



HAL
open science

Amélioration de la précision du formulaire DARWIN2.3 pour le calcul du bilan matière en évolution

Axel Rizzo

► **To cite this version:**

Axel Rizzo. Amélioration de la précision du formulaire DARWIN2.3 pour le calcul du bilan matière en évolution. Physique Nucléaire Expérimentale [nucl-ex]. Aix Marseille Université, 2018. Français. NNT: . tel-02148659

HAL Id: tel-02148659

<https://theses.hal.science/tel-02148659>

Submitted on 5 Jun 2019

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

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



UNIVERSITE D'AIX-MARSEILLE

ECOLE DOCTORALE 352 – PHYSIQUE ET SCIENCES DE LA MATIERE

Laboratoire d'accueil : CEA / DEN / CAD / DER / SPRC / Laboratoire d'Etudes des Cœurs et du Cycle

THÈSE PRÉSENTÉE POUR L'OBTENTION DU GRADE DE DOCTEUR
Discipline : Énergie, Rayonnement, Plasma

Axel RIZZO

Amélioration de la précision du formulaire DARWIN2.3
pour le calcul du bilan matière en évolution

Soutenue le 12/10/2018 devant le jury :

Philippe DESSAGNE	CNRS / IPHC	Rapporteur
Grégoire KESSEDJIAN	CNRS / LPSC	Rapporteur
Elsa MERLE	CNRS / LPSC	Examinateur
José BUSTO	CNRS / CPPM	Examinateur
Gabriele GRASSI	Orano Cycle	Invité
Claire VAGLIO-GAUDARD	CEA Cadarache	Encadrant de thèse
Gilles NOGUERE	CEA Cadarache	Directeur de thèse

Numéro national de thèse/suffixe local : 2018AIXM0306/032ED352

Cette page est laissée blanche intentionnellement

RESUME

Le formulaire de calcul DARWIN2.3, basé sur l'évaluation des données nucléaires JEFF-3.1.1, est dédié aux applications du cycle du combustible nucléaire. Il est validé expérimentalement pour le calcul du bilan matière par comparaison avec des mesures de rapports isotopiques réalisées sur des tronçons de combustibles irradiés en réacteur de puissance. Pour certains nucléides d'intérêt pour le cycle du combustible, la validation expérimentale montre que le calcul de la concentration en évolution pourrait être amélioré. C'est dans ce contexte que les travaux de thèse ont été menés : après s'être assuré que le biais Calcul / Expérience (C/E) est majoritairement dû aux données nucléaires, deux voies d'amélioration du calcul du bilan matière sont proposées et étudiées. La première voie d'amélioration s'attache à la ré-estimation des données nucléaires par assimilation des données intégrales. La deuxième voie d'amélioration consiste à proposer de nouvelles expériences pour valider les données nucléaires impliquées dans la formation de nucléides pour lesquels on ne dispose pas d'expérience pour valider le calcul de la concentration avec DARWIN2.3.

Dans un premier temps, une étude d'assimilation des données intégrales provenant de la validation expérimentale du calcul du bilan matière avec DARWIN2.3 a été réalisée avec le code d'évaluation des données nucléaires CONRAD. Celle-ci repose sur l'ajustement bayésien des données nucléaires impliquées dans la formation de nucléides d'intérêt pour le cycle du combustible, et sur une méthode de marginalisation des incertitudes des données nucléaires non-ajustées. Les sources d'incertitudes associées aux écarts C/E de la base de données expérimentales sont au préalable combinées pour produire une matrice de corrélation entre ces C/E, utilisée lors de l'ajustement bayésien. Ce processus conduit à la ré-estimation de certaines données nucléaires. Des recommandations d'évolution d'évaluation, qui découlent de l'analyse de ces travaux, sont effectuées. Elles constituent le retour d'expérience du cycle du combustible pour la validation des données nucléaires. Ces recommandations concernent majoritairement les sections efficaces de capture (U, Pu, Am, Cm, Rh, Eu) mais également les rendements cumulés de fission thermique (Ru, Cs, Ce) des actinides majeurs. Nous montrons que ces recommandations permettent d'améliorer significativement le calcul de la concentration d'actinides et de produits de fission d'intérêt pour le cycle du combustible.

Dans un deuxième temps, une étude de conception d'une expérience dédiée à la validation des sections efficaces des réactions de formation du ^{14}C , à savoir $^{14}\text{N}(n,p)$ et $^{17}\text{O}(n,\alpha)$, a été menée. Celle-ci consiste en l'irradiation de la mélamine $\text{C}_3\text{H}_6\text{N}_6$, riche en azote, et de l'eau enrichie en ^{17}O , afin de produire du ^{14}C , par la suite mesuré par scintillation liquide. Les travaux ont démontré la faisabilité d'une telle expérience sur le réacteur MINERVE, aujourd'hui à l'arrêt définitif. Les résultats pourront toutefois servir de base pour la conception d'un programme similaire sur un autre réacteur expérimental.

Mots clés : cycle du combustible, données nucléaires, DARWIN2.3, bilan matière, assimilation des données intégrales, CONRAD, ^{14}C .

ABSTRACT

The DARWIN2.3 calculation package, based on the use of the JEFF-3.1.1 nuclear data library, is devoted to nuclear fuel cycle studies. It is experimentally validated for fuel inventory calculation thanks to dedicated isotopic ratios measurements realized on irradiated fuel rod cuts. For some nuclides of interest for the fuel cycle, the experimental validation work points out that the concentration calculation could be improved. The PhD work was done in this framework: having verified that calculation-to-experiment (C/E) biases are mainly due to nuclear data, two ways of improving fuel inventory calculation are proposed and investigated. They consist on one hand in improving nuclear data using the integral data assimilation technique, and on the other hand in proposing new experiments to validate nuclear data involved in the buildup of nuclides for which there is no post-irradiation examination available to validate DARWIN2.3 fuel inventory calculation.

At first, an integral assimilation of the data coming from the experimental validation of fuel inventory calculation with DARWIN2.3 was carried out using the CONRAD code dedicated to nuclear data evaluation. It relies on a Bayesian approach that allows fitting nuclear data involved in the buildup of nuclides of interest for the fuel cycle, and on an analytic marginalization technique that allows accounting for uncertainties on non-fitted nuclear data. The sources of uncertainties associated to the C/E values were combined beforehand in order to produce a correlation matrix between C/E values to be used during the adjustment procedure. This process leads to re-estimating some nuclear data. Based on the analysis of these trends, nuclear data evaluations can be recommended. They represent the fuel cycle studies feedback for nuclear data validation. These recommendations mainly concern capture cross-sections (U, Pu, Am, Cm, Rh, Eu), but also thermal cumulative fission yields (Ru, Cs, Ce) of major actinides. It was shown that these recommendations improve significantly the buildup of actinides and fission products of interest for the fuel cycle.

Then, the design of an experiment dedicated to the validation of the cross-sections involved in ^{14}C buildup, namely $^{14}\text{N}(n,p)$ and $^{17}\text{O}(n,\alpha)$, was investigated. It consists in irradiating melamine ($\text{C}_3\text{H}_6\text{N}_6$) and ^{17}O -enriched water in order to produce ^{14}C , to be measured thanks to a liquid scintillation process. Studies demonstrate the feasibility of such an experiment in the MINERVE reactor, the latter being permanently shut down today. The obtained results can still be reused for the design of a new experimental program that can be carried out in another experimental reactor.

Keywords: fuel cycle, nuclear data, DARWIN2.3, fuel inventory, integral data assimilation, CONRAD, ^{14}C .

REMERCIEMENTS

Je tiens à remercier en tout premier lieu Jean-Christophe Bosq et Philippe Dardé à la tête du SPRC ainsi que Romain Eschbach, chef du LE2C, pour m'avoir accueilli et permis de réaliser cette thèse au sein de leurs équipes. Je remercie chaleureusement l'ensemble des membres du jury de thèse, Elsa Merle, José Busto, Philippe Dessagne et Grégoire Kessedjian pour l'attention qu'ils ont porté à mes travaux. Leurs critiques constructives et leurs conseils sur le manuscrit m'ont été très précieux.

Je remercie Claire Vaglio-Gaudard et Gilles Noguère pour leur soutien dans les bons moments comme dans les moments de doute, pour leur pédagogie, leur patience, et leurs nombreux conseils au cours de ces trois ans. Je tiens également à remercier l'équipe Orano qui a suivi mes aventures, en particulier Julie-Fiona Martin et Gabriele Grassi qui ont assuré le co-encadrement de ma thèse, mais aussi Agnès Launay pour son intérêt pour mes travaux. Les échanges riches que nous avons pu avoir ainsi que leurs conseils ont été un véritable atout pendant ces trois ans.

Je remercie également l'ensemble de mes collègues du SPRC qui m'ont apporté leur aide pendant ces travaux. Je pense en particulier à David, Coralie, Pierre L, Vanessa, Pascal, Pierre T, Yannick, Jean-François L et Olivier S.

J'en viens à remercier les personnes qui ont participé à créer une ambiance propice à mon épanouissement personnel et professionnel. J'ai une pensée particulière pour mes frères d'armes du bataillon « Thèse SPRC 2018 », Lino, Julien, Sylvain, Virginie, Ludo et Paul, avec qui j'ai pris beaucoup de plaisir à échanger pendant ces trois ans. J'ajoute une mention spéciale pour le bureau des Bouts d'Choux®, que nous avons occupé avec Jordan, Maxime et Paul pendant une année mémorable. Plus généralement, je remercie les thésards et stagiaires, passés et actuels, qui ont participé de près ou de loin à cette aventure, avec entre autres Edwin, David Freynet, Nans, Valentin, Timothée, Paul Ros, Léo Fautrat, Aliénor Noguès, Aurélie, Quentin Leroux, Damien Reynaud, et Elias Vandermeersch. Plus personnellement, je remercie mes joyeux compagnons jamais avarés de sorties et vadrouilles en tout genre dans la région : Alix, Tangi, Kris, ~~Lapinou~~ Louis, Benoît, Thomas, et de nouveau Paul, Ludo, Virginie, Jordan, Maxime.

Enfin, je remercie ma famille et en particulier mes parents pour leur soutien sans faille au quotidien dans tous mes projets.

SOMMAIRE

RESUME	III
ABSTRACT	IV
REMERCIEMENTS	V
SOMMAIRE	VI
LISTE DES TABLEAUX	VIII
LISTE DES FIGURES	XI
INTRODUCTION GENERALE	- 1 -
1. CHAPITRE 1 : FORMULAIRE DARWIN2.3 – ANALYSES ET BESOINS D’AMELIORATION DU CALCUL DU BILAN MATIERE	- 7 -
1.1. Le formulaire DARWIN2.3	- 8 -
1.1.1. Présentation générale	- 8 -
1.1.2. Processus VVQI.....	- 15 -
1.2. Base de données de validation expérimentale du calcul du bilan matière dans les REP	- 18 -
1.3. Amélioration du calcul du bilan matière avec DARWIN2.3 pour les REP	- 21 -
1.3.1. Résultats de la validation expérimentale du formulaire DARWIN2.3.....	- 21 -
1.3.2. Proposition de liste de nucléides dont le calcul est à améliorer	- 24 -
1.3.3. Voies d’amélioration.....	- 25 -
2. CHAPITRE 2 : SOURCES D’INCERTITUDES PRISES EN COMPTE POUR L’ASSIMILATION DES DONNEES INTEGRALES	- 27 -
2.1. Les données nucléaires	- 28 -
2.1.1. Sections efficaces.....	- 28 -
2.1.2. Rendements de fission	- 33 -
2.1.3. Périodes radioactives.....	- 35 -
2.1.4. Rapport d’embranchement	- 35 -
2.1.5. Rapport isomérique	- 35 -
2.1.6. Données nucléaires sans incertitude	- 36 -
2.2. Expériences de Post-Irradiation	- 38 -
2.2.1. Incertitude expérimentale.....	- 39 -
2.2.2. Température du combustible	- 40 -
2.2.3. Température du modérateur	- 41 -
2.2.4. Incertitude sur le burnup.....	- 42 -
2.3. Incertitudes de modélisation	- 43 -
2.3.1. Estimation de l’impact du schéma de calcul CYCLE2008-REP	- 43 -
2.3.2. Estimation de l’impact du phénomène d’upscattering résonant.....	- 49 -
2.4. Combinaison des incertitudes	- 56 -
2.4.1. Présentation de la méthode AGS	- 56 -
2.4.2. Construction de la matrice de corrélation avec la méthode AGS	- 56 -

3. CHAPITRE 3 : ASSIMILATION DES DONNEES INTEGRALES.....	- 61 -
3.1. Méthode utilisée pour l'assimilation des données intégrales	- 62 -
3.1.1. Méthode d'ajustement	- 62 -
3.1.2. Méthode de marginalisation	- 65 -
3.2. Mise en œuvre de la méthode d'assimilation sur la validation expérimentale de DARWIN2.3.....	- 67 -
3.2.1. Description de la démarche	- 67 -
3.2.2. Détermination des paramètres de modèle et choix des paramètres à ajuster	- 68 -
3.2.3. Calculs de sensibilités des concentrations aux données nucléaires	- 72 -
3.2.4. Traitement des incertitudes lors de l'assimilation	- 75 -
3.3. Résultats de l'assimilation de la validation expérimentale de DARWIN2.3	- 77 -
3.3.1. Synthèse des tendances obtenues et analyse critique	- 78 -
3.3.2. Focus sur les tendances concernant l'amélioration du calcul du ²⁴⁴ Cm et de l' ¹⁵⁴ Eu	- 82 -
3.3.3. Recommandations pour la prochaine bibliothèque européenne	- 100 -
3.4. Impact des recommandations sur le calcul du bilan matière	- 103 -
4. CHAPITRE 4 : VALIDATION DES SECTIONS EFFICACES DE FORMATION DU ¹⁴C.....	- 111 -
4.1. Généralités sur le ¹⁴C.....	- 112 -
4.2. Description de l'expérience	- 114 -
4.2.1. Présentation générale.....	- 115 -
4.2.2. Optimisation du dispositif expérimental	- 118 -
4.3. Présentation des résultats de calcul	- 124 -
4.3.1. Calcul du flux avec TRIPOLI-4®.....	- 124 -
4.3.2. Résultats obtenus	- 128 -
5. CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES	- 133 -
ANNEXE A. PARAMETRES MARGINALISES DANS L'ASSIMILATION DES DONNEES INTEGRALES.....	- 139 -
ANNEXE B. ÉVOLUTION DES ECARTS C/E AVEC LES TENDANCES OBTENUES APRES AJUSTEMENT ET MARGINALISATION AVEC CONRAD	- 143 -
BIBLIOGRAPHIE	- 193 -

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1.1 – Base de données expérimentales utilisée pour la validation expérimentale du calcul du bilan matière avec le formulaire DARWIN2.3 dans les REL	20
Tableau 1.2 - Tendances significatives à 2σ observées sur le calcul de la concentration des actinides avec le formulaire DARWIN2.3.....	22
Tableau 1.3 - Tendances significatives à 2σ observées sur le calcul de la concentration des produits de fission avec le formulaire DARWIN2.3	23
Tableau 1.4 - Proposition de liste de nucléides dont le calcul est à améliorer dans DARWIN2.3.....	24
Tableau 2.1 – Liste des isotopes présent dans COMAC-V2.0 et utilisés dans cette thèse, et origine de la matrice de covariance pour les sections efficaces.....	31
Tableau 2.2 – Comparaison des incertitudes à 1 groupe produites avec différents flux de pondération pour la capture de ^{238}U	32
Tableau 2.3 - Incertitudes à 1σ des rendements cumulés de fission thermique des principaux actinides sur les isotopes ^{145}Nd , ^{146}Nd , ^{148}Nd , ^{150}Nd dans JEFF-3.1.1.....	34
Tableau 2.4 - Comparaison des valeurs de sections efficaces qui n'ont pas d'incertitude avec les autres évaluations internationales (σ_{moy} : section à 1 groupe condensée à 900K avec NJOY)	37
Tableau 2.5 - Valeurs d'incertitudes retenues pour les rapports isomériques sans incertitude dans JEFF-3.1.1.....	37
Tableau 2.6 - Ecart C/E et incertitudes à 1σ associés au calcul du ratio $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ avec DARWIN2.3.....	39
Tableau 2.7 – Comparaison du bilan matière à 40GWj/t pour une cellule REP UOX à 3,7% entre APOLLO2 / CYCLE2008-REP et TRIPOLI-4®.....	47
Tableau 2.8 – Comparaison du bilan matière à 40GWj/t pour une cellule REP MOX à teneur Pu 5,3% entre APOLLO2 / CYCLE2008-REP et TRIPOLI-4®.....	48
Tableau 2.9 – Comparaison du bilan matière à 40GWj/t pour une cellule REP UOX à 3,7% avec et sans upscattering résonant	54
Tableau 2.10 – Comparaison du bilan matière à 40GWj/t pour une cellule REP MOX à teneur Pu 5,3% avec et sans upscattering résonant.....	55
Tableau 2.11 – Liste des sources d'incertitudes associées aux écarts Calcul-Expérience et traitement de ces incertitudes pour l'étude	57
Tableau 3.1 - Voies de formation typiques du ^{244}Cm dans les combustibles REP UOX et MOX	69
Tableau 3.2 - Paramètres de modèle ajustés pour l'étude d'assimilation des données intégrales.....	71
Tableau 3.3 - Comparaison des sensibilités calculées avec CYRUS / APOLLO2 pour une cellule UOX enrichie à 4,5% à 40 GWj/t	73

Tableau 3.4 - Coefficients de sensibilité de la concentration en ^{244}Cm aux données nucléaires impliquées dans sa formation pour un combustible UOX et un combustible MOX.....	- 74 -
Tableau 3.5 - Résultats d'assimilation pour $^{244}\text{Cm}(n,\gamma)$ exprimés en % par rapport à la section JEFF-3.1.1 – incertitudes données à 1σ	- 76 -
Tableau 3.6 - Coefficients de corrélation <i>a posteriori</i> entre les paramètres ajustés x de la chaîne de formation du ^{244}Cm	- 76 -
Tableau 3.7 - Coefficients de corrélation <i>a posteriori</i> après marginalisation entre les paramètres ajustés x de la chaîne de formation du ^{244}Cm	- 77 -
Tableau 3.8 - Synthèse des résultats obtenus par assimilation des données intégrales – Incertitudes à 1σ	- 80 -
Tableau 3.9 - Résultats d'assimilation des données intégrales obtenus pour les données nucléaires impliquées dans le calcul du ^{244}Cm	- 82 -
Tableau 3.10 - Valeurs des paramètres intégraux et valeur à 1 groupe à 900K de la section de capture du ^{239}Pu dans différentes évaluations internationales	- 83 -
Tableau 3.11 - Valeurs des paramètres intégraux et valeur à 1 groupe à 900K de la section de capture du ^{240}Pu dans différentes évaluations internationales	- 86 -
Tableau 3.12 - Valeurs des paramètres intégraux et valeur à 1 groupe à 900K de la section de capture du ^{242}Pu dans différentes évaluations internationales	- 88 -
Tableau 3.13 - Valeurs des paramètres intégraux et valeur à 1 groupe à 900K de la section de capture du ^{243}Am dans différentes évaluations internationales	- 89 -
Tableau 3.14 - Valeurs des paramètres intégraux et valeur à 1 groupe à 900K de la section de capture du ^{244}Cm dans différentes évaluations internationales	- 90 -
Tableau 3.15 - Résultats d'assimilation des données intégrales obtenus pour les données nucléaires impliquées dans le calcul de ^{154}Eu	- 93 -
Tableau 3.16 - Écarts (C/E - 1) issus de la littérature pour la réaction $^{153}\text{Eu}(n,\gamma)$	- 93 -
Tableau 3.17 - Mesures de section efficace de capture de ^{153}Eu au point thermique.....	- 95 -
Tableau 3.18 - Résultats d'assimilation des données intégrales obtenus pour les données nucléaires impliquées dans le calcul de ^{154}Eu - traitement à deux groupes de $^{153}\text{Eu}(n,\gamma)$ -	95 -
Tableau 3.19 - Valeurs des paramètres intégraux et valeur à 1 groupe à 900K de la section de capture de ^{153}Eu dans différentes évaluations internationales.....	- 95 -
Tableau 3.20 - Valeurs des paramètres intégraux et valeur à 1 groupe à 900K de la section de capture de ^{154}Eu dans différentes évaluations internationales	- 97 -
Tableau 3.21 - Recommandations issues des travaux d'assimilation de données intégrales avec CONRAD pour les rendements cumulés de fission thermique	- 101 -
Tableau 3.22 - Recommandations d'évaluation issues des travaux d'assimilation de données intégrales avec CONRAD pour les sections efficaces.....	- 102 -
Tableau 3.23 – Impact des évaluations recommandées sur le calcul du bilan matière en évolution par rapport à un calcul réalisé avec JEFF-3.1.1	- 104 -
Tableau 4.1 - Contribution à la production en ^{14}C sous spectre REP-UOX par réaction et par domaine énergétique avec les données de JEFF-3.1.1.....	- 114 -
Tableau 4.2 - Dimension des conteneurs de matière à irradier en aluminium.....	- 123 -
Tableau 4.3 - Données expérimentales MAESTRO pour la normalisation.....	- 126 -

Tableau 4.4 - Résultats des calculs d'activité du ^{14}C et du ^3H en fonction du matériau irradié et de la durée d'irradiation.....	- 129 -
Tableau 4.5 – Comparaison de l'activité en ^{14}C induite par activation des échantillons et des structures du réacteur MINERVE pour 48h d'irradiation	- 130 -
Tableau 5.1 - Résumé des tendances significatives à 1σ obtenues par assimilation des données intégrales de la validation expérimentale de DARWIN2.3	- 135 -
Tableau A.1 - Liste des paramètres marginalisés lors de l'assimilation des données intégrales, et incertitudes associées (à 1σ)	- 139 -

LISTE DES FIGURES

Figure 0.1 – Exemple d’un cycle du combustible mettant en œuvre le retraitement et le recyclage du combustible irradié.....	- 2 -
Figure 0.2 – Principe schématique de la validation expérimentale du calcul de l’inventaire isotopique d’un combustible REP avec DARWIN2.3	- 3 -
Figure 1.1 – Trajet [EO] d’un neutron n dans un milieu M	- 10 -
Figure 1.2 – Principe schématique d’un calcul d’évolution	- 13 -
Figure 1.3 – Diagramme du formulaire DARWIN2.3 pour les calculs d’évolution en REP -	- 15 -
Figure 1.4 – Diagramme de la méthode de Vérification, Validation, Quantification des incertitudes d’un formulaire de calcul (DV = Domaine de Validation ; DA = Domaine d’Application)	- 17 -
Figure 2.1 – Section efficace de capture de l’ ²³⁸ U en fonction de l’énergie du neutron incident dans JEFF-3.1.1.....	- 29 -
Figure 2.2 – Matrice de corrélation capture / capture de l’ ²³⁸ U à 26 groupes issue de COMAC-V2.0	- 31 -
Figure 2.3 - Schéma de décroissance du ¹⁴⁸ Cs, repris de (Terranova, 2016).....	- 34 -
Figure 2.4 - Évolution du rapport isomérique de la capture de l’ ²⁴¹ Am vers l’ ^{242g} Am en fonction de l’énergie dans JEFF-3.1.1.....	- 35 -
Figure 2.5 - Profil radial de température typique pour un combustible UOX en REP (Yarmohammadi, 2017).....	- 40 -
Figure 2.6 – Principe d’un calcul TRIPOLI-4® en évolution : la technique des répliques indépendantes.....	- 44 -
Figure 2.7 – Géométrie du benchmark cellule en évolution	- 45 -
Figure 2.8 – Traitement de la diffusion par défaut dans NJOY : type de noyau de transfert utilisé en fonction de l’énergie incidente du neutron et du noyau diffusant.....	- 51 -
Figure 2.9 - Traitement de la diffusion dans NJOY pour tenir compte de l’upscattering résonant : type de noyau de transfert utilisé en fonction de l’énergie incidente du neutron et du noyau diffusant.....	- 51 -
Figure 2.10 – Sections efficaces de capture des ¹⁴⁹ Sm, ¹⁵¹ Sm, et ¹⁵⁵ Gd dans JEFF-3.1.1.....	- 53 -
Figure 2.11 – Effet du Peelle’s Pertinent Puzzle sur l’ajustement de la première résonance de capture du ²³⁹ Pu (extrait de : (De Saint Jean C. , 2018)).....	- 58 -
Figure 2.12 - Matrice de corrélation entre les C/E obtenues en utilisant la méthode AGS a) sans incertitudes « de modélisation » b) avec incertitudes « de modélisation »	- 59 -
Figure 3.1 - Voies de formation et de disparition de l’ ¹⁵⁴ Eu en REP et ordre de grandeurs typiques de la contribution des différentes voies en UOX enrichi à 4,5% à 40 GWj/t et en MOX à teneur Pu 6,7% à 40 GWj/t	- 70 -
Figure 3.2 - Valeur de l’intégrale $0,5E\sigma(E')E'dE'$ en fonction de E pour la section de capture du ²³⁹ Pu	- 84 -

Figure 3.3 - Section efficace de fission du ^{239}Pu et de capture du ^{240}Pu en fonction de l'énergie dans JEFF-3.1.1.....	- 85 -
Figure 3.4 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{244}Cm pour les combustibles UOX.....	- 91 -
Figure 3.5 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{244}Cm pour les combustibles MOX	- 92 -
Figure 3.6 - Section de capture de ^{153}Eu dans JEFF-3.1.1.....	- 94 -
Figure 3.7 - Section efficace de capture de ^{154}Eu dans les bibliothèques JEFF-3.1.1 et ENDF/B-VII.1.....	- 97 -
Figure 3.8 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{154}Eu pour les combustibles UOX.....	- 98 -
Figure 3.9 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{154}Eu pour les combustibles MOX	- 99 -
Figure 3.10 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{154}Eu pour les spectrométries gamma UOX.....	- 100 -
Figure 4.1 - Section efficace de la réaction $^{14}\text{N}(n,p)$	- 113 -
Figure 4.2 - Section efficace de la réaction $^{17}\text{O}(n,\alpha)$	- 114 -
Figure 4.3 - Principe de la mesure par scintillation liquide	- 117 -
Figure 4.4 - Cœur du réacteur expérimental MINERVE.....	- 119 -
Figure 4.5 - Vue en coupe axiale du réacteur MINERVE, extraite de (Gruel, 2011)	- 119 -
Figure 4.6 - Allure du flux axial total en fonction de la hauteur dans un des tubes du panier (incertitudes à 1 σ fournies par TRIPOLI-4®).....	- 121 -
Figure 4.7 - Bouchon en aluminium disposant d'un septum	- 121 -
Figure 4.8 - Vue en coupe axiale du panier au centre du réseau de crayons combustibles R1UO2.....	- 122 -
Figure 4.9 - Vue 3D des canaux percés dans le panier inséré dans le cœur du réacteur MINERVE.....	- 122 -
Figure 4.10 - Géométrie TRIPOLI-4® complète du cœur MINERVE en coupe axiale	- 125 -
Figure 4.11 - Géométrie TRIPOLI-4® simplifiée du cœur MINERVE en coupe axiale	- 125 -
Figure B.1 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{234}U pour les combustibles UOX.....	- 144 -
Figure B.2 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{234}U pour les combustibles MOX	- 145 -
Figure B.3 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{235}U pour les combustibles UOX.....	- 146 -
Figure B.4 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{235}U pour les combustibles MOX	- 147 -
Figure B.5 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{236}U pour les combustibles UOX.....	- 148 -
Figure B.6 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{236}U pour les combustibles MOX	- 149 -
Figure B.7 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{237}Np pour les combustibles UOX.....	- 150 -

Figure B.8 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{237}Np pour les combustibles MOX	- 151 -
Figure B.9 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{238}Pu pour les combustibles UOX.....	- 152 -
Figure B.10 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{238}Pu pour les combustibles MOX	- 153 -
Figure B.11 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{239}Pu pour les combustibles UOX	- 154 -
Figure B.12 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{239}Pu pour les combustibles MOX	- 155 -
Figure B.13 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{240}Pu pour les combustibles UOX.....	- 156 -
Figure B.14 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{240}Pu pour les combustibles MOX	- 157 -
Figure B.15 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{241}Pu pour les combustibles UOX.....	- 158 -
Figure B.16 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{241}Pu pour les combustibles MOX	- 159 -
Figure B.17 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{242}Pu pour les combustibles UOX.....	- 160 -
Figure B.18 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{242}Pu pour les combustibles MOX	- 161 -
Figure B.19 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{241}Am pour les combustibles UOX.....	- 162 -
Figure B.20 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{241}Am pour les combustibles MOX	- 163 -
Figure B.21 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en $^{242\text{m}}\text{Am}$ pour les combustibles UOX.....	- 164 -
Figure B.22 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en $^{242\text{m}}\text{Am}$ pour les combustibles MOX	- 165 -
Figure B.23 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{243}Am pour les combustibles UOX.....	- 166 -
Figure B.24 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{243}Am pour les combustibles MOX	- 167 -
Figure B.25 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{243}Cm pour les combustibles UOX.....	- 168 -
Figure B.26 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{243}Cm pour les combustibles MOX	- 169 -
Figure B.27 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{245}Cm pour les combustibles UOX.....	- 170 -
Figure B.28 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{245}Cm pour les combustibles MOX	- 171 -

Figure B.29 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{246}Cm pour les combustibles UOX	- 172 -
Figure B.30 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{246}Cm pour les combustibles MOX	- 173 -
Figure B.31 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{247}Cm pour les combustibles UOX	- 174 -
Figure B.32 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{247}Cm pour les combustibles MOX	- 175 -
Figure B.33 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{103}Rh pour les combustibles UOX	- 176 -
Figure B.34 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{106}Ru pour les spectrométries gamma UOX.....	- 177 -
Figure B.35 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{133}Cs pour les combustibles UOX.....	- 178 -
Figure B.36 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{133}Cs pour les combustibles MOX	- 179 -
Figure B.37 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{134}Cs pour les combustibles UOX	- 180 -
Figure B.38 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{134}Cs pour les combustibles MOX	- 181 -
Figure B.39 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{137}Cs pour les combustibles UOX	- 182 -
Figure B.40 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{137}Cs pour les combustibles MOX	- 183 -
Figure B.41 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{144}Ce pour les spectrométries gamma UOX.....	- 184 -
Figure B.42 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{153}Eu pour les combustibles UOX	- 185 -
Figure B.43 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{153}Eu pour les combustibles MOX	- 186 -
Figure B.44 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{155}Eu pour les combustibles UOX	- 187 -
Figure B.45 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{155}Eu pour les combustibles MOX	- 188 -
Figure B.46 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{154}Gd pour les combustibles UOX	- 189 -
Figure B.47 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{154}Gd pour les combustibles MOX	- 190 -
Figure B.48 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{155}Gd pour les combustibles UOX	- 191 -
Figure B.49 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{155}Gd pour les combustibles MOX	- 192 -

INTRODUCTION GENERALE

Contexte général de la thèse

Le cœur d'un réacteur nucléaire est le siège de la réaction en chaîne. C'est plus précisément au sein du combustible nucléaire, qui contient la matière fissile (classiquement ^{235}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu), que la réaction en chaîne s'effectue. Cette dernière entretient la population de neutrons au sein du réacteur. Pendant toute la durée de fonctionnement, ces neutrons vont interagir avec le combustible, dont la composition va évoluer.

Les principales réactions nucléaires induites par un neutron qui vont modifier le combustible sont la fission et la capture radiative. Celles-ci vont engendrer de nouveaux radionucléides, qui n'étaient initialement pas présents dans le combustible : la fission des noyaux lourds du combustible produira des noyaux plus légers, dits produits de fission, tandis que la capture radiative sur les noyaux lourds produira des actinides mineurs. Ces nouveaux radionucléides pourront à leur tour capturer, fissionner, ou tout simplement décroître, pour engendrer de nouveaux isotopes, et ainsi de suite. En tout, ce sont plusieurs centaines de noyaux, radioactifs pour la plupart, qui seront créés sous irradiation et qui vont modifier les propriétés radiologiques du combustible. Or, ces dernières vont conditionner toutes les étapes de la gestion du combustible, comme par exemple le transport, l'entreposage, le retraitement, etc. La connaissance de l'inventaire isotopique, que l'on appellera également bilan matière, est ainsi un enjeu crucial pour la gestion du combustible irradié.

Le « cycle du combustible » nucléaire désigne l'ensemble des étapes de la vie du combustible nucléaire. Il peut se décomposer en trois phases successives, schématisées sur la Figure 0.1 :

- L'amont du cycle : il regroupe les activités consistant à la préparation de la matière première (extraction du minerai, traitement chimique pour la production de « *yellow cake* », conversion, puis enrichissement) et la fabrication du combustible neuf (production de l'oxyde d'uranium UO_2 sous formes de pastilles, empilées pour former des crayons, eux-mêmes regroupés en assemblages combustibles),
- Le secteur réacteurs : il s'agit de l'étape au cours de laquelle le combustible va être irradié dans les réacteurs électrogènes ou expérimentaux,
- L'aval du cycle : il regroupe les activités liées à la gestion du combustible usé. Selon la stratégie adoptée, qui peut varier d'un pays à un autre, l'aval du cycle peut comprendre ou non une phase de retraitement du combustible usé et de recyclage des matières valorisables.

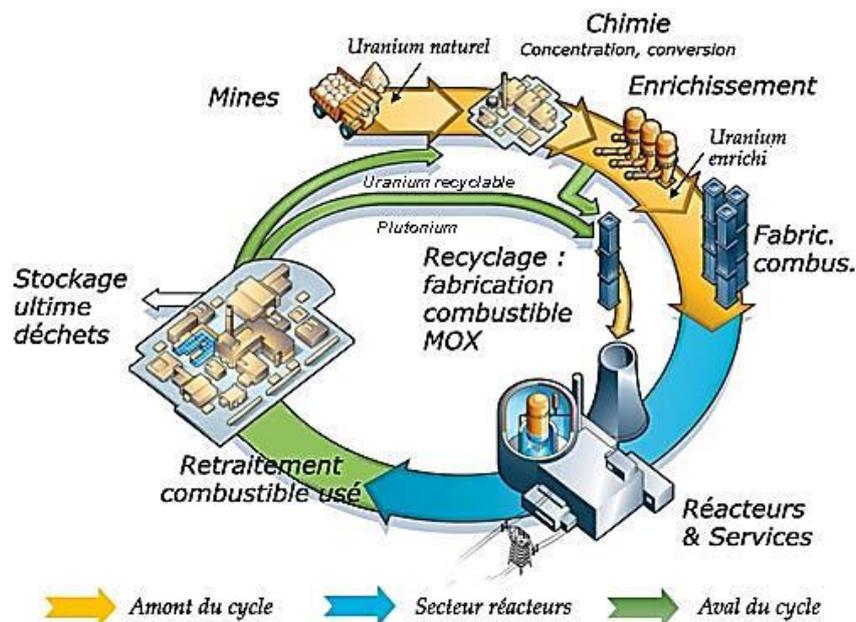


Figure 0.1 – Exemple d’un cycle du combustible mettant en œuvre le retraitement et le recyclage du combustible irradié

En France aujourd’hui, le parc nucléaire est composé de 58 Réacteurs à Eau Pressurisée (REP) électrogènes qui fonctionnent avec du combustible à base d’oxyde d’uranium enrichi (ou UOX, pour *Uranium OXide*) ou d’un mélange d’oxydes d’uranium et de plutonium (ou MOX, pour *Mixed OXides*). À ce jour, la stratégie du parc français en matière de cycle du combustible consiste à recycler les matières valorisables issues du retraitement des combustibles UOX irradiés : le plutonium est utilisé pour fabriquer le MOX, tandis que l’uranium de retraitement est utilisé pour la fabrication d’Uranium de Retraitement Enrichi (URE).

La maîtrise du combustible nucléaire à chaque étape, de la gestion des procédés de l’amont / aval du cycle, à la gestion des flux, entreposage, stockage des matières, est attachée à une caractérisation du combustible, qui joue un rôle essentiel pour le respect des normes de sûreté, de criticité, de protection biologique, etc. Des outils de calcul et de simulation sont utilisés pour satisfaire ces exigences et effectuer les démonstrations de sûreté en amont.

Introduction au sujet de thèse

Le formulaire DARWIN2.3, pour *Développement Appliqué au Recyclage Vérifié et Validé pour les Installations Nucléaires*, est l’outil de calcul français de référence pour les applications du cycle du combustible en France. Il est développé par le CEA avec le soutien de ses partenaires industriels Orano et EDF. Son objectif est d’évaluer toutes les grandeurs d’intérêt pour le cycle du combustible, telles que le bilan matière, mais aussi des grandeurs qui en découlent comme la puissance thermique dégagée par le combustible, les émissions et spectres α , β , γ , neutrons, et la radio-toxicité.

Le formulaire DARWIN2.3 permet ainsi de répondre par la simulation à des enjeux industriels concrets tels que la détermination des émissions radioactives des combustibles (neufs comme irradiés) pour la protection biologique, le calcul de la puissance dissipée par les assemblages entreposés dans les piscines de refroidissement, le transport du combustible, le retraitement du combustible, l'entreposage et le stockage des déchets pour des échelles de temps géologiques, etc.

Dans cette thèse, nous nous intéressons plus particulièrement aux calculs DARWIN2.3 pour la partie aval du cycle du combustible. La spécificité de l'aval du cycle réside en la diversité des nucléides présents dans le combustible, produits suite aux interactions neutron / matière au cours de l'irradiation en réacteur et de la décroissance propre de certains d'entre eux – cette dernière continue hors réacteur par ailleurs. Celles-ci rendent complexe le calcul du bilan matière et des grandeurs physiques qui en découlent. L'adéquation des calculs d'évolution du combustible réalisés avec le formulaire DARWIN2.3 et la connaissance de certains radionucléides est donc vérifiée par confrontation à des expériences post-irradiation dédiées. Cette confrontation calcul / mesure, ou validation expérimentale, est schématisée sur la Figure 0.2. Elle consiste en l'interprétation avec DARWIN2.3 d'analyses de combustibles irradiés en réacteur électrogènes.

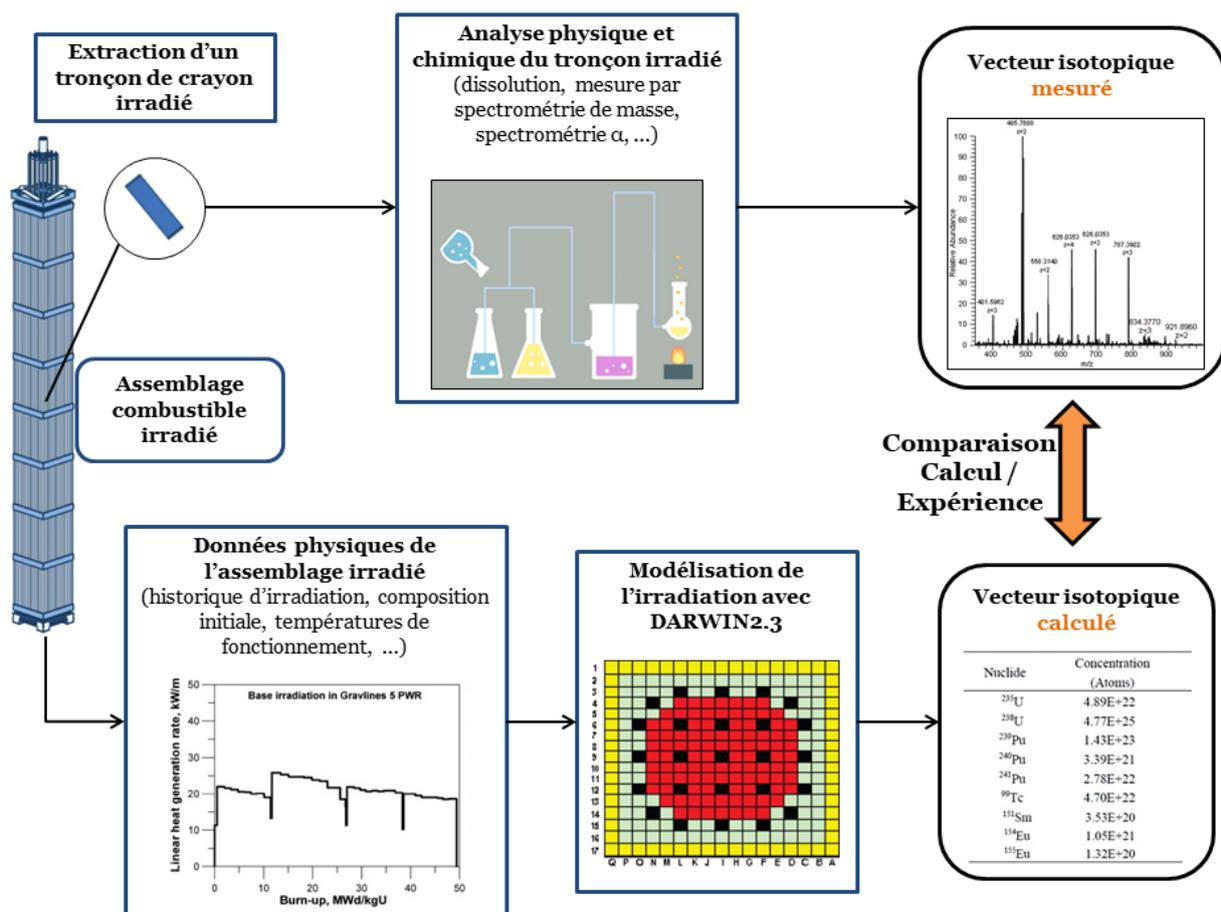


Figure 0.2 – Principe schématique de la validation expérimentale du calcul de l'inventaire isotopique d'un combustible REP avec DARWIN2.3

La validation expérimentale du calcul d'une grandeur physique d'intérêt avec le formulaire DARWIN2.3 permet ainsi de déterminer le biais de calcul du formulaire par rapport à l'expérience, ou écart « C/E » ; pour certains nucléides d'intérêt pour le cycle du combustible, la validation expérimentale peut mettre en évidence un besoin de réduction du biais de calcul de la concentration. Les travaux de thèse s'inscrivent dans ce contexte d'amélioration de l'estimation du bilan matière pour certains nucléides d'intérêt pour le cycle du combustible avec DARWIN2.3.

L'objectif de cette thèse est donc de comprendre l'origine des biais et des incertitudes associés aux résultats de validation expérimentale du calcul du bilan matière avec DARWIN2.3 d'une part, puis de proposer et d'étudier des voies d'amélioration du calcul d'autre part.

Plan du manuscrit

Le **chapitre 1** s'attache à décrire la spécificité des calculs d'évolution déterministes pour l'aval du cycle du combustible à travers la présentation du formulaire DARWIN2.3 et ses principales composantes pour l'étude des REP. A partir de l'analyse des résultats de validation expérimentale du calcul du bilan matière, nous proposerons deux voies d'améliorations, qui seront mises en place respectivement dans les chapitres 2-3 puis dans le chapitre 4.

La première voie d'amélioration consiste en l'assimilation des données intégrales avec le code CONRAD, pour *COde for Nuclear Reaction Analysis and Data assimilation*. Cette étude a pour objectif de proposer l'ajustement de certaines données nucléaires impliquées dans la formation de nucléides d'intérêt à partir des résultats de la validation expérimentale du formulaire DARWIN2.3.

Le **chapitre 2** présente le traitement des trois types d'incertitudes prises en compte pour l'assimilation de données intégrales : les incertitudes sur les données nucléaires, les incertitudes prises en compte lors de l'interprétation des expériences post-irradiation, et les incertitudes dites « de modélisation ». Ces dernières font l'objet d'une étude détaillée, afin d'estimer l'impact des hypothèses et approximations du schéma de calcul de DARWIN2.3 sur le calcul du bilan matière. Enfin, pour tenir compte des corrélations entre les expériences utilisées dans la base de données d'ajustement, nous proposerons de générer une matrice de corrélation entre les C/E en combinant les sources d'incertitudes associées aux mesures post-irradiation.

Le **chapitre 3** présentera quant à lui la méthode d'assimilation de données intégrales et son application à l'ensemble de la validation expérimentale de DARWIN2.3. Les résultats d'ajustement de données nucléaires seront listés, discutés, et comparés à la littérature. Nous montrerons en quoi les tendances issues de l'assimilation avec CONRAD améliorent significativement le bilan matière, en traitant un actinide et un produit de fission, respectivement le ^{244}Cm et l' ^{154}Eu . La finalité de ces études d'assimilation est de pouvoir effectuer des recommandations d'évaluation pour la prochaine version de la bibliothèque de

données nucléaires européenne JEFF. Ce travail constitue ainsi le retour d'expérience du cycle du combustible pour la validation des données nucléaires.

La deuxième voie d'amélioration consiste en la validation, au travers de nouveaux programmes expérimentaux, des données nucléaires impliquées dans la formation de certains nucléides d'intérêt pour lesquels nous ne disposons pas de données expérimentales exploitables pour valider le calcul DARWIN2.3. Nous proposerons donc dans le **chapitre 4** une étude de préconception d'une expérience intégrale dédiée à l'analyse des voies de formation du ^{14}C . Le principe de l'expérience, dont la faisabilité est démontrée pour le réacteur MINERVE, pourrait être repris pour un autre réacteur expérimental aux caractéristiques similaires.

CHAPITRE 1 : FORMULAIRE DARWIN2.3 – ANALYSES ET BESOINS D’AMELIORATION DU CALCUL DU BILAN MATIERE

Le formulaire DARWIN2.3, pour Développement Appliqué au Recyclage Vérifié et Validé pour les Installations Nucléaires, est un outil de calcul de référence pour les applications du cycle du combustible en France. La validation expérimentale du formulaire vis-à-vis d’analyses de combustibles irradiés pour le calcul du bilan matière constitue un retour d’expérience considérable que nous cherchons à exploiter dans cette thèse.

Dans ce chapitre, nous présentons le formulaire DARWIN2.3 de manière générale, ainsi que ses spécificités pour le cadre des études des Réacteurs à Eau Pressurisée (REP). Le formulaire DARWIN2.3 a été mis au point à partir de la méthode VVQI, pour Vérification, Validation (numérique et expérimentale), et Quantification des Incertitudes, qui est également détaillée dans ce chapitre. La base de données expérimentale ayant servi à la validation expérimentale du calcul du bilan matière est présentée, et une synthèse des résultats de cette validation expérimentale est proposée. Cette synthèse permet de mettre en évidence les nucléides d’intérêt pour le cycle du combustible pour lesquels une amélioration du calcul du bilan matière peut être souhaitée. Les voies d’amélioration du calcul de l’inventaire combustible sont finalement exposées en fin de chapitre.

CONTENU

1.1. Le formulaire DARWIN2.3	- 8 -
1.1.1. Présentation générale	- 8 -
1.1.2. Processus VVQI	- 15 -
1.2. Base de données de validation expérimentale du calcul du bilan matière dans les REP	- 18 -
1.3. Amélioration du calcul du bilan matière avec DARWIN2.3 pour les REP.....	- 21 -
1.3.1. Résultats de la validation expérimentale du formulaire DARWIN2.3	- 21 -
1.3.2. Proposition de liste de nucléides dont le calcul est à améliorer	- 24 -
1.3.3. Voies d’amélioration	- 25 -

1.1. LE FORMULAIRE DARWIN2.3

Le formulaire DARWIN2.3 (San-Felice, 2013) est l'outil de référence français pour le cycle du combustible, développé par le CEA avec le soutien de ses partenaires industriels Orano et EDF. Son objectif est de prédire les grandeurs d'intérêt pour l'ensemble du cycle du combustible, notamment après le passage du combustible en réacteur.

