThU	: scénario multi-recyclant l'uranium venant de multiThPu utilisé sur base thorium. 3 types d'assemblage dans le parc
multiThU2	: scénario multi-recyclant l'uranium venant de monoThPu utilisé sur base thorium. 3 types d'assemblage dans le parc
multiThUPu	: scénario multi-recyclant le plutonium venant d'UOX utilisé et l'uranium issu de la conversion sur base thorium. 2 types d'assemblage dans le parc
multiUePu	: scénario multi-recyclant le plutonium sur base uranium enrichi. 1 type d'assemblage dans le parc
multiUPu	: scénario multi-recyclant le plutonium venant d'UOX utilisé sur base uranium appauvri. 2 types d'assemblage dans le parc
MURE	: MCNP Utility for Reactor Evolution
NEA	: Nuclear Energy Agency agence de l'OECD s'occupant des problématiques autour de l'énergie nucléaire
NEEDS	: Nucléaire, Energie, Environnement, Déchets, Société (défi interdisciplinaire du CNRS)
OECD	: Organisation for Economic Co-operation and Development
PLS	: Partial Least Square (méthode numérique de minimisation)
REP	: Réacteur à Eau Pressurisée
RNR	: Réacteur à Neutrons Rapides
UOX	: Uranium OXyde
URE	: Uranium Ré-Enrichi
URT	: Uranium de ReTraitement
USA	: United States of America

Bibliographie

- [1] Physics of plutonium recycling. Technical report, OECD - NEA, 1995.
- [2] Feasibility study of a proliferation resistant fuel cycle for lwr-based transmutation of transuranics. Technical report, Argonne National Laboratory, 2002.
- [3] Nuclear power reactors in the world. Technical report, IAEA -RDS-2/31, 2011.
- [4] Uranium 2011 : Resources, production and demand. Technical report, OECD - NEA, 2012.
- [5] Paul Reuss. *L'épopée de l'énergie nucléaire : une histoire scientifique et industrielle*. EDP SCIENCES, 2007.
- [6] P. Fortier. Overview of used fuel transport casks. In *NWTRB, Salt Lake city, USA*, 2011.
- [7] International comparison of a depletion calculation benchmark on fuel cycle issues, results from phase 1 on UOX fuels. Technical report, OECD - NEA, 2013.
- [8] Vasile A. Youinou G. Plutonium multirecycling in standard pwrs loaded with evolutionary fuels. *Nuclear science and engineering*, 2005.
- [9] Rapport sur la gestion durable des matières nucléaires - 1 - la gestion des matières radioactives avec les réacteurs de 4e génération. Technical report, CEA, 2012.
- [10] Nuclear fuel cycle transition scenario studies, status report. Technical report, OECD - NEA, 2009.
- [11] Rouault J. Gauche F. French sfr r&d program and design activities for sfr prototype astrid. *Energy Procedia*, 2010.
- [12] Brizi J. *Cycles uranium et thorium en réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium. Aspects neutroniques et déchets associés*. PhD thesis, Université Paris-Sud, 2010.

- [13] Wilson J.N. Leniau B. A new spent fuel source characterization code CHARS and its application to the shielding of the thorium cycle. *Progress in Nuclear Science and Technology*, 2013.
- [14] Guillemain P. *Recherche de la haute conversion en cycle Thorium dans les réacteurs CANDU et REP*. PhD thesis, Institut polytechnique de Grenoble, 2009.
- [15] Vallet V. *Recherche de l'économie de ressources naturelles par des études de conception de coeur de réacteurs à eau légère et à haut facteur de conversion à combustibles mixtes thorium/uranium/plutonium*. PhD thesis, Institut polytechnique de Grenoble, 2012.
- [16] Leniau B. *Caractérisation des sources radioactives du cycle du combustible, Applications au cycle du thorium, Synthèse de l' ^{232}U en combustibles solides*. PhD thesis, Université Paris-Sud, 2013.
- [17] Advanced fuel pellet materials and fuel rod design for water cooled reactors. Technical report, IAEA, 2010.
- [18] Thermophysical properties database of materials for light water reactors and heavy water reactors. Technical report, IAEA -TECDOC-1496, 2006.
- [19] Rapport sur la gestion durable des matières nucléaires - 2 - séparation-transmutation des éléments radioactifs à vie longue. Technical report, CEA, 2012.
- [20] Golfier H. Grouiller J.P. Guillet J.L. Poinot Ch. Youinou G. Zaetta A. Vasile A., Dufour Ph. Advanced fuels for plutonium management in pressurized water reactors. *Journal of Nuclear Materials*, 2003.
- [21] Bouvier et al. Multiple recycling of MOX in LWR. In *European Nuclear Conference*, 2012.
- [22] Country nuclear fuel cycle profiles - second edition. Technical report, IAEA, 2005.
- [23] Méplan O. et al. MURE : MCNP utility for reactor evolution - description of the methods, first applications and results. In *European Nuclear Conference*, 2005.
- [24] NEA website. The MCNP utility for reactor evolution (MURE), 2009. <http://www.oecd-neo.org/tools/abstract/detail/nea-1845>.
- [25] Michel-Sendis F. *Contribution à l'étude de la production d' ^{233}U en combustible MOX-ThPu en réacteur à eau sous pression. Application aux scénarios de*