Dans ce chapitre, l'outil de calcul est présenté de manière générale, de même que son principe de fonctionnement en décrivant notamment les équations résolues. Nous détaillerons les composantes du formulaire DARWIN2.3 pour le calcul des réacteurs à eau légère (REL) sur lesquels les études rapportées dans ce manuscrit se focalisent.

1.1.1. PRESENTATION GENERALE

DARWIN2.3 est un formulaire de calcul de neutronique dédié aux études portant sur le cycle du combustible nucléaire. Il est constitué de :

- Données Nucléaires de Base : elles proviennent de l'évaluation de données nucléaires européenne JEFF-3.1.1 (Santamarina A. , 2009) qui capitalise la connaissance des interactions neutron / matières à l'échelle microscopique et les données de décroissance des isotopes qui nous intéressent pour la physique des réacteurs et du cycle du combustible,
- Plusieurs codes de calcul (APOLLO2 (Sanchez, 2010), DARWIN/PEPIN (Tsilanizara A. , 1999), ERANOS2 (Ruggieri, 2006)) regroupant un ensemble de solveurs numériques modulaires,
- Un ou plusieurs schémas de calculs (on reviendra sur cette notion plus loin dans cette partie) décrivant l'enchaînement des différents solveurs numériques selon le type de calcul effectué,
- Un dossier de validation qui permet de démontrer et de quantifier rigoureusement la précision du formulaire pour le calcul des grandeurs physiques d'intérêt sur son domaine d'application.

Le formulaire DARWIN2.3 est dédié à l'étude des combustibles UOX et MOX pour les réacteurs à eau légère (REL, comprenant les REP et les réacteurs à eau bouillante, ou REB) et pour les réacteurs à neutrons rapides (RNR). Il est également dédié aux études d'entreposage et de stockage, à l'activation des structures notamment dans un contexte de démantèlement des installations, et à l'activation de cibles de spallation (Tsilanizara A. , 2015). DARWIN2.3 est également utilisé pour les réacteurs de propulsion navale et pour les réacteurs expérimentaux.

L'objectif de DARWIN2.3 est de calculer précisément des grandeurs physiques qui sont d'intérêt pour le cycle du combustible nucléaire : nous citerons en tout premier lieu le bilan matière, autrement dit le vecteur isotopique du combustible. Viennent ensuite les grandeurs

déduites du bilan matière, telles que la puissance résiduelle – c'est-à-dire la puissance thermique dégagée par le combustible, notamment après l'arrêt du réacteur, et due aux décroissances des isotopes radioactifs produits dans le combustible pendant l'irradiation – mais aussi les activités, les sources et spectres d'émission de particules α , β , γ , de neutrons, ou encore la radio-toxicité.

Déterminer ces grandeurs d'intérêt passe par la réalisation de calcul dits « d'évolution » du combustible sous irradiation neutronique. Les équations qui décrivent cette évolution sont présentées ci-après.

1.1.1.1.1. EQUATIONS RESOLUES POUR L'EVOLUTION

Le transport des neutrons est gouverné par l'équation de Boltzmann, qui tient compte de la nature et de la composition des milieux dans lesquels ils se propagent. Sous flux neutronique en réacteur, la composition du combustible nucléaire va considérablement évoluer : d'une part le processus de fission des actinides majeurs (U, Pu) fissiles engendrera une multitude de noyaux plus légers (exemple : Sr, Ba, Cs, Nd, Ru, ...), dits produits de fission ; d'autre part la capture des neutrons par les actinides majeurs non-fissiles conduira à la production d'actinides mineurs (ex : Np, Am, Cm, ...).

L'évolution du bilan matière sous irradiation est gouvernée par l'équation de Bateman. Les noyaux formés vont conduire à une modification de la composition des milieux de propagation des neutrons, ayant pour conséquence un impact sur le flux neutronique lui-même. Ici intervient la notion de couplage entre le transport des neutrons et l'évolution du bilan matière à travers le couplage des équations de Boltzmann et de Bateman.

1.1.1.1.1.1. EQUATION DE BOLTZMANN

L'équation de Boltzmann permet de décrire la répartition de la population des neutrons dans un système au cours du temps, et ce en tout point de ce système. Elle fait référence aux travaux de Ludwig Boltzmann (1844-1906) sur sa théorie des gaz. En effet, la densité de neutrons dans un REP est faible (de l'ordre de 10^8 n/cm³) devant la densité des milieux dans lesquels ils se propagent, ce qui permet de négliger les interactions neutron - neutron et de considérer l'ensemble de la population de neutrons comme un gaz.

L'équation de Boltzmann sous sa forme intégrale est présentée ici. Elle consiste à effectuer le bilan des neutrons d'un point de vue « observateur », c'est-à-dire en suivant le déplacement des neutrons vers un point d'observation O du milieu M à une vitesse v , à l'instant t et se dirigeant dans une direction $\vec{\Omega}$. Ceux qui y parviendront seront les neutrons émis au point E tel que $\vec{\Omega} = \frac{\vec{EO}}{\|\vec{EO}\|}$ à la vitesse v , à l'instant t et n'ayant effectué aucune collision pendant le trajet \vec{EO} , comme illustré sur la Figure 1.1.

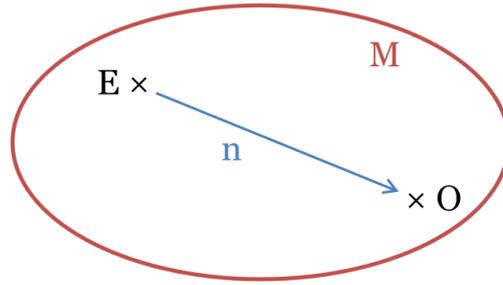


Figure 1.1 – Trajet [EO] d'un neutron n dans un milieu M

Ainsi, le nombre de neutrons au départ du point d'émission E, à la position \vec{r} , à la vitesse v , dans la direction $\vec{\Omega}$, à l'instant t , pourra s'écrire :

$$q(\vec{r}, v, \vec{\Omega}, t) = \int_0^{+\infty} dv' \int_0^{4\pi} \Sigma_S(\vec{r}, v' \rightarrow v, \vec{\Omega}' \rightarrow \vec{\Omega}, t) \cdot \phi(\vec{r}, v, \vec{\Omega}, t) \cdot d^2\vec{\Omega}' + S(\vec{r}, v, \vec{\Omega}, t) \quad (1.1)$$

Où :

- $\Sigma_S(\vec{r}, v' \rightarrow v, \vec{\Omega}' \rightarrow \vec{\Omega}, t)$ désigne la section efficace macroscopique de diffusion du neutron dans le milieu où il se propage depuis une vitesse v' vers une vitesse v et depuis une direction $\vec{\Omega}'$ vers une direction $\vec{\Omega}$,
- $\phi(\vec{r}, v, \vec{\Omega}, t)$ désigne le flux neutronique, produit de la densité de neutrons et de la vitesse de ces derniers (l'usage veut d'ailleurs que l'on parle de « flux » alors qu'il s'agit plutôt d'une « densité de flux »),
- $S(\vec{r}, v, \vec{\Omega}, t)$ désigne un terme source de neutrons créés à la position \vec{r} , à la vitesse v , dans la direction $\vec{\Omega}$ et à l'instant t .

L'équation (1.1) s'interprète physiquement comme la somme, d'une part, de tous les neutrons « déviés » par diffusion, et d'autre part de l'ensemble des neutrons créés. Le terme source $S(\vec{r}, v, \vec{\Omega}, t)$ peut par exemple provenir de fissions, ou encore d'une source externe de neutrons.

Ayant considéré l'ensemble des neutrons au départ du point E, ou de la position \vec{r} , il faut désormais tenir compte de leur probabilité de non-interaction dans leur milieu de déplacement. Cette probabilité de non-interaction entre E et O, notée $(1-P_{EO})$ s'exprimera :

$$1 - P_{EO} = \exp\left(-\int_E^O \Sigma_t(\vec{r}, v, t) \cdot dEO\right) = \exp\left(-\int_0^s \Sigma_t(\vec{r}, v, t) \cdot ds\right) \quad (1.2)$$

Où :

- s désigne la distance EO – l'intégration sur s correspond donc à l'intégration le long du chemin parcouru par le neutron,
- $\Sigma_t(\vec{r}, v, t)$ désigne la section efficace macroscopique totale du milieu dans lequel le neutron évolue, ou encore $\Sigma_t(\vec{r}, v, t)$. ds désigne la probabilité d'interaction du neutron au cours de son trajet élémentaire ds .

Ainsi, en notant $\tau(s)$ l'intégrale se trouvant dans l'équation (1.2), appelée « parcours optique », le flux neutronique en un point \vec{r} , à une vitesse v et dans une direction $\vec{\Omega}$ peut s'écrire en sommant tous les neutrons émis à une distance s (équation (1.1)) qui parviennent en \vec{r} sans effectuer de collision (équation (1.2)), soit :

$$\phi(\vec{r}, v, \vec{\Omega}, t) = \int_0^{+\infty} \exp(-\tau(s)) \cdot q\left(\vec{r} - s \cdot \vec{\Omega}, v, \vec{\Omega}, t - \frac{s}{v}\right) ds \quad (1.3)$$

Sous cette forme, dite « intégrale », l'équation de Boltzmann peut se résoudre aisément à partir de la méthode des probabilités de collision. Notons que les sections efficaces macroscopiques sont dépendantes du temps dans les équations présentées. En pratique, le milieu est supposé fixe lors de la résolution de l'équation de Boltzmann, ce qui revient à considérer des sections efficaces constantes dans le temps. La prise en compte de l'évolution du milieu (et donc du bilan matière) se fait à travers la résolution de l'équation de Bateman.

1.1.1.1.2. EQUATION DE BATEMAN

La forme généralisée de l'équation de Bateman peut s'interpréter comme un bilan de quantité de matière, en considérant les termes de production et de disparition pour chaque noyau i . En particulier, $P_{j \rightarrow i}(\vec{r}, t)$ dénote les taux de production microscopiques du noyau i par réaction neutronique (capture, fission, ...) sur le noyau j en \vec{r} et à la date t , et $D_i(\vec{r}, t)$ le terme analogue de disparition du noyau i par réaction neutronique. Ces derniers s'expriment comme suit :

$$P_{j \rightarrow i}(\vec{r}, t) = \sum_{R \neq f} \int_0^{4\pi} d\vec{\Omega} \int_0^{+\infty} \sigma_{R, j \rightarrow i}(v) \cdot \phi(\vec{r}, v, \vec{\Omega}, t) \cdot dv + \int_0^{4\pi} d\vec{\Omega} \int_0^{+\infty} c_{j \rightarrow i} \sigma_{f, j}(v) \cdot \phi(\vec{r}, v, \vec{\Omega}, t) \cdot dv \quad (1.4)$$

$$D_i(\vec{r}, t) = \sum_R \int_0^{4\pi} d\vec{\Omega} \int_0^{+\infty} \sigma_{R, i}(v) \cdot \phi(\vec{r}, v, \vec{\Omega}, t) \cdot dv \quad (1.5)$$

Où $\sigma_{R, j \rightarrow i}(v)$, respectivement $\sigma_{R, i}(v)$, désigne la section microscopique de la réaction nucléaire R autre que la fission sur le noyau j formant le noyau i , respectivement de la réaction R sur le noyau i . Notons que pour le cas d'une production par fission du noyau j

(deuxième terme de l’équation (1.4)), il faut rajouter le facteur $c_{j \rightarrow i}$ appelé rendement de fission de j sur i pour tenir compte de la probabilité que la fission de j engendre le noyau i .

La forme généralisée de l’équation de Bateman s’écrit alors :

$$\frac{dN_i(\vec{r}, t)}{dt} = \sum_{j \neq i} (P_{j \rightarrow i}(\vec{r}, t) + BR(j \rightarrow i) \cdot \lambda_j) \cdot N_j(\vec{r}, t) - (\lambda_i + D_i(\vec{r}, t)) \cdot N_i(\vec{r}, t) \quad (1.6)$$

Aux termes de production et de disparition par interaction neutronique explicités par les équations (1.4) et (1.5), nous avons rajouté dans l’équation (1.6) les termes de production et de disparition par décroissance radioactive, respectivement à travers la prise en compte des constantes $\lambda_{j \rightarrow i}$ pour la décroissance des noyaux j vers i et λ_i pour la décroissance propre du noyau i . Le facteur $BR(j \rightarrow i)$ désigne le rapport d’embranchement, c’est-à-dire la probabilité que le noyau j décroisse vers l’état i .

Notons que dans le cas particulier d’un flux nul, les termes $P_{j \rightarrow i}(\vec{r}, t)$ et $D_i(\vec{r}, t)$ s’annulent, et l’équation (1.6) se simplifie. Nous parlerons alors d’une étape de « refroidissement » pur (hors flux), au cours duquel les isotopes radioactifs du milieu simulé décroissent selon leur période propre. Ce cas de figure se produit notamment pendant les périodes inter-cycles des réacteurs de puissance, ou bien lorsque le combustible est entreposé en piscine.

1.1.1.1.3. CALCUL D’EVOLUTION ET COUPLAGE BOLTZMANN / BATEMAN

Comme expliqué précédemment, les équations de Boltzmann et Bateman sont implicitement couplées à travers la dépendance temporelle. En effet, à partir d’un combustible initial, l’irradiation neutronique va modifier la composition de ce dernier à travers la production d’actinides et de produits de fission, et les noyaux produits vont venir influencer le transport des neutrons.

En pratique, ces deux équations ne sont pas résolues de manière couplée. L’idée est d’alterner les phases de calcul de transport (à bilan matière connu) avec les phases de calcul d’évolution (à flux connu) avec un découpage temporel suffisamment fin pour pouvoir effectuer l’approximation d’un flux constant sur un pas de temps donné. La méthode Runge-Kutta d’ordre 4 est le schéma numérique retenu pour traiter le calcul de l’inventaire combustible à flux constant. Cette méthode de discrétisation, assez répandue pour sa précision vis-à-vis du temps de calcul des opérations effectuées, va déterminer la concentration du pas de temps suivant à partir d’une somme pondérée de quatre valeurs de concentrations intermédiaires N_1, N_2, N_3, N_4 comme indiqué sur la Figure 1.2.

Nous reviendrons sur la notion de couplage dans la section 3.2.3 lorsque les calculs de sensibilités effectués seront présentés (voir Chapitre 3).

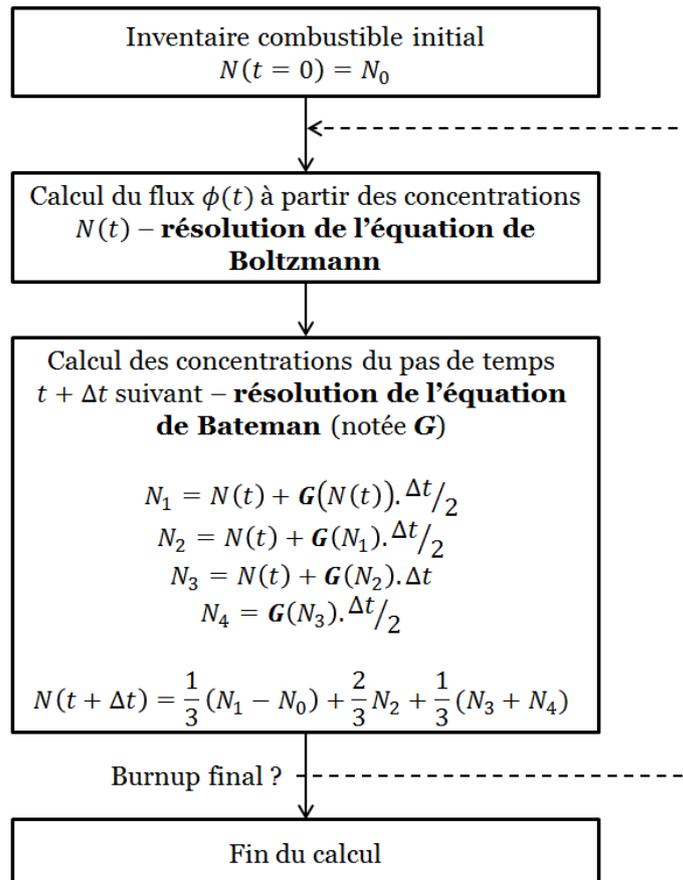


Figure 1.2 – Principe schématique d’un calcul d’évolution

1.1.1.2. ARCHITECTURE DE DARWIN2.3 – CAS DES REL

Les calculs d’évolution réalisés avec DARWIN2.3 sont menés en deux étapes. Une première étape permet de produire des données neutroniques tabulées en taux de combustion avec un code transport : APOLLO2 (Sanchez, 2010) pour les REL, ERANOS2 (Ruggieri, 2006) pour les RNR. Ces données sont par la suite utilisées par le solveur d’évolution DARWIN/PEPIN (Tsilanizara A. , 1999).

L’architecture du formulaire DARWIN2.3 dans le cas des REL, qui constituent le cadre des études rapportées dans ce manuscrit, est présentée ici.

1.1.1.2.1. PRODUCTION D’UN FICHER SAPHYB PAR APOLLO2

Pour l’étude des REP, les calculs avec le formulaire DARWIN2.3 s’effectuent en deux temps. La première étape consiste en un calcul d’évolution avec le code de transport déterministe réseau APOLLO2 (Sanchez, 2010) permettant de produire des données neutroniques tabulées en taux de combustion et stockées dans un fichier d’archive appelé « SAPHYB ».

Pour rappel, les données nucléaires proviennent de l'évaluation européenne JEFF-3.1.1 (Santamarina A. , 2009). Les données de JEFF-3.1.1 sont adaptées pour leur utilisation par le code APOLLO2, ou « processées », grâce au code de traitement des données nucléaires GALILÉE (Coste-Delclaux, 2009), et regroupées dans la bibliothèque de données nucléaires multi-groupes CEA2005V4.1.1.

Cette dernière sera utilisée par APOLLO2 pour réaliser un calcul d'évolution au cours duquel des données neutroniques sont produites, à savoir des bibliothèques de sections efficaces multi-groupes autoprotégées et des flux multi-groupes tabulés en burnup. Ce sont ces données qui sont archivées dans le fichier SAPHYB. La chaîne d'évolution utilisée par APOLLO2 est optimisée pour décrire avec précision les 126 produits de fission et les 26 actinides contribuant à plus de 99,9% de la réactivité en réacteur, et assure donc un calcul de flux multi-groupes précis.

Le schéma de calcul utilisé par APOLLO2 est CYCLE2008-REP (San-Felice, 2013), et est fondé sur un traitement énergétique en maillage SHEM (Hfaiedh, 2005) à 281 groupes et sur l'utilisation d'un solveur de flux utilisant la méthode des probabilités de collision. L'anisotropie du choc est traitée par une décomposition de la section de diffusion sur la base des polynômes de Legendre en PO corrigée. Notons que, dans le cas des REB, le calcul du flux est réalisé à 281 groupes avec la méthode des caractéristiques (Askew, 1980), plus appropriée pour tenir compte des forts gradients de flux liés à la variation du taux de vide. La SAPHYB est également paramétrée en taux de vide.

1.1.1.2.2. UTILISATION DU FICHIER SAPHYB DANS DARWIN/PEPIN

Les données neutroniques du fichier SAPHYB sont ensuite fournies au moteur d'évolution DARWIN/PEPIN, qui utilise des chaînes de filiation plus complètes issues de JEFF-3.1.1 pour décrire 3800 noyaux produits en réacteur. La librairie JEFF-3.1.1 est également processée avec GALILÉE pour produire des bibliothèques multi-groupes pour DARWIN/PEPIN.

Cette bibliothèque vient compléter les données manquantes de la SAPHYB étant donnée la taille des chaînes de filiation utilisées par DARWIN/PEPIN par rapport à celle d'APOLLO2. Le bilan matière en évolution est par la suite calculé par condensation des taux de réaction à 1 groupe *via* les données de la SAPHYB, puis résolution de l'équation de Bateman. L'irradiation peut éventuellement être suivie d'une ou plusieurs périodes de refroidissement.

Les autres grandeurs d'intérêt pour le cycle du combustible, telles que la puissance résiduelle, les masses, les activités, les spectres d'émissions α , β , γ , neutron, la radio-toxicité, sont déduites du calcul du bilan matière à partir des constantes nucléaires de JEFF-3.1.1 et de la bibliothèque d'activation européenne EAF-2007.

Le processus global du calcul d'évolution avec DARWIN2.3 pour les REP est résumé sur la Figure 1.3.

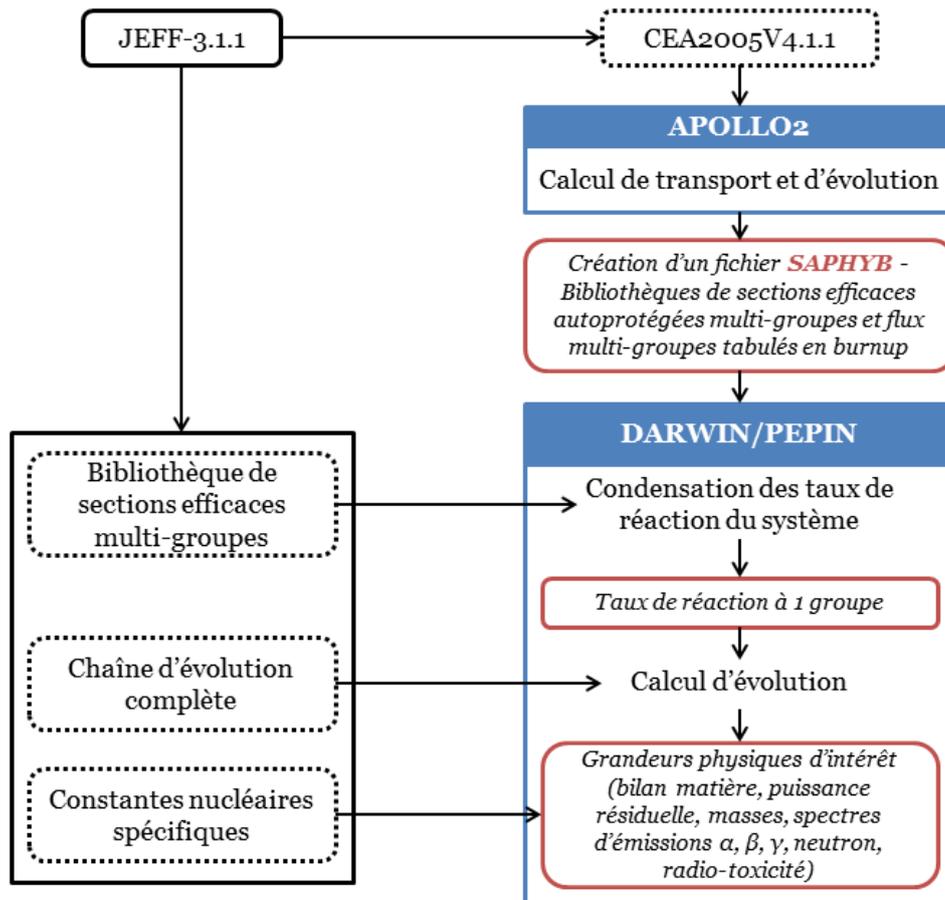


Figure 1.3 – Diagramme du formulaire DARWIN2.3 pour les calculs d’évolution en REP

1.1.2. PROCESSUS VVQI

La mise au point d’un formulaire se fait à travers la démarche de VVQI, dont la finalité est de quantifier rigoureusement le biais et l’incertitude d’un formulaire de calcul sur un domaine d’application donné. Cette démarche est en cohérence avec l’arrêté INB du 7 février 2012 (Arrêté INB, 2012) et le guide de l’ASN sur la qualification des logiciels de calcul utilisés pour la démonstration de sûreté nucléaire (ASN, Qualification OCS, 2017). Les étapes de ce processus pour le formulaire DARWIN2.3 sont décrites dans les paragraphes suivants.

1.1.2.1. VERIFICATION

Cette étape s’attache à la vérification des algorithmes utilisés dans les solveurs de calcul. Des batteries de tests élémentaires sont généralement réalisées à travers l’utilisation de machines de non-régression.

1.1.2.2. VALIDATION NUMERIQUE

Cette étape s'attache à quantifier le biais résiduel du schéma de calcul déterministe. En effet, la résolution des équations de Boltzmann et Bateman introduit un certain nombre de biais dus au formalisme d'autoprotection, au solveur de flux, etc. Pour quantifier ce biais résiduel, un code probabiliste étalon supposé être quasi-exact à l'état stationnaire est utilisé, et ce à partir des mêmes données nucléaires.

Chaque choix de modélisation, chaque option retenue dans le schéma de calcul peut avoir un impact sur le biais total. La validation numérique permet de mesurer le poids de chaque option de calcul, afin de déterminer les sources de biais les plus importantes d'une part, et afin de s'assurer que le biais faible total n'est pas le fruit de la compensation de biais de signe opposé d'autre part (Jouault, 2017).

Pour les calculs d'évolution, nous ne disposons pas à ce jour de code étalon permettant de faire de la validation numérique. Dans ce cadre précis, le guide de l'ASN (ASN, Qualification OCS, 2017) recommande d'apporter des compléments de validation numérique par la réalisation d'«évaluations croisées» entre outils de calculs. De manière générale, le guide ASN préconise de «réévaluer les incertitudes en prenant en compte les lacunes de validation». Des travaux présentés dans le chapitre 3 ont été menés pour apporter des éléments de validation numérique en évolution au formulaire DARWIN2.3, en effectuant notamment des comparaisons avec un code Monte-Carlo en évolution.

1.1.2.3. VALIDATION EXPERIMENTALE

L'objectif de cette étape est de déterminer le biais total du formulaire de calcul en le comparant à des expériences dédiées. Ce biais total représente la somme du biais numérique résiduel du schéma de calcul avec le biais dû aux données nucléaires, qui sont connues elles-mêmes avec une précision donnée. Cette étape, à travers l'analyse des écarts Calcul / Expérience (ou « C/E ») permet de mettre en évidence les données nucléaires à améliorer.

Le formulaire DARWIN2.3 est validé expérimentalement pour le calcul du bilan matière dans les REL (San-Felice, 2013) (Riffard, 2015) et les RNR (Lebrat, 2015) à partir d'analyses de combustibles irradiés provenant de réacteurs. Le calcul de la puissance résiduelle avec DARWIN2.3 est validé expérimentalement dans les REL (Jaboulay, 2012) (San-Felice, 2013), et dans les RNR (Benoit, Decay heat of sodium fast reactor: comparison of experimental measurements on the PHENIX reactor with calculations performed with the French DARWIN package, 2012).

1.1.2.4. QUANTIFICATION DES INCERTITUDES

La dernière étape du processus consiste à déterminer les incertitudes sur les paramètres physiques cibles calculés par le formulaire. Dans le cas où le domaine de validation (DV) correspond au domaine d'application (DA) du formulaire, la quantification des incertitudes est immédiate. Dans le cas contraire, il est nécessaire de transposer le biais et l'incertitude du domaine de validation vers le domaine d'application. Des études ont été réalisées en ce sens pour le calcul du bilan matière (Lebrat, 2017) (Carmouze, 2017) et pour la puissance résiduelle (Vallet, 2017).

En l'absence de données expérimentales, les incertitudes sur les données nucléaires sont propagées sur un calcul du domaine d'application cible. Des travaux ont été menés dans ce sens pour le calcul de la puissance résiduelle avec le développement de l'outil CYRUS (Benoit, 2012) (Vallet, 2014). Le diagramme présenté sur la Figure 1.4 résume les étapes clés du processus VVQI.

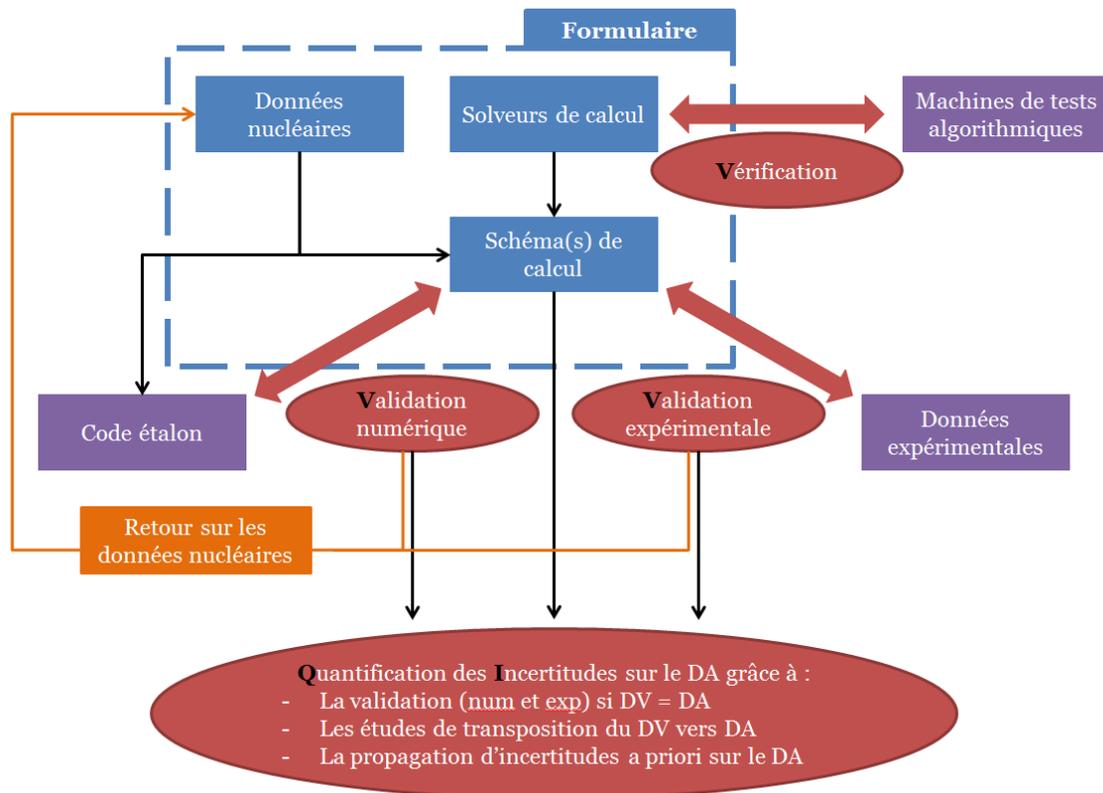


Figure 1.4 – Diagramme de la méthode de Vérification, Validation, Quantification des incertitudes d'un formulaire de calcul (DV = Domaine de Validation ; DA = Domaine d'Application)

1.2. BASE DE DONNEES DE VALIDATION EXPERIMENTALE DU CALCUL DU BILAN MATIERE DANS LES REP

Le formulaire DARWIN2.3 est validé expérimentalement pour le calcul du bilan matière des combustibles REP pour une plage de taux de combustion allant de 10 à 85GWj/t pour les UOX et de 10 à 60GWj/t pour les MOX.

Les données expérimentales utilisées sont issues d'analyses de tronçons de crayons extraits d'assemblages irradiés en réacteur de puissance (majoritairement du parc français). Ces tronçons de 20mm sont généralement prélevés à une côte médiane du cœur (autour de 1900 mm), car le flux y est relativement plat et les tronçons se trouvent loin des grilles de maintien et de mélange des assemblages. L'hypothèse d'un flux constant sur la hauteur du tronçon est donc acceptable. Les tronçons sont dissous par attaque nitrique pour la plupart des éléments, à l'exception des produits de fission métalliques (^{95}Mo , ^{99}Tc , ^{103}Rh , ^{101}Ru , ^{109}Ag) pour lesquels une deuxième étape de reprise des insolubles de la première attaque nitrique est réalisée par fusion alcaline en trois étapes. Les analyses sont par la suite réalisées avec des prélèvements (aliquotes) de jus de dissolution avec les techniques de mesures de spectrométrie de masse (Chandramouleeswaran, 2014) (Gauld, 2011), plus précisément par TI-MS (*Thermal Ionization Mass Spectrometry*) pour les U, Pu, Am, Cm, Nd, Cs et ^{90}Sr et par ICP-MS (*Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry*) pour les ^{237}Np , ^{95}Mo , ^{99}Tc , ^{101}Ru , ^{103}Rh , ^{109}Ag , Sm, Eu, Gd. Des mesures par spectrométrie gamma sont également effectuées pour les ^{106}Ru et ^{144}Ce .

Les réacteurs et types de combustibles utilisés dans la base de validation expérimentale de DARWIN2.3 sont exposés en détails dans la référence (Roque, 2003). Une synthèse des types de combustibles et du nombre de crayons utilisés pour la validation expérimentale du formulaire est présentée sur le Tableau 1.1.

Les données expérimentales se présentent sous forme de ratios isotopiques, c'est-à-dire que la concentration des isotopes analysés est ramenée à celle de l' ^{238}U la plupart du temps en raison de son abondance prépondérante ainsi que sa consommation réduite et bien estimée durant l'irradiation. Certaines expériences fournissent des concentrations normalisées au ^{137}Cs ; il s'agit de mesures de rapports d'activités effectuées par spectrométrie gamma, qui concernent les ^{106}Ru , ^{134}Cs , ^{144}Ce , ^{154}Eu . La liste des isotopes dont le calcul du bilan matière est validé expérimentalement avec DARWIN2.3 est la suivante :

- Uranium : ^{234}U , ^{235}U , ^{236}U ,
- Neptunium : ^{237}Np ,
- Plutonium : ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu ,
- Américium : ^{241}Am , $^{242\text{m}}\text{Am}$, ^{243}Am ,
- Curium : ^{243}Cm , ^{244}Cm , ^{245}Cm , ^{246}Cm , ^{247}Cm ,
- Néodyme : ^{143}Nd , ^{144}Nd , ^{145}Nd , ^{146}Nd , ^{148}Nd , ^{150}Nd ,

- Césium : ^{133}Cs , ^{134}Cs , ^{135}Cs , ^{137}Cs ,
- Prométhium : ^{147}Pm ,
- Samarium : ^{147}Sm , ^{148}Sm , ^{149}Sm , ^{150}Sm , ^{151}Sm , ^{152}Sm , ^{154}Sm ,
- Europium : ^{153}Eu , ^{154}Eu , ^{155}Eu ,
- Gadolinium : ^{154}Gd , ^{155}Gd ,
- Ruthénium : ^{101}Ru , ^{106}Ru ,
- Cérium : ^{144}Ce ,
- Molybdène : ^{95}Mo ,
- Technétium : ^{99}Tc ,
- Rhodium : ^{103}Rh ,
- Argent : ^{109}Ag .

1.3. AMELIORATION DU CALCUL DU BILAN MATIERE AVEC DARWIN2.3 POUR LES REP

Dans cette partie, les résultats de validation expérimentale du formulaire DARWIN2.3 pour le calcul du bilan matière dans les REP sont présentés. Des voies d'amélioration du calcul du bilan matière avec DARWIN2.3 sont déclinées à la fin de cette section.

1.3.1. RESULTATS DE LA VALIDATION EXPERIMENTALE DU FORMULAIRE DARWIN2.3

Les résultats de validation expérimentale sont présentés ici, élément par élément, en commençant par les actinides puis les produits de fission. Nous précisons que les incertitudes associées aux écarts C/E sont calculées par combinaison quadratique de 4 sources d'incertitudes supposées indépendantes (San-Felice, 2013) :

- L'incertitude expérimentale,
- L'incertitude sur la température du modérateur ($\pm 2^\circ\text{C}$ à 1σ),
- L'incertitude sur la température du combustible ($\pm 50^\circ\text{C}$ à 1σ),
- L'incertitude sur le burnup de l'échantillon ($\pm 2\%$ à 1σ).

Ces sources d'incertitudes sont présentées plus en détails dans le chapitre 3. Nous présentons dans les Tableau 1.2 et Tableau 1.3 une synthèse des résultats de validation expérimentale, respectivement pour les actinides et les produits de fission d'intérêt pour le cycle du combustible.

Tableau 1.2 - Tendances significatives à 2σ observées sur le calcul de la concentration des actinides avec le formulaire DARWIN2.3

Isotope	Calcul UOX	Calcul MOX	Remarque, éléments d'explication
²³⁴ U	Tendance non-significative	Tendance non-significative	Teneur initiale mal connues ; correctement calculé dans le cas contraire
²³⁵ U	Bon calcul	Bon calcul	
²³⁶ U	Bon calcul	Légère sous-estimation	Sous-estimation MOX probablement liée à la mauvaise connaissance de la teneur initiale en ²³⁶ U
²³⁷ Np	Sous-estimation	Calcul correct	Piste d'amélioration <i>via</i> la réévaluation de l' ²³⁶ U(n,γ)
²³⁸ Pu	Sous-estimation	Sous-estimation	Voie de formation complexe, possible remises en cause des captures ²³⁵ U, ²³⁶ U, ²³⁷ Np, ²³⁸ Pu, mais aussi ²³⁸ U(n,2n)...
²³⁹ Pu	Bon calcul	Bon calcul	
²⁴⁰ Pu	Surestimation à haut burnup	Surestimation à haut burnup	Calcul correct dans les gammes de taux de combustion standards (<60GWj/t)
²⁴¹ Pu	Légère sous-estimation	Légère sous-estimation	
²⁴² Pu	Calcul correct	Calcul correct	Calcul prédit à mieux que ±3,5%
²⁴¹ Am	Sous-estimation	Légère sous-estimation	Sous-estimation du ²⁴¹ Pu
^{242m} Am	Correctement calculé en moyenne	Tendance à la sous-estimation légère	Forte dispersion des C/E dans les UOX : pas de tendance nette sur le calcul de l' ^{242m} Am
²⁴³ Am	Sous-estimation à faible burnup	Sous-estimation à faible burnup	
²⁴³ Cm	Sous-estimation	Sous-estimation	Forte sensibilité au burnup
²⁴⁴ Cm	Sous-estimation	Sous-estimation	Forte sensibilité au burnup
²⁴⁵ Cm	Sous-estimation	Sous-estimation	Forte sensibilité au burnup
²⁴⁶ Cm	Sous-estimation	Sous-estimation	Forte sensibilité au burnup
²⁴⁷ Cm	Sous-estimation	Sous-estimation	Forte sensibilité au burnup

Tableau 1.3 - Tendances significatives à 2σ observées sur le calcul de la concentration des produits de fission avec le formulaire DARWIN2.3

Isotope	Calcul UOX	Calcul MOX	Remarque, éléments d'explication
¹⁴³⁻¹⁵⁰ Nd	Bon calcul	Bon calcul	Généralement calculés à mieux que ±2%
¹³³ Cs	Sous-estimation	Bon calcul	Piste d'amélioration <i>via</i> la réévaluation du rendement de fission thermique de ¹²³⁵ U
¹³⁴ Cs	Sous-estimation	Sous-estimation	En partie liée à la sous-estimation de ¹³³ Cs
¹³⁵ Cs	Tendance non-significative	Tendance non-significative	Isotope bien calculé lorsque l'historique d'irradiation est bien connu
¹³⁷ Cs	Sous-estimation	Bon calcul	Rendement de fission thermique de ¹²³⁵ U
¹⁴⁷ Pm	Surestimation	Surestimation	Peu de mesure ; besoin probable d'améliorer les rendements de fission et / ou ¹⁴⁷ Pm(n,γ)
¹⁴⁷ Sm	Sous-estimation	Sous-estimation	Piste d'amélioration <i>via</i> la réévaluation des rendements de fission
¹⁴⁸ Sm	Sous-estimation	-	Deux points de mesures uniquement en UOX
¹⁴⁹ Sm	Pas de tendance nette	Sous-estimation	Forte sensibilité à la modélisation de l'historique d'irradiation et fortes incertitudes expérimentales
¹⁵⁰ Sm	Sous-estimation	Sous-estimation	En partie liée à la sous-estimation du ¹⁴⁹ Sm
¹⁵¹ Sm	Sous-estimation	Sous-estimation	En partie liée à la sous-estimation du ¹⁵⁰ Sm, et rendements de fission sur la masse 151
¹⁵² Sm	Sous-estimation	Sous-estimation	Essentiellement liée à la sous-estimation du ¹⁵¹ Sm
¹⁵⁴ Sm	Bon calcul	Bon calcul	
¹⁵³ Eu	Calcul correct	Calcul correct	Formé majoritairement par capture puis décroissance du ¹⁵² Sm
¹⁵⁴ Eu	Tendance à la surestimation	Légère sous-estimation	
¹⁵⁵ Eu	Bon calcul	Légère sous-estimation	
¹⁵⁴ Gd	Surestimation à haut burnup	Légère sous-estimation	
¹⁵⁵ Gd	Bon calcul	Sous-estimation	
¹⁰⁶ Ru	Tendance à la sous-estimation	-	Le ratio ¹⁰⁶ Ru/ ¹³⁷ Cs est correctement calculé → le ¹³⁷ Cs étant sous-estimé en UOX, alors le ¹⁰⁶ Ru est sous-estimé
¹⁴⁴ Ce	Surestimation	-	Forte incertitude expérimentale, et piste d'amélioration <i>via</i> la réévaluation des rendements de fission
⁹⁰ Sr	Bon calcul	Bon calcul	
⁹⁹ Tc	Calcul correct en moyenne	Calcul correct en moyenne	Dispersion importante des C/E
¹⁰¹ Ru	Surestimation	Surestimation	
⁹⁵ Mo	Calcul correct en moyenne	Calcul correct en moyenne	
¹⁰⁹ Ag	Pas de tendance nette	Calcul correct	Forte dispersion des C/E UOX (remise en cause des mesures ?) ; un seul point en MOX
¹⁰³ Rh	Légère surestimation	Tendance à la surestimation	Section de capture et / ou rendements de fission

1.3.2. PROPOSITION DE LISTE DE NUCLEIDES DONT LE CALCUL EST A AMELIORER

Au vu de la partie précédente, une liste de nucléides pour lesquels une amélioration du calcul peut être envisagée est proposée. Cette liste peut être complétée par des nucléides d’intérêt pour le cycle du combustible pour lesquels nous ne disposons pas de données expérimentales exploitables. Nous pouvons notamment citer d’autres produits de fission tels que le ^3H , intervenant dans les rejets gazeux des installations nucléaires mais qui est aussi d’intérêt pour les réacteurs (IRSN, H3), ou bien le ^{85}Kr , également associé aux rejets gazeux (IRSN, Kr85), à la puissance résiduelle (Ternovykh, 2017), et au calcul de réactivité en réacteur (Archier, 2016). Des expériences de la base de données SFCOMPO (SFCOMPO, AEN) ont été interprétées pour proposer un point de validation expérimentale pour le ^{85}Kr , mais sont difficilement exploitables étant donné que le ratio mesuré est $^{85}\text{Kr} / ^{86}\text{Kr}$.

Nous pouvons citer également des produits d’activation d’intérêt comme le ^{14}C , associé aux rejets gazeux des installations nucléaires (IRSN, C14) et à l’activation des structures en réacteur. Un autre produit d’activation d’intérêt est le ^{36}Cl qui a une durée de vie longue, ($T_{1/2}=301 \times 10^3 \text{ a}$) et provenant de l’activation du ^{35}Cl qui est une impureté du combustible intervenant dans le procédé de sa fabrication (Sheppard, 1996).

Pour répondre aux besoins croissants liés à l’assainissement et au démantèlement des installations nucléaires, cette liste peut être complétée par des produits d’activation des structures, tels que le ^{60}Co , le ^{55}Fe , l’ ^{152}Eu , le ^{63}Ni , ou encore l’ ^{125}Sn . Une liste plus exhaustive de nucléides « cible » à améliorer – qui synthétise les discussions internes que nous avons pu avoir avec différents interlocuteurs spécialisés dans le domaine – est proposée sur le Tableau 1.4.

Tableau 1.4 - Proposition de liste de nucléides dont le calcul est à améliorer dans DARWIN2.3

Nucléides d’intérêt	Besoin associé
^{236}U ^{133}Cs ^{153}Eu ^{238}Pu ^{134}Cs ^{154}Eu ^{240}Pu ^{135}Cs ^{155}Eu ^{241}Pu ^{137}Cs ^{154}Gd ^{241}Am ^{147}Pm ^{155}Gd $^{242\text{m}}\text{Am}$ ^{147}Sm ^{106}Ru ^{243}Cm ^{148}Sm ^{144}Ce ^{244}Cm ^{149}Sm ^{95}Mo ^{245}Cm ^{150}Sm ^{101}Ru ^{246}Cm ^{151}Sm ^{103}Rh ^{247}Cm ^{152}Sm	Amélioration du calcul de la concentration
^{109}Ag ^{36}Cl ^{152}Eu ^{125}Sb ^{85}Kr ^{63}Ni ^3H ^{60}Co ^{125}Sn ^{14}C ^{55}Fe	Disposer de données expérimentales exploitables

1.3.3. VOIES D'AMELIORATION

Pour améliorer la précision du formulaire DARWIN2.3 pour le calcul des isotopes présentés sur le Tableau 1.4, des voies d'amélioration peuvent être proposées. Celles-ci découlent de la méthode VVQI présentée dans la section 1.1.2.

L'étape de validation expérimentale permet de mettre en évidence les données nucléaires qui nécessitent d'être améliorées. En effet, lorsque l'écart C/E d'un nucléide donné peut être amélioré, les données nucléaires impliquées dans la formation de ce nucléide peuvent être remises en cause.

Par ailleurs pour certains nucléides, il est nécessaire d'avoir davantage de C/E (donc de points expérimentaux), par exemple sur une plage de taux de combustion ou d'enrichissement non-couverte par la validation expérimentale, afin de dégager des tendances sur le calcul des ces isotopes. Dans d'autres cas, il n'y a tout simplement pas de points expérimentaux. Dans ces deux situations, il faudrait proposer de nouvelles expériences afin d'acquérir des données expérimentales exploitables.

Dans cette thèse, nous nous intéresserons à l'assimilation des tendances intégrales du formulaire DARWIN2.3 avec le code CONRAD (De Saint Jean C. , 2007) (Archier, 2014-1) dédié à l'évaluation des données nucléaires. L'objectif de cette démarche est de proposer des améliorations pour certaines données nucléaires impliquées dans la formation d'actinides ou de produits de fission sur la base des résultats de validation expérimentale du formulaire DARWIN2.3. Pour cela, le Chapitre 2 décline l'ensemble des sources d'incertitudes prises en compte pour cette démarche, avant de présenter dans le Chapitre 3 la méthode et les résultats d'ajustements. Dans le Chapitre 4, nous présenterons une étude de préconception d'un programme expérimental, permettant d'acquérir des données exploitables pour la validation des voies de formation du ^{14}C .

RESUME DU CHAPITRE 1 :

- Le formulaire DARWIN2.3 est un outil de calcul de référence pour les applications du cycle de combustible, calculant les grandeurs d'intérêt pour le cycle du combustible nucléaire, en particulier le bilan matière en évolution.
- La mise au point de DARWIN2.3 a suivi la démarche de VVQI, et le calcul du bilan matière en REP bénéficie d'une validation expérimentale large, complétée dans certains cas par des études de transposition.
- L'analyse de la validation expérimentale du formulaire DARWIN2.3 permet de mettre en évidence des nucléides pour lesquels nous pouvons souhaiter une amélioration du calcul de la concentration. Cette liste est donnée sur le Tableau 1.4.
- Deux axes d'amélioration des calculs effectués avec le formulaire DARWIN2.3 sont proposés dans cette thèse : le premier s'appuie sur la méthode VVQI à travers l'exploitation des résultats de validation expérimentale du formulaire DARWIN2.3 et consiste en l'amélioration des données nucléaires impliquées dans la formation des nucléides pour lesquels nous souhaitons améliorer le C/E. La deuxième consiste en l'étude de préconception d'un programme expérimental permettant d'acquérir des données expérimentales pour la validation des voies de formation du ^{14}C .