BIBLIOGRAPHIE

- transition vers des concepts isogénérateur Th 233U en spectre thermique. Développement du code MURE d'évolution du combustible.* PhD thesis, Université Paris-Sud, 2006.
- [26] Capellan N. *Couplage 3D neutronique thermohydraulique. Développement d'outils pour les études de sûreté des réacteurs innovants.* PhD thesis, Université Paris-Sud, 2009.
- [27] Sogbadji R. *Neutronic study of the mono-recycling of americium in PWR and of the core conversion in MNSR using the MURE code.* PhD thesis, Université Paris-Sud and University of GHANA, 2012.
- [28] X-5 Monte Carlo Team. *MCNP - A General N-Particle Transport Code, Version 5.* LA-UR-03-1987, 2003.
- [29] Onillon A. *Application de la méthode Monte-Carlo à l'estimation des erreurs systématiques associées à la prédiction des taux de fission de réacteurs pour l'expérience Double Chooz et à la simulation de colis de déchets nucléaires.* PhD thesis, Ecole des Mines de Nantes, 2014.
- [30] Courau T. *Éléments de transport neutronique : Schéma industriel appliqué aux calculs de réacteurs.* Technical report, ENSPG, 2008.
- [31] Bidaud A. Capellan N. Chambon R. David S. Meplan O. Wilson J.N. Nuttin A., Guillemin P. Comparative analysis of high conversion achievable in thorium-fueled slightly modified CANDU and PWR reactors. *Annals of Nuclear Energy*, 2012.
- [32] E. Fridman D. Baldova. High conversion th-u233 fuel assembly for current generation of pwr. In *Serpent International Users Group Meeting*, 2011.
- [33] Pellissier-Tanon A. Leny J.C. Standardized french pwr programs and the application of mechanical analysis. *Nuclear Engineering and Design*, 2003.
- [34] S. David X. Doligez C. El Mhari O. Méplan A. Nuttin, N. Capellan. Facing challenges for monte carlo analysis of full pwr cores : Towards optimal detail level for coupled neutronics and proper diffusion data for nodal kinetics. In *Joint International Conference on Supercomputing in Nuclear Applications and Monte Carlo*, 2013.
- [35] Dumonteil E. *Marches aléatoires branchantes et simulation monte-carlo du transport des neutrons.* Technical report, Université Paris-Sud, 2014.
- [36] Dumonteil E. et al. Particle clustering in monte carlo criticality simulations. *Annals of Nuclear Energy*, 2014.