CHAPITRE 2 : SOURCES D'INCERTITUDES PRISES EN COMPTE POUR L'ASSIMILATION DES DONNEES INTEGRALES

Dans cette partie, nous détaillons les sources d'incertitudes prises en compte pour l'étude d'assimilation des données intégrales du formulaire DARWIN2.3 avec le code CONRAD présentée au chapitre 3. Elles sont de trois types : i) les incertitudes sur les données nucléaires, ii) les incertitudes associées à l'interprétation des expériences de post-irradiation, iii) les incertitudes dites « de modélisation ». Ces dernières ont pour objectif de quantifier l'impact d'approximations méthodologiques sur le calcul du bilan matière.

La nature et la méthode de traitement de chacune de ces sources incertitudes en vue des études d'assimilations sont présentées. Les choix effectués pour combiner ces incertitudes et produire une matrice de covariance entre les C/E des analyses post-irradiation sont également détaillés.

CONTENU

2.1. Les données nucléaires	- 28 -
2.1.1. Sections efficaces.....	- 28 -
2.1.2. Rendements de fission	- 33 -
2.1.3. Périodes radioactives.....	- 35 -
2.1.4. Rapport d'embranchement	- 35 -
2.1.5. Rapport isomérique	- 35 -
2.1.6. Données nucléaires sans incertitude	- 36 -
2.2. Expériences de Post-Irradiation	- 38 -
2.2.1. Incertitude expérimentale.....	- 39 -
2.2.2. Température du combustible	- 40 -
2.2.3. Température du modérateur	- 41 -
2.2.4. Incertitude sur le burnup.....	- 42 -
2.3. Incertitudes de modélisation.....	- 43 -
2.3.1. Estimation de l'impact du schéma de calcul CYCLE2008-REP	- 43 -
2.3.2. Estimation de l'impact du phénomène d'upscattering résonant.....	- 49 -
2.4. Combinaison des incertitudes	- 56 -
2.4.1. Présentation de la méthode AGS	- 56 -
2.4.2. Construction de la matrice de corrélation avec la méthode AGS	- 56 -

2.1. LES DONNEES NUCLEAIRES

Les données nucléaires constituent l'ensemble des informations traduisant le comportement des noyaux, et notamment leur interaction avec les neutrons à l'échelle microscopique. Ces données sont compilées dans des bibliothèques qui font l'objet d'améliorations continues par la communauté scientifique. La bibliothèque utilisée pour le formulaire DARWIN2.3 s'appelle JEFF-3.1.1 (Santamarina A. , 2009), pour *Joint Evaluated Fission and Fusion*.

Dans cette section, nous présentons les types de données nucléaires qui sont traitées dans les études d'assimilation de données intégrales, ainsi que l'origine des incertitudes qui leur sont associées.

2.1.1. SECTIONS EFFICACES

Dans cette partie la notion de section efficace de réaction nucléaire est introduite. Ces données physiques sont connues avec une certaine précision. Leur incertitude est stockée sous la forme de matrices de covariance, également présentées dans cette partie.

2.1.1.1. GENERALITES

Les sections efficaces microscopiques de réactions nucléaires, exprimées en barn, permettent d'exprimer la probabilité qu'une réaction nucléaire donnée se produise. En physique des réacteurs, on s'intéresse notamment aux réactions engendrées par l'interaction d'un neutron à une énergie E avec un noyau donné X . Ainsi, un neutron parcourant une distance élémentaire ds dans un milieu contenant une densité volumique N_X de noyaux X ayant pour section efficace microscopique $\sigma_{X,R}(E)$ de la réaction R à l'énergie E , aura la probabilité élémentaire $dp_R(s,E)$ d'interagir :

$$dp_R(s, E) = N_X \cdot \sigma_{X,R}(E) \cdot ds \quad (2.1)$$

Notons que la grandeur $N_X \times \sigma_{X,R}(E)$ peut être écrite $\Sigma_{X,R}(E)$ et désigne la section efficace macroscopique de la réaction R pour le noyau X .

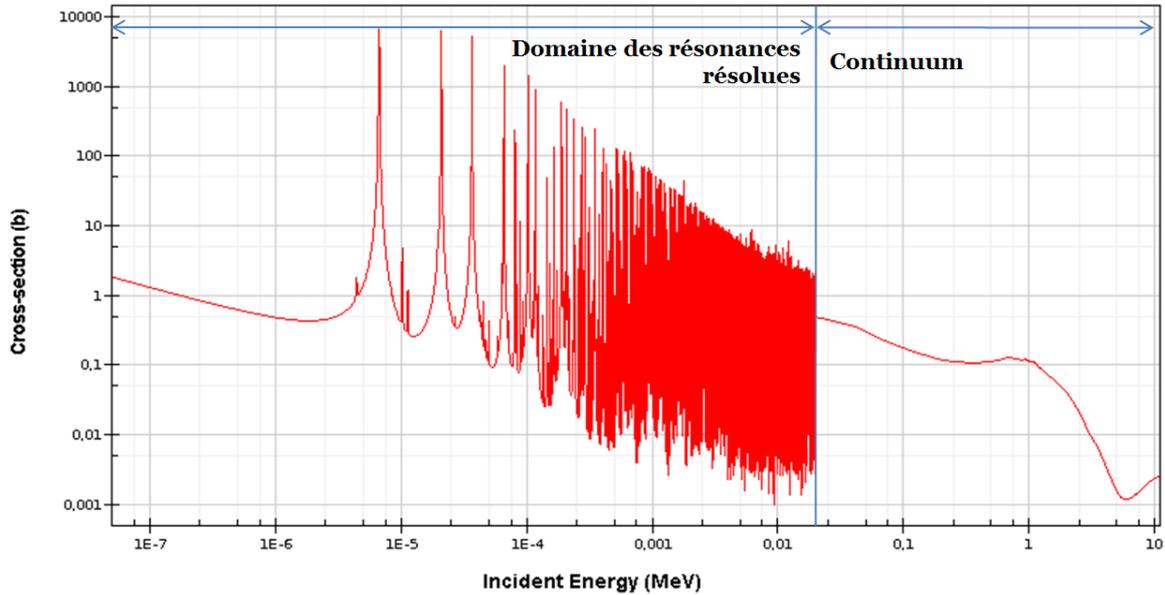


Figure 2.1 – Section efficace de capture de l' ^{238}U en fonction de l'énergie du neutron incident dans JEFF-3.1.1

De manière générale, les sections efficaces sont dépendantes de l'énergie incidente du neutron comme l'illustre la Figure 2.1, où nous pouvons voir l'augmentation brutale de la section efficace de capture de ^{238}U pour certaines valeurs d'énergie données. Il s'agit de résonances. En neutronique, trois domaines énergétiques principaux sont considérés :

- Le domaine rapide : c'est celui des neutrons prompts de fission, qui sont émis à une énergie moyenne de 2 MeV. Il recouvre traditionnellement la plage 500 keV – 20 MeV pour la physique des réacteurs,
- Le domaine intermédiaire : en REP, c'est celui du ralentissement, au cours duquel le neutron collisionne avec les noyaux du milieu environnant et y dissipe son énergie cinétique. Il recouvre traditionnellement la plage 0,5 eV – 500 keV,
- Le domaine thermique : les neutrons ont une énergie inférieure à 0,5 eV et sont suffisamment ralentis pour être en équilibre thermique avec le milieu environnant.

Nous définissons également deux grandeurs qui nous seront utiles plus loin pour l'analyse des résultats qui seront obtenus pour l'assimilation de données intégrales – la section efficace thermique $\sigma_{0,R}$ de la réaction R et l'intégrale de résonance $I_{0,R}$ de la section efficace R :

$$\sigma_{0,R} = \sigma_R(E = 0,0253 \text{ eV}) \quad (2.2)$$

$$I_{0,R} = \int_{0,5 \text{ eV}}^{+\infty} \sigma_R(E) \frac{dE}{E} \quad (2.3)$$

Ces deux grandeurs désignent respectivement la valeur de la section efficace pour une vitesse du neutron de 2200m/s et l'intégrale de la section efficace de la réaction R sur un spectre

neutronique en $1/E$ – convention liée à l'allure du spectre neutronique dans le domaine épithermique (Baumann, 1963). Elles donnent une indication sur l'allure de la section efficace : pour reprendre l'exemple de la capture radiative de l' ^{238}U , la valeur des ces paramètres dans JEFF-3.1.1 est $\sigma_{o,\gamma}=2,7\text{b}$ et $I_{o,\gamma}=275\text{b}$, ce qui indique que les captures se font essentiellement dans la zone épithermique (ce qui est cohérent étant donné le nombre et la taille des résonances sur la Figure 2.1).

Pour les besoins de cette thèse, les réactions nucléaires d'intérêt sont les suivantes : la fission, la capture radiative, et la réaction $(n,2n)$. En effet, ce sont ces réactions qui modifient le bilan matière en évolution au sein du combustible et pour lesquelles il est possible d'extraire des informations grâce aux données intégrales.

2.1.1.2. INCERTITUDES SUR LES SECTIONS EFFICACES – COMAC

Les incertitudes sur les sections efficaces sont prises en compte dans les applications de physique des réacteurs à travers les matrices de covariance multi-groupes en énergie qui leur sont associées. Elles quantifient l'incertitude associée à chaque groupe d'énergie (termes diagonaux) et la covariance entre les N groupes d'énergie entre eux (termes non-diagonaux) :

$$\forall (i, j) \in \llbracket 1, N \rrbracket^2, \begin{cases} M_{\sigma}[i, j] = \text{var}(\sigma_i), \text{ si } i = j \\ M_{\sigma}[i, j] = \text{corr}(\sigma_i, \sigma_j) \cdot \sqrt{\text{var}(\sigma_i) \cdot \text{var}(\sigma_j)}, \text{ si } i \neq j \end{cases} \quad (2.4)$$

Avec :

- M_{σ} la matrice de covariance de taille $N \times N$ de la section efficace σ ,
- $\text{var}(\sigma_i)$ la variance de la section efficace dans le groupe d'énergie i ,
- $\text{corr}(\sigma_i, \sigma_j)$ le coefficient de corrélation entre σ_i et σ_j .

Un maillage à $N=26$ groupes énergétiques, optimisé pour les REL grâce à une description fine des premières résonances, est utilisé. Notons que les matrices de covariance peuvent également être définies entre deux réactions nucléaires différentes d'un même isotope, et donc entre deux sections efficaces différentes d'un même isotope.

Pour les travaux réalisés dans cette thèse, les matrices de covariance issues de la base COMAC-V2.0 (Archier, 2014-2) développée par le CEA sont utilisées. La Figure 2.2 donne à titre d'illustration la matrice de corrélation pour la section de capture de l' ^{238}U avec elle-même. Elle montre également la section de capture multi-groupes en fonction de l'énergie ainsi que l'incertitude relative de la section efficace. La liste des isotopes de la base COMAC-V2.0 utilisés dans cette thèse ainsi que l'origine des matrices de covariances qui leur sont associées sont données sur le Tableau 2.1.

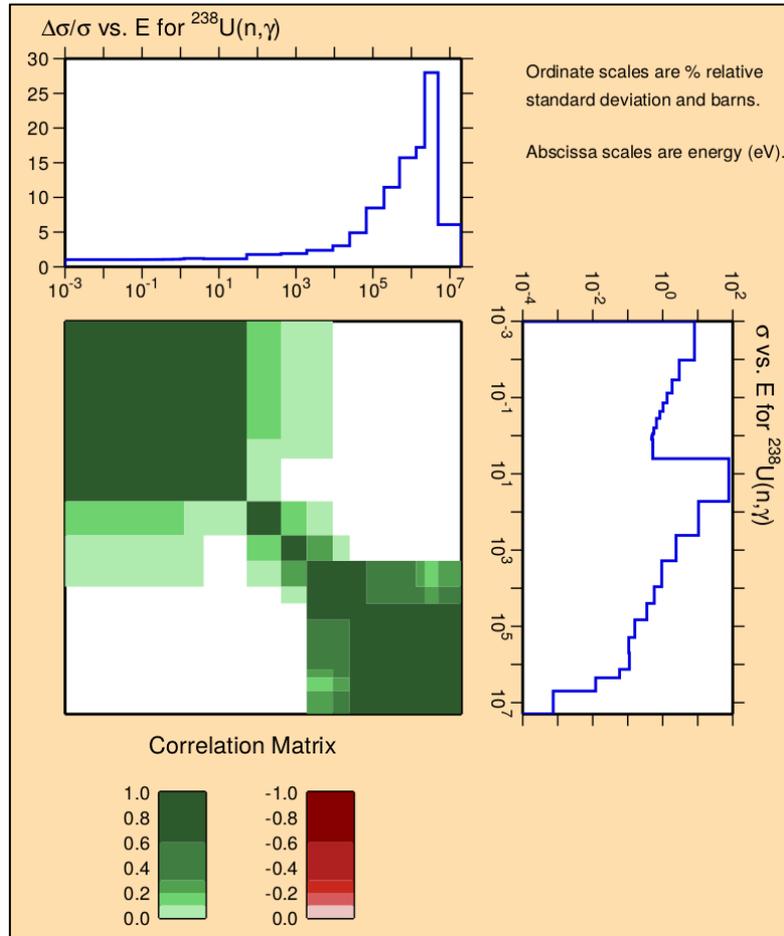


Figure 2.2 – Matrice de corrélation capture / capture de l' ^{238}U à 26 groupes issue de COMAC-V2.0

Tableau 2.1 – Liste des isotopes présent dans COMAC-V2.0 et utilisés dans cette thèse, et origine de la matrice de covariance pour les sections efficaces

Isotope	Origine de la matrice	Isotope	Origine de la matrice	Isotope	Origine de la matrice
^{234}U	JEFF-3.2	^{243}Cm	JEFF-3.2	^{148}Nd	ENDF/B-VII.1
^{235}U	ENDF/B-VII.1	^{244}Cm	JEFF-3.2	^{147}Pm	ENDF/B-VII.1
^{236}U	ENDF/B-VII.1	^{245}Cm	JEFF-3.2	^{147}Sm	TENDL-2011
^{238}U	CEA	^{246}Cm	JEFF-3.2	^{148}Sm	TENDL-2012
^{237}Np	ENDF/B-VII.1	^{247}Cm	JEFF-3.2	^{149}Sm	CEA ²
^{238}Pu	ENDF/B-VII.1	^{95}Mo	ENDF/B-VII.1	^{150}Sm	TENDL-2012
^{239}Pu	CEA	^{99}Tc	TENDL-2011	^{151}Sm	ENDF/B-VII.1
^{240}Pu	CEA	^{103}Rh	ENDF/B-VII.1	^{152}Sm	ENDF/B-VII.1
^{241}Pu	ENDF/B-VII.1	^{109}Ag	ENDF/B-VII.1	^{154}Sm	TENDL-2011
^{242}Pu	ENDF/B-VII.1	^{135}Xe	TENDL-2011	^{153}Eu	ENDF/B-VII.1
^{241}Am	CEA ¹	^{133}Cs	ENDF/B-VII.1	^{154}Eu	TENDL-2012
$^{242\text{m}}\text{Am}$	ENDF/B-VII.1	^{134}Cs	TENDL-2011	^{155}Eu	ENDF/B-VII.1
^{243}Am	ENDF/B-VII.1	^{135}Cs	ENDF/B-VII.1	^{156}Eu	TENDL-2012
^{242}Cm	JEFF-3.2	^{147}Nd	TENDL-2012	^{155}Gd	CEA ¹

¹ Pour le domaine des résonances résolues uniquement. Pour le continuum : ENDF/B-VII.1

² Pour le domaine des résonances résolues uniquement. Pour le continuum : TENDL-2009

2.1.1.3. TRAITEMENT DES INCERTITUDES POUR L'AJUSTEMENT

De manière générale, les données nucléaires sont considérées comme les connaissances *a priori* de notre système. L'incertitude qui leur est associée est prise en compte dans l'ajustement des données nucléaires par assimilation des données intégrales.

Pour l'étude d'assimilation des données intégrales du formulaire DARWIN2.3, il a été choisi de travailler avec des sections efficaces à 1 groupe d'énergie. Ainsi, pour produire une incertitude à un groupe pour chacune des sections efficaces auxquelles nous nous intéresserons, la méthode de condensation de l'information des matrices de covariance suivante, fondée sur la conservation du taux de réaction (Krivtchik, 2014), est utilisée :

$$var(\sigma_{1g}) = \left[\frac{\tau_i}{\tau} \right]_{1 \leq i \leq N}^T \cdot M_{\sigma} \cdot \left[\frac{\tau_i}{\tau} \right]_{1 \leq i \leq N} \quad (2.5)$$

Avec :

- M_{σ} la matrice de covariance de la section efficace σ à N groupes,
- τ_i le taux de réaction dans le groupe i , τ le taux de réaction total,
- $\left[\frac{\tau_i}{\tau} \right]$ le vecteur colonne de taille $1 \times N$ contenant les ratios τ_i / τ .

Pour utiliser cette méthode, il faut donc avoir un taux de réaction à $N=26$ groupes pour condenser la matrice de covariance de COMAC-V2.0. Cependant, d'une expérience à une autre, le taux de réaction peut varier (faible / haut taux de combustion, ou bien combustible UOX / MOX...); or comme nous souhaitons conserver un seul paramètre pour décrire une réaction nucléaire donnée, il faut donc choisir une seule incertitude pour le décrire.

Tableau 2.2 – Comparaison des incertitudes à 1 groupe produites avec différents flux de pondération pour la capture de l'²³⁸U

Expérience et combustible	Burnup (GWj/t)	Incertitude à 1 groupe produite (en %)
Bugey3 – enr. ²³⁵ U de 3,1%	20	0,85
Fessenheim2 – enr. ²³⁵ U de 3,1%	60	0,85
Gravelines 2-3 – ²³⁵ U de 4,5%	25	0,85
Gösgen - ²³⁵ U de 4,3%	70	0,84
Dampierre – teneur Pu 6,7%	10	0,85
	58	0,85
Tricastin – teneur Pu 9,7%	40	0,84

La condensation des matrices de covariance avec différents taux de réaction multi-groupes provenant des expériences utilisées montrent que l'impact des taux de condensation est limité, comme illustré sur le Tableau 2.2 avec l'exemple de la section de capture de l'²³⁸U. Étant donnée la faible dispersion des valeurs pour la capture de l'²³⁸U, et c'est le cas pour les paramètres autres que la capture de l'²³⁸U, nous choisissons pour incertitude *a priori* une valeur moyenne des valeurs obtenues avec les différents taux de réaction.

2.1.2. RENDEMENTS DE FISSION

Les rendements de fission caractérisent la distribution en nombre de masse A , numéro atomique Z , et niveau d'isomérie M (0 indique l'état stable, 1 indique le premier niveau excité, etc.) des produits de fission des noyaux lourds. Ainsi, à un produit de fission i est associé un triplet (A_i, Z_i, M_i) correspondant. Les noyaux fissionnant engendrent des fragments de fission qui émettent des particules promptes (γ , neutron essentiellement). Les fragments de fission deviennent des « produits de fission » après les émissions de particules promptes. Les produits de fission vont assez rapidement se désexciter par décroissance β^- le plus souvent, mais aussi par réaction (β^-, n) , $(\beta^-, 2n)$, décroissance β^+ , conversion électronique, pour rejoindre un état stable.

Nous distinguons deux types de rendements de fission :

- Les rendements de fission indépendants (notés Y_i) : il s'agit du nombre de noyaux i directement produit par fission d'un noyau lourd donné après émission des neutrons prompts mais avant leur décroissance,
- Les rendements de fission cumulés (notés C_i) : il s'agit du nombre de noyaux i produits directement par fission d'un noyau lourd donné, auquel la contribution des noyaux j qui décroissent sur l'isotope i est ajoutée. En reprenant les notations de (Mills, 1995), nous pouvons écrire :

$$C_i = Y_i + \sum_j C_j \cdot b(j \rightarrow i) \quad (2.6)$$

Ici, le produit de fission i est associé à un triplet (A_i, Z_i, M_i) , et $b(j \rightarrow i)$ correspond au rapport d'embranchement de décroissance de l'isotope j vers l'isotope i . Nous illustrons sur la Figure 2.3 l'exemple de la décroissance du ^{148}Cs , tirée de (Terranova, 2016). Ce dernier est produit par fission, et décroît par plusieurs désintégrations successives vers le ^{148}Nd . Le rendement cumulé du ^{148}Nd s'exprime alors :

$$C_{^{148}\text{Nd}} = Y_{^{148}\text{Nd}} + C_{^{148}\text{Pr}} \times 1,000 = Y_{^{148}\text{Nd}} + \left(Y_{^{148}\text{Pr}} + C_{^{148}\text{Ce}} \times 1,000 \right) \times 1,000 \dots \quad (2.7)$$

Dans le cadre de cette thèse, nous nous intéresserons aux rendements de fission cumulés. L'incertitude sur ces rendements de fission est directement disponible dans la bibliothèque de données nucléaires JEFF-3.1.1. Les rendements cumulés sont généralement mieux connus (incertitude de l'ordre de quelques pourcents) que les rendements indépendants (plusieurs dizaines de pourcents d'incertitude selon les noyaux), car leur mesure est plus facile à réaliser. Le Tableau 2.3 illustre les rendements cumulés de fission thermique de quatre isotopes du néodyme. Nous pouvons voir que ces rendements sont connus avec une incertitude autour de 1 à 3% pour les principaux actinides majeurs, alors que par exemple l'incertitude des rendements indépendants de fission thermique de l' ^{235}U pour le ^{148}Nd et ses prédécesseurs varie de 10% pour le ^{148}Ce à 38% pour le ^{148}Cs .

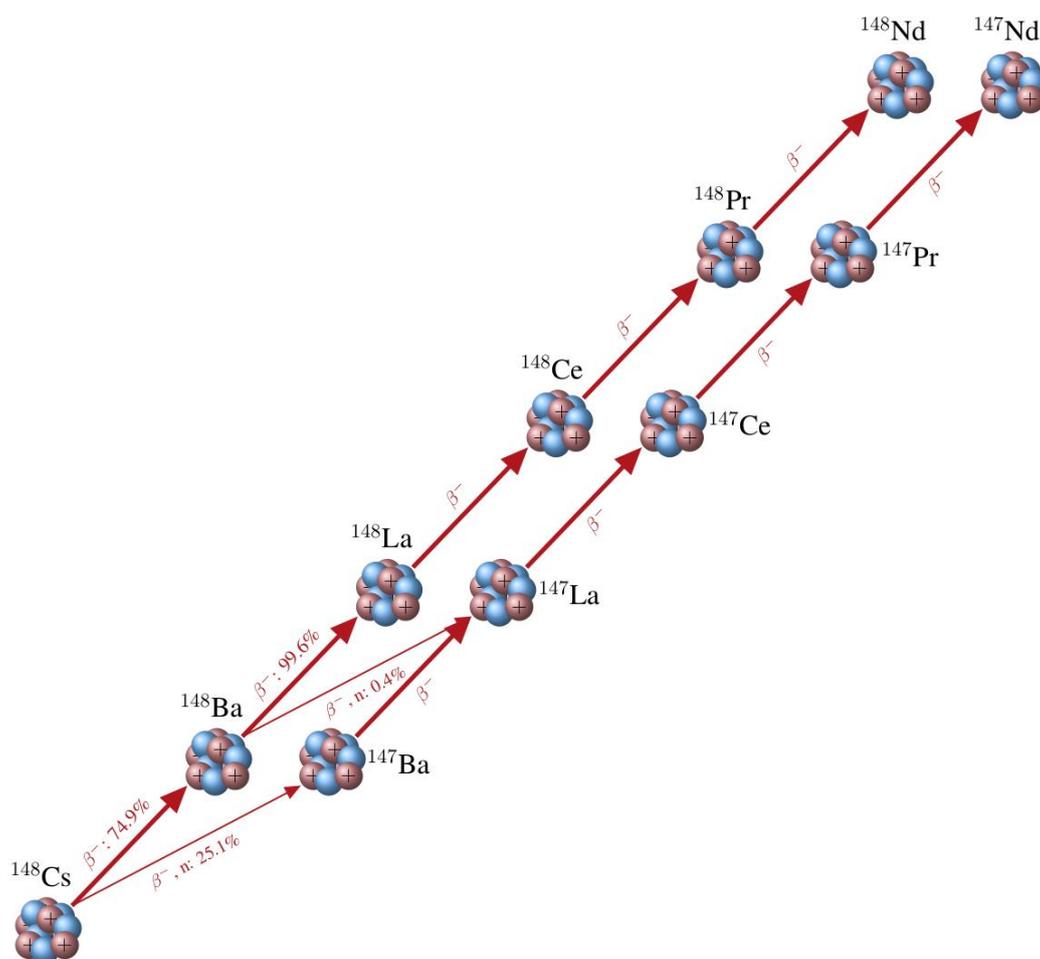


Figure 2.3 - Schéma de décroissance du ^{148}Cs , repris de (Terranova, 2016)

Tableau 2.3 - Incertitudes à 1σ des rendements cumulés de fission thermique des principaux actinides sur les isotopes ^{145}Nd , ^{146}Nd , ^{148}Nd , ^{150}Nd dans JEFF-3.1.1

Isotope fissile	Noyau formé	Incertitude à 1σ sur le rendement cumulé de fission thermique
^{235}U	^{145}Nd	1,1%
	^{146}Nd	1,0%
	^{148}Nd	0,7%
	^{150}Nd	1,0%
^{239}Pu	^{145}Nd	1,1%
	^{146}Nd	1,0%
	^{148}Nd	1,0%
	^{150}Nd	1,3%
^{241}Pu	^{145}Nd	2,9%
	^{146}Nd	2,6%
	^{148}Nd	3,4%
	^{150}Nd	2,8%

2.1.3. PERIODES RADIOACTIVES

Les périodes radioactives sont importantes dans les études portant sur le cycle du combustible. En effet, c'est par la connaissance du bilan matière et des périodes de décroissance qu'il est possible de calculer la puissance résiduelle et les activités α , β , γ , n . Les combustibles analysés pour la validation expérimentale de DARWIN2.3 ont des durées de refroidissement de l'ordre de quelques années. Les périodes radioactives qui correspondent à cette échelle de temps sont généralement bien connues (incertitude inférieure à 1%). Leur incertitude est directement prise de la bibliothèque JEFF-3.1.1.

2.1.4. RAPPORT D'EMBRANCHEMENT

Les rapports d'embranchement interviennent lors de la décroissance d'un nucléide. Ils traduisent la probabilité que le nucléide considéré décroisse vers un état donné. Dans le reste du manuscrit, cette grandeur sera notée BR (pour *Branching Ratio*).

Deux exemples de rapports d'embranchement sont donnés sur la Figure 2.3 : celui de la décroissance du ^{148}Cs vers le ^{148}Ba / ^{147}Ba à 74,9% / 25,1%, et celui de la décroissance du ^{148}Ba vers le ^{148}La / ^{147}La à 99,6% / 0,4% dans JEFF-3.1.1. De même que pour les périodes, les incertitudes sur les rapports d'embranchement sont tirées directement de l'évaluation JEFF-3.1.1.

2.1.5. RAPPORT ISOMERIQUE

Les rapports isomériques interviennent lors d'une interaction neutron / noyau. Ils traduisent la probabilité que le noyau engendré par la réaction soit soit dans son état fondamental, soit dans un ou plusieurs états métastables. La probabilité de former un état métastable va varier fortement avec l'énergie. Cette grandeur sera notée IR (pour *Isomeric Ratio*).

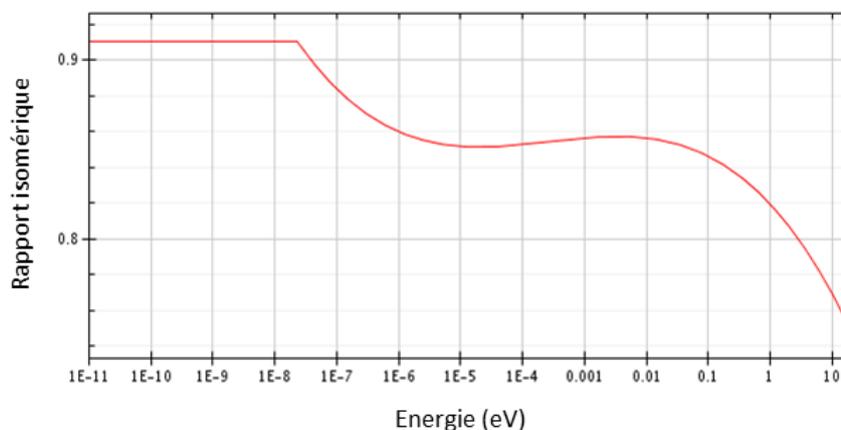


Figure 2.4 - Évolution du rapport isomérique de la capture de l' ^{241}Am vers l' ^{242g}Am en fonction de l'énergie dans JEFF-3.1.1

La capture de l' ^{241}Am vers l' ^{242}Am ou le $^{242\text{m}}\text{Am}$ est un exemple de rapport isomérique d'intérêt pour la physique des réacteurs et du cycle. L'évolution du rapport isomérique vers l' $^{242\text{g}}\text{Am}$ en fonction de l'énergie dans JEFF-3.1.1 est donnée sur la Figure 2.4. Les incertitudes sur les rapports isomériques sont prises de l'évaluation JEFF-3.1.1.

2.1.6. DONNEES NUCLEAIRES SANS INCERTITUDE

Pour un certain nombre de données nucléaires, nous ne disposons pas de valeur d'incertitude dans JEFF-3.1.1 ou dans COMAC-V2.0. Pour fournir une valeur d'incertitude pour ces paramètres, un travail de comparaison des données de JEFF-3.1.1 avec les autres évaluations internationales, que sont JEFF-3.2 (OECD-NEA, 2017), JEFF-3.3 (OECD-NEA, 2018), ENDF/B-VII.1 (Chadwick, 2011), ENDF/B-VIII.0 (Brown, 2018), et JENDL-4.0 (Shibata, 2011) a été effectué. Ce travail est détaillé dans les paragraphes suivants.

2.1.6.1. CAS DES SECTIONS EFFICACES

Pour déterminer une incertitude pour les sections efficaces à 1 groupe, une condensation à 1 groupe des sections efficaces des différentes évaluations a été réalisée à l'aide d'un flux de pondération typique d'un REP. Cette pondération est effectuée avec NJOY (MacFarlane, 2016) à une température de 900K qui correspond à l'ordre de grandeur de la température des combustibles en REP. Les valeurs d'incertitude retenues pour les sections efficaces à l'aide de ces travaux de comparaison sont données dans le Tableau 2.4.

2.1.6.2. CAS DES RAPPORTS ISOMERIQUES

Les incertitudes de trois rapports isomériques d'intérêt pour cette thèse sont présentées dans les paragraphes suivants. Les incertitudes retenues pour ces paramètres sont données dans le Tableau 2.5.

Cas du rapport isomérique de capture de l' ^{241}Am : $\text{IR}({}^{241}\text{Am} \rightarrow {}^{242\text{g}}\text{Am})$

Cette donnée nucléaire a été étudiée dans les travaux (Bernard & Bouland, 2012) (Bernard D. , 2015). Les résultats de ces travaux ont été intégrés dans l'évaluation JEFF-3.2.

Le rapport isomérique de capture dépend de l'énergie incidente du neutron comme indiqué sur la Figure 2.4. Dans DARWIN2.3 comme dans APOLLO2, une valeur constante est utilisée, calculée par pondération avec un spectre typique des REP. Cette valeur est de 0,87 pour la formation de l' $^{242\text{g}}\text{Am}$. Les résultats de (Bernard & Bouland, 2012) suggèrent une valeur de $0,846 \pm 0,029$ pour les applications REL. Ces résultats sont en cohérence avec ceux de (Bernard D. , 2015), pour lesquels une valeur expérimentale de $0,867 \pm 0,003$ a été obtenue pour un réseau de type REP sur le réacteur MELUSINE. L'incertitude proposée par (Bernard & Bouland, 2012) sera celle retenue à 1σ pour ce rapport isomérique.

Tableau 2.4 - Comparaison des valeurs de sections efficaces qui n'ont pas d'incertitude avec les autres évaluations internationales (σ_{moy} : section à 1 groupe condensée à 900K avec NJOY)

Paramètre	Comparaison entre les évaluations																		Incertitude retenue à 1σ
	JEFF-3.1.1			JEFF-3.2			JEFF-3.3			ENDF/B-VII.1			ENDF/B-VIII.0			JENDL-4.0			
	σ_{moy} (b)	σ_o (b)	I_o (b)	σ_{moy} (b)	σ_o (b)	I_o (b)	σ_{moy} (b)	σ_o (b)	I_o (b)	σ_{moy} (b)	σ_o (b)	I_o (b)	σ_{moy} (b)	σ_o (b)	I_o (b)	σ_{moy} (b)	σ_o (b)	I_o (b)	
$^{236}\text{Pu}(n_{th},f)$	72,5	165	962	72,5 +0%	165 +0%	962 +0%	69,2 -5%	140 -15%	973 +1,1%	5%									
$^{238}\text{Pu}(n_{th},f)$	4,2	17,9	37,4	4,2 +0%	17,9 +0%	37,4 +0%	3,7 -12%	17,8 -0,7%	29,6 -21%	3,7 -12%	17,8 -0,7%	30,7 -18%	3,7 -12%	17,8 -0,7%	30,7 -18%	3,7 -12%	17,8 -0,7%	29,6 -21%	12%
$^{247}\text{Cm}(n_{th},f)$	42,0	81,8	612	61,5 +47%	94,7 +16%	954 +56%	61,5 +47%	94,7 +16%	954 +56%	61,6 +47%	94,7 +16%	955 +56%	61,6 +47%	94,7 +16%	955 +56%	61,6 +47%	94,7 +16%	955 +56%	50%
$^{100}\text{Ru}(n,\gamma)$	1,3	5,8	8,2	1,5 +12%	5,8 -0,2%	11,4 +40%	1,6 +20%	5,9 +1,2%	13,6 +67%	1,5 +12%	5,8 -0,2%	11,4 +40%	1,5 +20%	5,8 -0,2%	11,4 +40%	1,5 +12%	5,8 +0,7%	11,5 +41%	20%
$^{101}\text{Ru}(n,\gamma)$	5,9	34,1	111	5,9 +0%	34,1 +0%	111 +0%	6,3 +6%	51,9 +52%	113 +1,6%	6,3 +6%	52,2 +53%	112 +1,1%	6,3 +6%	52,2 +53%	112 +1,1%	5,7 -3%	52,3 +53%	101 -9,2%	6%
$^{142}\text{Nd}(n,\gamma)$	3,3	18,6	6,2	3,3 +0%	18,6 +0%	6,2 +0%	3,3 +0%	18,7 +0,4%	6,2 +1,1%	3,3 +0%	18,7 +0,3%	6,2 +0,5%	3,3 +0%	18,7 +0,3%	6,2 +0,5%	3,4 +4%	18,7 +0,4%	8,6 +39%	4%
$^{143}\text{Nd}(n,\gamma)$	60,3	336	133	60,3 +0%	336 +0%	133 +0%	58,4 -3%	325 -3,2%	130 -1,8%	58,4 -3%	325 -3,2%	131 -1,7%	58,4 -3%	325 -3,2%	131 -1,7%	58,3 -3%	325 -3,2%	128 -3,3%	3%
$^{145}\text{Nd}(n,\gamma)$	17,9	41,9	232	17,9 +0%	41,9 +0%	232 +0%	19,3 +8%	50,0 +20%	234 +0,9%	17,6 -2%	42,0 +0,3%	223 -3,7%	17,6 -2%	42,0 +0,3%	223 -3,7%	18,7 +4%	49,4 +18%	223 -3,8%	8%
$^{148m}\text{Pm}(n,\gamma)$	3540	10700	3660	3640 +3%	10700 +0%	4940 +35%	3470 -2%	10700 +0,4%	2090 -43%	3640 +3%	10700 +0%	4940 +35%	3380 -5%	9850 -7,7%	4930 +35%	3560 +1%	10600 -0,2%	4220 +15%	5%
$^{154}\text{Gd}(n,\gamma)$	25,7	85,0	248	26,1 +1%	86,2 +1,4%	260 +5,0%	23,9 -7%	85,2 +0,2%	217 -13%	23,9 -7%	85,2 +0,2%	217 -13%	23,9 -7%	85,2 +0,2%	217 -13%	27,4 +6%	85,0 +0%	288 +16%	7%

Tableau 2.5 - Valeurs d'incertitudes retenues pour les rapports isomériques sans incertitude dans JEFF-3.1.1

Paramètre	Commentaire, origine de l'incertitude	Incertitude retenue à 1σ
BR($^{241}\text{Am} \rightarrow ^{242g}\text{Am}$)	Déduite de (Bernard & Bouland, 2012) et (Bernard D. , 2015)	3,5%
BR($^{147}\text{Pm} \rightarrow ^{148m}\text{Pm}$)	Travaux internes CEA basés sur (Mughabghab, 2006)	13%
BR($^{237}\text{Np} \rightarrow ^{236m}\text{Np}$) + IR($^{236m}\text{Np} \rightarrow ^{236}\text{Pu}$)	Combinaison quadratique de l'incertitudes sur BR($^{237}\text{Np} \rightarrow ^{236m}\text{Np}$) estimée par rapport à la dispersion des évaluations et l'incertitude sur IR($^{236m}\text{Np} \rightarrow ^{236}\text{Pu}$) de JEFF-3.1.1	19%

Cas du rapport isomérique de capture du ^{147}Pm : $\text{IR}(^{147}\text{Pm} \rightarrow ^{148\text{m}}\text{Pm})$

Comme pour ^{241}Am , le ratio isomérique est dépendant de l'énergie, et des valeurs pondérées par des spectres représentatifs des applications sont utilisées. Le rapport isomérique du ^{147}Pm a fait l'objet d'études internes au CEA (Palau, 2018). Celles-ci préconisent, sur la base des recommandations de (Mughabghab, 2006), une valeur du rapport isomérique de capture vers le $^{148\text{m}}\text{Pm}$ de 0,38 avec une incertitude relative de l'ordre de 13%. Cette incertitude est cohérente à 2σ avec la valeur de rapport isomérique fournie par JEFF-3.1.1 (0,467). Nous retenons donc une valeur de 13% à 1σ pour l'incertitude relative sur cette donnée nucléaire.

Cas de la réaction $^{237}\text{Np} \rightarrow ^{236}\text{Pu}$

La réaction $^{237}\text{Np}(n,2n)$ présente un rapport isomérique vers le ^{236}Np et le $^{236\text{m}}\text{Np}$. Ce dernier décroît avec une demi-vie de 22,5h (donnée JEFF-3.1.1), avec deux rapports d'embranchement vers le ^{236}Pu et vers l' ^{236}U .

Lors des calculs effectués avec le code APOLLO2, étant donnée la faible durée de vie du $^{236\text{m}}\text{Np}$ par rapport aux échelles de temps des cycles de fonctionnement des réacteurs ainsi que son faible poids neutronique, une seule et même réaction décrit les deux rapports successifs : ainsi, un unique paramètre, construit *via* le produit du rapport isomérique de la réaction $^{237}\text{Np}(n,2n)^{236\text{m}}\text{Np}$ et du rapport d'embranchement $^{236\text{m}}\text{Np}(\beta^-)^{236}\text{Pu}$ décrit la probabilité de produire du ^{236}Pu à partir de la réaction ^{237}Np . Les calculs de sensibilité étant effectués avec APOLLO2 (voir Chapitre 3), il faut donc fournir une incertitude pour ce paramètre.

Les évaluations internationales sont en accord à environ $\pm 10\%$ près sur le rapport isomérique. Pour le rapport d'embranchement, l'incertitude de 16% de JEFF-3.1.1 est cohérente avec les autres évaluations internationales. Ne disposant pas de données de covariance entre ces deux paramètres, nous retiendrons une valeur d'incertitude de 19% à 1σ , issue de la combinaison quadratique des incertitudes du rapport isomérique et du rapport d'embranchement.

2.2. EXPERIENCES DE POST-IRRADIATION

Dans cette section, les sources d'incertitudes prises en compte lors de l'analyse des combustibles irradiés (PIE, pour *Post-Irradiation Examination*) de la base de données expérimentales utilisée pour la validation expérimentale du formulaire DARWIN2.3 sont déclinées. Il s'agit de l'incertitude expérimentale, l'incertitude sur la température du combustible, sur la température du modérateur, et sur le taux de combustion. L'incertitude totale associée aux écarts C/E est une combinaison quadratique de ces différentes sources d'incertitudes, étant supposées indépendantes entre-elles. Les écarts C/E et incertitudes associées pour le rapport $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ sont données en exemple sur le Tableau 2.6 extrait de la référence (San-Felice, 2013).

Le lecteur pourra se reporter à la référence suivante (IAEA, 2009) pour plus d'informations sur les techniques expérimentales associées à l'analyse des combustibles irradiés.

Tableau 2.6 - Ecart C/E et incertitudes à 1 σ associés au calcul du ratio $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ avec DARWIN2.3

Expérience	Burnup [GWj/t]	$^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$	
		C/E -1 [en %]	$\Delta(\text{C/E} -1)$ [en %]
UOX Bugey3 – enr. ^{235}U de 3,1%	20	-0,9	0,9
	25	-0,9	1,2
	40	-0,5	0,3
UOX Fessenheim2 – enr. ^{235}U de 3,1%	50	-1,2	0,2
	60	-2,2	0,2
UOX Gravelines2-3 – enr. ^{235}U de 4,5%	25	-1,3	1,0
	40	-1,1	1,1
	50	-1,6	0,7
	60	-0,9	0,3
URE Cruas4 – enr. ^{235}U de 3,5%%	15	0,0	0,3
	25	0,6	0,3
	35	0,2	0,3
UOX Alix – enr. ^{235}U de 4,5%	65	-0,8	0,3
	75	-0,1	0,2
	85	0,0	0,4
UOX Gösgen – enr. ^{235}U de 4,3%	70	-3,8	0,2
MOX Saint-Laurent B1 – teneur Pu de 5,6%, 4,4% et 2,9%	10	-4,9	1,1
	28	-3,5	1,0
	40	-2,1	0,7
MOX Dampierre2 – teneur Pu de 6,7% et 5,3%	10	-2,0	1,6
	40	-1,7	1,0
	52	-2,2	0,6
	58	-2,2	0,5

2.2.1. INCERTITUDE EXPERIMENTALE

Les incertitudes expérimentales sont celles associées au processus d'analyse des combustibles irradiés. Pour rappel, les résultats sont présentés sous forme de ratio de concentration isotopique, dont le dénominateur est la concentration en ^{238}U en règle générale.

Pour la plupart des isotopes, les données de concentrations relatives sont obtenues par la technique de spectrométrie de masse, qui est généralement la plus précise (de quelques dixièmes de pourcent à un pourcent environ à 1 σ en tenant compte de tous les postes d'incertitudes, notamment la calibration des appareils). Pour quelques isotopes cependant, la technique de spectrométrie α peut être utilisée si le noyau présente des raies exploitables et une activité suffisante. C'est le cas par exemple du ^{242}Cm . Enfin, des mesures réalisées par spectrométrie gamma permettent d'obtenir des rapports de concentrations vis-à-vis du ^{137}Cs , comme par exemple pour le ^{134}Cs , le ^{106}Ru , le ^{144}Ce et le ^{154}Eu .

Concernant les incertitudes sur les ratios de concentrations, notons tout d'abord que ces derniers sont souvent déterminés par combinaison de plusieurs ratios. Par exemple, le ratio $\frac{^{243}\text{Am}}{^{238}\text{U}}$ est obtenu en multipliant les ratios $\frac{^{243}\text{Am}}{^{241}\text{Am}}$ et $\frac{^{241}\text{Am}}{^{238}\text{U}}$. L'incertitude fournie dans la base de données expérimentale est issue d'une combinaison quadratique de l'incertitude individuelle de chaque ratio.

Notons que de manière générale, l'ensemble des étapes du procédé (pesée, évaporation, dissolution, dilution, ...) peut introduire des sources d'incertitudes systématiques présentant des corrélations entre elles. Ces corrélations ne sont pas fournies dans le dossier d'analyse, et ne seront donc pas prises en compte dans notre travail. Des premiers éléments issus de travaux internes CEA réalisés sur un tronçon combustible MOX extrait du réacteur TRICASTIN semblent indiquer que ces sources d'incertitudes ont un impact négligeable sur les mesures de rapports isotopiques.

2.2.2. TEMPERATURE DU COMBUSTIBLE

Les options standards d'autoprotection du code APOLLO2 ne représentent pas le gradient radial de température au sein de la pastille combustible, représenté sur la Figure 2.5 (Yarmohammadi, 2017). Une température neutronique effective et constante est utilisée, définie comme étant la température permettant de conserver le taux d'absorption de l' ^{238}U avec un profil réel de température.

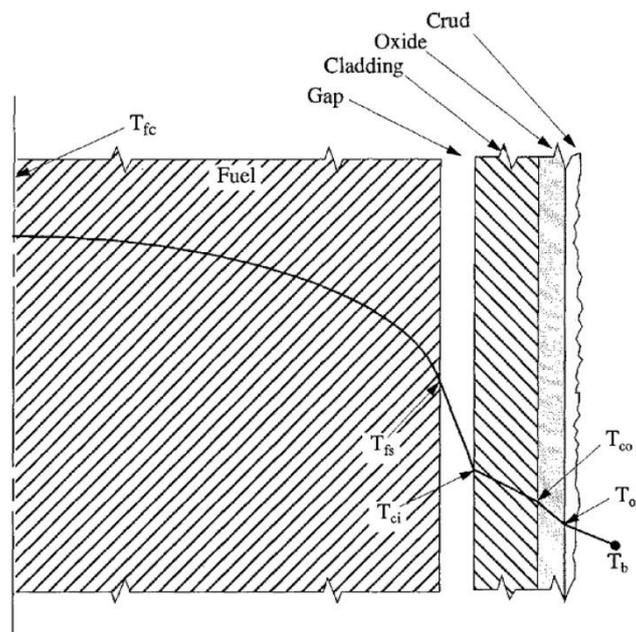


Figure 2.5 - Profil radial de température typique pour un combustible UOX en REP (Yarmohammadi, 2017)

La température effective $T_{effective}$ recommandée pour les calculs APOLLO2 est donnée par l'expression suivante (Chabert, 2000) :

$$T_{effective} = T_{moyenne} - \frac{1}{18} (T_{centrale} - T_{surface}) \quad (2.8)$$

Les données de température au centre de la pastille $T_{centrale}$, moyenne sur la pastille $T_{moyenne}$ et à la surface de la pastille $T_{surface}$ sont données par le code de calcul de thermomécanique METEOR (Struzik, 1996) développé au CEA. En notant R le rayon de la pastille combustible, l'expression de la température moyenne est :

$$T_{moyenne} = \frac{\int_0^R T(r) dr}{\int_0^R dr} \quad (2.9)$$

Les effets cristallins liés au combustible UO_2 sont pris en compte via le calcul d'une température « cristalline » $T_{cristalline}$ (Meister, 1998) donnée par l'expression :

$$\frac{T_{cristalline} [K]}{T_{effective} [K]} = 1 + \frac{8,6}{T_{effective} [K]} + \frac{3100}{(T_{effective} [K])^2} \quad (2.10)$$

La correction sur la température effective liée à cet effet est faible : l'application de cette formule pour une température effective de 900K donne une température cristalline de 912K.

Une incertitude de $\pm 50^\circ\text{C}$ à 1σ est considérée sur la température effective donnée par METEOR. L'ordre de grandeur d'une perturbation à 1σ de la température du combustible sur les ratios isotopiques est de l'ordre de quelques dixièmes de pourcent de manière générale.

2.2.3. TEMPERATURE DU MODERATEUR

La température de modérateur utilisée par APOLLO2 est représentative des conditions thermo-hydrauliques à la côte à laquelle les tronçons combustibles ont été irradiés en cœur. Cette température est fonction :

- Des températures d'entrée et sortie du cœur du réacteur : ces données sont fournies par l'exploitant,
- La côte axiale du tronçon analysé ; en général, les tronçons sont prélevés à une côte moyenne de 1900 mm environ car le gradient de flux y est faible, ce qui permet de considérer un flux constant sur la longueur du tronçon,
- Du profil axial de puissance des crayons ; ces données sont fournies par l'exploitant.

Un calcul de bilan d'enthalpie à la côte de l'échantillon permet, à partir des données listées précédemment, de remonter à la température du modérateur *via* l'utilisation d'un diagramme de Mollier (enthalpie / température).

Une incertitude de $\pm 2^\circ\text{C}$ à 1σ est généralement considérée sur la température du modérateur (San-Felice, 2013). L'impact d'une perturbation à 1σ de la température du modérateur sur les ratios isotopiques est assez variable : la température du modérateur ayant un impact sur la densité de l'eau et donc sur la modulation, les noyaux les plus impactés sont les actinides

dans les combustibles UOX, avec un impact d'une perturbation à 1σ pouvant dépasser 1,5% pour les isotopes du curium.

2.2.4. INCERTITUDE SUR LE BURNUP

Le burnup, ou taux de combustion, caractérise l'usure d'un combustible : il mesure la quantité d'énergie libérée par unité de masse d'un combustible, et est généralement exprimé en MWj par tonne de métaux lourds initiaux. Un assemblage REP typique a un taux de combustion en sortie de réacteur avoisinant les 45 GWj/t.

Il est en pratique compliqué de mesurer le taux de combustion d'un tronçon de combustible extrait pour analyse. Lors de l'interprétation des expériences de combustibles irradiés, les isotopes du néodymes servent de référence, et plus précisément aux ratios suivants : $\frac{^{145}\text{Nd}}{^{238}\text{U}}$, $\frac{^{146}\text{Nd}}{^{238}\text{U}}$, $\frac{^{148}\text{Nd}}{^{238}\text{U}}$, et $\frac{^{150}\text{Nd}}{^{238}\text{U}}$. En effet, les rendements de fission des actinides sur les isotopes du néodyme sont bien connus comme illustré sur le Tableau 2.3. Ces noyaux sont en outre stables, capturent peu, et le procédé de mesure qui leur est associé est bien maîtrisé (San-Felice, 2013). Ils sont par conséquent des indicateurs de burnup appropriés. Le recalage en burnup se fait en modifiant le burnup du calcul pour que les ratios de concentration des néodymes calculés coïncident avec ceux issus de la mesure. Il s'agit donc formellement d'une méthode de recalage en nombre de noyaux fissionnant, qui est désignée abusivement par « recalage en burnup ».

Il est ainsi supposé que le burnup du calcul correspond à celui de l'expérience lorsque la relation suivante est vérifiée :

$$0,5 \times \frac{\left(\frac{^{145}\text{Nd}}{^{238}\text{U}}\right)_{calc} + \left(\frac{^{146}\text{Nd}}{^{238}\text{U}}\right)_{calc}}{\left(\frac{^{145}\text{Nd}}{^{238}\text{U}}\right)_{exp} + \left(\frac{^{146}\text{Nd}}{^{238}\text{U}}\right)_{exp}} + 0,25 \times \frac{\left(\frac{^{148}\text{Nd}}{^{238}\text{U}}\right)_{calc}}{\left(\frac{^{148}\text{Nd}}{^{238}\text{U}}\right)_{exp}} + 0,25 \times \frac{\left(\frac{^{150}\text{Nd}}{^{238}\text{U}}\right)_{calc}}{\left(\frac{^{150}\text{Nd}}{^{238}\text{U}}\right)_{exp}} = 1 \quad (2.11)$$

L'incertitude adoptée lors de l'interprétation des analyses de combustibles irradiés (San-Felice, 2013) pour cette méthode de recalage est de $\pm 2\%$ à 1σ . Cette valeur est probablement légèrement surestimée, notamment pour les combustibles UOX, étant donné que les contributeurs à la production des isotopes du Néodyme seront l' ^{235}U et le ^{239}Pu pour lesquels les rendements de fission cumulés sont connus à mieux que 1,5%.

L'effet d'une perturbation à 1σ du burnup est très variable en fonction des nucléides : il peut aller de quelques dixièmes de pourcents pour la plupart des produits de fission à plus de 10% pour les isotopes du Curium en bout de chaîne des actinides, et donc logiquement très sensible au burnup.

2.3. INCERTITUDES DE MODELISATION

DARWIN2.3 étant un formulaire de calcul déterministe, les méthodes employées pour la résolution des équations de Bateman et de Boltzmann introduisent nécessairement un biais sur les grandeurs calculées. Or, comme mentionné dans le chapitre 1, il serait intéressant d'apporter des compléments de validation numérique au formulaire DARWIN2.3 pour estimer ce biais numérique. À ce jour, il n'existe pas de code étalon pour les calculs en évolution permettant de faire de la validation numérique du formulaire.

L'objectif de cette section consiste à présenter les études qui ont été réalisées pour estimer un ordre de grandeur de l'impact sur le calcul du bilan matière de deux sources de biais méthodologiques. Nous étudions dans un premier temps le biais numérique du schéma de calcul CYCLE2008-REP sur le calcul du bilan matière, et ce en effectuant un benchmark entre un calcul APOLLO2 en évolution et un calcul TRIPOLI-4® en évolution. Nous étudions d'autre part l'impact de l'effet d'upscattering résonant sur le calcul du bilan matière, et on justifiera les raisons de cette étude dans la section 2.3.2. Cet effet sera estimé à l'aide d'un benchmark entre deux calculs en évolution avec APOLLO2, l'un avec et l'autre sans l'effet d'upscattering résonant.

Ces ordres de grandeur seront pris en compte lors de l'assimilation des données intégrales en modélisant deux sources d'incertitude systématique supplémentaires. Cette approche est cohérente avec la démarche de qualification des OCS de l'ASN (ASN, Qualification OCS, 2017).

2.3.1. ESTIMATION DE L'IMPACT DU SCHEMA DE CALCUL CYCLE2008-REP

Aujourd'hui, seuls les calculs Monte-Carlo à énergie continue au temps zéro (régime stationnaire) sont considérés comme étalons par rapport aux codes de transport neutronique déterministes. Les récents développements sur le code Monte Carlo TRIPOLI-4® (Brun, 2015) permettent de réaliser des calculs d'évolution par couplage avec le solveur d'évolution déterministe MENDEL (Lahaye, 2014). Le principe de l'étude proposée ici est de comparer le calcul du bilan matière entre APOLLO2 / CYCLE2008-REP et TRIPOLI-4® en évolution. Après avoir introduit la méthode utilisée par TRIPOLI-4® évoluant, nous présentons le benchmark utilisé et les résultats obtenus pour deux cas représentatifs de la base de données expérimentale.

2.3.1.1. CALCUL DU BILAN MATIERE EN EVOLUTION AVEC TRIPOLI-4® ET MENDEL

Le principe du calcul Monte-Carlo TRIPOLI-4® en évolution consiste à alterner successivement les phases de calcul de transport avec TRIPOLI-4® et les phases d'évolution avec MENDEL. Les références suivantes compilent un certain nombre d'études réalisées avec le code TRIPOLI-4® en évolution (Lee, 2005) (Brun, 2011) (Damian, 2013) (Blanchet, 2016) (Archier, 2016) (Chambon, 2016).

Cependant, la technique utilisée à ce jour ne permet pas de propager l'incertitude statistique calculée lors des phases de transport au cours des phases d'évolution. Ainsi, la valeur de concentration obtenue à la fin d'un calcul d'évolution complet n'a aucune incertitude statistique associée. Pour pallier ce problème, la méthode des répliques indépendantes est utilisée : elle consiste à exécuter le même calcul avec une graine aléatoire différente N fois, puis de déduire une incertitude statistique à partir des N valeurs de concentrations finales calculées. Ce principe est schématiquement résumé sur la Figure 2.6.

L'analyse approfondie de la méthode des répliques indépendantes montre un risque intrinsèque de biaisage des concentrations calculées en sortie : il a été montré que le nombre fini de batches (nombre de paquets de particules simulées par calcul de transport avec TRIPOLI-4®) et le nombre fini de répliques indépendantes peuvent se traduire par un biais sur les grandeurs calculées dû à la non linéarité des équations de Bateman (Dumonteil, 2011). L'incertitude statistique alors associée aux concentrations ne prend pas en compte ce potentiel biaisage du calcul d'évolution, et est donc sous-estimée. Des travaux (Brun, 2011) ont montré que pour des calculs cellule utilisant un nombre suffisamment élevé de batches et de répliques indépendantes, cet effet était minimisé. C'est sur la base de ces recommandations qu'a été réalisée l'étude présentée dans le paragraphe suivant.

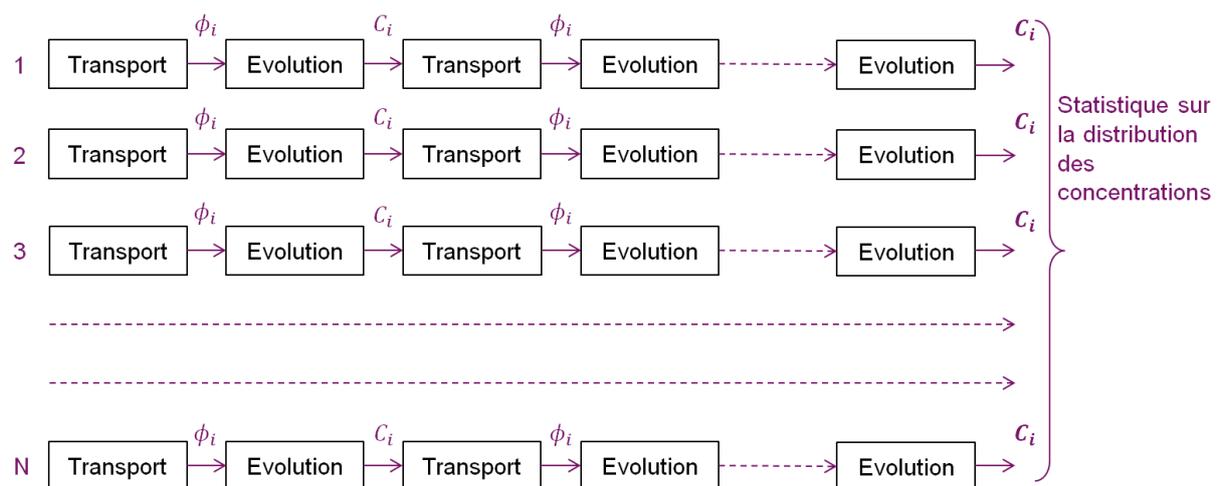


Figure 2.6 – Principe d'un calcul TRIPOLI-4® en évolution : la technique des répliques indépendantes

2.3.1.2. PRESENTATION DU BENCHMARK ETUDIE

Afin de fournir un ordre de grandeur des écarts entre CYCLE2008-REP et TRIPOLI-4® en évolution, des comparaisons sur calculs cellule ont été effectuées. Plusieurs combustibles sont étudiés, afin de représenter au mieux l'ensemble des combustibles utilisés pour la validation expérimentale du formulaire DARWIN2.3 : pour les combustibles UOX, une gamme d'enrichissement en ^{235}U de 3,1%, 3,7% et 4,5% a été étudiée. Pour les combustibles MOX, les teneurs Pu étudiées sont de 2,9%, 4,4%, 5,3%, 6,7% et 9,7%. Nous ne présenterons ici que les cas UOX 3,7% et MOX 5,3% par souci de concision.

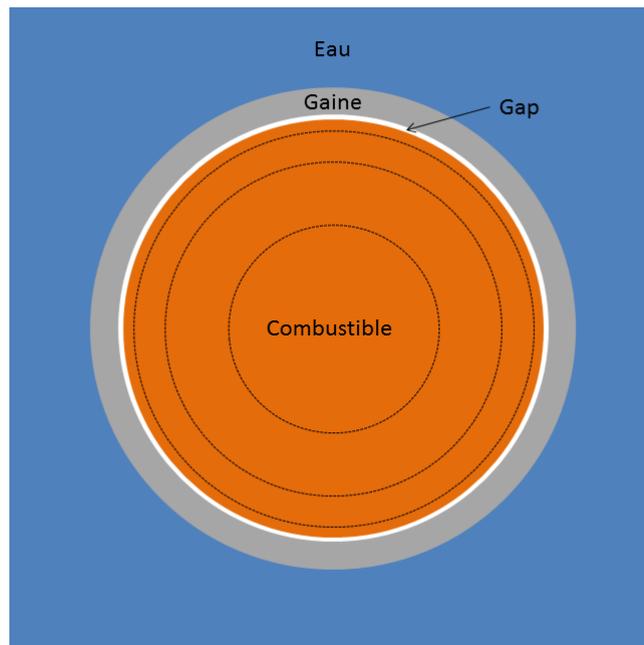


Figure 2.7 – Géométrie du benchmark cellule en évolution

La géométrie du benchmark est présentée sur la Figure 2.7. Une condition de réflexion spéculaire est appliquée sur chaque côté de la cellule. Les modélisations APOLLO2 et TRIPOLI-4® sont cohérentes en ne considérant pas de fuites axiales au niveau de la cellule.

La simulation TRIPOLI-4® est menée avec 64 répliques indépendantes, chacune étant constituée de 100 batches de 1000 particules. L'incertitude statistique pour chaque pas de calcul est de 70 pcm environ à 1σ . Nous modélisons une irradiation continue avec une puissance spécifique de 40 W/g. Les chaînes de filiation utilisées par APOLLO2 et TRIPOLI-4® sont cohérentes et sont constituées de 26 actinides et de 126 produits de fission. Nous ne présentons ici que les résultats pour les nucléides dont le calcul est validé expérimentalement avec le formulaire DARWIN2.3.

2.3.1.3. RESULTATS

Les résultats de l'étude sont présentés dans le Tableau 2.7 pour le combustible UOX à 3,7% et dans le Tableau 2.8 pour le combustible MOX à teneur Pu de 5,3%, pour un burnup de 40 GWj/t. L'incertitude statistique σ_{TRIPOLI} issue de la méthode des répliques indépendantes est fournie et est à comparer aux écarts entre APOLLO2 et TRIPOLI-4. Dans la plupart des cas, les écarts sont statistiquement significatifs, c'est-à-dire supérieurs à $3\sigma_{\text{TRIPOLI}}$. Rappelons (cf. (Dumonteil, 2011)) que cette incertitude est sous-estimée.

Nous observons un bon accord global entre TRIPOLI-4® et APOLLO2/CYCLE2008-REP, avec des écarts en concentration inférieurs au pourcent pour la plupart des actinides pour le combustible UOX à 40 GWj/t, sauf à haut nombre de masse : ces écarts plus importants peuvent être expliqués par une accumulation d'erreurs intermédiaires le long des chaînes de formation. Nous pouvons citer notamment l'écart sur la concentration en ^{243}Am qui se reporte sur le ^{244}Cm , et les autres Curium (sauf ^{245}Cm , mais pour lequel l'incertitude statistique est élevée). Nous observons un comportement similaire pour le MOX avec un écart inférieur au pourcent pour la plupart des actinides. Notons tout de même un léger écart non expliqué en MOX sur la concentration du ^{241}Pu , de l'ordre de -1,5%. La plupart des produits de fission sont également bien calculés, avec quelques rares écarts légèrement supérieurs au pourcent pour le ^{137}Cs , ^{109}Ag , ou le ^{155}Gd .

Les résultats obtenus pour cette étude, qui peuvent être généralisés aux autres types de combustibles calculés mais non-présentés ici, montrent des écarts globalement limités entre APOLLO2/CYCLE2008-REP et TRIPOLI-4® en évolution. Ceci indique une bonne cohérence sur le calcul du bilan matière entre les deux codes, et semble indiquer que l'impact des approximations méthodologiques du schéma de calcul CYCLE2008-REP sur le calcul du bilan matière est limité.

Pour les études d'assimilation des données intégrales, nous considérerons que le calcul de chaque concentration est affecté d'une première source d'incertitude supplémentaire dite « de modélisation » correspondant à 1σ à l'écart entre APOLLO2 / CYCLE2008-REP et TRIPOLI-4®.

Tableau 2.7 – Comparaison du bilan matière à 40GWj/t pour une cellule REP UOX à 3,7% entre APOLLO2 / CYCLE2008-REP et TRIPOLI-4®

Isotope (^{238}U)	Concentration APOLLO2 (10^{24} at/cm ³)	Concentration TRIPOLI-4® (10^{24} at/cm ³)	σ_{TRIPOLI} (%)	(AP2/T4) - 1 (%)
²³⁴ U	1,057E-04	1,051E-04	0,02	0,54
²³⁵ U	1,019E-02	1,013E-02	0,01	0,65
²³⁶ U	5,348E-03	5,355E-03	0,01	-0,13
²³⁷ Np	6,298E-04	6,320E-04	0,02	-0,35
²³⁸ Pu	2,516E-04	2,528E-04	0,03	-0,48
²³⁹ Pu	7,144E-03	7,194E-03	0,02	-0,70
²⁴⁰ Pu	2,798E-03	2,817E-03	0,02	-0,68
²⁴¹ Pu	1,818E-03	1,818E-03	0,02	0,01
²⁴² Pu	6,689E-04	6,634E-04	0,02	0,83
²⁴¹ Am	4,732E-05	4,732E-05	0,02	0,00
^{242m} Am	1,069E-06	1,061E-06	0,03	0,68
²⁴³ Am	1,488E-04	1,473E-04	0,05	1,01
²⁴² Cm	1,965E-05	1,949E-05	0,02	0,78
²⁴³ Cm	4,981E-07	4,827E-07	0,05	3,20
²⁴⁴ Cm	5,553E-05	5,474E-05	0,06	1,44
²⁴⁵ Cm	3,762E-06	3,760E-06	0,11	0,05
²⁴⁶ Cm	3,196E-07	3,161E-07	0,08	1,12
²⁴⁷ Cm	4,541E-09	4,498E-09	0,10	0,96
¹⁴³ Nd	1,675E-03	1,675E-03	0,01	0,03
¹⁴⁴ Nd	2,017E-03	2,019E-03	0,01	-0,11
¹⁴⁵ Nd	1,401E-03	1,411E-03	0,01	-0,69
¹⁴⁶ Nd	1,497E-03	1,490E-03	0,01	0,51
¹⁴⁸ Nd	7,832E-04	7,836E-04	0,01	-0,05
¹⁵⁰ Nd	3,697E-04	3,696E-04	0,01	0,03
¹³³ Cs	2,491E-03	2,489E-03	0,01	0,05
¹³⁴ Cs	3,392E-04	3,410E-04	0,03	-0,53
¹³⁵ Cs	8,647E-04	8,642E-04	0,01	0,06
¹³⁷ Cs	2,739E-03	2,709E-03	0,01	1,10
¹⁴⁷ Pm	3,648E-04	3,637E-04	0,02	0,30
¹⁴⁷ Sm	1,317E-04	1,307E-04	0,01	0,73
¹⁴⁸ Sm	2,939E-04	2,948E-04	0,01	-0,30
¹⁴⁹ Sm	4,777E-06	4,757E-06	0,05	0,42
¹⁵⁰ Sm	6,074E-04	6,097E-04	0,01	-0,37
¹⁵¹ Sm	2,591E-05	2,601E-05	0,03	-0,35
¹⁵² Sm	1,956E-04	1,958E-04	0,04	-0,06
¹⁵⁴ Sm	7,694E-05	7,685E-05	0,01	0,11
¹⁵³ Eu	2,389E-04	2,386E-04	0,02	0,09
¹⁵⁴ Eu	5,824E-05	5,796E-05	0,03	0,47
¹⁵⁵ Eu	1,669E-05	1,663E-05	0,04	0,33
¹⁵⁴ Gd	4,191E-06	4,158E-06	0,02	0,82
¹⁵⁵ Gd	1,393E-07	1,401E-07	0,06	-0,56
¹⁰⁶ Ru	4,911E-04	4,911E-04	0,01	0,00
¹⁴⁴ Ce	7,645E-04	7,664E-04	0,01	-0,25
⁹⁰ Sr	1,767E-03	1,770E-03	0,01	-0,15
⁹⁹ Tc	2,412E-03	2,410E-03	0,01	0,06
¹⁰¹ Ru	2,379E-03	2,387E-03	0,01	-0,35
⁹⁵ Mo	2,098E-03	2,102E-03	0,01	-0,16
¹⁰⁹ Ag	2,149E-04	2,129E-04	0,02	0,93
¹⁰³ Rh	1,286E-03	1,284E-03	0,01	0,18

Tableau 2.8 – Comparaison du bilan matière à 40GWj/t pour une cellule REP MOX à teneur Pu 5,3% entre APOLLO2 / CYCLE2008-REP et TRIPOLI-4®

Isotope (^{238}U)	Concentration APOLLO2 (10^{24} at/cm ³)	Concentration TRIPOLI-4® (10^{24} at/cm ³)	σ_{TRIPOLI} (%)	(AP2/T4) - 1 (%)
²³⁴ U	5,189E-05	5,158E-05	0,02	0,61
²³⁵ U	1,537E-03	1,532E-03	0,01	0,30
²³⁶ U	2,427E-04	2,430E-04	0,01	-0,09
²³⁷ Np	1,811E-04	1,808E-04	0,05	0,15
²³⁸ Pu	2,020E-03	2,007E-03	0,01	0,64
²³⁹ Pu	4,283E-02	4,257E-02	0,01	0,62
²⁴⁰ Pu	2,587E-02	2,586E-02	0,01	0,02
²⁴¹ Pu	1,338E-02	1,362E-02	0,01	-1,76
²⁴² Pu	6,206E-03	6,175E-03	0,01	0,51
²⁴¹ Am	1,667E-03	1,655E-03	0,01	0,73
^{242m} Am	6,766E-05	6,666E-05	0,01	1,50
²⁴³ Am	1,579E-03	1,577E-03	0,02	0,12
²⁴² Cm	3,342E-04	3,321E-04	0,01	0,62
²⁴³ Cm	1,705E-05	1,648E-05	0,03	3,45
²⁴⁴ Cm	7,574E-04	7,545E-04	0,03	0,39
²⁴⁵ Cm	8,194E-05	8,290E-05	0,07	-1,15
²⁴⁶ Cm	3,366E-06	3,364E-06	0,06	0,06
²⁴⁷ Cm	6,070E-08	6,087E-08	0,07	-0,28
¹⁴³ Nd	1,862E-03	1,864E-03	0,01	-0,09
¹⁴⁴ Nd	1,862E-03	1,864E-03	0,01	-0,09
¹⁴⁵ Nd	1,334E-03	1,343E-03	0,01	-0,66
¹⁴⁶ Nd	1,352E-03	1,346E-03	0,01	0,46
¹⁴⁸ Nd	8,187E-04	8,193E-04	0,01	-0,08
¹⁵⁰ Nd	4,787E-04	4,788E-04	0,01	-0,02
¹³³ Cs	2,766E-03	2,768E-03	0,01	-0,10
¹³⁴ Cs	2,943E-04	2,950E-04	0,03	-0,26
¹³⁵ Cs	2,347E-03	2,365E-03	0,01	-0,76
¹³⁷ Cs	2,909E-03	2,912E-03	0,01	-0,09
¹⁴⁷ Pm	4,241E-04	4,241E-04	0,02	0,00
¹⁴⁷ Sm	1,528E-04	1,520E-04	0,01	0,51
¹⁴⁸ Sm	3,120E-04	3,134E-04	0,02	-0,42
¹⁴⁹ Sm	2,619E-05	2,625E-05	0,04	-0,22
¹⁵⁰ Sm	6,308E-04	6,327E-04	0,01	-0,31
¹⁵¹ Sm	1,063E-04	1,075E-04	0,01	-1,12
¹⁵² Sm	2,881E-04	2,877E-04	0,03	0,15
¹⁵⁴ Sm	1,359E-04	1,359E-04	0,01	0,00
¹⁵³ Eu	3,158E-04	3,155E-04	0,02	0,10
¹⁵⁴ Eu	1,014E-04	1,016E-04	0,02	-0,18
¹⁵⁵ Eu	2,395E-05	2,377E-05	0,04	0,75
¹⁵⁴ Gd	7,201E-06	7,186E-06	0,01	0,21
¹⁵⁵ Gd	1,035E-06	1,045E-06	0,03	-1,00
¹⁰⁶ Ru	9,265E-04	9,278E-04	0,01	-0,14
¹⁴⁴ Ce	6,817E-04	6,833E-04	0,01	-0,22
⁹⁰ Sr	9,221E-04	9,236E-04	0,01	-0,17
⁹⁹ Tc	2,527E-03	2,528E-03	0,01	-0,02
¹⁰¹ Ru	2,727E-03	2,738E-03	0,01	-0,41
⁹⁵ Mo	1,809E-03	1,813E-03	0,01	-0,23
¹⁰⁹ Ag	5,635E-04	5,550E-04	0,02	1,53
¹⁰³ Rh	2,415E-03	2,418E-03	0,01	-0,13

2.3.2. ESTIMATION DE L'IMPACT DU PHENOMENE D'UPSCATTERING RESONANT

La deuxième source d'incertitude « de modélisation » considérée ici est liée au phénomène d'upscattering résonant. Ce phénomène physique n'est pas pris en compte dans le schéma de calcul APOLLO2 / CYCLE2008-REP, qui utilise un modèle simplifié du traitement de la diffusion des neutrons à basse énergie. Ceci constitue donc une approximation, dont nous chercherons à quantifier le poids sur le calcul du bilan matière.

Après avoir présenté un bref historique du phénomène d'upscattering résonant, nous montrerons comment il peut être modélisé dans APOLLO2. Le benchmark effectué pour estimer son impact sur le bilan matière est le même que la section 2.3.1.2.

2.3.2.1. HISTORIQUE SUR L'UPSCATTERING RESONANT

Ce paragraphe est inspiré de (Zoia, 2013). De manière générale, l'élargissement Doppler des sections de diffusion peut s'exprimer selon :

$$\sigma_T^S(v, v', \mu') = \frac{1}{v} \int v_r \cdot \sigma_0^S(v_r) \cdot P(\vec{v}, \vec{V}; v', \vec{\omega}') \cdot M_T(V) \cdot d\vec{V} \quad (2.12)$$

Où :

- $\sigma_T^S(v, v', \mu')$ est la section doublement différentielle de diffusion élargie à la température T ,
- $v = \|\vec{v}\|$ désigne la vitesse incidente du neutron dans le repère du laboratoire,
- v' est la vitesse de sortie du neutron dans le repère du laboratoire,
- \vec{V} est la vitesse du noyau cible dans le repère du laboratoire,
- μ' est le cosinus de l'angle $(\vec{v}; \vec{v}')$,
- v_r est la vitesse relative du neutron par rapport au noyau cible,
- $\sigma_0^S(v_r)$ correspond à la section de diffusion à OK du noyau cible à la vitesse v_r ,
- $\vec{\omega}'$ est la direction dans laquelle le neutron est diffusé,
- $P(\vec{v}, \vec{V}; v', \vec{\omega}')$ est le noyau de transfert normalisé – traduisant la probabilité qu'un neutron ayant une vitesse \vec{v} soit diffusé dans la direction $\vec{\omega}'$ avec la vitesse v' ,
- $M_T(V)$ est une distribution maxwellienne à la température T .

La complexité du calcul de ces sections efficaces varie en fonction du type de noyau de transfert qui est utilisé. Différents types de noyaux de transfert sont employés en fonction du domaine énergétique : se contenter de modéliser un noyau cible fixe n'est pas satisfaisant dans le domaine épithermique et thermique car, dans ces derniers, l'énergie d'agitation thermique du noyau cible est comparable à celle du neutron. Le noyau cible peut donc transmettre de l'énergie au neutron incident par agitation thermique. Le modèle de noyau

fixe, dit asymptotique (ou AK, *Asymptotic Kernel*), présente donc des limites dans les zones énergétiques précédemment mentionnées : il est par conséquent impératif d'avoir un noyau de transfert dépendant en énergie et correctement défini pour une description précise de la diffusion sur ces plages énergétiques. Ces premiers travaux ont été menés dans (Wigner, 1944) pour les matériaux non cristallins et homogènes. Le modèle qui y est développé est valable sous réserve que la section efficace de diffusion ne présente pas de résonance de diffusion, ce qui est généralement le cas pour les noyaux légers mais non valable pour les noyaux lourds.

Des études ont été effectuées pour mettre en place un modèle de noyau de transfert tenant compte du caractère résonant de la section et de la température (Ouisloumen, 1991), d'où *upscattering résonant*. Dans la continuité de ces travaux, (Rothenstein, 1998) a proposé une expression complète d'un noyau de transfert doublement différentiel, en angle et en énergie, pour le neutron diffusé, cohérente avec le modèle présenté dans (Ouisloumen, 1991) (en intégrant sur la variable angulaire).

La prise en compte de ce phénomène se traduit par une augmentation de la probabilité de diffusion du neutron vers une énergie plus importante que son énergie incidente. En pratique, un neutron aura donc plus de chance d'être capturé car son « chemin » vers la thermalisation sera plus long. Une augmentation des captures et une baisse de la réactivité sont observées, mais surtout une production d'actinides plus importante (^{239}Pu par capture de ^{238}U , ^{241}Pu par capture du ^{240}Pu , etc.), et donc plus généralement un impact sur le bilan matière.

2.3.2.2. MODELISATION DE L'UPSCATTERING DANS APOLLO2

Pour prendre en compte l'upscattering résonant dans APOLLO2, des modifications ont été effectuées dans l'outil de traitement des données nucléaires GALILÉE (Coste-Delclaux, 2009), ainsi que dans le module d'autoprotection d'APOLLO2.

Par défaut le noyau de thermalisation utilisé dans NJOY (MacFarlane, 2016) pour traiter les bibliothèques APOLLO2 prend en compte l'agitation thermique des noyaux cibles en considérant un gaz libre monoatomique à l'équilibre thermique suivant une distribution de Maxwell-Boltzmann. Les collisions sont alors considérées comme isotropes dans le centre de masse. Ce noyau de thermalisation, que nous noterons FGM (*Free Gas Model*), est utilisé jusqu'à une énergie de 4,95 eV pour tous les noyaux, sauf pour l'hydrogène lié dans l'eau, pour lequel les $S(\alpha,\beta)$ sont utilisées dans le module THERMR de NJOY. Un noyau de ralentissement, ou asymptotique (AK), est utilisé au-delà de cette valeur. Ce traitement par défaut est résumé sur la Figure 2.8.

Pour modéliser l'upscattering résonant, un noyau de transfert tenant compte de l'agitation thermique des noyaux diffusants et du caractère résonant de la section de diffusion a été implémenté (Ouisloumen, 1991). Notons qu'il suppose que le noyau diffusant se comporte comme dans un gaz libre à l'équilibre thermique, ce qui reste une approximation dans les

combustibles où nous devrions dans l'idéal tenir compte des interactions des noyaux avec le reste du réseau cristallin (modes de vibration, ...).

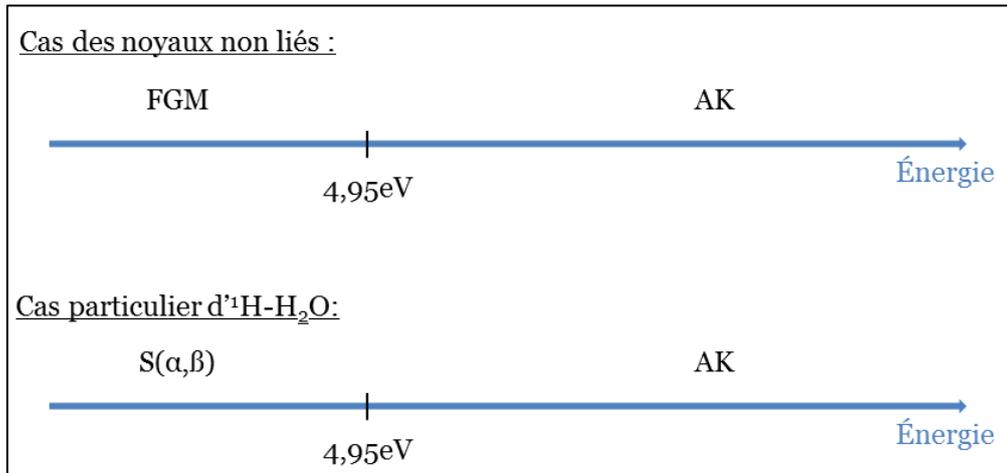


Figure 2.8 – Traitement de la diffusion par défaut dans NJOY : type de noyau de transfert utilisé en fonction de l'énergie incidente du neutron et du noyau diffusant

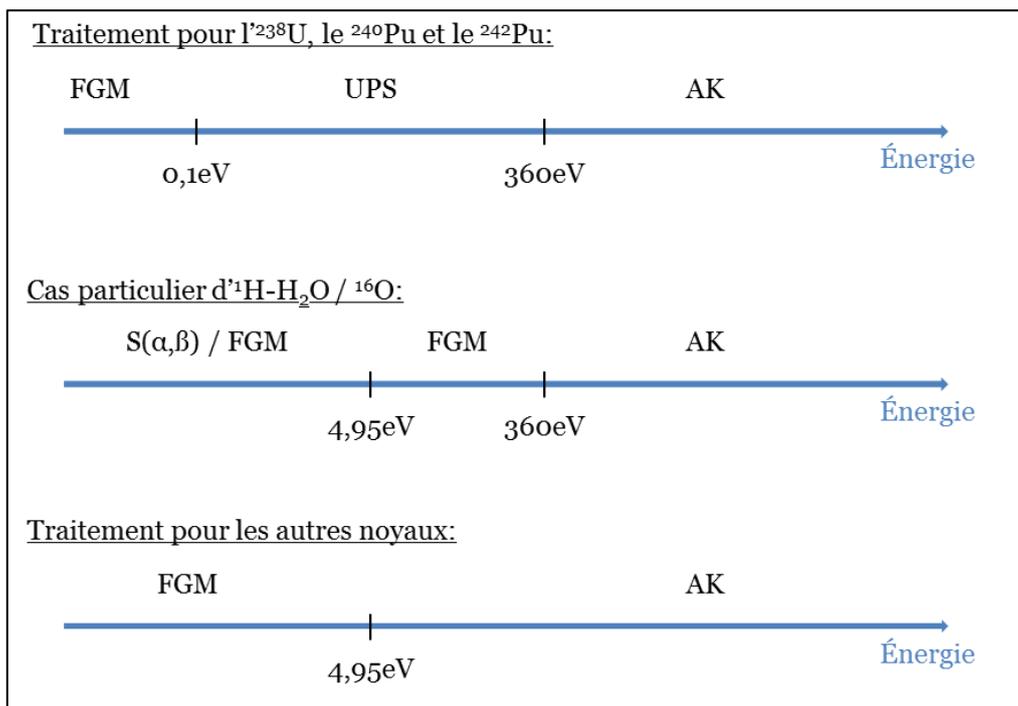


Figure 2.9 - Traitement de la diffusion dans NJOY pour tenir compte de l'upscattering résonant : type de noyau de transfert utilisé en fonction de l'énergie incidente du neutron et du noyau diffusant

Le modèle d'upscattering résonant a ensuite été introduit dans NJOY en raffinant la grille énergétique du module GROUPR, afin de produire des bibliothèques de taux de réaction effectifs. Ces taux effectifs, utilisés lors de la phase d'autoprotection du calcul APOLLO2,

permettent de produire des sections efficaces autoprotégées tenant compte du phénomène d'upscattering résonant.

La bibliothèque de données nucléaires CEAV5.1.2-UPS (basée sur JEFF-3.1.1) pour APOLLO2 intègre les développements cités précédemment. Les paramètres choisis pour l'établissement de la bibliothèque ont été déterminés par comparaison avec des calculs TRIPOLI-4® à énergie continue et à temps zéro, en utilisant le module DBRC (Zoia, 2013) : la plage énergétique de prise en compte de l'effet d'upscattering a été fixée sur **0,1eV – 360eV** dans APOLLO2. Les noyaux pour lesquels l'upscattering résonant est pris en compte dans APOLLO2 sont **^{238}U , ^{240}Pu , et ^{242}Pu** . La Figure 2.9 résume les modèles utilisés pour traiter le phénomène d'upscattering résonant dans APOLLO2 (à comparer avec la Figure 2.8), en fonction du domaine énergétique et de l'isotope diffusant. Nous y désignons par « UPS » la plage énergétique sur laquelle le nouveau noyau de transfert a été utilisé.

Il est important de préciser que le schéma de calcul CYCLE2008-REP utilise la méthode d'autoprotection des mélanges résonants décrite dans (Coste-Delclaux, 2006). Cette méthode s'appuie sur des tables de probabilités pour calculer les taux de réactions effectifs, et non sur les bibliothèques de taux effectifs précédemment établis avec NJOY ; ainsi, sur la plage d'énergie d'utilisation de la méthode d'autoprotection des mélanges, les taux effectifs calculés ne tiennent pas compte de l'upscattering résonant. Pour pouvoir quantifier l'effet de l'upscattering résonant sur le bilan matière, il ne faut donc pas utiliser la méthode des mélanges.

2.3.2.3. PRESENTATION DU BENCHMARK ETUDIE

Le benchmark est similaire à celui de la section 2.3.1.2. Le calcul d'évolution avec APOLLO2 est fondé sur les recommandations d'autoprotection du schéma calcul CYCLE2008-REP, à l'issue desquelles nous « écrasons » l'autoprotection des mélanges par une autoprotection utilisant la méthode de Livolant-Jeanpierre. Cette méthode permettra de tenir compte du phénomène d'upscattering résonant via l'utilisation de la bibliothèque CEAV5.1.2-UPS, au prix d'une dégradation du schéma de calcul APOLLO2 / CYCLE2008-REP. Par souci de cohérence, les mêmes options d'autoprotection sont utilisées pour les deux calculs afin de quantifier uniquement l'impact de l'upscattering résonant sur le bilan matière *via* le seul changement de bibliothèque utilisée, CEAV5.1.2-UPS et CEAV5.1.2.

2.3.2.4. RESULTATS

Nous ne présentons également ici que le cas cellule REP UOX enrichi à 3,7% sur le Tableau 2.9 et le cas de la cellule REP MOX à teneur Pu de 5,3% sur le Tableau 2.10. Nous observons que la modélisation de l'upscattering résonant a un impact principalement sur le bilan matière des actinides et de certains produits de fission du crédit burnup (Roque, 2002). Ceci

peut s'expliquer par des considérations physiques : la prise en compte de l'upscattering résonant est cohérente avec l'augmentation du bilan matière des actinides formés par captures successives observée pour le ^{239}Pu et le ^{241}Pu , mais aussi pour les isotopes de l'américium et du curium. Bien que nous pourrions nous attendre à ce que la concentration des actinides fortement résonant soit réduite (car ils capturent plus), celle-ci demeure constante (notamment ^{240}Pu et ^{242}Pu). Ceci s'explique par le fait que toutes les concentrations sont normalisées à l' ^{238}U , qui a lui-même beaucoup plus capturé, conduisant à un ratio globalement constant de leurs concentrations.

Quant aux produits de fission d'intérêt pour le crédit burnup pour lesquels la concentration augmente, ceci s'explique par une diminution du nombre de neutrons arrivant à la thermalisation, et donc une diminution du taux de capture de ces noyaux. Nous pouvons notamment citer les ^{149}Sm , ^{151}Sm , et ^{155}Gd qui présentent une section efficace de capture thermique très grande, comme l'illustre la Figure 2.10. La baisse de leur taux de capture conduit à des écarts supérieurs à 1% pour ces nucléides-ci.

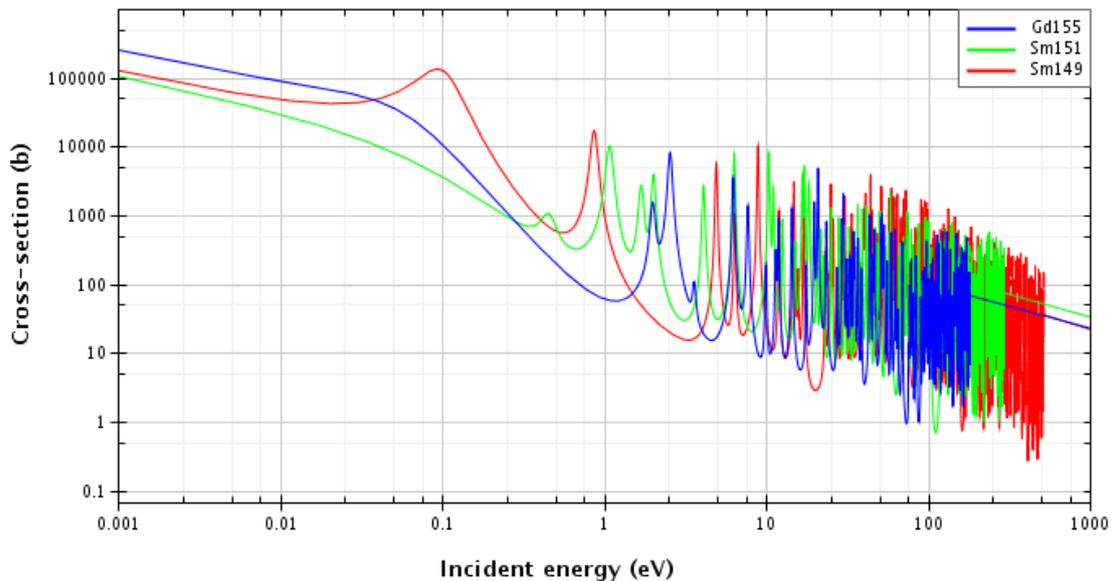


Figure 2.10 – Sections efficaces de capture des ^{149}Sm , ^{151}Sm , et ^{155}Gd dans JEFF-3.1.1

Le phénomène d'upscattering résonant traduit une réalité physique qui n'est aujourd'hui pas prise en compte dans les calculs APOLLO2 / CYCLE2008-REP, car nous avons vu que sa prise en compte induit un changement des recommandations d'autoprotection, et donc une dégradation du schéma de calcul CYCLE2008-REP.

Pour les études d'assimilation des données intégrales, nous choisirons donc de rajouter une source d'incertitude supplémentaire sur les écarts C/E de la base de données expérimentale. Cette source d'incertitude supplémentaire, que nous pouvons également qualifier d'incertitude « de modélisation », correspondra à 10% pour chaque nucléide à la valeur en pourcent de l'impact de l'upscattering résonant sur le calcul du bilan matière de ce nucléide.

Tableau 2.9 – Comparaison du bilan matière à 40GWj/t pour une cellule REP UOX à 3,7% avec et sans upscattering résonant

Isotope (/ ²³⁸ U)	Concentration sans upscattering résonant	Concentration avec upscattering résonant	Écart-relatif (%)
²³⁴ U	1,059E-04	1,056E-04	-0,26
²³⁵ U	1,032E-02	1,039E-02	0,71
²³⁶ U	5,342E-03	5,328E-03	-0,26
²³⁷ Np	6,308E-04	6,377E-04	1,10
²³⁸ Pu	2,526E-04	2,557E-04	1,25
²³⁹ Pu	7,171E-03	7,252E-03	1,13
²⁴⁰ Pu	2,813E-03	2,814E-03	0,06
²⁴¹ Pu	1,833E-03	1,853E-03	1,09
²⁴² Pu	6,703E-04	6,715E-04	0,18
²⁴¹ Am	4,793E-05	4,856E-05	1,32
^{242m} Am	1,083E-06	1,103E-06	1,84
²⁴³ Am	1,487E-04	1,496E-04	0,62
²⁴² Cm	1,983E-05	1,998E-05	0,78
²⁴³ Cm	4,998E-07	5,039E-07	0,81
²⁴⁴ Cm	5,530E-05	5,576E-05	0,84
²⁴⁵ Cm	3,734E-06	3,802E-06	1,83
²⁴⁶ Cm	3,156E-07	3,182E-07	0,82
²⁴⁷ Cm	4,461E-09	4,495E-09	0,78
¹⁴³ Nd	1,679E-03	1,682E-03	0,19
¹⁴⁴ Nd	2,010E-03	2,005E-03	-0,24
¹⁴⁵ Nd	1,401E-03	1,401E-03	0,01
¹⁴⁶ Nd	1,496E-03	1,495E-03	-0,07
¹⁴⁸ Nd	7,834E-04	7,834E-04	-0,01
¹⁵⁰ Nd	3,702E-04	3,704E-04	0,06
¹³³ Cs	2,492E-03	2,490E-03	-0,10
¹³⁴ Cs	3,385E-04	3,403E-04	0,55
¹³⁵ Cs	8,730E-04	8,780E-04	0,58
¹³⁷ Cs	2,739E-03	2,739E-03	0,00
¹⁴⁷ Pm	3,655E-04	3,636E-04	-0,52
¹⁴⁷ Sm	1,320E-04	1,314E-04	-0,45
¹⁴⁸ Sm	2,938E-04	2,954E-04	0,55
¹⁴⁹ Sm	4,779E-06	4,847E-06	1,42
¹⁵⁰ Sm	6,078E-04	6,087E-04	0,15
¹⁵¹ Sm	2,596E-05	2,627E-05	1,20
¹⁵² Sm	1,961E-04	1,955E-04	-0,30
¹⁵⁴ Sm	7,715E-05	7,729E-05	0,19
¹⁵³ Eu	2,392E-04	2,396E-04	0,17
¹⁵⁴ Eu	5,832E-05	5,872E-05	0,69
¹⁵⁵ Eu	1,668E-05	1,670E-05	0,11
¹⁵⁴ Gd	4,213E-06	4,240E-06	0,64
¹⁵⁵ Gd	1,398E-07	1,422E-07	1,72
¹⁰⁶ Ru	4,920E-04	4,931E-04	0,22
¹⁴⁴ Ce	7,643E-04	7,639E-04	-0,05
⁹⁰ Sr	1,764E-03	1,761E-03	0,02
⁹⁹ Tc	2,413E-03	2,411E-03	-0,08
¹⁰¹ Ru	2,380E-03	2,381E-03	0,02
⁹⁵ Mo	2,097E-03	2,096E-03	-0,05
¹⁰⁹ Ag	2,157E-04	2,159E-04	0,08
¹⁰³ Rh	1,291E-03	1,293E-03	0,15

Tableau 2.10 – Comparaison du bilan matière à 40GWj/t pour une cellule REP MOX à teneur Pu 5,3% avec et sans upscattering résonant

Isotope (/ ²³⁸ U)	Concentration sans upscattering résonant	Concentration avec upscattering résonant	Écart-relatif (%)
²³⁴ U	5,192E-05	5,182E-05	-0,18
²³⁵ U	1,539E-03	1,541E-03	0,10
²³⁶ U	2,419E-04	2,417E-04	-0,07
²³⁷ Np	1,810E-04	1,815E-04	0,28
²³⁸ Pu	2,017E-03	2,020E-03	0,15
²³⁹ Pu	4,304E-02	4,323E-02	0,46
²⁴⁰ Pu	2,581E-02	2,578E-02	-0,11
²⁴¹ Pu	1,343E-02	1,348E-02	0,36
²⁴² Pu	6,206E-03	6,185E-03	-0,32
²⁴¹ Am	1,675E-03	1,676E-03	0,11
^{242m} Am	6,792E-05	6,841E-05	0,72
²⁴³ Am	1,575E-03	1,585E-03	0,63
²⁴² Cm	3,342E-04	3,344E-04	0,06
²⁴³ Cm	1,699E-05	1,701E-05	0,11
²⁴⁴ Cm	7,527E-04	7,591E-04	0,85
²⁴⁵ Cm	8,111E-05	8,248E-05	1,69
²⁴⁶ Cm	3,317E-06	3,356E-06	1,18
²⁴⁷ Cm	5,972E-08	6,038E-08	1,11
¹⁴³ Nd	1,863E-03	1,864E-03	0,04
¹⁴⁴ Nd	1,322E-03	1,321E-03	-0,05
¹⁴⁵ Nd	1,335E-03	1,335E-03	0,02
¹⁴⁶ Nd	1,352E-03	1,352E-03	-0,01
¹⁴⁸ Nd	8,191E-04	8,191E-04	0,01
¹⁵⁰ Nd	4,790E-04	4,790E-04	0,01
¹³³ Cs	2,767E-03	2,765E-03	-0,09
¹³⁴ Cs	2,937E-04	2,955E-04	0,63
¹³⁵ Cs	2,352E-03	2,360E-03	0,33
¹³⁷ Cs	2,909E-03	2,909E-03	0,00
¹⁴⁷ Pm	4,249E-04	4,227E-04	-0,52
¹⁴⁷ Sm	1,532E-04	1,525E-04	-0,45
¹⁴⁸ Sm	3,117E-04	3,141E-04	0,79
¹⁴⁹ Sm	2,628E-05	2,660E-05	1,22
¹⁵⁰ Sm	6,308E-04	6,308E-04	0,00
¹⁵¹ Sm	1,066E-04	1,075E-04	0,82
¹⁵² Sm	2,886E-04	2,879E-04	-0,27
¹⁵⁴ Sm	1,359E-04	1,359E-04	0,01
¹⁵³ Eu	3,156E-04	3,154E-04	-0,06
¹⁵⁴ Eu	1,011E-04	1,014E-04	0,28
¹⁵⁵ Eu	2,390E-05	2,389E-05	-0,06
¹⁵⁴ Gd	7,177E-06	7,198E-06	0,29
¹⁵⁵ Gd	1,036E-06	1,051E-06	1,38
¹⁰⁶ Ru	9,263E-04	9,264E-04	0,00
¹⁴⁴ Ce	6,818E-04	6,819E-04	0,00
⁹⁰ Sr	9,228E-04	9,228E-04	0,00
⁹⁹ Tc	2,528E-03	2,526E-03	-0,09
¹⁰¹ Ru	2,729E-03	2,729E-03	0,00
⁹⁵ Mo	1,809E-03	1,809E-03	-0,01
¹⁰⁹ Ag	5,636E-04	5,619E-04	-0,30
¹⁰³ Rh	2,417E-03	2,417E-03	0,00

2.4. COMBINAISON DES INCERTITUDES

La nature même des expériences issues de la base de données expérimentales laisse entrevoir l'existence de corrélation entre-elles : en effet, toutes les données expérimentales sont issues d'analyses de combustibles irradiés en réacteur de puissance, analyses souvent menées avec des techniques expérimentales similaires.