BIBLIOGRAPHIE

- [37] Dumonteil E. et Courau T. Dominance ratio assessment and monte carlo criticality simulations : Dealing with high dominance ratio systems. *Nuclear Technology*, 2010.
- [38] NEEDS. Récapitulatifs des projets du programme systèmes nucléaires et scénarios du défi needs, 2013. <http://www.irsn.fr/FR/Larecherche/Organisation/Collaborations/Needs/Documents/Needs-systeme-nucleaires-2013.pdf>.
- [39] Massara S. David S. Impact of p and t on nuclear scenarios with gen iv and adss. In *TCADS-2*, 2013.
- [40] Garnier J.C. La résorption des inventaires en fin de parc : les possibilités des rnr. In *Atelier NEEDS*, 2013.
- [41] Oelrich I. SWU calculator on federation of american scientists website, 2009. www.fas.org.
- [42] Implications of partitioning and transmutation in radioactive waste management. Technical report, IAEA, 2004.
- [43] AREVA. EPR reactor : the very high power reactor, 2013. <http://www.areva.com/EN/global-offer-419/epr-reactor-one-of-the-most-powerful-in-the-world.html>.
- [44] Chadwick M.B. et al. *Evaluated Nuclear Data File ENDF/B-VII.0*. Nuclear Data Sheets, 2006.
- [45] David S. L'énergie nucléaire du futur : physique de la régénération et de la transmutation des déchets. Technical report, Université Paris-Sud, 2014.
- [46] Fridman E. Shwageraus E. Baldova D. High conversion th-u233 fuel for current generation of pwrs : Part i – assembly level analysis. *Annals of Nuclear Energy*, 2014.
- [47] Plutonium management in the medium term, a review by the oecd/nea working party on the physics of plutonium fuels and innovative fuel cycles. Technical report, OECD - NEA, 2002.
- [48] Thiolliere N. Ernoult M. David S. Doligez X. Bidaud A. Meplan O. Montesanto R. Bellot G. Clavel J.B. Duhamel I. Miss J. Mouginot B., Leniau B. Core library for advanced scenario simulation, C. L. A. S. S. : principle and application. In *PHYSOR - Kyoto, Japan*, 2014.
- [49] Paul Reuss. *Neutron Physics*. EDP SCIENCES, 2008.

- [50] J. F. Durand. Pls and multivariate additive spline modeling. In *International symposium PLS 99 - Montreuil, France*, 1999.
- [51] Davidon W. C. Variable metric method for minimization. *SIAM Journal on Optimization*, 1991.

BIBLIOGRAPHIE

Gestion avancée du Plutonium en REP

Complémentarité des cycles thorium et uranium

Marc ERNOULT

Résumé

Dans le but d'étudier les possibilités de gestion avancée du plutonium dans les réacteurs actuels, 8 stratégies de multi-recyclage du plutonium dans des REP sont étudiées. Suite à des études à l'équilibre, il a été montré que, en utilisant des assemblages homogènes, l'utilisation du thorium ne permet pas de réduire les inventaires de plutonium en cycle à l'équilibre ni la production d'américium. En répartissant les différents types de combustibles au sein d'un même assemblage, certaines stratégies thoriées permettent cependant d'obtenir des inventaires et des productions d'américium inférieur aux meilleures stratégies utilisant uniquement le cycle uranium. Cependant dans tous les cas, le faible taux de conversion des combustibles thoriés en REP conduit à l'impossibilité de faire baisser la consommation de ressources de plus de quelques pour-cent par rapport aux stratégies sans thorium. Afin d'étudier la transition, une participation active au développement du code de scénario CLASS a eu lieu. Elle a aboutie à la simulation de deux scénarios parmi ceux étudiés à l'équilibre avec CLASS. Ces simulations ont montrées des écarts avec les scénarios simulés précédemment. Les causes majeures de ces écarts ont été identifiées et quantifiées.

Mots clés : plutonium, multi-recyclage, REP, scénario, thorium, CLASS, MURE

Abstract

In order to study the possibility of advanced management of plutonium in existing reactors, 8 strategies for plutonium multi-recycling in PWRs are studied. Following equilibrium studies, it was shown that, by using homogeneous assemblies, the use of thorium cannot reduce the plutonium inventory of equilibrium cycle or production of americium. By distributing the different fuel types within the same assembly, some thoriated strategies allow however lower inventories and lower production americium best strategies using only the uranium cycle. However, in all cases, low fuel conversion theories in PWRs makes it impossible to lower resource consumption more than a few percent compared to strategies without thorium. To study the transition, active participation in development of the scenario code CLASS has been taken. It led to the two simulation scenarios among those studied in equilibrium with CLASS. These simulations have shown discrepancies with previously simulated scenarios. The major causes of these differences were identified and quantified.

Keywords : plutonium, multirecycling, PWR, scenario, thorium, CLASS, MURE