Cette partie présente la méthode qui a été utilisée pour produire une matrice de corrélation entre les C/E de la base de données à partir de la combinaison des sources d'incertitudes listées dans les sections 2.2 et 2.3.

2.4.1. PRESENTATION DE LA METHODE AGS

La méthode utilisée pour la production d'une matrice de corrélation entre les C/E est celle développée pour le code AGS (Bastian, 2006), pour *Analysis of Generic TOF_Spectra*, dédié à l'interprétation des expériences par temps de vol. Cette matrice se calcule comme suit :

$$M_{C/E} = D + S.S^T \quad (2.13)$$

Avec :

- $M_{C/E}$ est la matrice de corrélation entre les C/E de taille $n_E \times n_E$, avec n_E le nombre d'expériences à corrélérer,
- D est la composante non-corrélée : il s'agit d'une matrice diagonale de taille $n_E \times n_E$ contenant les incertitudes statistiques associées à chaque expérience,
- $S.S^T$ est la composante corrélée : S est une matrice de taille $n_E \times n_S$ contenant les incertitudes systématiques associées à chaque expérience, où n_S est le nombre de sources d'incertitudes systématiques.

2.4.2. CONSTRUCTION DE LA MATRICE DE CORRELATION AVEC LA METHODE AGS

La liste des sources d'incertitudes associées aux écarts Calcul-Expérience pour notre étude, qui sont celles liées à la méthode d'interprétation des expériences de post-irradiation avec DARWIN2.3 ainsi que les incertitudes « de modélisation », sont rappelées dans le Tableau 2.11.

Nous formulons l'hypothèse que nous pouvons considérer les incertitudes « de modélisation » de la section 2.3 comme des sources d'incertitude systématique sur le calcul du bilan matière, que nous pouvons combiner avec les incertitudes associées à l'interprétation des PIE de la section 2.2. Ainsi, les matrices D et S utilisées pour le calcul de M_E seront les suivantes :

$$D = \begin{bmatrix} \Delta_{exp,1} & & (0) \\ & \ddots & \\ (0) & & \Delta_{exp,n_E} \end{bmatrix} \quad (2.14)$$

$$S = \begin{bmatrix} \Delta_{TC,1} & \Delta_{TM,1} & \Delta_{AP2-T4,1} & \Delta_{UPS,1} \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ \Delta_{TC,n_E} & \Delta_{TM,n_E} & \Delta_{AP2-T4,n_E} & \Delta_{UPS,n_E} \end{bmatrix} \quad (2.15)$$

Où $\Delta_{exp,i}$ est l'incertitude expérimentale associée à l'expérience i , $\Delta_{TC,i}$ désigne l'incertitude sur le bilan matière lié à la température du combustible pour l'expérience i , $\Delta_{TM,i}$ désigne l'incertitude sur le bilan matière lié à la température du modérateur pour l'expérience i . Ces deux incertitudes sont déterminées par perturbation directe du calcul DARWIN2.3. $\Delta_{AP2-T4,i}$ désigne le terme d'incertitude « de modélisation » sur le schéma de calcul CYCLE2008-REP pour l'expérience i et $\Delta_{UPS,i}$ désigne le terme d'incertitude « de modélisation » sur la prise en compte de l'upscattering résonant pour l'expérience i .

Tableau 2.11 – Liste des sources d'incertitudes associées aux écarts Calcul-Expérience et traitement de ces incertitudes pour l'étude

Source d'incertitude	Type	Traitement
Expérimentale	Statistique	Méthode AGS – matrice D
Température combustible	Systematique	Méthode AGS – matrice S.S ^T
Température modérateur	Systematique	Méthode AGS – matrice S.S ^T
Burnup	Systematique	<i>Marginalisation</i>
Ecart APOLLO2 / TRIPOLI4®	Systematique	Méthode AGS – matrice S.S ^T
Impact upscattering résonant	Systematique	Méthode AGS – matrice S.S ^T

Notons cependant que pour éviter l'occurrence du phénomène de Peelle's Pertinent Puzzle (Smith, 1991), qui peut conduire à des valeurs de paramètres ajustés incohérentes lors du traitement d'incertitudes systématiques importantes vis-à-vis de l'incertitude statistique, nous choisissons de traiter l'incertitude sur le burnup en dehors de la procédure d'ajustement. Cet effet a été notamment observé lors de l'analyse de la première résonance du ²³⁹Pu lors des travaux de thèse de Benoît Habert (Habert, 2009). La Figure 2.11 illustre l'effet du Peelle's Pertinent Puzzle sur l'ajustement réalisé sur la première résonance de capture du ²³⁹Pu. La méthode de marginalisation, que l'on utilisera pour traiter l'incertitude sur le burnup, sera présentée dans le chapitre suivant.

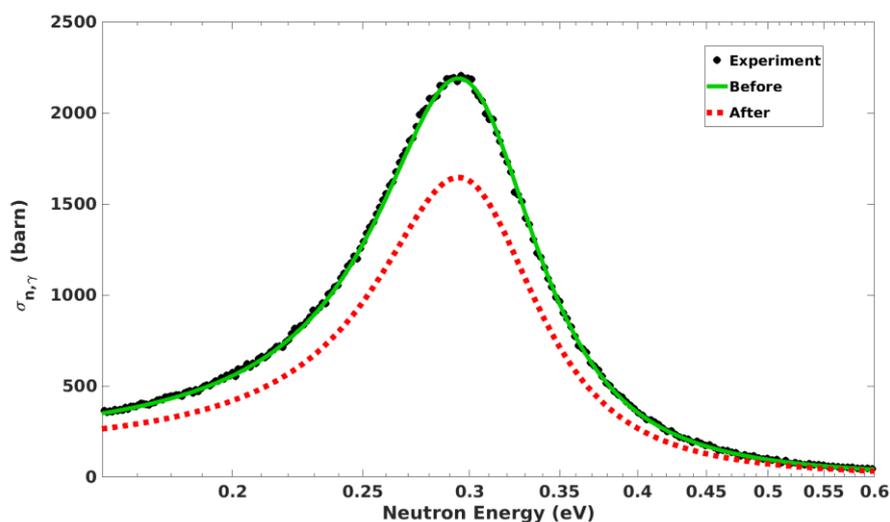


Figure 2.11 – Effet du Peelle's Pertinent Puzzle sur l'ajustement de la première résonance de capture du ^{239}Pu (extrait de : (De Saint Jean C. , 2018))

Ce faisant, il est alors possible de construire une matrice de corrélation entre les C/E de la base de données en combinant l'ensemble des sources d'incertitudes mentionnées précédemment. Cette hypothèse sera testée au moment de procéder aux ajustements avec CONRAD, en quantifiant l'effet des corrélations entre les C/E, calculées avec ou sans les termes d'incertitude dites « de modélisation ». Les Figure 2.12-a) et Figure 2.12-b) illustrent les matrices de corrélation respectivement obtenues en utilisant la méthode AGS, avec ou sans incertitudes « de modélisation ».

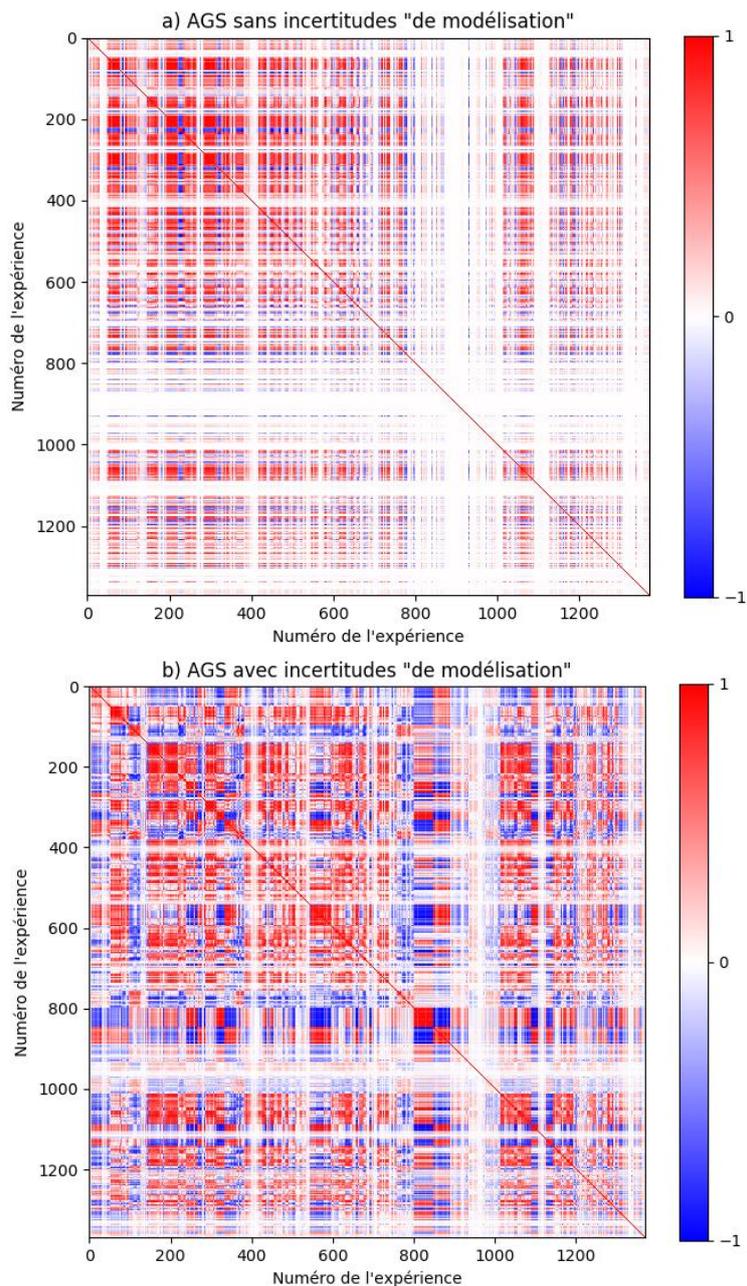


Figure 2.12 - Matrice de corrélation entre les C/E obtenues en utilisant la méthode AGS a) sans incertitudes « de modélisation » b) avec incertitudes « de modélisation »

RESUME DU CHAPITRE 2 :

- Les données nucléaires constituent les paramètres que nous ajusterons lors de l'assimilation des données intégrales du formulaire DARWIN2.3. Les incertitudes sur les données nucléaires représentent la connaissance *a priori* que nous en avons. Ces dernières sont issues de la base de matrice de covariance COMAC-V2.0 pour les sections efficaces et de JEFF-3.1.1 pour les autres paramètres (rendements de fission, périodes, ...). Certains paramètres ne disposent pas d'incertitude dans JEFF-3.1.1 ; à défaut, nous leur associons une incertitude déduite de comparaison avec les autres bibliothèques internationales.
- Quatre sources d'incertitudes ont été prises en compte dans la méthode d'interprétation des expériences post-irradiation utilisées pour la validation expérimentale du formulaire DARWIN2.3 : l'incertitude expérimentale, l'incertitude sur les températures du combustible et du modérateur, et l'incertitude sur le recalage en burnup.
- Deux sources d'incertitudes supplémentaires font l'objet d'une étude dédiée dans la thèse et sont ajoutées aux incertitudes précédentes. Elles permettent d'estimer l'impact des approximations méthodologiques effectuées par le schéma de calcul CYCLE2008-REP et par l'absence de prise en compte de l'upscattering résonant. Des études réalisées par comparaison de calculs en évolution en géométrie cellule (respectivement calcul déterministe APOLLO2 par rapport à un calcul Monte-Carlo TRIPOLI-4® évoluant, et calculs APOLLO2 avec ou sans upscattering résonant) montrent des impacts limités de ces deux approximations méthodologiques sur le calcul du bilan matière. Chacune des approximations étudiées sera associée à une incertitude dite « de modélisation ».
- Pour produire une matrice de corrélation entre les C/E, qui sera utilisée dans les études d'assimilations de données intégrales, la méthode issue du code AGS a été utilisée. Pour construire cette matrice, nous choisissons de combiner les incertitudes « de modélisation » avec les sources d'incertitude considérées pour l'interprétation des expériences post-irradiation. Seule l'incertitude sur le burnup est traitée différemment, en dehors de la procédure d'ajustement avec la méthode de marginalisation que nous présentons dans le chapitre suivant.

CHAPITRE 3 : ASSIMILATION DES DONNEES INTEGRALES

Dans ce chapitre, les études d'assimilation des données intégrales du formulaire DARWIN2.3 avec le code CONRAD sont présentées. Dans un premier temps, on détaille la méthode utilisée pour produire les résultats : cette dernière repose sur une technique d'ajustement statistique bayésien, ainsi que sur une méthode de marginalisation des incertitudes. On illustrera dans un deuxième temps comment cette méthode a été appliquée à l'ensemble de la validation expérimentale du formulaire DARWIN2.3 : à ce titre, nous présenterons comment les paramètres de modèle, i.e. les données nucléaires, du système ont été déterminés et quels sont ceux que nous avons choisis d'ajuster. La méthode employée pour calculer les coefficients de sensibilité des concentrations isotopiques aux données nucléaires, paramètres-clés pour l'ajustement bayésien, sera également traitée.

Une synthèse des résultats obtenus par assimilation des données intégrales sera présentée. Nous illustrerons en quoi ces tendances permettent d'améliorer significativement le calcul du bilan matière en traitant deux cas d'étude, que sont les calculs de la concentration du ^{244}Cm et de ^{154}Eu . La finalité de ces études est de pouvoir proposer des recommandations d'évaluation pour les futures versions de JEFF en bénéficiant du retour d'expérience du cycle du combustible avec DARWIN2.3. Une étude d'impact des recommandations d'évaluation qui découlent du travail de thèse sera effectuée en fin de chapitre.

CONTENU

3.1. Méthode utilisée pour l'assimilation des données intégrales	- 62 -
3.1.1. Méthode d'ajustement.....	- 62 -
3.1.2. Méthode de marginalisation.....	- 65 -
3.2. Mise en œuvre de la méthode d'assimilation sur la validation expérimentale de DARWIN2.3	- 67 -
3.2.1. Description de la démarche	- 67 -
3.2.2. Détermination des paramètres de modèle et choix des paramètres à ajuster	- 68 -
3.2.3. Calculs de sensibilités des concentrations aux données nucléaires.....	- 72 -
3.2.4. Traitement des incertitudes lors de l'assimilation.....	- 75 -
3.3. Résultats de l'assimilation de la validation expérimentale de DARWIN2.3	- 77 -
3.3.1. Synthèse des tendances obtenues et analyse critique	- 78 -
3.3.2. Focus sur les tendances concernant l'amélioration du calcul du ^{244}Cm et de ^{154}Eu	- 82 -
3.3.3. Recommandations pour la prochaine bibliothèque européenne.....	- 100 -
3.4. Impact des recommandations sur le calcul du bilan matière	- 103 -

3.1. METHODE UTILISEE POUR L'ASSIMILATION DES DONNEES INTEGRALES

Dans cette section, la méthode d'assimilation des données intégrales du formulaire DARWIN2.3 est introduite. Cette méthode se décline en deux étapes : une assimilation des données intégrales avec une approche bayésienne qui permettra de procéder à un ajustement statistique des données nucléaires intervenant dans le calcul de la concentration des nucléides cibles que l'on souhaite améliorer, et une méthode de marginalisation qui va notamment permettre de traiter rigoureusement l'incertitude des paramètres qui ne sont pas ajustés.

3.1.1. METHODE D'AJUSTEMENT

On introduit dans cette section la méthode d'ajustement utilisée par le code CONRAD (De Saint Jean C. , 2007) (Archier, 2014-1) ainsi que les hypothèses effectuées pour pouvoir appliquer cette méthode. Cette section reprend des développements réalisés dans la thèse de Benoît Habert (Habert, 2009).

3.1.1.1. THEOREME DE BAYES

L'approche bayésienne en statistique repose sur l'utilisation du théorème de Bayes (Bayes, 1763) pour les probabilités conditionnelles. Ce théorème peut être généralisé au cas continu avec les fonctions de densité de probabilité, et donne :

$$p(\vec{x}|\vec{y}, U) = \frac{p(\vec{x}|U) \cdot p(\vec{y}|\vec{x}, U)}{\int p(\vec{y}|\vec{x}, U) \cdot p(\vec{x}, U) d\vec{x}} \quad (3.1)$$

On désigne par $p(\vec{x}|U)$ la densité de probabilité dite *a priori* du jeu de paramètres \vec{x} ; $p(\vec{y}|\vec{x}, U)$ désigne la fonction de vraisemblance (*likelihood*, en littérature anglophone) et quantifie la probabilité que les réalisations \vec{y} se produisent avec une connaissance U au préalable. Enfin, $p(\vec{x}|\vec{y}, U)$ est la densité de probabilité *a posteriori* du jeu de paramètres \vec{x} : il s'agira de la nouvelle densité de probabilité, tenant compte de l'information apportée par le jeu de mesures \vec{y} .

Cette relation peut alors s'interpréter comme l'actualisation de connaissances *a priori* sur un jeu de paramètres donné, avec la fonction de vraisemblance qui capitalise l'information expérimentale que l'on souhaite apporter à notre système. On pourra donc écrire de manière schématique :

$$posterior[p(\vec{x}|\vec{y}, U)] \propto prior[p(\vec{x}|U)] \times likelihood[p(\vec{y}|\vec{x}, U)] \quad (3.2)$$

Dans le cadre de cette thèse, le jeu de paramètres \vec{x} représente l'ensemble des données nucléaires impliquées dans la formation des nucléides dont on souhaite améliorer le calcul. La vraisemblance désigne l'ensemble des écarts C/E que l'on va utiliser pour effectuer l'ajustement des paramètres de modèle. Par souci de cohérence au niveau des notations, on notera $\vec{y} = \vec{E}$.

3.1.1.2. DETERMINATION ANALYTIQUE DE LA DENSITE DE PROBABILITE A POSTERIORI

Pour déterminer la densité de probabilité *a posteriori* des paramètres de modèle à partir de l'équation (3.2)³, il est nécessaire d'effectuer un certain nombre d'hypothèses :

- La distribution *a priori* suit une loi gaussienne centrée sur la valeur moyenne \vec{x}_{prior} des paramètres de modèle, avec une matrice de covariance entre les paramètres de modèle *a priori* M_x^{prior} :

$$prior[p(\vec{x}|U)] \propto \exp\left(-\frac{1}{2}\left[(\vec{x} - \vec{x}_{prior})^T \cdot M_x^{prior}{}^{-1} \cdot (\vec{x} - \vec{x}_{prior})\right]\right) \quad (3.3)$$

- La fonction de vraisemblance est une gaussienne centrée sur la mesure avec pour covariance celle de l'expérience :

$$likelihood[p(\vec{y}|\vec{x}, U)] \propto \exp\left(-\frac{1}{2}\left[(\vec{C}(\vec{x}) - \vec{E})^T \cdot M_{C/E}{}^{-1} \cdot (\vec{C}(\vec{x}) - \vec{E})\right]\right) \quad (3.4)$$

Ces deux hypothèses sont issues du principe de maximum d'entropie : seules les valeurs moyennes et les matrices de covariance de ces distributions sont connues. Dans ces conditions, la distribution gaussienne est celle qui maximise l'entropie au sens de Shannon (Shannon, 1948), et elle est donc la plus probable. Cette approche est donc retenue dans le code CONRAD.

On note que le vecteur $\vec{C}(\vec{x})$ contient les valeurs données par les modèles théoriques, que l'on oppose au vecteur \vec{E} . Dans le cadre de cette thèse, les valeurs contenues dans le vecteur $\vec{C}(\vec{x})$ sont les ratios isotopiques calculés, alors que \vec{E} contiendra les ratios isotopiques mesurés.

On déduit des relations (3.2), (3.3), (3.4) la relation suivante :

$$posterior[p(\vec{x}|\vec{y}, U)] \propto \exp\left(-\frac{1}{2}\left[\begin{array}{l} (\vec{C}(\vec{x}) - \vec{E})^T \cdot M_{C/E}{}^{-1} \cdot (\vec{C}(\vec{x}) - \vec{E}) \\ + (\vec{x} - \vec{x}_{prior})^T \cdot M_x^{prior}{}^{-1} \cdot (\vec{x} - \vec{x}_{prior}) \end{array}\right]\right) \quad (3.5)$$

La résolution analytique du problème s'effectue à l'aide d'une troisième hypothèse :

³ Il n'est pas nécessaire de résoudre directement l'équation (3.1) : le terme au dénominateur est une constante de normalisation de la densité de probabilité *a posteriori*. Seule la relation de proportionnalité entre les densités de probabilité va nous intéresser ici.

- La distribution *a posteriori* obtenue est approchée par une distribution gaussienne localisée au maximum de la distribution *a posteriori*, soit :

$$posterior[p(\vec{x}|\vec{y}, U)] \propto \exp\left(-\frac{1}{2}\left[(\vec{x} - \vec{x}_{post})^T \cdot M_x^{post^{-1}} \cdot (\vec{x} - \vec{x}_{post})\right]\right) \quad (3.6)$$

A partir de cette hypothèse, il est possible de déterminer le vecteur des paramètres *a posteriori* \vec{x}_{post} en minimisant l'argument de l'exponentielle de l'équation (3.5) : si l'on suppose en effet la distribution *a posteriori* comme étant une gaussienne, la valeur moyenne et la valeur maximum sont identiques.

La détermination de la densité de probabilité *a posteriori* se fait donc *via* la minimisation de la « fonction coût » suivante, dite χ^2 (« chi-deux ») généralisée :

$$\chi^2(\vec{x}) = (\vec{C}(\vec{x}) - \vec{E})^T \cdot M_{C/E}^{-1} \cdot (\vec{C}(\vec{x}) - \vec{E}) + (\vec{x} - \vec{x}_{prior})^T \cdot M_x^{prior^{-1}} \cdot (\vec{x} - \vec{x}_{prior}) \quad (3.7)$$

Cette fonction illustre bien la compétition entre la connaissance *a priori* que l'on possède de nos paramètres de modèle, et l'information intégrale que l'on apporte pour affiner leur connaissance. La valeur centrale des paramètres *a posteriori* sera donc un compromis entre ces deux types d'informations.

La matrice de covariance *a posteriori* M_x^{post} est calculée comme étant le double de l'inverse de la matrice hessienne (dérivée seconde) de la fonction coût, selon :

$$M_x^{post}[i, j] = 2 \left(\frac{\partial^2(\chi^2)}{\partial \vec{x}_i \partial \vec{x}_j} \right)^{-1} \quad (3.8)$$

3.1.1.3. MINIMISATION DE LA FONCTION COUT

La minimisation de la fonction des moindres carrés généralisée se fait dans CONRAD à l'aide d'un schéma itératif : en supposant que l'*a posteriori* est proche de l'*a priori*, et qu'en outre la fonction des moindres carrés généralisés varie peu autour de sa valeur initiale, une méthode de Newton visant à la minimisation du gradient de la matrice hessienne de la fonction coût est utilisée. Cette méthode n'est pas présentée ici mais le lecteur pourra trouver des informations dans (Habert, 2009).

Dans cette thèse, les calculs sont limités à une seule itération sur le processus de minimisation de la fonction coût avec CONRAD. Cette hypothèse sera vérifiée pour les ajustements réalisés.

3.1.2. METHODE DE MARGINALISATION

Une méthode de marginalisation analytique a été développée (Habert, 2009) et implémentée dans CONRAD. Celle-ci permet de tenir compte de l'incertitude des paramètres expérimentaux qui ne sont pas utiles pour l'évaluation des données nucléaires (normalisation, température par exemple...). Ces paramètres sont dits « de nuisances ». L'incertitude sur ces paramètres n'étant pas prises en compte lors de la procédure d'ajustement avec CONRAD, elle est traitée après, et donc en dehors de l'ajustement.

Les développements de la thèse d'Habert ont été repris et utilisés pour les études d'assimilation de données intégrales pour l'ajustement des paramètres de modèle des sections efficaces (Noguère, 2012). Au cours de ces travaux, la marginalisation est utilisée pour produire des corrélations entre les paramètres de modèle « observables » et les paramètres de modèle « latents », ces derniers désignant généralement des grandeurs non-mesurables en pratique. Nous rappelons ici les principaux résultats des travaux de (Noguère, 2012). Ces derniers s'appuient sur le concept de « pénalité de variance » (*Variance Penalty*, dans la littérature anglophone) introduit par (Muir, 2011). Il permet d'estimer la contribution dans la variance d'une grandeur intégrale z (pouvant être un vecteur ou un scalaire) des incertitudes d'un groupe $\vec{\theta}$ des paramètres de modèle $\vec{\mu} = (\vec{x}, \vec{\theta})^T$ de z . Elle se calcule à travers l'estimation de la variance qu'aurait la grandeur z' si nous disposions d'un jeu de nouvelles expériences « idéales » dans lequel la connaissance des paramètres $\vec{\theta}$ serait quasi-parfaite. La pénalité de variance $P(z, \vec{\theta})$ peut alors s'écrire simplement :

$$P(z, \vec{\theta}) = \text{var}(z) - \text{var}(z') \quad (3.9)$$

Dans (Noguère, 2012), ce formalisme est utilisé en considérant deux groupes de paramètres de modèle : $\vec{x} = (x_1, \dots, x_n)^T$ désigne les paramètres observables, et $\vec{\theta} = (\theta_1, \dots, \theta_m)^T$ désigne les paramètres latents.

De manière générale, la variance de la grandeur intégrale z peut s'écrire :

$$\text{var}(z) = G \cdot \Sigma \cdot G^T \quad (3.10)$$

avec $G = (G_x, G_\theta)^T$ le vecteur contenant les dérivées partielles de z par rapport à chaque paramètre de modèle \vec{x} et $\vec{\theta}$, et Σ la matrice de covariance entre les paramètres de modèle $\vec{\mu}$.

Considérons un nouveau jeu d'expériences z' sur lesquels nous choisissons d'ajuster les paramètres de modèle \vec{x} . La matrice M de covariance entre les paramètres $\vec{\mu}$ à l'issue de l'ajustement bayésien est de type :

$$M = \begin{pmatrix} M_x^{post} & 0 \\ 0 & M_\theta \end{pmatrix} \quad (3.11)$$

où M_θ est la matrice de corrélation entre les paramètres latents. Le problème consiste à déterminer complètement la matrice Σ pour propager les incertitudes de chaque paramètre de modèle sur la grandeur intégrale z , *via* la création de corrélations entre les groupes de paramètres \vec{x} et $\vec{\theta}$. Nous pouvons choisir de décomposer Σ sous la forme suivante :

$$\Sigma = D_x + H_\theta \quad (3.12)$$

Avec :

$$D_x = \begin{pmatrix} M_x^{post} & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (3.13)$$

$$H_\theta = \begin{pmatrix} M_x^\theta & M_{x,\theta} \\ M_{x,\theta}^T & M_\theta \end{pmatrix} \quad (3.14)$$

Afin de déterminer complètement Σ , il est donc nécessaire de déterminer les blocs M_x^θ et $M_{x,\theta}$. En utilisant la décomposition de l'équation (3.12), la variance de z s'écrit :

$$\text{var}(z) = G_x \cdot M_x^{post} \cdot G_x^T + G \cdot H_\theta \cdot G^T \quad (3.15)$$

Faisons l'hypothèse que le jeu de mesures de z' , sur lequel nous avons ajusté les paramètres \vec{x} , est réalisé dans des conditions idéales. Dès lors, la variance de cette grandeur sera :

$$\text{var}(z') = G_x \cdot M_x^{post} \cdot G_x^T \quad (3.16)$$

Dans ces conditions, la « pénalité de variance » $P(z, \vec{\theta})$ telle que définie dans (Muir, 2011) peut s'écrire :

$$P(z, \vec{\theta}) = G \cdot H_\theta \cdot G^T \quad (3.17)$$

Une expression des blocs M_x^θ et $M_{x,\theta}$ de la matrice H_θ peut être déterminée dans le cas où $P(z, \vec{\theta}) = 0$, c'est-à-dire lorsque la variance de z est conservée. En utilisant les décompositions de G et de H_θ , ceci revient à écrire :

$$G_x \cdot M_x^\theta \cdot G_x^T + G_x \cdot M_{x,\theta} \cdot G_\theta^T + G_\theta \cdot M_{x,\theta}^T \cdot G_x^T + G_\theta \cdot M_\theta \cdot G_\theta^T = 0 \quad (3.18)$$

En remarquant que $(G_x \cdot M_{x,\theta} \cdot G_\theta^T)^T = G_\theta \cdot M_{x,\theta}^T \cdot G_x^T$, l'équation (3.18) est vérifiée en choisissant M_x^θ et $M_{x,\theta}$ telles que :

$$G_x \cdot M_x^\theta \cdot G_x^T = G_\theta \cdot M_\theta \cdot G_\theta^T \quad (3.19)$$

$$G_x \cdot M_{x,\theta} \cdot G_\theta^T = -G_\theta \cdot M_\theta \cdot G_\theta^T \quad (3.20)$$

Une expression de M_x^θ et $M_{x,\theta}$ est obtenue en isolant chacune de ces matrices dans les équations (3.19) et (3.20). Finalement, la matrice de covariance complète du système s'exprime :

$$\Sigma = \begin{pmatrix} M_{x,marg}^{post} & M_{x,\theta} \\ M_{x,\theta}^T & M_{\theta} \end{pmatrix} \quad (3.21)$$

Avec :

$$\begin{cases} M_{x,marg}^{post} = M_x^{post} + M_{x,\theta} = M_x^{post} + (G_x^T G_x)^{-1} G_x^T G_{\theta} \cdot M_{\theta} \cdot G_{\theta}^T G_x (G_x^T G_x)^{-1} \\ M_{x,\theta} = -(G_x^T G_x)^{-1} G_x^T \cdot G_{\theta} \cdot M_{\theta} \end{cases} \quad (3.22)$$

L'expression finale de la matrice M_x^{θ} est analogue à celle obtenue pour la marginalisation analytique des paramètres de nuisance (Habert, 2010), nous parlerons donc également de marginalisation ici. $M_{x,marg}^{post}$ représente la matrice de covariance associée aux paramètres *a posteriori* après marginalisation. Ainsi, les incertitudes associées aux données nucléaires obtenues *a posteriori* après marginalisation correspondent à la racine carrée des éléments diagonaux de $M_{x,marg}^{post}$ (voir Tableau 3.8).

Nous avons montré dans la section 3.1.1 que l'ajustement des données nucléaires avec le code CONRAD repose sur une approche où l'on choisit d'ajuster certaines données nucléaires (\vec{x}) sur des valeurs expérimentales, en tenant compte de leur incertitude *a priori* et de leurs corrélations (M_x^{prior}). Cependant, nous verrons qu'il n'est pas pertinent d'ajuster toutes les données nucléaires. Les données nucléaires non-ajustées ($\vec{\theta}$), qui présentent également une incertitude *a priori* et des corrélations entre-elles (M_{θ}), ne sont donc pas traitées lors de l'ajustement bayésien. L'incertitude associée à ces données nucléaires doit donc être marginalisée. L'incertitude sur le burnup sera également marginalisée (cf. Chapitre 2).

3.2. MISE EN ŒUVRE DE LA METHODE D'ASSIMILATION SUR LA VALIDATION EXPERIMENTALE DE DARWIN2.3

Dans cette section, la méthode d'assimilation des données intégrales utilisées dans cette thèse est détaillée ; celle-ci vise à ajuster les données nucléaires impliquées dans le calcul du bilan matière en évolution en assimilant l'ensemble de la validation expérimentale de DARWIN2.3.

3.2.1. DESCRIPTION DE LA DEMARCHE

Le principe consiste à effectuer un ajustement des données nucléaires avec CONRAD, en vue de minimiser les écarts C/E de la validation expérimentale du formulaire DARWIN2.3. Pour cela, nous utiliserons les méthodes présentées dans la section 3.1.

Pour pouvoir appliquer ces méthodes, il est nécessaire de définir précisément l'ensemble des paramètres de modèle du système. Dans notre cas, les paramètres de modèle du système sont l'ensemble des données nucléaires $\vec{\mu}$ impliquées dans le calcul de la concentration des

isotopes listés à la section 0. Une analyse de ces données nucléaires permet de déterminer celles qui doivent être ajustées \vec{x} , et celles qui doivent être marginalisées $\vec{\theta}$. Ces deux points font l'objet de la section 3.2.2 ci-dessous.

De plus, une fois les paramètres de modèle déterminés, il est nécessaire de disposer des sensibilités G des concentrations à l'ensemble des paramètres de modèle pris en compte dans l'étude. La méthode de calcul des sensibilités utilisée fera l'objet du paragraphe 3.2.3.

De manière générale, toutes les incertitudes présentées au chapitre 2 seront prises en compte lors de l'assimilation des données intégrales. Une analyse spécifique sera menée sur les différentes façons de prendre en compte ces incertitudes lors de l'ajustement. Cette analyse nous permettra de présenter des recommandations pour le traitement des incertitudes pour l'assimilation des données intégrales de la validation expérimentale de DARWIN2.3. Cette étude fait l'objet du paragraphe 3.2.4.

Enfin, une fois l'assimilation des données intégrales effectuée, une analyse critique de chaque tendance obtenue sera proposée, permettant ainsi de juger notamment par comparaison avec la littérature si celle-ci est réaliste et raisonnable. Des recommandations d'évaluation pour la prochaine version de JEFF pourront être effectuées suite aux résultats obtenus. L'impact de ces recommandations sur le calcul du bilan matière sera vérifié. Ces études font l'objet de la section 3.3.

Nous illustrerons chaque point mentionné précédemment en traitant le cas d'un actinide et d'un produit de fission, à savoir le ^{244}Cm et de l' ^{154}Eu .

3.2.2. DETERMINATION DES PARAMETRES DE MODELE ET CHOIX DES PARAMETRES A AJUSTER

Les paramètres de modèle de notre étude seront les données nucléaires qui sont impliquées dans le calcul de la concentration des nucléides. Pour les calculs d'évolution, les données nucléaires d'intérêt pour le calcul de la concentration des nucléides seront les sections efficaces, les rapports d'embranchement, les rapports isomériques, les rendements de fission cumulés, et les constantes de décroissance radioactive (voir Chapitre 2).

Ainsi, pour connaître les paramètres de modèle de notre système, il est nécessaire de s'intéresser aux chaînes de filiation des nucléides d'intérêt pour cette thèse. Pour cela, l'outil CYRUS (Benoit, 2012) (Vallet, 2014) a été utilisé. Ce dernier a été développé pour effectuer des études de propagation des incertitudes sur les calculs d'inventaire combustible et de puissance résiduelle avec DARWIN2.3.

La liste des paramètres de modèle est obtenue grâce à l'utilisation du module INVERSION du formulaire DARWIN2.3 : ce module permet de déterminer les noyaux pères et le poids des voies de formation directe d'un noyau fils donné. CYRUS permet d'itérer ce processus sur les noyaux pères pour déterminer la chaîne de formation du nucléide initial, et par voie de

conséquence l'ensemble des données nucléaires qui entrent en jeu dans le calcul de sa concentration. Nous pouvons alors identifier les données nucléaires qui doivent être ajustées.

A titre d'exemple, les voies de formation principales du ^{244}Cm dans un combustible UOX enrichi à 4,5% à 40 GWj/t ainsi que dans un combustible MOX à teneur Pu de 6,7% à 40 GWj/t sont données dans le Tableau 3.1. Les données nucléaires que l'on pourrait ajuster sont celles impliquées dans la formation du ^{244}Cm , ainsi que sa propre section de capture, qui va intervenir dans sa disparition.

Tableau 3.1 - Voies de formation typiques du ^{244}Cm dans les combustibles REP UOX et MOX

Voies de formation principales (contribution $\geq 1\%$)	
UOX enrichi à 4,5%, 40 GWj/t	<p>91% $^{238}\text{U}(n,\gamma) \rightarrow ^{239}\text{U}(\beta^-) \rightarrow ^{239}\text{Np}(\beta^-) \rightarrow ^{239}\text{Pu}(n,\gamma) \rightarrow ^{240}\text{Pu}(n,\gamma) \rightarrow ^{241}\text{Pu}(n,\gamma) \rightarrow ^{242}\text{Pu}(n,\gamma) \rightarrow ^{243}\text{Pu}(\beta^-) \rightarrow ^{243}\text{Am}(n,\gamma) \rightarrow ^{244\text{m}}\text{Am}(\beta^-) \rightarrow ^{244}\text{Cm}$</p> <p>6% $^{238}\text{U}(n,\gamma) \rightarrow ^{239}\text{U}(\beta^-) \rightarrow ^{239}\text{Np}(\beta^-) \rightarrow ^{239}\text{Pu}(n,\gamma) \rightarrow ^{240}\text{Pu}(n,\gamma) \rightarrow ^{241}\text{Pu}(n,\gamma) \rightarrow ^{242}\text{Pu}(n,\gamma) \rightarrow ^{243}\text{Pu}(\beta^-) \rightarrow ^{243}\text{Am}(n,\gamma) \rightarrow ^{244\text{g}}\text{Am}(\beta^-) \rightarrow ^{244}\text{Cm}$</p> <p>1% $^{238}\text{U}(n,\gamma) \rightarrow ^{239}\text{U}(\beta^-) \rightarrow ^{239}\text{Np}(\beta^-) \rightarrow ^{239}\text{Pu}(n,\gamma) \rightarrow ^{240}\text{Pu}(n,\gamma) \rightarrow ^{241}\text{Pu}(\beta^-) \rightarrow ^{241}\text{Am}(n,\gamma) \rightarrow ^{242}\text{Am}(\beta^+) \rightarrow ^{242}\text{Pu}(n,\gamma) \rightarrow ^{243}\text{Pu}(\beta^-) \rightarrow ^{243}\text{Am}(n,\gamma) \rightarrow ^{244\text{m}}\text{Am}(\beta^-) \rightarrow ^{244}\text{Cm}$</p>
MOX teneur Pu 6,7%, 40 GWj/t	<p>58% $^{242}\text{Pu}(n,\gamma) \rightarrow ^{243}\text{Pu}(\beta^-) \rightarrow ^{243}\text{Am}(n,\gamma) \rightarrow ^{244\text{m}}\text{Am}(\beta^-) \rightarrow ^{244}\text{Cm}$</p> <p>14% $^{241}\text{Pu}(n,\gamma) \rightarrow ^{242}\text{Pu}(n,\gamma) \rightarrow ^{243}\text{Pu}(\beta^-) \rightarrow ^{243}\text{Am}(n,\gamma) \rightarrow ^{244\text{m}}\text{Am}(\beta^-) \rightarrow ^{244}\text{Cm}$</p> <p>13% $^{240}\text{Pu}(n,\gamma) \rightarrow ^{241}\text{Pu}(n,\gamma) \rightarrow ^{242}\text{Pu}(n,\gamma) \rightarrow ^{243}\text{Pu}(\beta^-) \rightarrow ^{243}\text{Am}(n,\gamma) \rightarrow ^{244\text{m}}\text{Am}(\beta^-) \rightarrow ^{244}\text{Cm}$</p> <p>4% $^{239}\text{Pu}(n,\gamma) \rightarrow ^{240}\text{Pu}(n,\gamma) \rightarrow ^{241}\text{Pu}(n,\gamma) \rightarrow ^{242}\text{Pu}(n,\gamma) \rightarrow ^{243}\text{Pu}(\beta^-) \rightarrow ^{243}\text{Am}(n,\gamma) \rightarrow ^{244\text{m}}\text{Am}(\beta^-) \rightarrow ^{244}\text{Cm}$</p> <p>4% $^{242}\text{Pu}(n,\gamma) \rightarrow ^{243}\text{Pu}(\beta^-) \rightarrow ^{243}\text{Am}(n,\gamma) \rightarrow ^{244\text{g}}\text{Am}(\beta^-) \rightarrow ^{244}\text{Cm}$</p> <p>2% $^{241}\text{Am}(n,\gamma) \rightarrow ^{242}\text{Am}(\beta^+) \rightarrow ^{242}\text{Pu}(n,\gamma) \rightarrow ^{243}\text{Pu}(\beta^-) \rightarrow ^{243}\text{Am}(n,\gamma) \rightarrow ^{244\text{m}}\text{Am}(\beta^-) \rightarrow ^{244}\text{Cm}$</p> <p>1% $^{241}\text{Pu}(n,\gamma) \rightarrow ^{242}\text{Pu}(n,\gamma) \rightarrow ^{243}\text{Pu}(\beta^-) \rightarrow ^{243}\text{Am}(n,\gamma) \rightarrow ^{244\text{g}}\text{Am}(\beta^-) \rightarrow ^{244}\text{Cm}$</p>

Les constantes de décroissance radioactives étant raisonnablement bien connues (dans JEFF-3.1.1, on relève les incertitudes suivantes : 0,14% pour la décroissance de l' ^{239}U , 0,13% pour le ^{239}Np , 0,06% pour le ^{243}Pu), on choisit de ne pas les ajuster. Pour la même raison, la

capture de l' ^{238}U n'est pas ajustée⁴. L' $^{244\text{m}}\text{Am}$ n'est pas modélisé dans APOLLO2, son poids en réactivité étant supposé faible. De plus, la concentration en ^{244}Cm est très peu sensible aux données nucléaires de l' $^{244\text{m}}\text{Am}$, sauf à son rapport isomérique, mais ce dernier est de $99,959 \pm 0,003\%$ dans JEFF-3.1.1. Dans cette étude, l'impact des données nucléaires de l' $^{244\text{m}}\text{Am}$ n'a pas été pris en compte mais semble négligeable.

Toutes les autres données nucléaires sont ajustées : il s'agit des sections de captures successives (sauf ^{238}U) ainsi que la capture du ^{244}Cm .

Nous présentons également ci-dessous les voies de formation de l' ^{154}Eu dans un combustible UOX enrichi à 4,5% à 40 GWj/t ainsi que dans un combustible MOX à teneur Pu de 6,7% à 40 GWj/t. Les contributions de chacune des voies de formation étant similaires pour les deux combustibles UOX et MOX en REP, on synthétise les voies de formation sur la Figure 3.1.

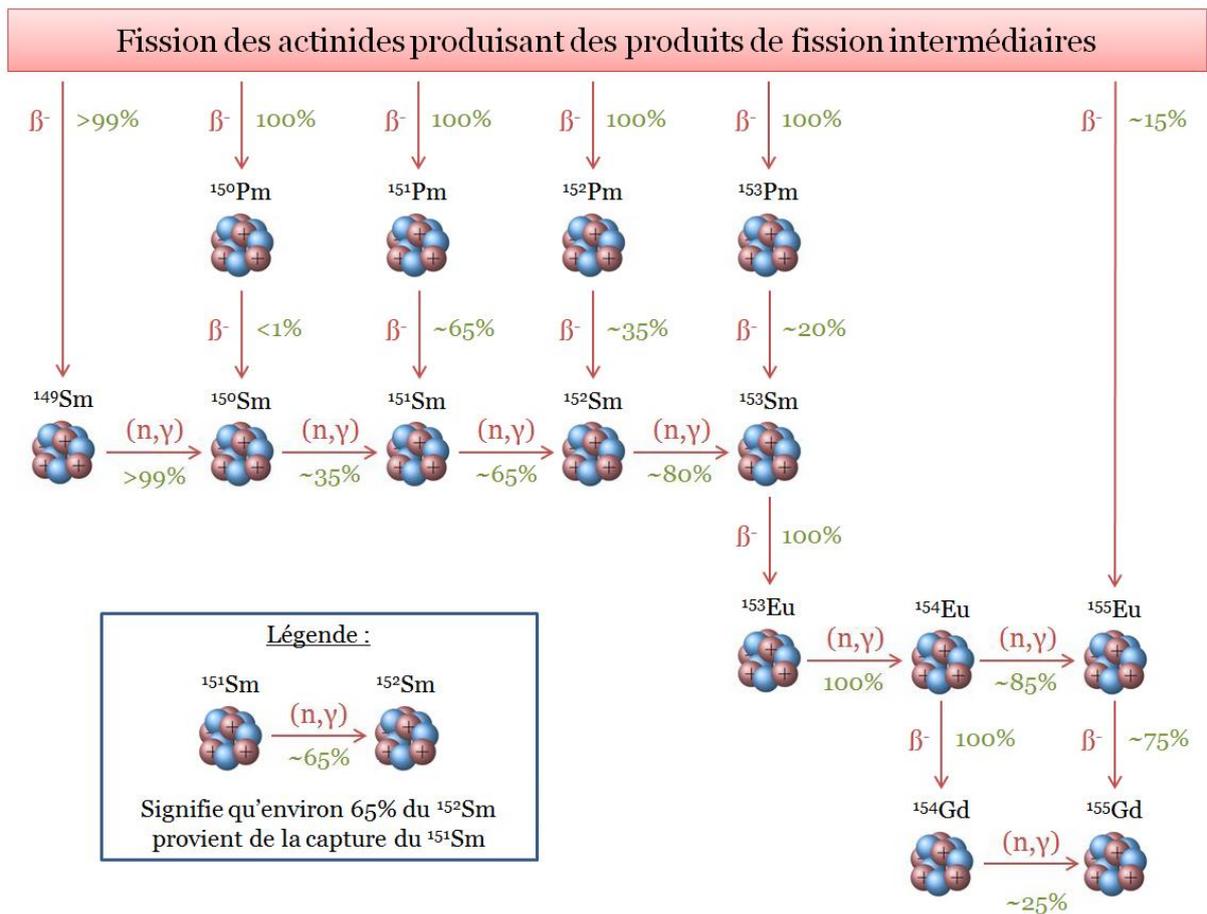


Figure 3.1 - Voies de formation et de disparition de l' ^{154}Eu en REP et ordre de grandeurs typiques de la contribution des différentes voies en UOX enrichi à 4,5% à 40 GWj/t et en MOX à teneur Pu 6,7% à 40 GWj/t

La formation de l' ^{154}Eu est plus complexe que celle des actinides produits par captures successives. Notons que l' ^{154}Eu se forme à 100% par capture de l' ^{153}Eu . Nous proposons donc

⁴ De manière générale, il n'est pas judicieux d'ajuster des standards de neutronique tels que la capture de l' ^{238}U ou la fission thermique de l' ^{235}U , étant donnée l'incertitude associée à l'interprétation / la mesure des PIE.

d'ajuster les sections de capture $^{153}\text{Eu}(n,\gamma)$ et $^{154}\text{Eu}(n,\gamma)$. L' ^{153}Eu est, quant à lui, formé par capture du ^{152}Sm et par fission produisant la masse 153. De manière générale, les isotopes du samarium qui précèdent l' ^{153}Eu sont formés à la fois par captures successives et par fission. Il est cependant délicat d'ajuster tous ces paramètres, même si DARWIN2.3 bénéficie d'une base de données confortable sur le calcul de la concentration des isotopes du samarium : en effet, les rendements de fission sont peu contraints, et choisir de les ajuster pourrait conduire à des ajustements aberrants sur les sections efficaces de capture. Toutes les données nucléaires impliquées dans la formation des isotopes du samarium ont donc été marginalisées.

Remarquons ensuite que l' ^{154}Eu est consommé uniquement par capture et décroissance. La constante de décroissance étant bien connue (incertitude de 0,04% dans JEFF-3.1.1), elle ne sera pas ajustée. Ainsi, nous ajusterons uniquement les sections de capture $^{153}\text{Eu}(n,\gamma)$ et $^{154}\text{Eu}(n,\gamma)$.

Tableau 3.2 - Paramètres de modèle ajustés pour l'étude d'assimilation des données intégrales

Paramètre de modèle	Incertitude <i>a priori</i> associée	Origine de l'incertitude
$^{235}\text{U}(n,\gamma)$	1,4%	COMAC-V2.0
$^{236}\text{U}(n,\gamma)$	3,8%	COMAC-V2.0
$^{238}\text{U}(n, xn)$	8,5%	COMAC-V2.0
$^{237}\text{Np}(n, xn)$	20%	COMAC-V2.0
$^{238}\text{Pu}(n,\gamma)$	9,8%	COMAC-V2.0
$^{239}\text{Pu}(n,\gamma)$	2,2%	COMAC-V2.0
$^{240}\text{Pu}(n,\gamma)$	1,9%	COMAC-V2.0
$^{241}\text{Pu}(n,\gamma)$	2,3%	COMAC-V2.0
$^{242}\text{Pu}(n,\gamma)$	12%	COMAC-V2.0
$^{241}\text{Am}(n,\gamma)$	2,8%	COMAC-V2.0
$^{243}\text{Am}(n,\gamma)$	3,6%	COMAC-V2.0
$^{242}\text{Cm}(n,\gamma)$	15%	COMAC-V2.0
$^{244}\text{Cm}(n,\gamma)$	15%	COMAC-V2.0
$^{245}\text{Cm}(n,\gamma)$	15%	COMAC-V2.0
$^{246}\text{Cm}(n,\gamma)$	7,6%	COMAC-V2.0
$^{247}\text{Cm}(n,\gamma)$	13%	COMAC-V2.0
$^{99}\text{Tc}(n,\gamma)$	1,8%	COMAC-V2.0
$^{103}\text{Rh}(n,\gamma)$	4,0%	COMAC-V2.0
$y_c(^{106}\text{Ru}, ^{239}\text{Pu})$	2,2%	JEFF-3.1.1
$y_c(^{133}\text{Cs}, ^{235}\text{U})$	1,6%	JEFF-3.1.1
$y_c(^{133}\text{Cs}, ^{239}\text{Pu})$	1,8%	JEFF-3.1.1
$^{133}\text{Cs}(n,\gamma)$	5,2%	COMAC-V2.0
$y_c(^{137}\text{Cs}, ^{235}\text{U})$	1,5%	COMAC-V2.0
$y_c(^{137}\text{Cs}, ^{239}\text{Pu})$	1,4%	COMAC-V2.0
$y_c(^{144}\text{Ce}, ^{235}\text{U})$	1,0%	JEFF-3.1.1
$y_c(^{144}\text{Ce}, ^{239}\text{Pu})$	0,8%	JEFF-3.1.1
$^{153}\text{Eu}(n,\gamma)$	5,0%	COMAC-V2.0
$^{154}\text{Eu}(n,\gamma)$	12%	COMAC-V2.0

La liste des paramètres ajustés pour l'étude d'assimilation de la validation expérimentale de DARWIN2.3 est donnée dans le Tableau 3.2. La liste des paramètres marginalisés est donnée en Annexe A.

Il a été choisi de n'ajuster aucune section efficace de fission : pour les actinides majeurs, modifier les sections de fission a un impact sur la concentration de tous les produits de fission, et en particulier celle des isotopes du néodyme, ce qui correspondrait à une modification du burnup des échantillons étudiés. L'incertitude sur le burnup est marginalisée (traitement en dehors de la procédure d'ajustement), celui-ci doit donc rester constant et ne pas être modifié. Pour les actinides mineurs, il a été choisi de se focaliser sur leur section de capture car ces derniers sont formés par captures successives.

Pour les produits de fission, les rendements de l'²³⁵U et du ²³⁹Pu peuvent être ajustés, car les C/E des combustibles UOX apportent des informations sur l'²³⁵U (et le ²³⁹Pu à haut burnup) tandis que les C/E des combustibles MOX apportent une information préférentiellement sur le ²³⁹Pu (et le ²⁴¹Pu à haut burnup). Une exception a été faite cependant pour le ¹⁰⁶Ru, pour lequel le rendement de fission de l'²³⁵U est dix fois inférieur à celui du ²³⁹Pu. Le rendement cumulé de fission thermique de l'²³⁵U sur le ¹⁰⁶Ru a donc été marginalisé.

Notons qu'un certain nombre de C/E sur les produits de fission (par exemple le ¹⁰¹Ru, l'¹⁰⁹Ag, le ⁹⁵Mo, ...) sont très dispersés et ne peuvent être expliqués uniquement par les données nucléaires. Pour cette raison, il a été choisi de ne pas ajuster un certain nombre de données nucléaires en lien avec le calcul de ces nucléides.

3.2.3. CALCULS DE SENSIBILITES DES CONCENTRATIONS AUX DONNEES NUCLEAIRES

Deux méthodes de calcul de sensibilités ont été testées. La première méthode est celle utilisée par le code CYRUS, alors que la deuxième a été mise en place avec le code APOLLO2.

Les calculs de sensibilité effectués avec le code CYRUS se font par perturbation directe : CYRUS exécute un premier calcul d'évolution de référence avec DARWIN / PEPIN en utilisant le fichier archive SAPHYB contenant les données neutroniques utiles – flux multi-groupes et sections efficaces autoprotégées – calculées par APOLLO2. Un calcul « perturbé » est réalisé dans un deuxième temps, au cours duquel une perturbation sur les données nucléaires est propagée le long d'un calcul d'évolution mené à partir de la même SAPHYB, et donc à partir du même flux multi-groupe. Pour un ratio isotopique nominal N et un ratio isotopique perturbé \tilde{N} , le coefficient de sensibilité $S(N, x)$ lié à une perturbation Δx_i (généralement $\Delta x_i/x_i = 1\%$) de la donnée nucléaire x_i se déduit par :

$$S(N, x_i) = \frac{\tilde{N} - N}{N} \cdot \frac{x_i}{\Delta x_i} \quad (3.23)$$

Ainsi, l'impact de la perturbation des données nucléaires sur le flux n'est pas pris en compte. Autrement dit, l'effet du couplage entre les équations de Boltzmann et Bateman est négligé pour la perturbation. Cette hypothèse pourra être remise en cause pour les réactions de fission et capture des actinides majeurs.

Les calculs de sensibilité réalisés avec APOLLO2 pour cette thèse reposent également sur la technique de perturbation directe. Nous proposons d'effectuer deux calculs APOLLO2, un nominal et un perturbé. Ce dernier est réalisé en propageant une perturbation effectuée directement après la phase d'autoprotection à temps $t=0$. Le flux étant calculé après la perturbation, l'effet de la perturbation sur le flux est pris en compte. Le couplage Boltzmann / Bateman pour la perturbation est donc pris en compte avec cette méthode.

Dans cette section, nous nous intéressons à un calcul de sensibilité des concentrations isotopiques aux données nucléaires sur une cellule REP-UOX en évolution, de même type que celles étudiées au chapitre 2. On compare les sensibilités calculées avec CYRUS et avec APOLLO2. Notons que CYRUS s'appuie sur DARWIN2.3, et que ce dernier réalise des calculs d'évolution avec des chaînes de filiation complètes, contrairement à APOLLO2 qui utilise une chaîne de filiation optimisée (voir Chapitre 2). Ceci n'aura pas d'impact pour la comparaison des calculs de sensibilité, car cette dernière sera effectuée sur les actinides, pour lesquels les chaînes de filiation sont cohérentes entre-elles.

Tableau 3.3 - Comparaison des sensibilités calculées avec CYRUS / APOLLO2 pour une cellule UOX enrichie à 4,5% à 40 GWj/t

Paramètre	Sensibilité des paramètres pour le calcul de la concentration en					
	²³⁵ U	²³⁶ U	²³⁸ U	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴² Pu
²³⁵ U(n,f)	-0,23 / -0,30	-0,37 / -0,53	-	-	-	-
²³⁵ U(n,γ)	-0,90 / -0,28	0,87 / 0,90	-	-	-	-
²³⁶ U(n,γ)	-	-0,12 / -0,10	-	-	-	-
²³⁸ U(n,γ)	-	-	-0,03 / -0,02	0,98 / 1,32	0,99 / 0,86	-0,22 / -0,22
²³⁹ Pu(n,f)	-	-	-	-0,55 / -0,52	-0,49 / -0,75	-0,34 / -0,59
²³⁹ Pu(n,γ)	-	-	-	-0,32 / -0,21	0,71 / 1,02	0,79 / 0,69
²⁴⁰ Pu(n,γ)	-	-	-	-	-0,70 / -0,58	0,44 / 0,32
²⁴¹ Pu(n,f)	-	-	-	-	-	-0,39 / -0,46
²⁴¹ Pu(n,γ)	-	-	-	-	-	0,84 / 0,87
²⁴² Pu(n,γ)	-	-	-	-	-	-0,23 / -0,22

Les écarts entre les sensibilités de la concentration des actinides majeurs, calculées avec CYRUS et APOLLO2, sont donnés sur le Tableau 3.3 pour une cellule REP-UOX enrichie à 4,5% à 40 GWj/t. Nous avons choisi d'illustrer les écarts sur les concentrations en ^{235}U , ^{236}U , ^{238}U , ^{239}Pu , ^{240}Pu et ^{242}Pu , car ces derniers ont un impact particulièrement important sur le flux. C'est donc notamment sur le calcul des sensibilités à leurs données nucléaires que l'on observera les plus gros écarts, notés en orange sur le Tableau 3.3.

L'effet de la prise en compte du couplage Boltzmann / Bateman peut être illustré sur le cas de la sensibilité de la concentration en ^{239}Pu à la section efficace $\sigma_{\gamma}^{238\text{U}}$ de la réaction $^{238}\text{U}(n,\gamma)$: avec CYRUS, sans prise en compte du couplage, la sensibilité est proche de 1. Avec APOLLO2, la sensibilité est plus importante, autour de 1,3. Ceci s'explique par le fait que l'augmentation de 1% de $\sigma_{\gamma}^{238\text{U}}$ diminue la proportion de neutrons thermiques, et donc le taux de production des isotopes du néodyme par fission des actinides. Ainsi, à taux de fission plus faible et à même burnup final, la durée de l'irradiation est plus longue et se traduit par une augmentation de la production en ^{239}Pu finale supérieure au taux de perturbation de 1%.

Ainsi, vu l'impact significatif que peut avoir l'effet du couplage Boltzmann / Bateman pour le calcul des sensibilités, il a donc été choisi d'effectuer ces calculs avec APOLLO2 plutôt qu'avec CYRUS.

A titre d'illustration, nous donnons les valeurs des coefficients de sensibilité des données nucléaires impliquées dans le calcul de la concentration du ^{244}Cm pour un combustible UOX enrichi à 4,5% et à 40 GWj/t et un combustible MOX à teneur Pu 6,7% à 40 GWj/t dans le Tableau 3.4. Par souci de lisibilité, seuls les paramètres pour lesquels la sensibilité est supérieure à 0,1 sont retenus dans ce tableau.

Tableau 3.4 - Coefficients de sensibilité de la concentration en ^{244}Cm aux données nucléaires impliquées dans sa formation pour un combustible UOX et un combustible MOX

Donnée nucléaire	Coefficient de sensibilité aux données nucléaires	
	UOX 4,5% à 40 GWj/t	MOX teneur Pu 6,7% à 40 GWj/t
$^{238}\text{U}(n,\gamma)$	-0,12	-0,30
$^{239}\text{Pu}(n,f)$	-0,78	-0,53
$^{239}\text{Pu}(n,\gamma)$	0,85	0,27
$^{240}\text{Pu}(n,\gamma)$	0,42	-0,01
$^{241}\text{Pu}(n,f)$	-0,37	-0,29
$^{241}\text{Pu}(n,\gamma)$	0,88	0,30
$^{242}\text{Pu}(n,\gamma)$	0,83	0,53
$^{243}\text{Am}(n,\gamma)$	0,79	0,58
$^{244}\text{Cm}(n,\gamma)$	-0,07	-0,17

3.2.4. TRAITEMENT DES INCERTITUDES LORS DE L'ASSIMILATION

Dans cette section, nous nous intéressons au traitement des sources d'incertitudes dans l'ajustement avec CONRAD. Nous avons vu au chapitre 2 qu'il était possible de corréliser les C/E de la validation expérimentale du formulaire DARWIN2.3 avec la méthode issue du code AGS. Nous proposons ici de tester l'impact de plusieurs types de matrices de corrélation entre les C/E et de proposer une recommandation quant au choix de matrice à utiliser pour les ajustements. Nous illustrerons cette étude en traitant le cas de la section de capture du ^{244}Cm .

Nous avons testé trois types de matrices de corrélation entre les C/E pour les études d'assimilation des données intégrales de la validation expérimentale de DARWIN2.3 :

- i) une matrice identité, c'est-à-dire aucune corrélation entre les différents C/E,
- ii) une matrice utilisant le formalisme AGS en considérant deux sources d'incertitudes systématiques, à savoir l'incertitude sur la température du combustible et l'incertitude sur la température du modérateur,
- iii) une matrice utilisant le formalisme AGS en considérant les deux sources d'incertitudes systématiques précédentes ainsi que les deux sources d'incertitudes « de modélisation » traitées au chapitre 2.

Les matrices de corrélation ii) et iii) sont données sur les figures 2.11-a) et 2.11-b). Les résultats obtenus sur la capture du ^{244}Cm sont donnés sur le Tableau 3.5. Nous observons un impact de la matrice de corrélation entre les C/E sur la valeur moyenne *a posteriori* : en effet, la prise en compte de corrélations va contraindre l'ajustement. Plus les contraintes seront importantes, plus l'effet sur la valeur *a posteriori* sera potentiellement élevé. Or nous pouvons voir sur les figures 2.11-a) et 2.11-b) que des anti-corrélations sont créées dans la matrice iii) par rapport à la matrice ii), ce qui va induire un niveau de contraintes plus important pour l'ajustement. Nous observons donc logiquement un léger effet sur la valeur moyenne *a posteriori* de manière générale. Cette valeur moyenne évolue de +1,0% à +0,2% pour la capture du ^{244}Cm .

Les résultats des études d'assimilation de la validation expérimentale de DARWIN2.3 que l'on présente en section 3.3 sont ceux obtenus avec la matrice iii), c'est-à-dire celle utilisant le formalisme du code AGS avec les incertitudes « de modélisation ». En effet, l'assimilation portant sur les écarts C/E, il nous est paru logique d'inclure les sources d'incertitudes de modélisation (portant sur le calcul, donc la partie « C » des C/E) dans le calcul de la matrice AGS.

Ainsi, lors de l'analyse de l'impact des tendances CONRAD sur les C/E associés au calcul du bilan matière, l'incertitude associée aux écarts C/E *a priori* comprendra uniquement les sources d'incertitudes prises en compte dans la matrice AGS avec incertitudes « de modélisation ». Autrement dit, en reprenant les notations de la section 2.3 :

$$\Delta_{i,tot}^{prior} = \sqrt{\Delta_{exp,i}^2 + \Delta_{TC,i}^2 + \Delta_{TM,i}^2 + \Delta_{AP2-T4,i}^2 + \Delta_{UPS,i}^2} \quad (3.24)$$

avec $\Delta_{i,tot}^{prior}$ l'incertitude totale sur l'écart C/E de l'expérience i .

Tableau 3.5 - Résultats d'assimilation pour $^{244}\text{Cm}(n,\gamma)$ exprimés en % par rapport à la section JEFF-3.1.1 – incertitudes données à 1 σ

Incertitude $^{244}\text{Cm}(n,\gamma)$ <i>a priori</i>	15%		
Type de matrice de corrélation entre C/E utilisée	i) Aucune corrélation	ii) AGS sans incertitudes « de modélisation »	iii) AGS avec incertitudes « de modélisation »
Valeur $^{244}\text{Cm}(n,\gamma)$ <i>a posteriori</i>	+(1,2±0,05)%	+(1,0±0,06)%	+(0,2±0,06)%
Valeur $^{244}\text{Cm}(n,\gamma)$ <i>a posteriori</i> + marginalisation	+(1,2±1,8)%	+(1,0±1,8)%	+(0,2±1,0)%

Nous pouvons par ailleurs voir sur le Tableau 3.5 que quelle que soit la matrice de corrélation utilisée, l'incertitude sur la section efficace de la réaction $^{244}\text{Cm}(n,\gamma)$ est grandement diminuée après ajustement et vaut environ 0,06%, à comparer à l'incertitude *a priori* de 15%. La réduction d'incertitude observée lors de l'ajustement est à relier à l'apport d'information expérimentale d'une part, et à la création de corrélations au cours de l'ajustement avec CONRAD d'autre part. Nous n'avons pas observé de variation significative des coefficients de corrélation ainsi créés en fonction de la matrice de corrélation entre les C/E utilisée. On présente sur le Tableau 3.6 les coefficients de corrélation entre les paramètres ajustés de la chaîne de formation du ^{244}Cm , obtenus avec la matrice AGS avec incertitudes « de modélisation ». Ils sont extraits de la matrice M_x^{post} entre les paramètres ajustés (introduite dans la section 3.1.1.2). Les corrélations négatives qui sont créées lors de l'ajustement vont réduire l'incertitude sur les paramètres ajustés, comme c'est le cas pour la section efficace de la réaction $^{244}\text{Cm}(n,\gamma)$.

Tableau 3.6 - Coefficients de corrélation *a posteriori* entre les paramètres ajustés \bar{x} de la chaîne de formation du ^{244}Cm

Paramètre ajusté	$^{239}\text{Pu}(n,\gamma)$	$^{240}\text{Pu}(n,\gamma)$	$^{241}\text{Pu}(n,\gamma)$	$^{242}\text{Pu}(n,\gamma)$	$^{243}\text{Am}(n,\gamma)$	$^{244}\text{Cm}(n,\gamma)$
$^{239}\text{Pu}(n,\gamma)$	1					
$^{240}\text{Pu}(n,\gamma)$	0,39	1				
$^{241}\text{Pu}(n,\gamma)$	-0,40	-0,33	1			
$^{242}\text{Pu}(n,\gamma)$	-0,03	0,07	0,02	1		
$^{243}\text{Am}(n,\gamma)$	-0,03	-0,01	-0,18	-0,42	1	
$^{244}\text{Cm}(n,\gamma)$	0,02	0,02	-0,14	-0,14	-0,23	1

Tableau 3.7 - Coefficients de corrélation *a posteriori* après marginalisation entre les paramètres ajustés \vec{x} de la chaîne de formation du ^{244}Cm

Paramètre ajusté	$^{239}\text{Pu}(n,\gamma)$	$^{240}\text{Pu}(n,\gamma)$	$^{241}\text{Pu}(n,\gamma)$	$^{242}\text{Pu}(n,\gamma)$	$^{243}\text{Am}(n,\gamma)$	$^{244}\text{Cm}(n,\gamma)$
$^{239}\text{Pu}(n,\gamma)$	1					
$^{240}\text{Pu}(n,\gamma)$	0,76	1				
$^{241}\text{Pu}(n,\gamma)$	0,41	0,11	1			
$^{242}\text{Pu}(n,\gamma)$	0,65	0,39	0,93	1		
$^{243}\text{Am}(n,\gamma)$	0,68	0,44	0,92	0,99	1	
$^{244}\text{Cm}(n,\gamma)$	0,60	0,26	0,95	0,98	0,97	1

Cependant, comme expliqué dans la section 3.1, l'incertitude *a posteriori* produite par l'ajustement est sous-estimée : une incertitude de 0,06% comme suggérée dans le Tableau 3.5 n'est en effet pas réaliste. La marginalisation permet de produire des incertitudes qui sont plus réalistes, notamment par la prise en compte de l'incertitude sur le burnup. A l'issue de l'étape de marginalisation, une autre matrice de corrélation entre les paramètres ajustés sera produite. Il s'agit de la matrice $M_{x,marg}^{post}$, construite à partir de M_x^{post} (voir équation 3.11). Les corrélations obtenues avec la matrice AGS avec incertitudes « de modélisation » après marginalisation sont présentées sur le Tableau 3.7 à titre de comparaison. Nous observons que les paramètres ajustés sont fortement corrélés positivement. Ces coefficients de corrélation sont plus réalistes et plus physiques que ceux obtenus sans marginalisation, car les paramètres ajustés sont très liés entre eux dans les expériences utilisées.

Notons enfin que les résultats obtenus après marginalisation avec les différentes matrices i), ii), iii), sont cohérents entre eux à 1σ .

3.3. RESULTATS DE L'ASSIMILATION DE LA VALIDATION EXPERIMENTALE DE DARWIN2.3

Dans cette section, nous présentons les résultats obtenus par application de la démarche présentée dans la section 3.2. Une critique de ces résultats et une comparaison de ces derniers avec la littérature sera effectuée. Nous illustrerons dans quelle mesure ces tendances permettent d'améliorer le calcul du bilan matière en reprenant les exemples du calcul de la concentration du ^{244}Cm et de ^{154}Eu .

Nous verrons également comment les travaux de thèse permettent d'effectuer des recommandations d'évaluation pour les prochaines versions de JEFF. Enfin, nous testerons l'impact des recommandations effectuées sur le calcul du bilan matière sur deux calculs cellule en évolution, avec deux combustibles, respectivement un combustible UOX et MOX – représentatifs des combustibles utilisés dans le parc actuel des REP français. Ceci permettra de dresser un bilan des études menées dans ce chapitre 3 et pourra également être utilisé comme point de départ pour de futures études.

3.3.1. SYNTHÈSE DES TENDANCES OBTENUES ET ANALYSE CRITIQUE

Une liste commentée des résultats obtenus par assimilation des données intégrales est reportée sur le Tableau 3.8. Les valeurs *a posteriori* avant et après marginalisation sont données : ceci permet de s'assurer de l'incertitude *a posteriori* avant marginalisation est réduite par rapport à l'incertitude *a priori*, grâce à l'apport d'information intégrale. Les valeurs d'incertitude *a posteriori* avant et après marginalisation correspondent à la racine carrée des éléments diagonaux des matrices M_x^{post} et $M_{x,marg}^{post}$, respectivement (voir Section 3.1). Pour chaque donnée nucléaire ajustée, une revue de la littérature est effectuée pour comparer les résultats obtenus dans cette thèse avec ceux issus de mesures intégrales ou microscopiques. Pour les mesures intégrales, il s'agira notamment des mesures issues :

- Du programme OSMOSE (Hudelot, 2006) (Leconte, 2013-1) : mesures d'oscillations d'isotopes séparés et d'activation dans le réacteur MINERVE pour la validation des données nucléaires des actinides sur les massifs R1-UO₂ (spectre typique des REP-UOX) et R1-MOX (spectre typique des REP-MOX),
- Du programme Crédit-Burnup (Gruel, 2011) : mesures d'oscillations dans MINERVE pour la validation des données nucléaires de nucléides impliqués dans les études de crédit burnup. Notons que les mêmes échantillons ont été oscillés également dans le réacteur anglais DIMPLE (Dean, 2007),
- Du programme MAESTRO (Leconte P. , 2016) (Leconte P. , 2017) : validation des données nucléaires des matériaux de structures dans le réacteur MINERVE,
- Des programmes SHERWOOD et ICARE (Bernard D. , 2015) : validation de JEFF-3.1.1 avec des expériences effectuées dans le réacteur MELUSINE,
- Du programme PROFIL (Lebrat, 2011) : validation de JEFF-3.1.1 pour les réacteurs à neutrons rapides à caloporteur sodium.

Nous comparerons également nos résultats à une étude récente d'assimilation des données intégrales pour la ré-estimation des données nucléaires (Santamarina & Bernard, 2017) : celle-ci a été menée à partir de C/E issus d'une part de l'interprétation avec TRIPOLI-4® de mesures de K_{eff} sur des maquettes critiques de type REL, et d'autre part à partir d'interprétation avec APOLLO2 de certaines PIE communes à la base de validation expérimentale de DARWIN2.3. Il est donc attendu que les tendances obtenues dans ces travaux soient cohérentes avec celles obtenues dans cette thèse.

De nombreux résultats du Tableau 3.8 sont en accord avec des besoins d'amélioration des données nucléaires identifiés dans la littérature.

Il est important de remarquer que certaines tendances obtenues pour les rendements de fission sont très différentes de la valeur de JEFF-3.1.1, et incompatibles avec l'incertitude fournie dans JEFF-3.1.1. Bien que certaines de ces tendances soient en accord avec la littérature, l'incompatibilité de l'incertitude *a priori* avec la valeur *a posteriori* questionne

sur la nature des expériences utilisées pour produire les évaluations. L'exemple du rendement cumulé de fission thermique de l' ^{235}U sur le ^{137}Cs illustre bien cette incompatibilité et a fait l'objet d'une étude dédiée (Rizzo, 2018-1). Alors que les résultats de celle-ci et ceux du Tableau 3.8 suggèrent une augmentation du rendement cumulé de fission thermique de l' ^{235}U sur le ^{137}Cs , la dernière évaluation JEFF-3.3 recommande de le diminuer.

Il serait donc intéressant d'avoir accès à la base de données utilisée pour produire les évaluations des rendements de fission dans JEFF pour pouvoir pleinement statuer sur les rendements de fission étudiés dans cette thèse. Aujourd'hui, ces informations ne sont pas encore disponibles pour la communauté scientifique mais devraient l'être prochainement grâce à l'OCDE/AEN.

Tableau 3.8 - Synthèse des résultats obtenus par assimilation des données intégrales – Incertitudes à 1 σ

Donnée nucléaire	Incertitude <i>a priori</i>	Valeur centrale et incertitude obtenue		Commentaire
		<i>a posteriori</i>	<i>a posteriori</i> + marginalisation	
$^{235}\text{U}(n, \gamma)$	1,4%	+(1,2 \pm 0,02)%	+(1,2 \pm 2,4)%	Accord avec (Santamarina & Bernard, 2017) qui suggère +(2 \pm 3)%. Tendence compatible avec la nouvelle évaluation JEFF-3.3 (+0,9% sur la section thermique $\sigma_{o,\gamma}$ et sur l'intégrale de résonance $I_{o,\gamma}$).
$^{236}\text{U}(n, \gamma)$	3,8%	+(2,2 \pm 0,1)%	+(2,2 \pm 1,9)%	Accord avec (Santamarina & Bernard, 2017) qui suggère +(3,8 \pm 3,5)%. Désaccord avec le programme OSMOSE (Leconte, 2013-1) qui donne un C/E de -(12,8 \pm 3,0)%.
$^{238}\text{U}(n, 2n)$	8,5%	+(4,8 \pm 0,3)%	+(4,8 \pm 2,0)%	Accord avec (Santamarina & Bernard, 2017) qui suggère +(3,2 \pm 2,6)%. Accord avec le C/E OSMOSE - (6,9 \pm 3,5)% et avec les résultats des programmes PROFIL (Lebrat, 2011) de -(7,3 \pm 2,8)%.
$^{237}\text{Np}(n, 2n)$	20%	+(41 \pm 1)%	+(41 \pm 20)%	Réaction à seuil mal connue, besoin de mesures du seuil et du plateau.
$^{238}\text{Pu}(n, \gamma)$	9,8%	-(7,5 \pm 0,2)%	-(7,5 \pm 7,0)%	Désaccord mesures OSMOSE.
$^{239}\text{Pu}(n, \gamma)$	2,2%	+(0,5 \pm 0,02)%	+(0,5 \pm 2,2)%	Pas de tendance nette. Accord à 1 σ avec travaux d'assimilation de (Santamarina & Bernard, 2017) qui obtiennent +(1,8 \pm 1,2)%. Attente des mesures du programme DANCE pour réévaluation.
$^{240}\text{Pu}(n, \gamma)$	1,9%	+(4,2 \pm 0,03)%	+(4,2 \pm 2,8)%	Légère tendance à l'augmentation. Accord avec (Leconte P. , 2014) et (Santamarina & Bernard, 2017) qui proposent respectivement une correction de +2%/+4% environ et +(2,6 \pm 1,7)%. Désaccord avec mesures OSMOSE qui suggèrent une surestimation de $^{240}\text{Pu}(n, \gamma)$ à hauteur de +(5,8 \pm 5,7)% et +(4,4 \pm 4,1)% pour R1-UO2 et R1-MOX.
$^{241}\text{Pu}(n, \gamma)$	2,3%	+(1,2 \pm 0,03)%	+(1,2 \pm 4,2)%	Pas de tendance. Accord avec (Santamarina & Bernard, 2017). Accord global des différentes évaluations internationales JEFF-3.1.1, JEFF-3.3, ENDF/B-VII.1, B-VIII.0, JENDL-4.0.
$^{242}\text{Pu}(n, \gamma)$	12%	+(3,8 \pm 0,04)%	+(3,8 \pm 2,8)%	Accord avec (Bernard D. , 2015) et (Santamarina & Bernard, 2017). Accord avec les mesures par temps de vol du CERN qui suggèrent environ +4% par rapport à JEFF-3.1.1. Désaccord avec OSMOSE qui suggère une surestimation de +7% à +20% de la réaction $^{242}\text{Pu}(n, \gamma)$.
$^{241}\text{Am}(n, \gamma)$	2,8%	+(10,7 \pm 0,1)%	+(10,7 \pm 4,7)%	Accord avec (Bernard D. , 2015) et OSMOSE aux incertitudes près. Accord avec la nouvelle évaluation JEFF-3.2 (+15,5% sur $\sigma_{o,\gamma}$ et +19,7% sur $I_{o,\gamma}$).
$^{243}\text{Am}(n, \gamma)$	3,7%	+(9,4 \pm 0,05)%	+(9,4 \pm 2,2)%	Accord avec les mesures par temps de vol du CERN (Mendoza, 2014) qui suggèrent une augmentation de +13%. Dans le sens des travaux (Santamarina & Bernard, 2017), qui suggèrent une augmentation de +(4,3 \pm 2,8)%. Désaccord avec OSMOSE.
$^{242}\text{Cm}(n, \gamma)$	15%	+(18,2 \pm 0,07)%	+(18,2 \pm 4,8)%	Pas de mesure intégrale. Accord avec l'évaluation JENDL-4.0 reprise pour JEFF-3.3 (+20% sur $\sigma_{o,\gamma}$ et +23% sur $I_{o,\gamma}$).
$^{244}\text{Cm}(n, \gamma)$	15%	+(0,2 \pm 0,06)%	+(0,2 \pm 1,0)%	Accord avec les travaux (Santamarina & Bernard, 2017). Pas de validation intégrale de cette section dans la littérature.

Chapitre 3 : Assimilation des données intégrales

$^{245}\text{Cm}(n, \gamma)$	15%	$+(11,4 \pm 0,07)\%$	$+(11,4 \pm 2,8)\%$	Pas de mesure intégrale. Accord avec (Santamarina & Bernard, 2017) qui suggère $+(8,1 \pm 3,2)\%$.
$^{246}\text{Cm}(n, \gamma)$	7,6%	$+(3,2 \pm 0,5)\%$	$+(3,2 \pm 4,0)\%$	Pas de mesure intégrale.
$^{247}\text{Cm}(n, \gamma)$	13%	$+(9,8 \pm 5,1)\%$	$+(9,8 \pm 7,3)\%$	Réaction mal connue et difficilement mesurable. Pas de mesure intégrale.
$^{99}\text{Tc}(n, \gamma)$	1,8%	$+(2,2 \pm 0,8)\%$	$+(2,2 \pm 7,8)\%$	Résultats dans le sens des oscillations MINERVE (Gruel, 2011) et DIMPLE (Dean, 2007), malgré des incertitudes élevées sur les résultats d'assimilation avec CONRAD.
$^{103}\text{Rh}(n, \gamma)$	4,0%	$+(7,4 \pm 1,0)\%$	$+(7,4 \pm 4,7)\%$	Accord avec la nouvelle évaluation de l'IRSN (Leal, 2017). Désaccord avec (Gruel, 2011) et (Dean, 2007). Désaccord avec les mesures du programme MAESTRO (Leconte P. , 2016) (Leconte P. , 2017).
$y_c(^{106}\text{Ru}, ^{239}\text{Pu})$	2,2%	$+(9,2 \pm 0,5)\%$	$+(9,2 \pm 5,7)\%$	Accord avec mesures à l'ILL : $+5,1\%$ (Schmitt, 1984). Dans le sens des évaluations ENDF/B-VII.1, ENDF/B-VIII.0, JENDL-4.0 : $+(3,9 \pm 2,0)\%$, ainsi que JEFF-3.3 : $+(3,6 \pm 2,3)\%$.
$y_c(^{133}\text{Cs}, ^{235}\text{U})$	1,6%	$+(6,2 \pm 0,09)\%$	$+(6,2 \pm 2,0)\%$	Accord avec mesures à l'ILL : $+4,5\%$ (Bail, 2009). Désaccord avec les évaluations internationales.
$y_c(^{133}\text{Cs}, ^{239}\text{Pu})$	1,8%	$-(1,4 \pm 0,08)\%$	$-(1,4 \pm 3,1)\%$	Pas de tendance nette. Les travaux (Bail, 2009) et (Gupta, 2017) suggèrent des valeurs à $+3,1\%$ et $+2,5\%$ cohérentes avec la tendance aux incertitudes près.
$^{133}\text{Cs}(n, \gamma)$	5,2%	$+(1,9 \pm 0,06)\%$	$+(1,9 \pm 2,0)\%$	Pas de tendance nette, sinon légère augmentation. Résultats compatibles avec les travaux (Leconte P. , 2017), (Gruel, 2011).
$y_c(^{137}\text{Cs}, ^{235}\text{U})$	1,5%	$+(7,5 \pm 0,1)\%$	$+(7,5 \pm 1,9)\%$	Accord avec (Bail, 2009), désaccord avec JEFF3.3 et autres évaluations internationales.
$y_c(^{137}\text{Cs}, ^{239}\text{Pu})$	1,4%	$+(1,0 \pm 0,09)\%$	$+(1,0 \pm 3,1)\%$	Pas de tendance nette. Désaccord avec l'augmentation de $+4,9\%$ suggérée par (Bail, 2009) et de $+7,5\%$ par (Gupta, 2017). Accord avec les autres évaluations internationales.
$y_c(^{144}\text{Ce}, ^{235}\text{U})$	1,0%	$-(4,6 \pm 0,9)\%$	$-(4,6 \pm 3,3)\%$	Accord avec diminution de $-3,9\%$ dans (Bail, 2009), désaccord avec les évaluations internationales.
$y_c(^{144}\text{Ce}, ^{239}\text{Pu})$	0,8%	$-(8,0 \pm 0,5)\%$	$-(8,0 \pm 1,3)\%$	Désaccord avec augmentation de $+7,6\%$ dans (Bail, 2009), mais accord avec la diminution de $-5,6\%$ dans (Gupta, 2017).
$^{153}\text{Eu}(n, \gamma)$	5,0%	$+(5,1 \pm 0,08)\%$	$+(5,1 \pm 2,4)\%$	Accord avec (Dean, 2007), (Gruel, 2011), le programme ICARE/S de (Bernard D. , 2015), (Leconte P. , 2016), et (Leconte P. , 2017). Accord avec les mesures par temps de vol du RPI (Leinweber, 2014).
$^{154}\text{Eu}(n, \gamma)$	12%	$+(8,4 \pm 0,09)\%$	$+(8,4 \pm 3,7)\%$	Accord avec (Skutnik, 2017).

3.3.2. FOCUS SUR LES TENDANCES CONCERNANT L'AMELIORATION DU CALCUL DU ^{244}Cm ET DE L' ^{154}Eu

Dans cette partie, nous proposons d'illustrer les résultats obtenus sur les données nucléaires impliquées dans le calcul de la concentration du ^{244}Cm et de l' ^{154}Eu dans les sections 3.3.2.1 et 3.3.2.2 respectivement. Pour rappel, les voies de formation de ces nucléides ont été données dans la section 3.2.2. Dans chaque section, nous proposons dans un premier temps de discuter des tendances obtenues sur les données nucléaires après assimilation des données intégrales. L'impact des tendances obtenues sur le calcul de ces nucléides – en particulier l'évolution des écarts C/E avec ces tendances – est évoqué dans un deuxième temps en fin de chaque section.

Des éléments concernant l'amélioration du calcul des nucléides autres que le ^{244}Cm et l' ^{154}Eu sont donnés dans l'Annexe B. Nous y illustrons l'impact des tendances obtenues par assimilation des données intégrales sur les C/E de certains actinides (U, Pu, Np, Am, Cm) et de certains produits de fission (Rh, Ru, Cs, Ce, Eu, Gd).

3.3.2.1. ÉTUDE DU ^{244}Cm

Nous rappelons dans le Tableau 3.9 les résultats obtenus pour les données nucléaires impliquées dans le calcul de la concentration en ^{244}Cm . Une discussion spécifique sur ces résultats est menée dans les paragraphes suivants. Nous montrerons également en quoi les tendances obtenues avec CONRAD permettent d'améliorer le calcul de la concentration du ^{244}Cm .

Tableau 3.9 - Résultats d'assimilation des données intégrales obtenus pour les données nucléaires impliquées dans le calcul du ^{244}Cm

Section efficace ajustée	Incertitude <i>a priori</i>	Résultats <i>a posteriori</i> avec marginalisation
$^{239}\text{Pu}(n, \gamma)$	2,2%	+(0,5±2,2)%
$^{240}\text{Pu}(n, \gamma)$	1,9%	+(4,2±2,8)%
$^{241}\text{Pu}(n, \gamma)$	2,3%	+(1,2±4,2)%
$^{242}\text{Pu}(n, \gamma)$	12%	+(3,8±2,8)%
$^{243}\text{Am}(n, \gamma)$	3,7%	+(9,4±2,2)%
$^{244}\text{Cm}(n, \gamma)$	15%	+(0,2±1,0)%

Discussion autour de la réaction $^{239}\text{Pu}(n, \gamma)$

Les résultats donnés sur le Tableau 3.9 ne mettent pas en évidence un besoin de modifier la section efficace de la réaction $^{239}\text{Pu}(n, \gamma)$ de JEFF-3.1.1. Bien qu'une très légère augmentation soit produite par CONRAD lors de l'ajustement, l'incertitude produite par marginalisation indique que la tendance obtenue par l'ajustement n'est pas significative.

Dans la littérature, on trouve essentiellement deux programmes expérimentaux qui apportent des informations sur la section efficace intégrale de la réaction $^{239}\text{Pu}(n,\gamma)$.

D'une part, le programme expérimental OSMOSE (Hudelot, 2006) (Leconte, 2013-1), réalisé sur le réacteur MINERVE à Cadarache, propose deux mesures du facteur K_I du ^{239}Pu dont on rappelle l'expression ici :

$$K_1 = \bar{\nu}\sigma_F - \sigma_A, \quad (3.25)$$

où $\bar{\nu}$ est le nombre moyen de neutrons émis par fission, σ_F est la section efficace de fission, et σ_A est la section efficace d'absorption, *i.e.* la somme de la section de fission et de capture. Les mesures du facteur K_I du ^{239}Pu ont été réalisées sur les massifs expérimentaux R1-UO₂ et R1-MOX. Les résultats indiquent pour ces deux massifs une sous-estimation du facteur K_I respectivement de $-(4,4\pm 2,7)\%$ et $-(4,4\pm 2,9)\%$. Cette sous-estimation pourrait indiquer une surestimation de la capture du ^{239}Pu .

D'autre part, l'analyse du programme expérimental MISTRAL (Erradi & Santamarina, 2010) mené dans le réacteur ÉOLE à Cadarache montre une surestimation systématique de la réactivité dans les réseaux MOX (MISTRAL-2 et MISTRAL-3). Des études récentes (Scotta, 2016) montrent que, en dépit d'une amélioration des modèles des lois de diffusion élastique de l'eau, la réactivité reste surestimée. Cette surestimation pourrait indiquer une sous-estimation de la capture du ^{239}Pu , allant à l'encontre des résultats du programme OSMOSE. Il est donc difficile de conclure ici. À ces travaux, on peut ajouter l'étude (Santamarina & Bernard, 2017) portant sur une assimilation de données intégrales provenant de benchmarks de criticité et de PIE. Les résultats de cette étude suggèrent une tendance sur la capture du ^{239}Pu dans le domaine thermique, d'environ $+(1,8\pm 1,2)\%$, compatible avec nos résultats.

Tableau 3.10 - Valeurs des paramètres intégraux et valeur à 1 groupe à 900K de la section de capture du ^{239}Pu dans différentes évaluations internationales

Paramètres	Evaluation	Valeur [b]	Variation relative par rapport à JEFF-3.1.1 [%]
σ_0	JEFF-3.1.1	273	-
	JEFF-3.2	270	-1,1
	JEFF-3.3	271	-0,7
	ENDF/B-VII.1	271	-0,7
	ENDF/B-VIII.0	270	-1,1
	JENDL-4.0	276	+1,1
I_0	JEFF-3.1.1	182	-
	JEFF-3.2	180	-1,1
	JEFF-3.3	195	+7,1
	ENDF/B-VII.1	181	-0,3
	ENDF/B-VIII.0	180	-1,1
	JENDL-4.0	180	-0,6
Section à 1 groupe à 900K pondérée par un spectre REP	JEFF-3.1.1	103	-
	JEFF-3.2	103	+0,1
	JEFF-3.3	105	+1,6
	ENDF/B-VII.1	103	-0,3
	ENDF/B-VIII.0	103	-0,3
	JENDL-4.0	102	-0,6

Ainsi, les données expérimentales actuelles ne permettent pas de remettre directement en cause la section efficace de capture du ^{239}Pu . Les mesures en cours sur l'installation DANCE (Jandel, 2014) fourniront des données sur la capture du ^{239}Pu qui permettront de statuer sur cette section efficace. Le Tableau 3.10 présente les paramètres intégraux de la section de capture du ^{239}Pu pour différentes évaluations internationales, ainsi qu'une valeur à 1 groupe de la section efficace pondérée par un spectre représentatif des REP à 900K avec NJOY. L'incertitude après marginalisation recoupe les écarts entre les bibliothèques.

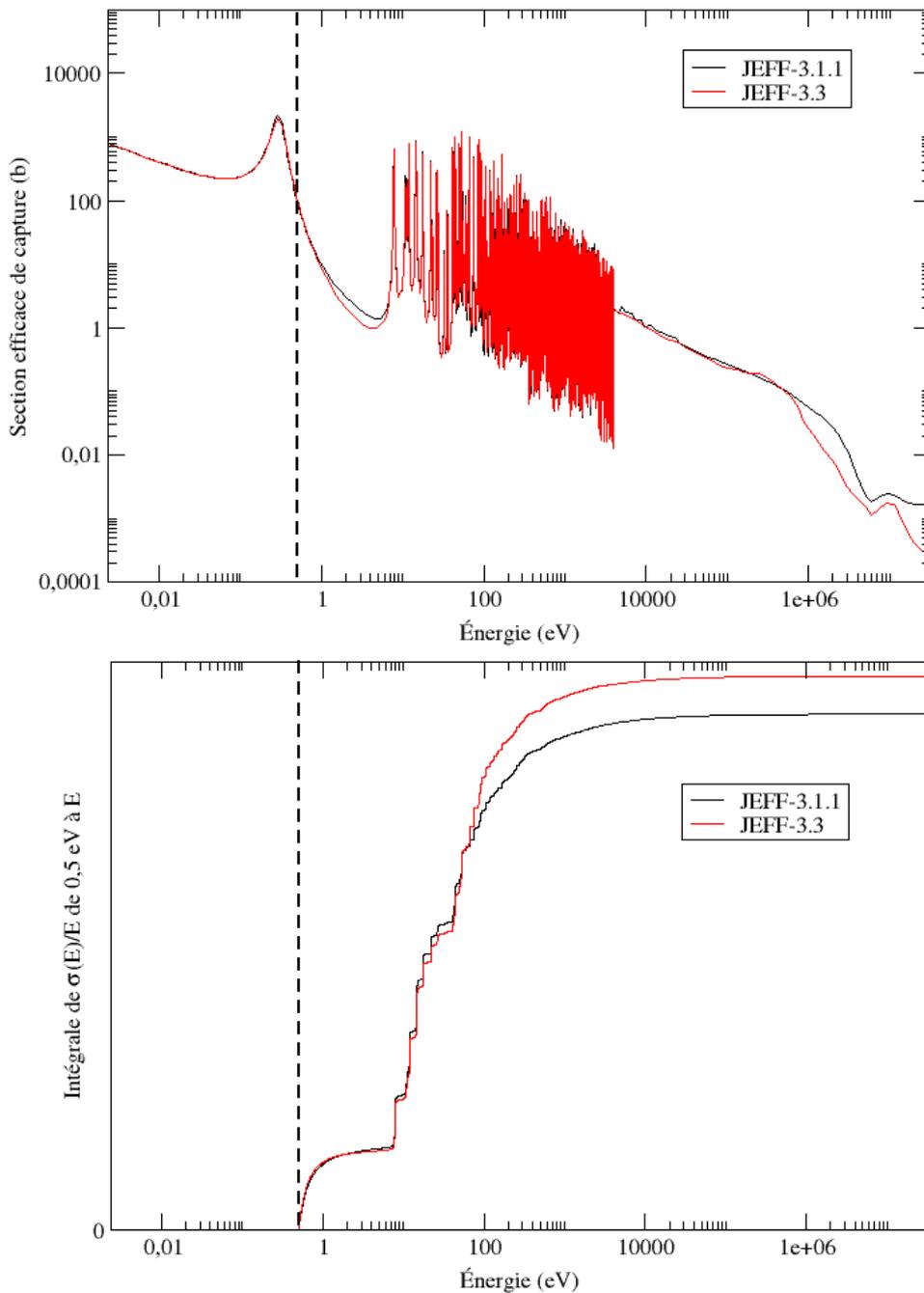


Figure 3.2 - Valeur de l'intégrale $\int_{0,5}^E \frac{\sigma(E')}{E'} dE'$ en fonction de E pour la section de capture du ^{239}Pu

La Figure 3.2 présente l'évolution de la section efficace de capture du ^{239}Pu dans JEFF-3.1.1 et JEFF-3.3. L'augmentation de l'intégrale de résonance est essentiellement liée à l'augmentation de la section de capture dans JEFF-3.3 au-delà de 100 eV : ceci est particulièrement visible lorsqu'on trace la courbe représentative de la fonction $f(E) = \int_{0,5}^E \frac{\sigma(E')}{E'} dE'$ comme proposé sur la Figure 3.2. Cette fonction, qui tend vers l'intégrale de résonance de la section lorsque E tend vers l'infini, illustre la contribution de chaque domaine énergétique à l'intégrale de résonance. Cette augmentation de la section efficace va dans le sens des travaux de thèse de Huy (Huy, 2018).

Discussion autour de la réaction $^{240}\text{Pu}(n,\gamma)$

Les résultats du Tableau 3.9 suggèrent une augmentation de la section efficace de capture du ^{240}Pu de JEFF-3.1.1. Notons que la tendance de +4,2% après ajustement paraît élevée car elle aurait un impact drastique sur le calcul de criticité dans les combustibles MOX notamment. Comme illustré sur la Figure 3.3, la section efficace de capture du ^{240}Pu présente une très haute résonance isolée à 1,06 eV, qui va masquer la résonance de fission du ^{239}Pu . La résonance du ^{240}Pu va concentrer l'essentiel du taux de réaction dans les REP, à cause de sa proximité avec le domaine thermique, de son caractère isolé, et de son intensité. La tendance de +4,2% obtenue avec CONRAD peut donc être imputée à la première résonance de la section.

Les résultats du programme OSMOSE sont en désaccord avec cette étude : en effet, les mesures d'oscillations dans les massifs R1-UO₂ et R1-MOX suggèrent une surestimation de la réaction $^{240}\text{Pu}(n,\gamma)$ de $+(5,8\pm 5,7)\%$ et $+(4,4\pm 4,1)\%$ par rapport à JEFF-3.1.1 respectivement. On notera les fortes incertitudes associées à ces valeurs.

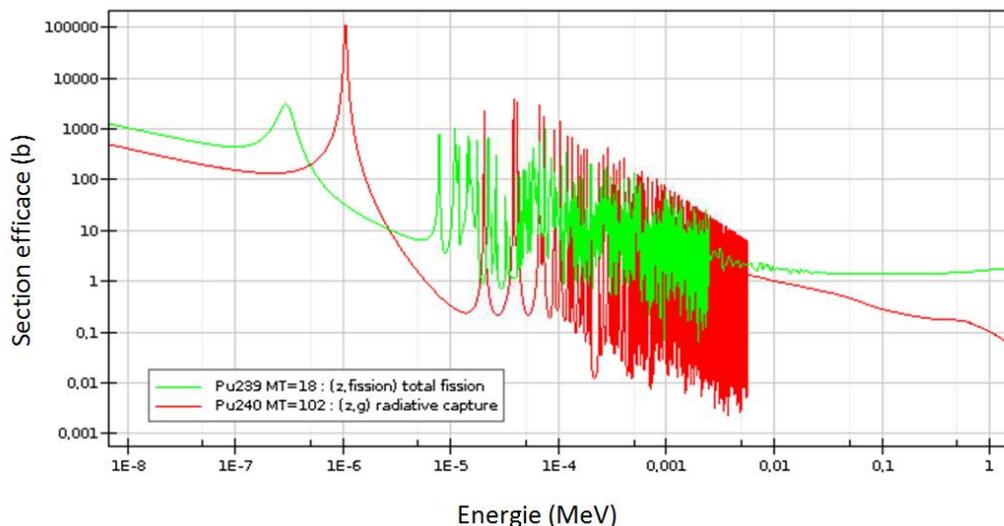


Figure 3.3 - Section efficace de fission du ^{239}Pu et de capture du ^{240}Pu en fonction de l'énergie dans JEFF-3.1.1

En revanche, les travaux (Leconte P. , 2014) et (Santamarina & Bernard, 2017) suggèrent un besoin de corriger d'environ +2 à +4% et d'environ +2% la section de capture thermique du ^{240}Pu . Les résultats de cette thèse vont donc dans le sens de ces études.

Une nouvelle évaluation des paramètres de la première résonance de la capture du ^{240}Pu a été produite au CEA grâce à une réinterprétation de mesures de transmission tenant compte des effets cristallins de l'échantillon irradié (Noguère, 2013). Cette évaluation propose une augmentation de l'intégrale de résonance, comme indiqué sur le Tableau 3.11, qui est compatible avec les travaux de cette thèse. Les autres évaluations internationales sont en accord avec JEFF-3.1.1 aux incertitudes près données par COMAC-V2.0.

Tableau 3.11 - Valeurs des paramètres intégraux et valeur à 1 groupe à 900K de la section de capture du ^{240}Pu dans différentes évaluations internationales

Paramètres	Evaluation	Valeur [b]	Variation relative par rapport à JEFF-3.1.1 [%]
σ_0	JEFF-3.1.1, reprise par JEFF-3.2, JEFF-3.3	286	-
	ENDF/B-VII.1	287	+0,3
	ENDF/B-VIII.0	289	+1,0
	JENDL-4.0	289	+1,0
	(Noguère, 2013)	286	+0,0
I_0	JEFF-3.1.1, reprise par JEFF-3.2, JEFF-3.3	8481	-
	ENDF/B-VII.1	8494	+0,2
	ENDF/B-VIII.0	8483	+0,0
	JENDL-4.0	8500	+0,2
	(Noguère, 2013)	8536	+0,6
Section à 1 groupe à 900K pondérée par un spectre REP	JEFF-3.1.1, reprise par JEFF-3.2, JEFF-3.3	461	-
	ENDF/B-VII.1	462	+0,3
	ENDF/B-VIII.0	461	+0,1
	JENDL-4.0	462	+0,3
	(Noguère, 2013)	463	+0,6

Discussion autour de la réaction $^{241}\text{Pu}(n,\gamma)$

Les résultats d'assimilation donnés sur Tableau 3.9 ne suggèrent aucune tendance pour la section de capture du ^{241}Pu .

Dans la littérature, l'unique validation intégrale des données du ^{241}Pu porte sur la mesure du facteur K_I du programme OSMOSE. Le facteur K_I est bien calculé sur le massif R1-UO₂, alors qu'il est surestimé sur le massif R1-MOX : les résultats obtenus sont $+(0,6\pm 4,8)\%$ et $+(8,0\pm 5,2)\%$ respectivement. Étant données les fortes incertitudes, en particulier sur la valeur mesurée sur le massif expérimental R1-MOX, nous pouvons juste conclure ici que

l'étude menée ne permet pas de remettre en cause la section efficace de capture de JEFF-3.1.1.

Les travaux (Santamarina & Bernard, 2017) sont en accord avec les résultats de cette thèse, car ces derniers ne suggèrent pas d'évolution de la section efficace de capture du ^{241}Pu en dessous de 4 eV.

Les évaluations JEFF-3.1.1, JEFF-3.2, JEFF-3.3, JENDL-4.0, ENDF/B-VII.1 et ENDF/B-VIII.0 sont identiques pour la section de capture du ^{241}Pu . L'absence de modification de cette section efficace dans les bibliothèques récentes suggère donc implicitement que la section de JEFF-3.1.1 est satisfaisante.

Discussion autour de la réaction $^{242}\text{Pu}(n,\gamma)$

Les résultats d'assimilation des données intégrales suggèrent une augmentation de la section de capture intégrale du ^{242}Pu de +3,8%. Cette augmentation est compatible avec l'incertitude élevée fournie par COMAC-V2.0 de 11%. Notons que cette tendance est significative à 1σ après marginalisation, et semble confirmer le besoin d'augmenter la section efficace de la réaction $^{242}\text{Pu}(n,\gamma)$.

La tendance obtenue par assimilation de la validation expérimentale de DARWIN2.3 est en désaccord avec les mesures d'oscillations et les mesures d'activations neutroniques réalisées au cours du programme OSMOSE : ces dernières suggèrent toutes que la section de capture est surestimée de +7% à +20% environ, et donc qu'il faudrait diminuer d'autant la valeur à 1 groupe de la section $^{242}\text{Pu}(n,\gamma)$.

En revanche, les résultats de l'étude vont dans le sens des programmes SHERWOOD et Icare/R menés sur le réacteur MELUSINE. Pour ces deux configurations, les écarts C/E sur la mesure de la réaction $^{242}\text{Pu}(n,\gamma)$ sont de $-(0,8\pm 3,0)\%$ et de $-(1,9\pm 5,6)\%$ respectivement. Bien que les incertitudes associées à ces mesures soient élevées, la valeur centrale va dans le sens des études de cette thèse.

Enfin, des mesures par temps de vol récentes réalisées sur l'installation n_TOF au CERN (Lerendegui-Marco, 2018) semblent indiquer une sous-estimation d'environ 4% de la section de capture du ^{242}Pu . Ces travaux sont en bon accord avec les résultats obtenus avec CONRAD. Les travaux (Santamarina & Bernard, 2017) viennent également appuyer cette tendance de 4%, car ces derniers suggèrent une correction de $+(3,9\pm 1,8)\%$ de la capture du ^{242}Pu en dessous de 4 eV.

Le Tableau 3.12 compare les différentes évaluations internationales pour la capture du ^{242}Pu . On observe un bon accord de la valeur de la section à 1 groupe malgré des disparités allant jusqu'à 13% sur la valeur de la section au point thermique. Ceci s'explique par le caractère fortement résonant dans le ^{242}Pu , traduisant un taux de capture se faisant majoritairement dans les résonances du domaine épithermique en REP.

Il est donc important d'effectuer un travail de fond sur l'évaluation du ^{242}Pu : l'assimilation avec CONRAD de la tendance issue des mesures du CERN permettrait de réévaluer la section efficace de capture dans le domaine des résonances résolues.

Tableau 3.12 - Valeurs des paramètres intégraux et valeur à 1 groupe à 900K de la section de capture du ^{242}Pu dans différentes évaluations internationales

Paramètres	Evaluation	Valeur [b]	Variation relative par rapport à JEFF-3.1.1 [%]
σ_0	JEFF-3.1.1, reprise par JEFF-3.2, JEFF-3.3	18,8	-
	ENDF/B-VII.1, reprise par ENDF/B-VIII.0	21,3	+13,3
	JENDL-4.0	19,9	+5,9
I_0	JEFF-3.1.1, reprise par JEFF-3.2, JEFF-3.3	1130	-
	ENDF/B-VII.1, reprise par ENDF/B-VIII.0	1123	-0,6
	JENDL-4.0	1130	+0,0
Section à 1 groupe à 900K pondérée par un spectre REP	JEFF-3.1.1, reprise par JEFF-3.2, JEFF-3.3	57,6	-
	ENDF/B-VII.1, reprise par ENDF/B-VIII.0	57,7	+0,1
	JENDL-4.0	57,6	-0,1

Discussions autour de la réaction $^{243}\text{Am}(n,\gamma)$

Les résultats d'assimilation obtenus pour la capture de ^{243}Am suggèrent une augmentation nette de sa section à 1 groupe de +9,4%. Cette augmentation paraît élevée vis-à-vis de l'incertitude *a priori* de 3,7% donnée par COMAC-V2.0. Notons que cette tendance reste significative après l'étape de marginalisation, ce qui suggère un besoin d'augmenter cette section efficace.

La tendance obtenue est en désaccord avec les mesures du programme OSMOSE : dans ce dernier, l'interprétation des mesures d'oscillations dans les massifs R1-UO₂ et R1-MOX a conduit aux écarts $+(4,7\pm 3,4)\%$ et $+(3,1\pm 3,8)\%$ respectivement, ce qui est en désaccord avec la nécessité de modification de la section efficace de la réaction $^{243}\text{Am}(n,\gamma)$ suggérée par les résultats de cette thèse.

En revanche, les résultats vont dans le sens des mesures récentes effectuées par temps de vol sur l'installation n_TOF (Mendoza, 2014) : en particulier, celles-ci suggèrent une augmentation de la section entre 3 – 250 eV par rapport à l'évaluation JEFF-3.1.1. Une nouvelle évaluation de la section de capture de ^{243}Am a été produite au cours de travaux internes menés au CEA (Noguère G. , 2017), basée sur les données de n_TOF et les mesures de l'installation ORELA (Simpson, 1974). Cette nouvelle évaluation suggère une

augmentation de l'intégrale de résonance de l'²⁴³Am à hauteur de +5% environ, dans le sens des travaux de cette thèse.

Tableau 3.13 - Valeurs des paramètres intégraux et valeur à 1 groupe à 900K de la section de capture du ²⁴³Am dans différentes évaluations internationales

Paramètres	Evaluation	Valeur [b]	Variation relative par rapport à JEFF-3.1.1 [%]
σ_0	JEFF-3.1.1, reprise par JEFF-3.2	76,7	-
	JEFF-3.3	79,2	+3,3
	ENDF/B-VII.1	80,4	+4,8
	ENDF/B-VIII.0	80,4	+4,8
	JENDL-4.0	79,2	+3,3
	(Noguère G. , 2017)	81,8	+6,6
I_0	JEFF-3.1.1, reprise par JEFF-3.2	1790	-
	JEFF-3.3	2040	+14
	ENDF/B-VII.1	2052	+15
	ENDF/B-VIII.0	2057	+15
	JENDL-4.0	2040	+14
	(Noguère G. , 2017)	1881	+5,1
Section à 1 groupe à 900K pondérée par un spectre REP	JEFF-3.1.1, reprise par JEFF-3.2	99,6	-
	JEFF-3.3	112	+12,9
	ENDF/B-VII.1	113	+13,6
	ENDF/B-VIII.0	113	+13,8
	JENDL-4.0	112	+12,9
	(Noguère G. , 2017)	105	+5,2

L'étude (Santamarina & Bernard, 2017) suggère quant à elle une augmentation de la capture à hauteur de +(4,3±2,8)%, confirmée par les travaux de cette thèse.

Une comparaison des paramètres intégraux et de la section intégrée de capture de l'²⁴³Am à 1 groupe à 900K est donnée sur le Tableau 3.13. Nous pouvons voir que l'augmentation d'environ +(9,4±2,2)% suggérée par CONRAD va dans le sens de ENDF, JENDL-4.0, et JEFF-3.3.

Discussion autour de la réaction ²⁴⁴Cm(n,γ)

Les résultats autour de cette section efficace ont déjà été présentés à la section 3.2.4. Ces derniers sont en accord avec les travaux (Santamarina & Bernard, 2017) qui obtiennent une tendance de +(0,8±3,2)% sur la capture du ²⁴⁴Cm, confortant le fait que la section ne nécessite pas de modification dans JEFF-3.1.1.

Une comparaison de JEFF-3.1.1 avec les autres évaluations internationales est proposée sur le Tableau 3.14. Il est à noter que JEFF-3.2, JEFF-3.3, ENDF/B-VII.1, et ENDF/B-VIII.0 ont adopté l'évaluation de JENDL-4.0. Cette dernière propose une augmentation significative de

la section efficace, en particulier du point thermique de la section par rapport à JEFF-3.1.1, en désaccord avec les résultats de cette thèse.

Tableau 3.14 - Valeurs des paramètres intégraux et valeur à 1 groupe à 900K de la section de capture du ^{244}Cm dans différentes évaluations internationales

Paramètres	Evaluation	Valeur [b]	Variation relative par rapport à JEFF-3.1.1 [%]
σ_0	JEFF-3.1.1	10,4	-
	JENDL-4.0, reprise par JEFF-3.2, JEFF-3.3, ENDF/B-VII.1, ENDF/B-VIII.0	15,2	+46
I_0	JEFF-3.1.1	594	-
	JENDL-4.0, reprise par JEFF-3.2, JEFF-3.3, ENDF/B-VII.1, ENDF/B-VIII.0	626	+5,4
Section à 1 groupe à 900K pondérée par un spectre REP	JEFF-3.1.1	30,3	-
	JENDL-4.0, reprise par JEFF-3.2, JEFF-3.3, ENDF/B-VII.1, ENDF/B-VIII.0	32,6	+7,8

Impact des tendances obtenues sur le calcul de la concentration du ^{244}Cm

L'évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration du ^{244}Cm est présentée sur la Figure 3.4 pour les combustibles UOX et sur la Figure 3.5 pour les combustibles MOX. Cet impact est quantifié par CONRAD, qui recalcule les écarts C/E avec les paramètres *a posteriori* avec marginalisation. Nous observons une amélioration en moyenne du calcul pour les UOX comme pour les MOX, avec une bonne compensation de la sous-estimation systématique dans les deux types de combustibles : la moyenne des C/E obtenus avec les tendances *a posteriori* est d'environ $1,6 \pm 6\%$ pour les combustibles UOX et de $1,5 \pm 6\%$ pour les MOX. Cette amélioration indique une bonne convergence de CONRAD lors de la minimisation de la fonction coût, et ce malgré l'unique itération effectuée.

Notons toutefois une légère tendance à la surestimation en UOX comme en MOX au-delà de 30 GWj/t. Ceci peut s'expliquer par le fait que la correction apportée par l'ajustement se fait en moyenne, en considérant l'ensemble des C/E. Or sur la Figure 3.4, nous pouvons voir que le calcul du ^{244}Cm est fortement sous-estimé à faible taux de combustion. Cette forte sous-estimation, qui subsiste après ajustement, est donc équilibrée par une légère surestimation de l'ensemble des C/E au-delà de 30 GWj/t. Il paraît alors prudent de nuancer la tendance de +9,4% obtenue sur la réaction $^{243}\text{Am}(n,\gamma)$: il est en effet probable que la tendance sur la section à 1 groupe de l' $^{243}\text{Am}(n,\gamma)$ soit légèrement surestimée, et qu'une valeur autour de +6% / +7% soit plus appropriée. Cette valeur est d'ailleurs plus en accord avec l'évaluation (Noguère G. , 2017) basée sur les travaux de (Mendoza, 2014), ainsi qu'avec (Santamarina & Bernard, 2017), qui pour rappel proposent une augmentation de +5% environ et de $(4,3 \pm 2,8)\%$ respectivement.

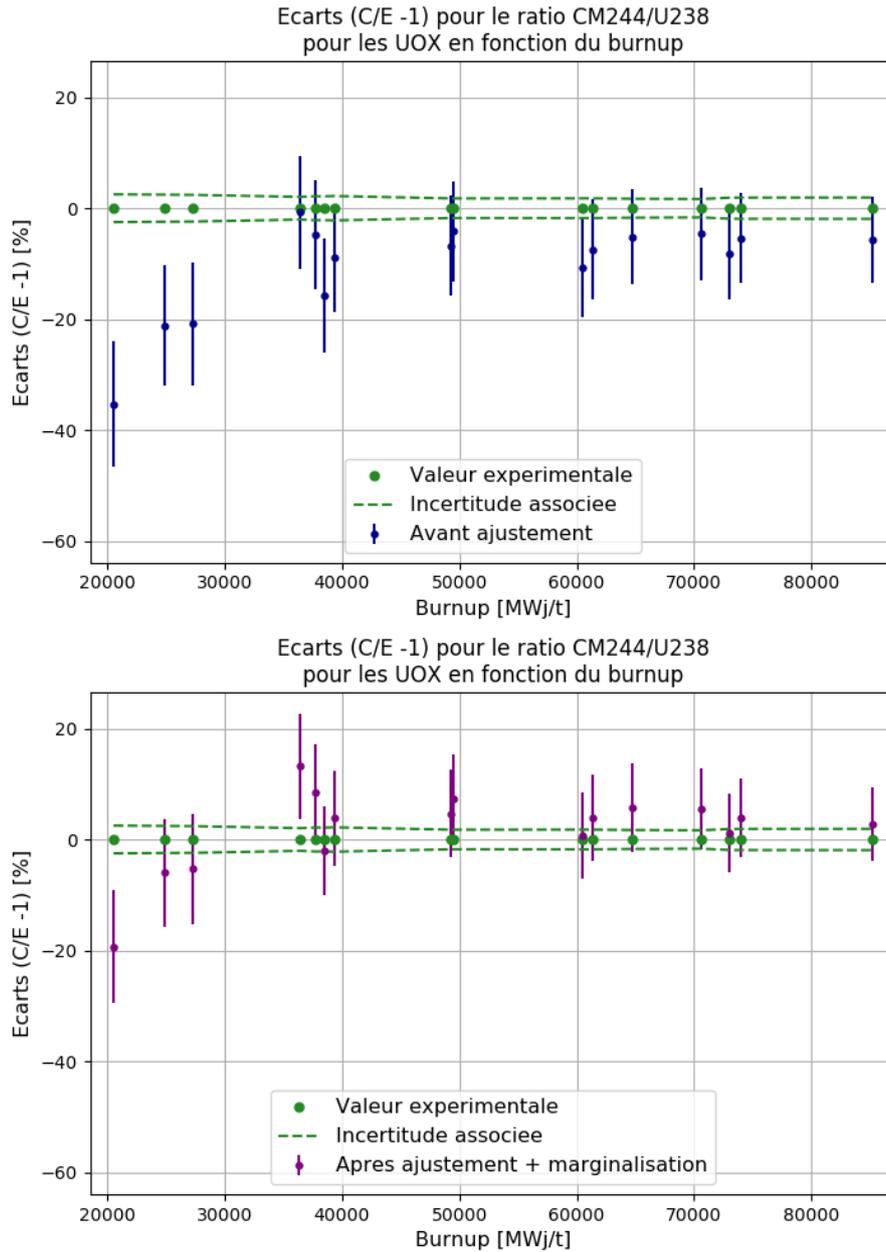


Figure 3.4 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{244}Cm pour les combustibles UOX

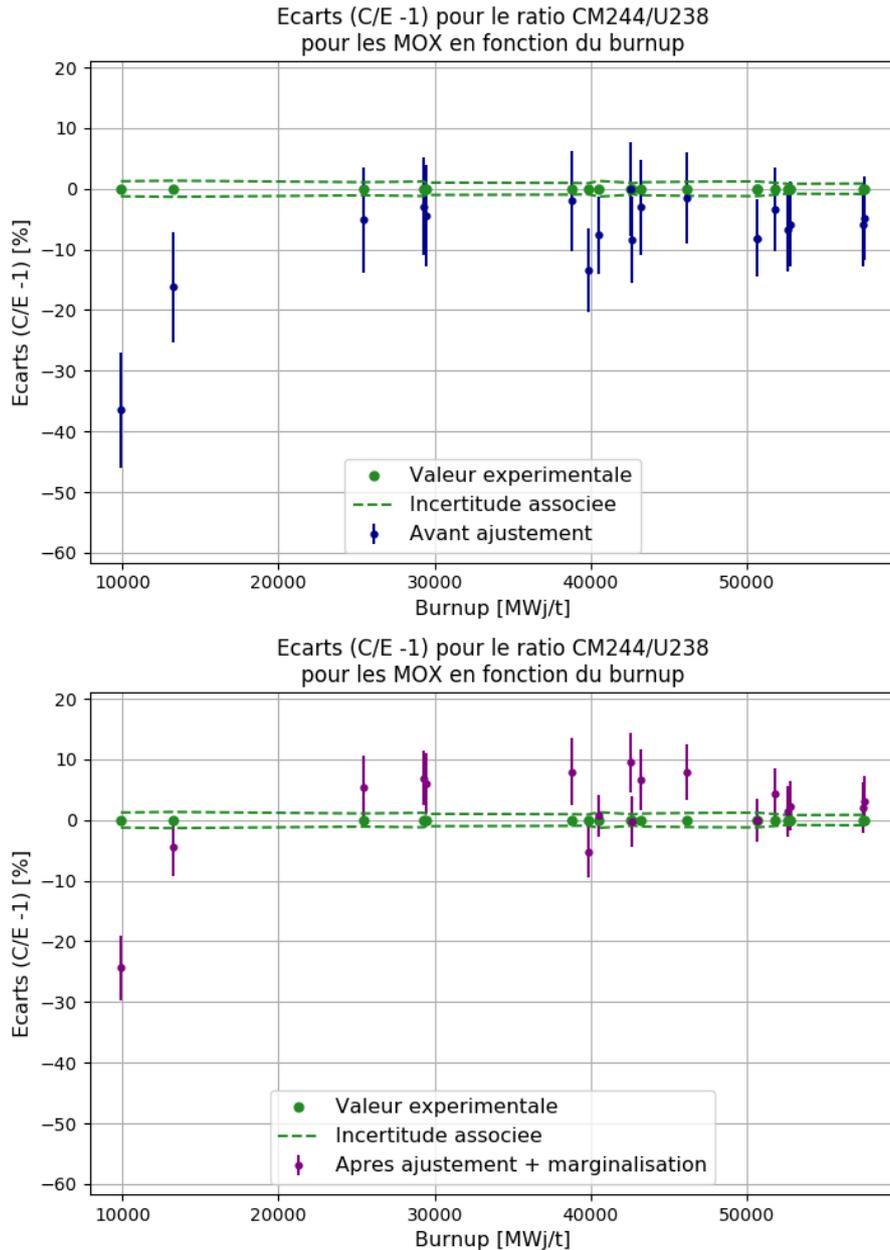


Figure 3.5 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{244}Cm pour les combustibles MOX

3.3.2.2. ÉTUDE DE L' ^{154}Eu

Nous rappelons dans le Tableau 3.15 les résultats obtenus pour les données nucléaires impliquées dans le calcul de la concentration d'un produit de fission, l' ^{154}Eu . Nous discutons dans un premier temps les résultats obtenus pour la réaction $^{153}\text{Eu}(n,\gamma)$ à 1 groupe. Une étude complémentaire est proposée à deux groupes sur la réaction $^{153}\text{Eu}(n,\gamma)$ afin de pouvoir dégager une tendance sur l'intégrale de résonance de capture de l' ^{153}Eu . Enfin, les résultats sur la réaction $^{154}\text{Eu}(n,\gamma)$ seront discutés. L'impact des tendances obtenues sur le calcul de la concentration de l' ^{154}Eu sera illustré en fin de section.

Tableau 3.15 - Résultats d'assimilation des données intégrales obtenus pour les données nucléaires impliquées dans le calcul de l'¹⁵⁴Eu

Section efficace ajustée	Incertitude <i>a priori</i>	Résultats <i>a posteriori</i>	Résultats <i>a posteriori</i> avec marginalisation
¹⁵³ Eu(<i>n, γ</i>)	5,0%	+(5,1±0,08)%	+(5,1±2,4)%
¹⁵⁴ Eu(<i>n, γ</i>)	12%	+(8,4±0,09)%	+(8,4±3,7)%

Discussion autour de la réaction ¹⁵³Eu(*n, γ*)

Les résultats du Tableau 3.15 suggèrent une augmentation de la section de capture à 1 groupe de l'¹⁵³Eu de +5,1%. Cette augmentation est compatible avec l'incertitude *a priori* provenant de COMAC-V2.0. L'incertitude de 2,4% à 1σ obtenue après marginalisation montre que la tendance sur la capture de l'¹⁵³Eu est significative.

De nombreuses données de la littérature viennent conforter les résultats obtenus. Ces données sont issues de l'interprétation de mesures d'oscillation dans les réacteurs expérimentaux MINERVE (Gruel, 2011), DIMPLE (Dean, 2007), et par des mesures d'activation des programmes MAESTRO I (Leconte P. , 2016) et MAESTRO II & III (Leconte P. , 2017). Les programmes expérimentaux ICARE/R et ICARE/S sur le réacteur MELUSINE (Bernard D. , 2015) fournissent deux tendances qui sont opposées, à savoir -8,6±4,3% et +11,3±1,5%. Seule la première tendance est en accord avec les résultats de cette thèse et avec les autres travaux de la littérature. Les résultats de ces études sont donnés sur le Tableau 3.16. La valeur obtenue avec nos travaux d'assimilation +(5,1±2,4)% sur la réaction ¹⁵³Eu(*n, γ*) est cohérente avec les tendances du Tableau 3.16.

Tableau 3.16 - Écarts (C/E - 1) issus de la littérature pour la réaction ¹⁵³Eu(*n, γ*)

Référence	Ecart (C/E - 1) sur la réaction ¹⁵³ Eu(<i>n, γ</i>) [%]
(Dean, 2007)	-(6±4)%
(Gruel, 2011)	-(11,6±2,8)%
(Bernard D. , 2015)	-(8,6±4,3)%
(Leconte P. , 2016)	-(8,5±1,3)%
(Leconte P. , 2017)	-(6,5±1,5)% -(3,5±1,5)%

Etude de la réaction ¹⁵³Eu(*n, γ*) traitée à deux groupes d'énergie et discussion

L'objet de ce paragraphe est de proposer une extension de la méthode au traitement multi-groupes des sections efficaces pour effectuer des assimilations de données intégrales.

La section de capture de l'¹⁵³Eu de l'évaluation JEFF-3.1.1 est représentée sur la Figure 3.6. L'approche proposée ici est de traiter la section efficace ¹⁵³Eu(*n, γ*) à deux groupes σ_1 et σ_2 , en

considérant une borne entre les domaines énergétiques thermique et épithermique / rapide à 0,5 eV, tels que :

$$\sigma_1 = \frac{\int_{0,5}^{+\infty} \sigma(E)\phi(E)dE}{\int_{0,5}^{+\infty} \phi(E)dE} \quad (3.26)$$

$$\sigma_2 = \frac{\int_0^{0,5} \sigma(E)\phi(E)dE}{\int_0^{0,5} \phi(E)dE} \quad (3.27)$$

Pour rappel, cette borne énergétique est celle à partir de laquelle l'intégrale de résonance est calculée (voir équation (2.3)) : l'intérêt de ce découpage est donc de pouvoir obtenir une information sur l'intégrale de résonance.

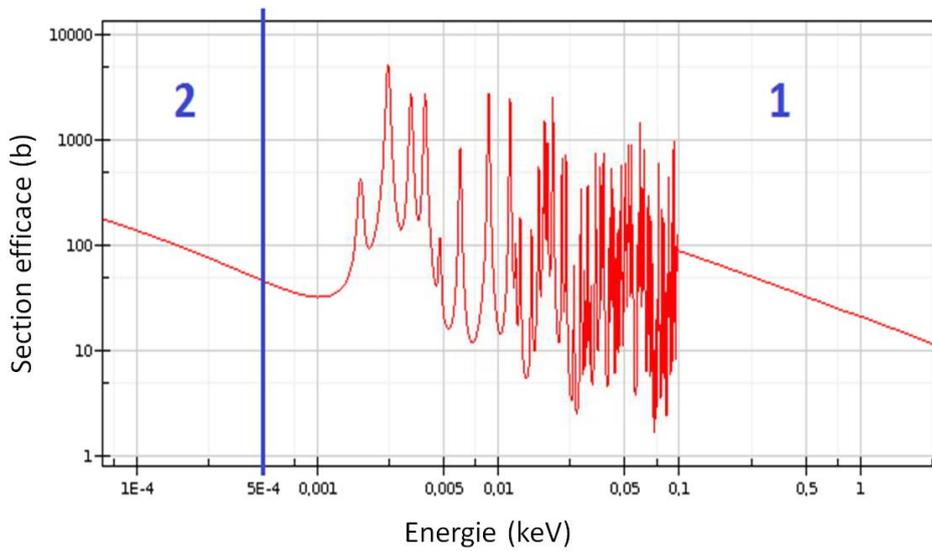


Figure 3.6 - Section de capture de l'¹⁵³Eu dans JEFF-3.1.1

Or, comme on peut le voir sur la Figure 3.6, toutes les résonances de la section de capture de l'¹⁵³Eu sont en dehors du domaine thermique. Ainsi, l'ordonnée à l'origine de la pente en 1/v de la section efficace en dessous de 0,5 eV est conditionnée par la valeur de la section efficace au point thermique (voir équation 2.2). On pourra donc supposer $\sigma_1 \propto I_{0,\gamma}$ et $\sigma_2 \propto \sigma_{0,\gamma}$.

Les liste des mesures de la section efficace ¹⁵³Eu(n,γ) au point thermique, disponibles dans la base EXFOR (Otuka, 2014), sont présentées dans le Tableau 3.17. Les valeurs reportées indiquent un bon accord des mesures avec la valeur de la section efficace recommandée dans JEFF-3.1.1, qui est de 312 b. En outre, l'incertitude de 5% dans la zone thermique fournie par COMAC-V2.0 est cohérente avec la dispersion des valeurs reportées dans le Tableau 3.17. Ainsi, on choisit de ne pas ajuster la section σ_2 , mais de la marginaliser avec une incertitude de 5%. En revanche, la section σ_1 sera ajustée avec une incertitude *a priori* issue de COMAC-V2.0 de 7%.

Le Tableau 3.18 reporte les résultats obtenus en ajustant σ_1 et marginalisant σ_2 . La tendance que nous avons observée sur la section à 1 groupe (voir Tableau 3.15) se reporte sur le

paramètre σ_1 : l'étude suggère une augmentation de σ_1 , à hauteur d'environ +7,3%. Notons que l'incertitude après marginalisation augmente légèrement par rapport au cas 1 groupe, et ce en raison de la marginalisation de σ_2 .

Tableau 3.17 - Mesures de section efficace de capture de l'¹⁵³Eu au point thermique

Référence	Valeur de la section (b)	Incertitude relative (%)
(Tattersal, 1960)	317	1,6
(Moxon, 1976)	317	4,7
(Farina Arboccò, 2014)	312	1,0
(Basunia, 2014)	335	3,0

Tableau 3.18 - Résultats d'assimilation des données intégrales obtenus pour les données nucléaires impliquées dans le calcul de l'¹⁵⁴Eu - traitement à deux groupes de ¹⁵³Eu(n, γ)

Section efficace ajustée	Incertitude <i>a priori</i>	Résultats <i>a posteriori</i>	Résultats <i>a posteriori</i> avec marginalisation
σ_1	7,0%	+(7,3±0,1)%	+(7,3±3,7)%
¹⁵⁴ Eu(n, γ)	12%	+(8,6±0,09)%	+(8,6±3,7)%

Si l'on reporte cette tendance sur l'intégrale de résonance de capture, l'étude suggère une augmentation de la valeur de JEFF-3.1.1, de 1409 b à 1511±52 b. Cette valeur est en bonne cohérence avec la mesure proposée par le RPI, *Renssealer Polytechnic Institute*, (Leinweber, 2014) de $I_{o,\gamma} = 1560$ b ainsi qu'avec (Leconte P. , 2017) qui suggère une augmentation de l'intégrale de résonance de JEFF-3.1.1 d'environ +5%, soit $I_{o,\gamma} \approx 1480$ b.

Tableau 3.19 - Valeurs des paramètres intégraux et valeur à 1 groupe à 900K de la section de capture de l'¹⁵³Eu dans différentes évaluations internationales

Paramètres	Evaluation	Valeur [b]	Variation relative par rapport à JEFF-3.1.1 [%]
σ_0	JEFF-3.1.1	313	-
	JEFF-3.2	313	+0,0
	JEFF-3.3	313	+0,0
	ENDF/B-VII.1	358	+14,4
	ENDF/B-VIII.0	358	+14,4
	JENDL-4.0	313	+0,0
I_0	JEFF-3.1.1	1409	-
	JEFF-3.2	1409	+0,0
	JEFF-3.3	1413	+0,3
	ENDF/B-VII.1	1421	+0,9
	ENDF/B-VIII.0	1421	+0,9
	JENDL-4.0	1413	+0,3
Section à 1 groupe à 900K pondérée par un spectre REP	JEFF-3.1.1	117	-
	JEFF-3.2	117	+0,0
	JEFF-3.3	117	+0,1
	ENDF/B-VII.1	124	+6,3
	ENDF/B-VIII.0	124	+6,3
	JENDL-4.0	117	+0,1

Le Tableau 3.19 donne les valeurs des paramètres intégraux et de la section à 1 groupe intégrée sur un spectre REP à 900K pour différentes évaluations internationales. Notons que l'on observe un accord des résultats de cette thèse avec la valeur de la section intégrée à 1 groupe des évaluations ENDF/B. Pour autant, il est important de noter que les évaluations ENDF/B proposent une valeur de la section thermique de 14% plus élevée que JEFF-3.1.1 (Chadwick, 2011) (Brown, 2018) et que les données du Tableau 3.17, et une intégrale de résonance similaire à JEFF-3.1.1, qui va à l'encontre de nos recommandations.

Les mesures effectuées par temps de vol au RPI fournissent les paramètres de résonance de la section efficace de capture de ^{153}Eu (Leinweber, 2014). L'étude à deux groupes présentée ici permet donc de recommander l'utilisation des données du RPI pour l'évaluation de la section de capture de ^{153}Eu dans la zone épithermique.

Discussion autour de la réaction $^{154}\text{Eu}(n,\gamma)$

Les résultats d'assimilation de données intégrales pour l'ajustement de la capture de $^{154}\text{Eu}(n,\gamma)$ donnés sur le Tableau 3.15 pour le traitement à 1 groupe de $^{153}\text{Eu}(n,\gamma)$ et sur le Tableau 3.18 pour le traitement à 2 groupes de $^{153}\text{Eu}(n,\gamma)$ sont cohérents et suggèrent une augmentation de la section $^{154}\text{Eu}(n,\gamma)$ d'environ $+(8,5\pm 3,7)\%$. Notons qu'il n'est pas possible d'effectuer un traitement à deux groupes avec une borne à 0,5 eV pour la section $^{154}\text{Eu}(n,\gamma)$ comme pour la section $^{153}\text{Eu}(n,\gamma)$: la présence d'une résonance dans le domaine thermique, comme indiqué sur la Figure 3.7, ne nous permet pas d'extraire de tendance sur l'intégrale de résonance.

L'unique validation intégrale de la section efficace de JEFF-3.1.1 porte sur le programme expérimental ICARE/R et est en désaccord avec les résultats de cette étude : celle-ci suggère en effet que la section efficace de capture de ^{154}Eu est sous-estimée de $-6,7\pm 2,4\%$ (Bernard D. , 2015). Une comparaison des différentes évaluations internationales indique un accord global des différentes évaluations entre-elles. Notons que l'évaluation récente ENDF/B-VIII.0 va dans le sens des résultats de cette thèse.

Une étude récente (Skutnik, 2017) a été menée à partir d'expériences de post-irradiation de combustibles de réacteurs à eau légère et à eau lourde, pour lesquelles les écarts C/E sur la concentration en ^{154}Eu varient de +5% à +15%. Celle-ci met en évidence une sous-estimation de la section efficace de capture de ^{154}Eu de la bibliothèque ENDF/B-VII.1, qui est très similaire à celle de JEFF-3.1.1 comme l'atteste la Figure 3.7. Dans cette étude, une analyse des paramètres de la première résonance est menée : elle conduit à suggérer une modification de la section ENDF/B-VII.1 pour compenser la surestimation du calcul de ^{154}Eu , en reprenant les paramètres de la première résonance utilisés dans JEFF-3.0. Ces résultats sont en accord avec (Noguère & Doan, 2014).

Les travaux de (Skutnik, 2017) sur ENDF/B-VII.1 viennent donc conforter les résultats obtenus dans cette thèse sur JEFF-3.1.1.

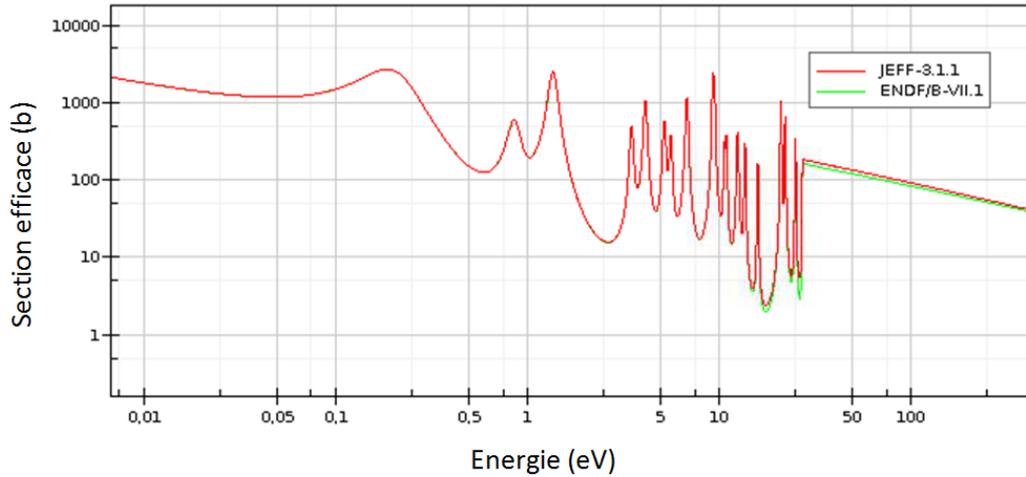


Figure 3.7 - Section efficace de capture de l'¹⁵⁴Eu dans les bibliothèques JEFF-3.1.1 et ENDF/B-VII.1

Tableau 3.20 - Valeurs des paramètres intégraux et valeur à 1 groupe à 900K de la section de capture de l'¹⁵⁴Eu dans différentes évaluations internationales

Paramètres	Evaluation	Valeur [b]	Variation relative par rapport à JEFF-3.1.1 [%]
σ_0	JEFF-3.1.1	1356	-
	JEFF-3.2	1356	+0,0
	JEFF-3.3	1352	-0,3
	ENDF/B-VII.1	1352	-0,3
	ENDF/B-VIII.0	1469	+8,3
	JENDL-4.0	1352	-0,3
I_0	JEFF-3.1.1	1327	-
	JEFF-3.2	1327	+0,0
	JEFF-3.3	1300	-2,0
	ENDF/B-VII.1	1300	-2,0
	ENDF/B-VIII.0	1300	-2,0
	JENDL-4.0	1354	+2,0
Section à 1 groupe à 900K pondérée par un spectre REP	JEFF-3.1.1	390	-
	JEFF-3.2	390	+0,0
	JEFF-3.3	388	-0,5
	ENDF/B-VII.1	388	-0,5
	ENDF/B-VIII.0	411	+5,5
	JENDL-4.0	391	+0,2

Impact des tendances obtenues sur le calcul de la concentration de l'¹⁵⁴Eu

Les résultats de l'assimilation des données intégrales pour le ratio ¹⁵⁴Eu/²³⁸U sont donnés sur la Figure 3.8 pour les combustibles UOX, sur la Figure 3.9 pour les combustibles MOX, et sur la Figure 3.10 pour les spectrométries gamma en UOX. Nous pouvons voir une amélioration nette du calcul de ce rapport de concentration dans les combustibles UOX, malgré une légère surestimation résiduelle à haut burnup. Dans les combustibles MOX, la légère tendance à la

surestimation à haut burnup est compensée, et la sous-estimation à faible burnup est également compensée. Enfin, la surestimation du rapport $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$ est réduite par l'augmentation combinée des captures des ^{153}Eu et ^{154}Eu et l'augmentation du rendement cumulé de fission thermique de ^{235}U sur le ^{137}Cs (voir Tableau 3.8).

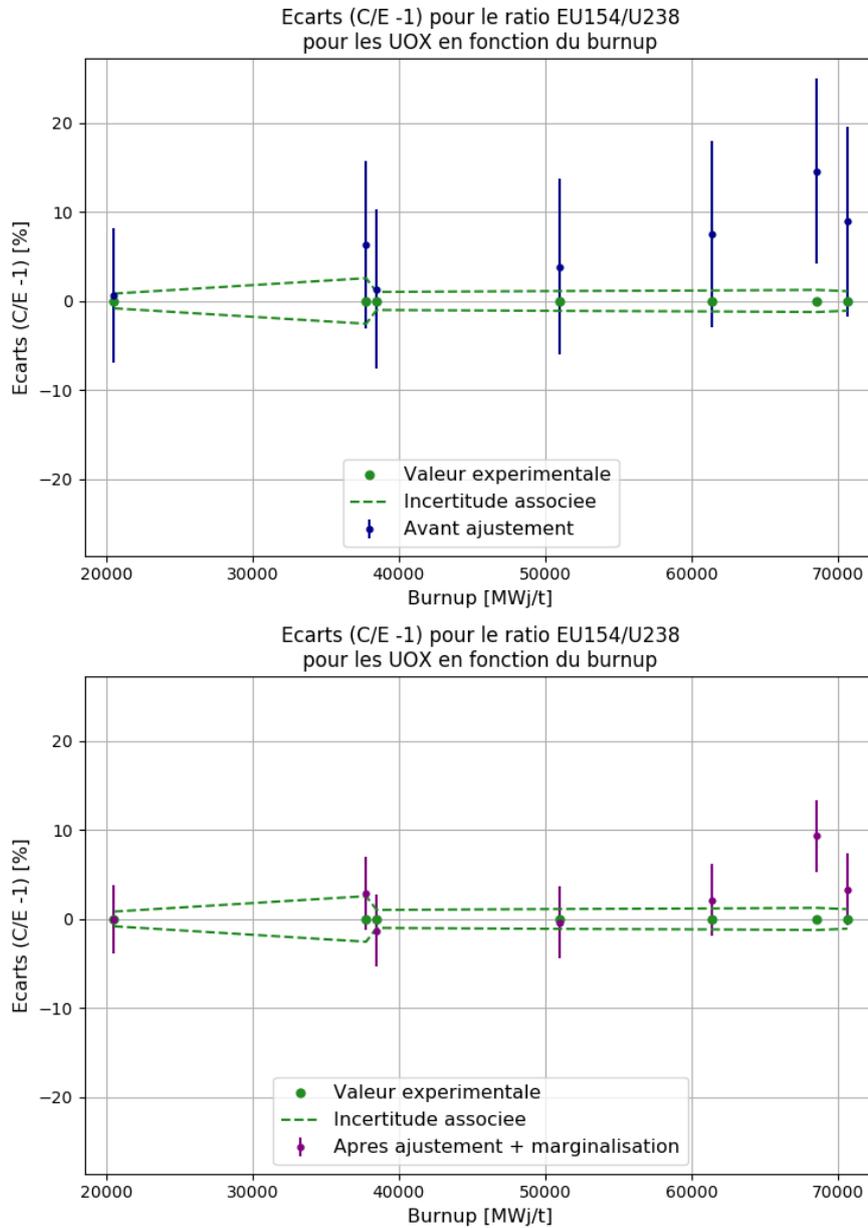


Figure 3.8 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{154}Eu pour les combustibles UOX

Nous observons de manière générale pour les combustibles UOX et MOX une bonne réduction des écarts C/E de la concentration en ^{154}Eu avec les valeurs ajustées des paramètres $^{153}\text{Eu}(n,\gamma)$ et $^{154}\text{Eu}(n,\gamma)$ produits par CONRAD. Cette compensation illustre de nouveau la bonne convergence de CONRAD pour la minimisation de la fonction coût lors de l'ajustement. Les sections efficaces de capture des isotopes de l'euprotium ont fait l'objet d'une étude dédiée qui exploite une partie des données de validation expérimentale de

DARWIN2.3 (Rizzo, 2018-2). Cette étude est cohérente avec les résultats obtenus en assimilant la totalité de la validation expérimentale.

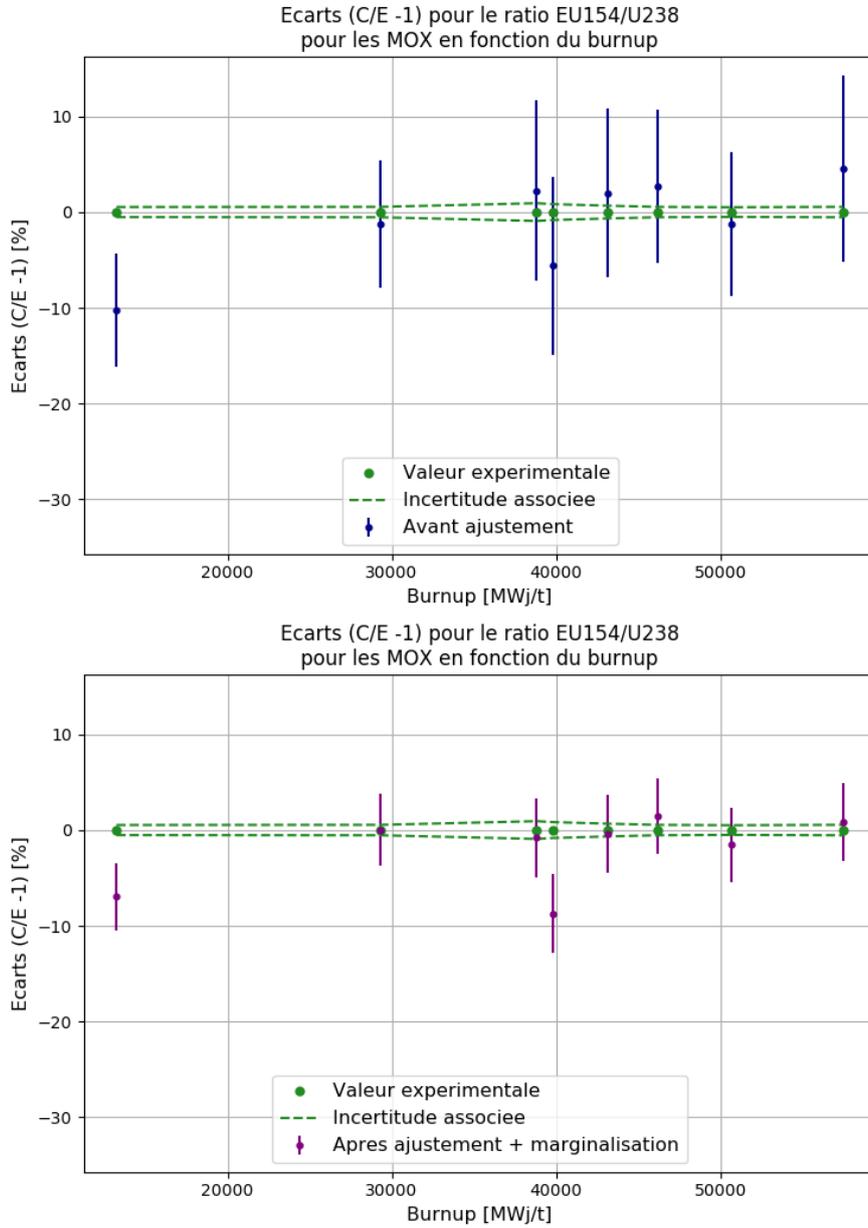


Figure 3.9 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{154}Eu pour les combustibles MOX

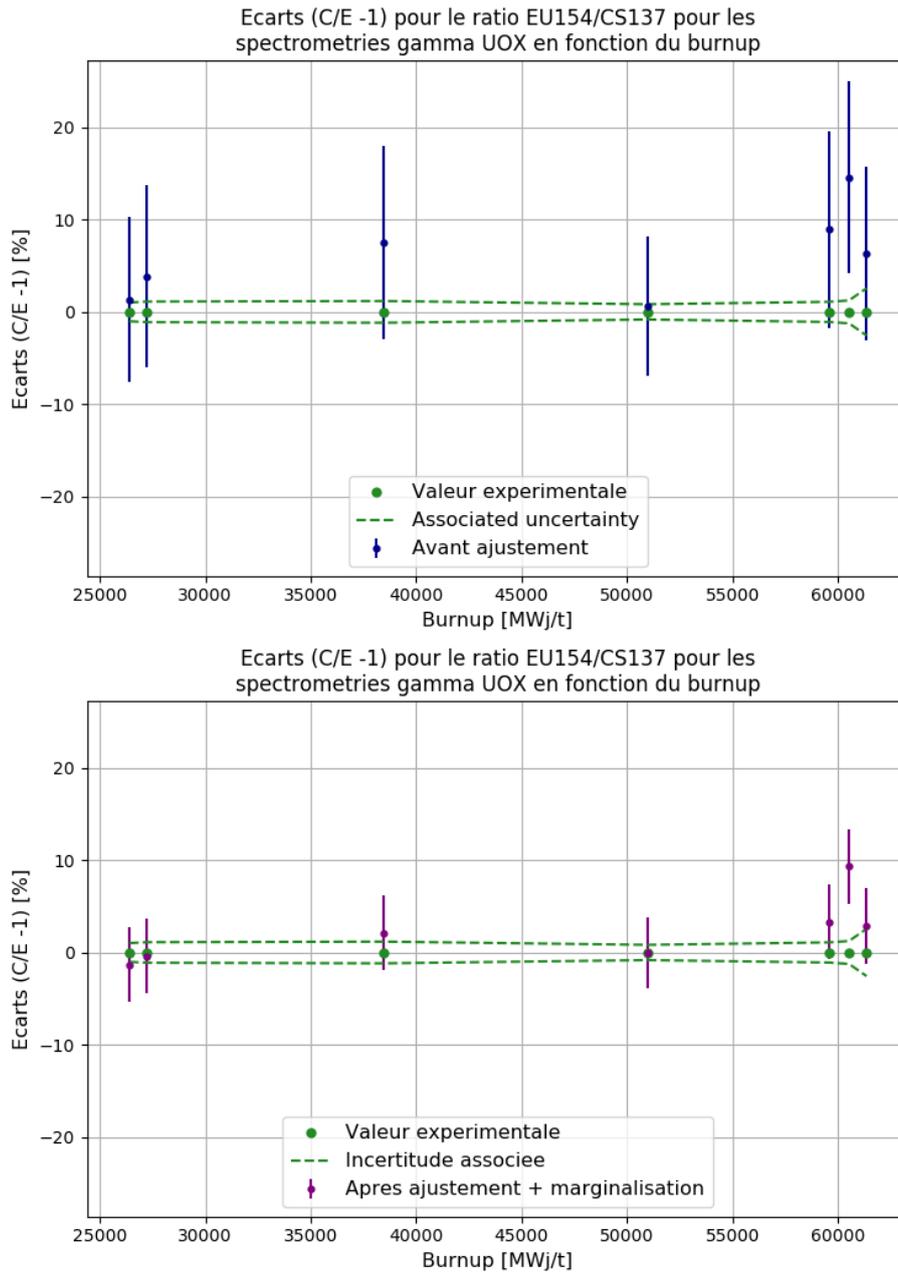


Figure 3.10 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{154}Eu pour les spectrométries gamma UOX

3.3.3. RECOMMANDATIONS POUR LA PROCHAINE BIBLIOTHEQUE EUROPEENNE

Les travaux d'assimilation présentés dans ce chapitre permettent d'établir des recommandations d'évaluation pour la prochaine version de JEFF. Ainsi, une analyse des tendances résumées sur le Tableau 3.8 conduit aux recommandations d'évolution d'évaluation par rapport à JEFF-3.1.1 présentées sur les Tableau 3.21 et Tableau 3.22 pour les

rendements cumulés de fission thermique et les sections efficaces, respectivement. L'absence de recommandation suggère implicitement de conserver l'évaluation de JEFF-3.1.1.

Il est important de préciser que les recommandations sur les rendements de fission seront à comparer à la base de données expérimentales utilisée pour produire l'évaluation des rendements de fission dans JEFF lorsque celle-ci sera disponible. Cette comparaison permettra alors de statuer pleinement sur les valeurs à recommander pour les rendements de fission.

Tableau 3.21 - Recommandations issues des travaux d'assimilation de données intégrales avec CONRAD pour les rendements cumulés de fission thermique

Donnée nucléaire	Recommandation issue de l'assimilation des données intégrales	Commentaire
$y_c(^{106}\text{Ru}, ^{239}\text{Pu})$	$+(9,2\pm 5,7)\%$	Accord avec mesures à l'ILL : +5,1% (Schmitt, 1984). Dans le sens des évaluations ENDF/B-VII.1, ENDF/B-VIII.0, JENDL-4.0 : $+(3,9\pm 2,0)\%$, ainsi que JEFF-3.3 : $+(3,6\pm 2,3)\%$.
$y_c(^{133}\text{Cs}, ^{235}\text{U})$	$+(6,2\pm 2,0)\%$	Accord avec mesures à l'ILL : +4,5% (Bail, 2009). Désaccord avec les évaluations internationales.
$y_c(^{137}\text{Cs}, ^{235}\text{U})$	$+(7,5\pm 1,9)\%$	Accord avec (Bail, 2009), désaccord avec JEFF3.3 et autres évaluations internationales.
$y_c(^{144}\text{Ce}, ^{235}\text{U})$	$-(4,6\pm 3,3)\%$	Accord avec diminution de -3,9% dans (Bail, 2009), désaccord avec les évaluations internationales.
$y_c(^{144}\text{Ce}, ^{239}\text{Pu})$	$-(8,0\pm 1,3)\%$	Désaccord avec augmentation de +7,6% dans (Bail, 2009), mais accord avec la diminution de -5,6% dans (Gupta, 2017).

Tableau 3.22 - Recommandations d'évaluation issues des travaux d'assimilation de données intégrales avec CONRAD pour les sections efficaces

Donnée nucléaire	Rappel de la tendance obtenue sur la section à 1 groupe par assimilation des données intégrales	Evaluation recommandée	Commentaire
$^{235}\text{U}(n, \gamma)$	$+(1,2 \pm 2,4)\%$	JEFF-3.3	Légère augmentation de +0,9% du point thermique et de l'intégrale de résonance compatible avec les résultats de cette thèse.
$^{236}\text{U}(n, \gamma)$	$+(2,2 \pm 1,9)\%$	JENDL-4.0	Augmentation de 2,0% de l'intégrale de résonance dans JENDL-4.0 compatible avec les résultats de cette thèse. Des travaux de réévaluation de cette section sont en cours au SPRC / LEPH.
$^{238}\text{U}(n, 2n)$	$+(4,8 \pm 2,0)\%$	JEFF-3.3	Augmentation de la section à 1 groupe de +3% environ dans JEFF-3.3, en cohérence avec les travaux de cette thèse.
$^{239}\text{Pu}(n, \gamma)$	$+(0,5 \pm 2,2)\%$	JEFF-3.1.1	Pas de tendance observée. Notons que l'évaluation JEFF-3.3 suggère une augmentation de la section (voir Tableau 3.10) compatible avec les résultats de cette thèse à 1σ . Il faudra donc tester cette évaluation.
$^{240}\text{Pu}(n, \gamma)$	$+(4,2 \pm 2,8)\%$	CEA (Noguère, 2013)	Tendance obtenue probablement élevée. L'évaluation recommandée suggère une augmentation de +0,6% de l'intégrale de résonance du ^{240}Pu .
$^{242}\text{Pu}(n, \gamma)$	$+(3,8 \pm 2,8)\%$	Basée sur (Lerendegui-Marco, 2018)	Tendance en accord avec les mesures par temps de vol réalisées au CERN. Nous suggérons de produire une évaluation utilisant les paramètres de résonance mesurés au CERN.
$^{241}\text{Am}(n, \gamma)$	$+(10,7 \pm 4,7)\%$	JEFF-3.3	Une nouvelle évaluation de la capture de ^{241}Am a déjà été effectuée. L'augmentation de la section dans JEFF-3.3 d'environ +15% est cohérente avec la tendance obtenue.
$^{243}\text{Am}(n, \gamma)$	$+(9,4 \pm 2,2)\%$	CEA (Noguère G. , 2017)	Tendance obtenue probablement élevée : une analyse menée à la section 3.3.2.1 indique qu'une tendance de +6% à +7% serait plus appropriée. L'évaluation recommandée propose une augmentation de l'intégrale de résonance de +5%, en cohérence avec cette analyse.
$^{242}\text{Cm}(n, \gamma)$	$+(18,2 \pm 4,8)\%$	JEFF-3.3	L'augmentation du point thermique de 20% et de l'intégrale de résonance de +23% dans JEFF-3.3 est en cohérence avec les travaux de cette thèse.
$^{103}\text{Rh}(n, \gamma)$	$+(7,4 \pm 4,7)\%$	IRSN (Leal, 2017)	L'augmentation de l'intégrale de résonance de +5% proposée par l'évaluation recommandée est en accord avec la tendance obtenue sur la capture du ^{103}Rh .
$^{153}\text{Eu}(n, \gamma)$	$+(5,1 \pm 2,4)\%$	Basée sur (Leinweber, 2014)	L'augmentation de l'intégrale de résonance de +10,7% par rapport à JEFF-3.1.1 proposée dans (Leinweber, 2014) est en accord avec l'étude multi-groupes effectuée à la section 0 qui suggère une augmentation de l'intégrale de résonance de $+(7,3 \pm 3,7)\%$.
$^{154}\text{Eu}(n, \gamma)$	$+(8,4 \pm 3,7)\%$	JEFF-3.0	La tendance obtenue est en accord avec les résultats de (Skutnik, 2017). La recommandation de JEFF-3.0 s'appuie également sur (Noguère & Doan, 2014).

3.4. IMPACT DES RECOMMANDATIONS SUR LE CALCUL DU BILAN MATIERE

Nous proposons dans cette partie de vérifier que l'impact des recommandations d'évaluation effectuées à la section précédente va effectivement dans le sens d'une amélioration du calcul du bilan matière. Pour cela, nous cherchons à quantifier l'impact des recommandations à l'aide de calculs APOLLO2 en géométrie cellule, puis de comparer l'évolution du bilan matière avec les écarts C/E rapportés issus de la validation expérimentale du calcul du bilan matière avec DARWIN2.3 (San-Felice, 2013).

L'impact de l'ensemble des recommandations listées dans les Tableau 3.21 et Tableau 3.22 a été évalué en réalisant deux calculs d'évolution avec APOLLO2 en géométrie cellule : un premier calcul de référence est réalisé avec la bibliothèque CEA2005V4.1.1, basée sur JEFF-3.1.1, et le second est effectué avec les recommandations issues des travaux d'assimilation des données intégrales. La variation relative des concentrations entre les deux calculs est donnée sur le Tableau 3.23 pour un combustible UOX enrichi à 4,5% et un combustible MOX à teneur Pu de 6,7%, et ce pour différents taux de combustion.

En comparant ces résultats aux écarts C/E rapportés sur les Figure 3.4, Figure 3.5, Figure 3.8, Figure 3.9, Figure 3.10 ainsi que les Figures données en Annexe B, nous pouvons voir que l'évolution du calcul du bilan matière donnée dans le Tableau 3.23 va généralement dans le sens d'une réduction des écarts C/E. Une analyse plus détaillée est fournie dans les paragraphes suivants.

Isotopes de l'uranium

Nous observons une faible évolution de la concentration en ^{234}U pour le combustible UOX avec les recommandations effectuées, et un impact plus important de l'ordre de +2,5% pour le combustible MOX. L'évolution de la concentration de ^{234}U est majoritairement due à l'augmentation de la concentration en ^{238}Pu , dont il est le père par décroissance α . Rappelons toutefois que la teneur initiale en ^{234}U n'est pas forcément connue avec précision étant donnée sa faible concentration pour les combustibles UOX et MOX ; l'amélioration du calcul de la concentration de ^{234}U passe principalement par une meilleure connaissance de sa teneur initiale.

Les évaluations recommandées ont un faible impact sur la concentration de ^{235}U dans les combustibles UOX et MOX, car seule sa section efficace de capture est modifiée, or ce dernier disparaît principalement par fission en spectre REP. En revanche, l'augmentation de la capture de ^{235}U conduit à une augmentation de la concentration en ^{236}U , de l'ordre de +1,5% dans le combustible UOX. Cette évolution semble conduire à un meilleur calcul en moyenne de la concentration en ^{236}U (voir en particulier Tableau 2.6).

Tableau 3.23 – Impact des évaluations recommandées sur le calcul du bilan matière en évolution par rapport à un calcul réalisé avec JEFF-3.1.1

Rapports isotopique	UOX enrichi à 4,5%			MOX teneur Pu 6,7%		
	20 GWj/t	40 GWj/t	60 GWj/t	20 GWj/t	40 GWj/t	60 GWj/t
²³⁴ U/ ²³⁸ U	+0,0%	+0,2%	+0,7%	+2,5%	+2,8%	+2,5%
²³⁵ U/ ²³⁸ U	-0,2%	-0,4%	-0,6%	-0,1%	-0,1%	-0,1%
²³⁶ U/ ²³⁸ U	+1,7%	+1,5%	+1,2%	+1,2%	+0,9%	+0,5%
²³⁷ Np/ ²³⁸ U	+4,5%	+4,1%	+3,8%	+1,3%	+1,8%	+2,1%
²³⁸ Pu/ ²³⁸ U	+5,1%	+4,7%	+4,1%	+4,0%	+3,6%	+2,8%
²³⁹ Pu/ ²³⁸ U	+0,2%	+0,4%	+0,5%	+0,2%	+0,5%	+0,8%
²⁴⁰ Pu/ ²³⁸ U	-0,3%	-0,5%	-0,6%	-0,3%	-0,5%	-0,6%
²⁴¹ Pu/ ²³⁸ U	+0,7%	+0,7%	+0,7%	+0,5%	+0,5%	+0,6%
²⁴² Pu/ ²³⁸ U	+0,4%	-0,2%	-0,7%	-0,3%	-0,6%	-1,0%
²⁴¹ Am/ ²³⁸ U	+0,5%	-0,1%	-0,5%	-2,0%	-2,4%	-2,5%
^{242m} Am/ ²³⁸ U	+8,9%	+5,6%	+3,1%	+7,5%	+3,1%	+1,2%
²⁴³ Am/ ²³⁸ U	+3,8%	+2,4%	+1,0%	+1,4%	+0,6%	+0,0%
²⁴³ Cm/ ²³⁸ U	+9,9%	+7,0%	+4,4%	+9,5%	+5,6%	+2,8%
²⁴⁴Cm/²³⁸U	+9,2%	+7,7%	+6,2%	+5,6%	+4,5%	+3,7%
²⁴⁵ Cm/ ²³⁸ U	+9,6%	+8,4%	+7,0%	+6,2%	+5,0%	+4,1%
²⁴⁶ Cm/ ²³⁸ U	+9,7%	+8,6%	+7,2%	+6,2%	+5,0%	+4,0%
²⁴⁷ Cm/ ²³⁸ U	+10,1%	+9,2%	+8,0%	+6,7%	+5,7%	+4,8%
¹⁰³ Rh/ ²³⁸ U	-1,3%	-2,6%	-3,7%	-0,9%	-1,8%	-2,5%
¹³³ Cs/ ²³⁸ U	+4,2%	+3,4%	+2,7%	+0,1%	+0,0%	+0,0%
¹³⁴ Cs/ ²³⁸ U	+4,6%	+3,8%	+3,1%	+0,3%	+0,2%	+0,1%
¹³⁷ Cs/ ²³⁸ U	+6,7%	+5,4%	+4,4%	+0,1%	+0,1%	+0,1%
¹⁵³ Eu/ ²³⁸ U	-1,7%	-3,3%	-4,7%	-2,0%	-3,5%	-4,7%
¹⁵⁴Eu/²³⁸U	-1,4%	-6,4%	-9,8%	+3,4%	-0,8%	-4,4%
¹⁵⁵ Eu/ ²³⁸ U	+9,2%	+7,9%	+5,1%	+6,4%	+9,1%	+7,4%
¹⁵⁴ Gd/ ²³⁸ U	-1,2%	-6,0%	-9,1%	+3,5%	-0,4%	-3,6%
¹⁵⁵ Gd/ ²³⁸ U	+9,2%	+7,9%	+5,0%	+6,4%	+9,1%	+7,4%
¹⁰⁶ Ru/ ¹³⁷ Cs	-0,9%	+0,7%	+1,5%	-	-	-
¹⁴⁴ Ce/ ¹³⁷ Cs	-10,6%	-9,7%	-8,9%	-	-	-
¹⁵⁴ Eu/ ¹³⁷ Cs	-7,6%	-11,2%	-13,6%	-	-	-

Isotope du neptunium

L'augmentation de la concentration en ²³⁷Np dans les combustibles UOX et MOX est due à l'augmentation de la section de capture de l'²³⁵U et de l'²³⁶U, mais aussi à l'augmentation de la section de réaction ²³⁸U(n,2n). Cette augmentation semble améliorer en moyenne le calcul du ²³⁷Np dans les combustibles UOX, mais légèrement le dégrader dans les combustibles MOX. Par ailleurs, la tendance à l'augmentation des C/E avec le burnup ne semble pas corrigée. La réévaluation des sections de capture et de fission de l'²³⁶U fait l'objet de travaux internes au CEA, et pourrait apporter de nouveaux éléments sur le calcul de la concentration du ²³⁷Np.

Isotopes du plutonium

Une augmentation de la concentration en ^{238}Pu est observée sur le Tableau 3.23. Celle-ci est liée à l'augmentation de la capture de l' ^{236}U , mais aussi de la réaction $^{238}\text{U}(n,2n)$. La concentration du ^{238}Pu étant sous-estimée dans les UOX comme dans les MOX, cette augmentation améliore le calcul de la concentration en ^{238}Pu .

Les concentrations en ^{239}Pu et ^{242}Pu n'évoluent pratiquement pas avec les recommandations d'évaluation effectuées, ce qui est satisfaisant car ces dernières étaient déjà correctement calculées avec les données de JEFF-3.1.1. Cependant, les écarts C/E pour la concentration des ^{240}Pu et du ^{241}Pu ne sont pas complètement corrigés avec les recommandations proposées. Des études plus approfondies pourraient être menées sur l'évaluation de la section de capture du ^{240}Pu pour comprendre l'origine de ces écarts résiduels.

Isotopes de l'américium

Nous observons que les recommandations effectuées ont un impact pratiquement négligeable sur calcul de la concentration en ^{241}Am en UOX. Dans le combustible MOX, les recommandations induisent une diminution de sa concentration, dégradant légèrement le calcul de cette dernière. Ceci est dû à l'augmentation de la capture de l' ^{241}Am dans JEFF-3.2 et JEFF-3.3. Cependant, la sous-estimation de la concentration de l' ^{241}Am étant notamment liée à la légère sous-estimation de la concentration en ^{241}Pu , l'amélioration du calcul du ^{241}Pu devrait bénéficier également au calcul de la concentration en ^{241}Am .

L'augmentation de la section de capture de l' ^{241}Am conduit à une augmentation de la concentration en $^{242\text{m}}\text{Am}$. Il est cependant difficile de conclure pour l'amélioration du calcul de la concentration de l' $^{242\text{m}}\text{Am}$, étant donné que les C/E pour le calcul de sa concentration sont très dispersés. Il est important de préciser que la concentration en ^{241}Am , et celle de l' $^{242\text{m}}\text{Am}$, sont sensibles au suivi de cycle, c'est-à-dire à la modélisation fine de l'historique d'irradiation (phases d'arrêts inter-cycles, prolongation de campagne – ou *stretch-out*, ...) du combustible. Bien que cet historique soit décrit finement lors du calcul d'évolution avec DARWIN/PEPIN2, il ne l'est pas au moment de produire la SAPHYB avec APOLLO2 (pour lequel une irradiation continue est généralement choisie). Il faut donc rester prudent sur les conclusions que l'on pourrait tirer quant à l'évolution du calcul de ces isotopes.

Quant à l' ^{243}Am , une augmentation de sa concentration est observée dans le Tableau 3.23 en raison de l'augmentation de la section de capture du ^{242}Pu . Cette évolution semble conduire à un meilleur calcul de l' ^{243}Am dans les UOX comme dans les MOX, en dépit d'une sous-estimation résiduelle non-expliquée à faible taux de combustion.

Isotopes du curium

Les recommandations d'évaluation induisent une augmentation de la concentration de tous les isotopes du curium, ce qui va dans le sens d'une réduction des C/E associés à leur concentration car ces derniers sont sous-estimés. L'amélioration de la concentration en ^{243}Cm est notamment due à l'augmentation des sections de capture de l' ^{241}Am et du ^{242}Cm . Une

sous-estimation résiduelle semble persister, en particulier à faible taux de combustion, probablement liée à la sous-estimation de l' ^{241}Am .

L'amélioration de la concentration des isotopes 244 à 247 est liée à l'augmentation de la section de capture du ^{242}Pu et de l' ^{243}Am essentiellement. Une sous-estimation résiduelle du calcul de leur concentration semble persister à faible burnup, probablement due à la sous-estimation du calcul de l' ^{243}Am , qui se trouve en début de leur chaîne de formation. En moyenne, nous observons que les concentrations du ^{244}Cm et du ^{245}Cm semblent désormais correctement estimées. En revanche, l'augmentation de la concentration du ^{246}Cm et du ^{247}Cm avec les recommandations effectuées ne semble pas compenser complètement leur sous-estimation. Rappelons toutefois que de larges incertitudes sont associées aux C/E de ces isotopes, en raison de leur forte sensibilité au taux de combustion notamment (de l'ordre de 8 à 10 pour les combustibles UOX, et de 4 à 5 pour les MOX). De plus, les données nucléaires des isotopes du curium sont méconnues, en raison de leur haute radioactivité α qui rend difficile la mise en œuvre d'expériences dédiées. Il est donc probable qu'une partie des écarts persistants soient liés à une méconnaissance des données nucléaires des isotopes du curium.

Isotope du rhodium

L'augmentation de la capture du ^{103}Rh conduit à une diminution de sa concentration, mais celle-ci ne semble pas suffisante pour compenser la surestimation de sa concentration. Il est important de rester prudent sur ce nucléide car la tendance issue de l'assimilation des données intégrales, bien qu'en accord avec les travaux de l'IRSN, n'est pas compatible avec les oscillations MINERVE et les résultats du programme MAESTRO. Des travaux plus approfondis restent à mener pour mieux comprendre l'origine de la surestimation du calcul de sa concentration. Une piste d'explication éventuelle des résultats obtenus pour la section de capture du ^{103}Rh pourrait être que celui-ci est un produit de fission métallique, dont le procédé de mesure est plus complexe que pour les autres nucléides. Des travaux internes au CEA sont en cours pour déterminer si certaines mesures de rapports isotopiques de produits de fission métalliques ont pu faire l'objet de contamination.

Isotope du ruthénium

Les recommandations effectuées ont un faible impact sur le calcul du rapport $^{106}\text{Ru}/^{137}\text{Cs}$ dans le combustible UOX modélisé, ce qui est satisfaisant car celui-ci était déjà correctement calculé en moyenne. Ceci est dû à l'augmentation combinée du rendement de fission thermique du ^{239}Pu sur le ^{106}Ru et du rendement de fission thermique de l' ^{235}U sur le ^{137}Cs qui se compensent.

Isotopes du césium

Les recommandations issues des travaux d'assimilation augmentent le calcul de la concentration des ^{133}Cs , ^{134}Cs et ^{137}Cs dans les combustibles UOX, ce qui est satisfaisant car cela tend à réduire leur sous-estimation dans ces combustibles. Les concentrations de ces noyaux évoluent peu dans le combustible MOX, ce qui est satisfaisant pour le ^{133}Cs et le ^{137}Cs car ces derniers étaient correctement estimés dans ces combustibles. En revanche, la sous-

estimation du ^{134}Cs n'est pas compensée dans les combustibles MOX. Il est difficile de conclure sur la concentration de cet isotope, car la section de capture du ^{133}Cs ne semble pas à remettre en cause (voir Tableau 3.8), et car il paraît difficile de remettre en cause la capture du ^{134}Cs sans dégrader son calcul dans les combustibles UOX.

Isotope du cérium

Les recommandations effectuées diminuent le calcul du rapport $^{144}\text{Ce}/^{137}\text{Cs}$ d'environ -10% dans le combustible UOX modélisé, ce qui tend à réduire la surestimation de ce dernier. Ceci est dû à la diminution des rendements cumulés de fission thermique de l' ^{235}U et du ^{239}Pu sur le ^{144}Ce et à l'augmentation du rendement cumulé de fission thermique de l' ^{235}U sur le ^{137}Cs .

Isotopes de l'euporium

Nous observons une diminution du calcul du bilan matière de l' ^{153}Eu avec les recommandations effectuées, en raison de l'augmentation de sa capture. Son calcul est ainsi légèrement amélioré et devient satisfaisant dans les UOX comme dans les MOX en moyenne.

La concentration de l' ^{154}Eu diminue également dans le combustible UOX en raison de l'augmentation de sa section de capture, et devient également estimée de manière satisfaisante. Pour les combustibles MOX, le calcul de l' ^{154}Eu est également amélioré car la sous-estimation de la concentration en ^{154}Eu à faible taux de combustion est compensée d'une part, et la surestimation à haut taux de combustion est corrigée d'autre part. Enfin, le calcul du ratio $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$ dans les combustibles UOX diminue de -7% à -15% en fonction du burnup, et compense de manière satisfaisante la surestimation de ce dernier dans les études de validation expérimentale de DARWIN2.3.

L'augmentation de la capture de l' ^{154}Eu induit par ailleurs une hausse de la concentration en ^{155}Eu . Cette dernière est compatible avec la légère tendance à la sous-estimation en moyenne dans les combustibles UOX et corrige sa sous-estimation dans les MOX, ce qui est satisfaisant.

Isotopes du gadolinium

Concernant les isotopes du gadolinium, nous observons que le calcul de la concentration du ^{154}Gd suit les mêmes tendances que celle de l' ^{154}Eu , étant formé essentiellement par décroissance de ce dernier. De même, le calcul de la concentration du ^{155}Gd suit les mêmes tendances que celle de l' ^{155}Eu . Les conclusions pour ces nucléides sont donc les mêmes que celles pour les isotopes de l'euporium, pour lesquels une réduction de la légère sous-estimation de leur concentration est observée.

Ainsi, nous montrons dans cette section que les évaluations recommandées suite au travail d'assimilation de données intégrales permettent d'améliorer le calcul du bilan matière. Des efforts sont à poursuivre sur l'évaluation de certaines données nucléaires, notamment la section de capture du ^{240}Pu , pour permettre de comprendre l'origine de certains écarts C/E

résiduels. Les tendances exposées dans cette section pourront constituer un point de départ pour des études futures sur l'amélioration des données nucléaires et du calcul du bilan matière. Des travaux sont désormais à mener pour vérifier la compatibilité des évaluations recommandées avec d'autres applications de physique des réacteurs et du cycle.

RESUME DU CHAPITRE 3 :

- La méthode d'assimilation des données intégrales utilisée dans cette thèse repose sur une approche bayésienne analytique : les données nucléaires (connaissance *a priori*) sont ajustées à partir de l'information intégrale (vraisemblance *likelihood*) pour calculer une densité de probabilité *a posteriori* des paramètres ajustés. Cependant, l'incertitude *a posteriori* étant sous-estimée, on utilise une méthode de marginalisation analytique après l'ajustement pour tenir compte de l'incertitude des données nucléaires non-ajustées et de l'incertitude du burnup pour produire une incertitude plus réaliste sur les paramètres ajustés.
- L'application de la méthode d'assimilation des données intégrales à l'ensemble de la validation expérimentale de DARWIN2.3 nécessite de déterminer les données nucléaires à prendre en compte dans l'étude. Celles-ci sont déterminées avec l'outil CYRUS, couplé à DARWIN2.3, qui permet de construire la chaîne de filiation d'un isotope donné et donc de déterminer les données nucléaires qui vont impacter le calcul de sa concentration. Ce seront les paramètres que nous avons choisis d'ajuster. L'ensemble des incertitudes sur les autres données nucléaires, ainsi que l'incertitude sur le burnup, seront marginalisées.
- Une fois les données nucléaires déterminées, deux méthodes de calcul de sensibilités, utilisant respectivement CYRUS et APOLLO2 ont été testées sur un cas-test de calcul cellule REP-UOX en évolution. L'impact non-négligeable de l'effet du couplage Boltzmann / Bateman sur le calcul des sensibilités des concentrations des actinides aux données nucléaires a été montré. La méthode prenant en compte cet effet avec APOLLO2 a donc été retenue pour générer la base de sensibilités utilisée pour l'assimilation avec CONRAD.
- Les résultats des études d'assimilation de données intégrales suggèrent des tendances nettes sur de nombreuses données nucléaires, pour la plupart en accord avec la littérature. L'amélioration du calcul du bilan matière avec les tendances obtenues avec CONRAD a été illustrée avec deux cas d'étude, que sont le calcul de la concentration du ^{244}Cm et de ^{154}Eu . Nous avons en particulier montré que l'amélioration du calcul de ces nucléides passe par l'augmentation de la capture du ^{242}Pu , de ^{243}Am , et par l'augmentation de la capture de ^{153}Eu et de ^{154}Eu respectivement. Les travaux permettent de proposer des recommandations d'évaluation pour la prochaine version de la bibliothèque JEFF. L'utilisation de ces recommandations sur deux calculs cellule UOX et MOX en évolution permet de montrer l'amélioration du calcul de la concentration de nombreux autres actinides et produits de fission.

CHAPITRE 4 : VALIDATION DES SECTIONS EFFICACES DE FORMATION DU ^{14}C

Dans ce chapitre, nous présentons en détail les études de préconception d'un programme expérimental dédié à la validation des voies de formation du ^{14}C dans un spectre neutronique typique des REP. La faisabilité de principe d'un tel programme a été démontrée pour le réacteur expérimental MINERVE. Ce programme ne verra pas le jour dans le réacteur MINERVE pour cause d'arrêt définitif de ce dernier depuis fin 2017, mais les résultats de ce chapitre constituent une base pour un éventuel futur programme sur un autre réacteur expérimental.

CONTENU

4.1. Généralités sur le ^{14}C	- 112 -
4.2. Description de l'expérience	- 114 -
4.2.1. Présentation générale.....	- 115 -
4.2.2. Optimisation du dispositif expérimental	- 118 -
4.3. Présentation des résultats de calcul	- 124 -
4.3.1. Calcul du flux avec TRIPOLI-4®.....	- 124 -
4.3.2. Résultats obtenus	- 128 -

4.1. GENERALITES SUR LE ^{14}C

Le ^{14}C est d'intérêt pour le cycle du combustible car il contribue à la radioactivité naturelle lors des rejets effectués par les industries du nucléaire (IRSN C14, 2016). Il s'agit d'un isotope à vie longue ($T_{1/2}=5700$ ans). Dans les REP, le ^{14}C est formé :

- dans l'eau du circuit primaire par activation de l' ^{17}O naturellement présent dans l'eau (abondance de 0,038%). Il va se combiner avec l'hydrogène produit par radiolyse de l'eau en alcanes (CH_4 , C_2H_6 , ...),
- dans le combustible majoritairement *via* l'activation du ^{14}N (impuretés) et de l' ^{17}O ,
- dans les structures (gainés, grilles, embouts, internes...) *via* l'activation du ^{14}N , de l' ^{17}O et du ^{13}C selon les structures.

Dans un combustible UOX irradié jusqu'à 50 GWj/t⁵, un calcul avec le code DARWIN/PEPIN2 permet de montrer que ces voies de formation contribuent de l'ordre de 56% pour la réaction $^{17}\text{O}(n,\alpha)$ et 39% pour la réaction $^{14}\text{N}(n,p)$. Le reste de la production provient des fissions ternaires. Dans les gainés combustibles, les impuretés en azote sont responsables à elles seules de 99% de la formation du ^{14}C . Les deux réactions d'activation $^{17}\text{O}(n,\alpha)$ et $^{14}\text{N}(n,p)$ sont donc largement prépondérantes dans la formation du ^{14}C dans le combustible et la gaine.

L'étude du ^{14}C avec un programme expérimental similaire aux PIE présente des difficultés techniques liées à son comportement chimique et à ses voies de formation : le ^{14}C présente en effet un caractère volatil, qui nécessite donc des dispositifs spécifiques pour récupérer et analyser les gaz libérés. De plus, s'agissant d'un produit d'activation, il est nécessaire de connaître précisément la teneur initiale en impuretés ^{14}N , cette dernière se trouvant en dessous des limites de détection actuelles pour le combustible. À ce titre, les mesures de ^{14}C effectuées en 2003 dans le cadre du programme expérimental PRECCI (Programme de Recherche sur l'Evolution à long terme des Colis de Combustibles Irradiés) ont été interprétées avec DARWIN, mais les résultats ne sont pas complètement exploitables : le procédé expérimental qui a été utilisé n'intègre pas la récupération des gaz de dissolution, et la teneur en impuretés ^{14}N initiale du combustible irradié n'est pas connue.

Un procédé expérimental plus abouti, mis en place dans l'installation ATALANTE du CEA en 2014, permet de réaliser une mesure complète par une récupération et une analyse des gaz. Ce procédé a été utilisé dans le cadre de l'analyse de tronçons de combustibles UOX irradiés dans le réacteur Cruas. Néanmoins, la teneur en ^{14}N initiale dans le combustible reste mal connue et ne permet pas d'interpréter l'expérience précisément. Notons que des mesures de concentration en ^{14}C ont été réalisées dans le cadre du programme européen CAST, pour *CARbon-14 Source Term* (Projet CAST, 2018) portant sur les mécanismes de rejets de ^{14}C des colis de déchets. Cependant il n'est pas prévu de mesure de la teneur initiale en ^{14}N des combustibles dans ce programme.

⁵ Les teneurs en impuretés en ^{14}N considérées pour ces calculs sont de l'ordre de 10 ppm.

Pour l'ensemble de ces raisons, nous proposons dans ce chapitre une étude focalisée sur les voies de formation du ^{14}C : l'objectif est donc de valider les sections efficaces des réactions de formation du ^{14}C , à savoir $^{14}\text{N}(n,p)$ et $^{17}\text{O}(n,\alpha)$, en s'affranchissant des deux contraintes liées à la récupération des gaz de fission et à la teneur initiale en impuretés ^{14}N mal connue.

La comparaison des évaluations internationales de ces sections efficaces a été effectuée. Ces comparaisons sont données sur la Figure 4.1 pour la réaction $^{14}\text{N}(n,p)$ et sur la Figure 4.2 pour la réaction $^{17}\text{O}(n,\alpha)$.

Les évaluations JEFF-3.1.1, JEFF-3.2, JEFF-3.3, ENDF/B-VII.1 et ENDF/B-VIII.0 sont identiques pour la réaction $^{14}\text{N}(n,p)$; de même, les évaluations JEFF-3.1.1, ENDF/B-VII.1 et ENDF/B-VIII.0 sont identiques pour la réaction $^{17}\text{O}(n,\alpha)$. De manière générale, un bon accord est observé entre les différentes évaluations, si l'on exclut la section $^{17}\text{O}(n,\alpha)$ de JEFF-3.2 qui est erronée, et qui a été corrigée dans JEFF-3.3.

La formation du ^{14}C en fonction de l'énergie incidente des neutrons a été étudiée, en utilisant un spectre neutronique représentatif des REP. Les résultats sont donnés dans le Tableau 4.1, et représentent le taux de production de ^{14}C relatif de chaque domaine d'énergie. Ils illustrent bien l'importance de la contribution thermique de la production du ^{14}C sous irradiation en spectre de type REP.

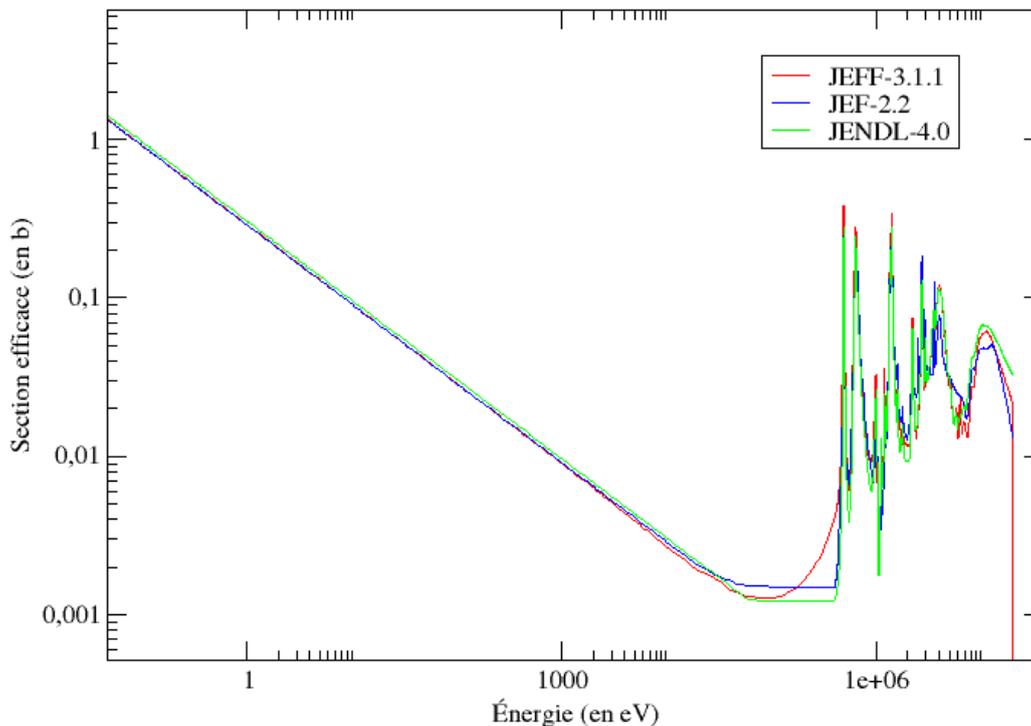


Figure 4.1 - Section efficace de la réaction $^{14}\text{N}(n,p)$

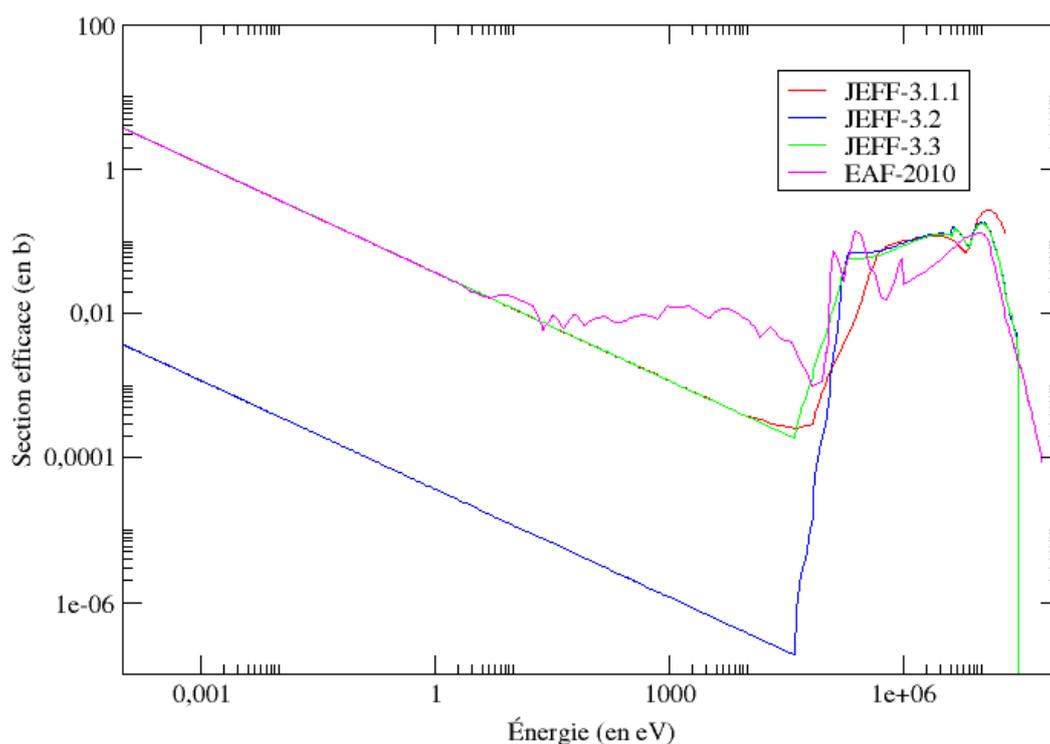


Figure 4.2 - Section efficace de la réaction $^{17}\text{O}(n,\alpha)$

Tableau 4.1 - Contribution à la production en ^{14}C sous spectre REP-UOX par réaction et par domaine énergétique avec les données de JEFF-3.1.1

Réaction	Thermique [$10^{-5}\text{eV} - 4\text{eV}$]	Épithermique [$4\text{eV} - 400\text{keV}$]	Rapide [$400\text{keV} - 20\text{ MeV}$]
$^{14}\text{N}(n,p)$	92%	4%	4%
$^{17}\text{O}(n,\alpha)$	63%	4%	34%

L'objectif du programme décrit dans ce chapitre est de fournir des éléments permettant de valider les voies de formation du ^{14}C dans un spectre neutronique des REP, en s'affranchissant des contraintes énoncées précédemment. Pour cela, nous nous intéresserons à la validation des sections efficaces de formation du ^{14}C .

4.2. DESCRIPTION DE L'EXPERIENCE

Dans cette section, nous donnons dans un premier temps un descriptif général de l'expérience proposée pour étudier la formation de ^{14}C . Dans un deuxième temps, des études d'optimisation de la configuration expérimentale sont présentées.

4.2.1. PRESENTATION GENERALE

Nous détaillons dans cette section le principe de l'expérience proposée, qui consiste en l'étude de la production de ^{14}C par les réactions $^{14}\text{N}(n,p)$ et $^{17}\text{O}(n,\alpha)$ séparément. Une revue des techniques expérimentales utilisées pour étudier les réactions de formation du ^{14}C est proposée. La technique retenue dans le cadre de cette étude pour la mesure de ^{14}C est la scintillation liquide, qui sera présentée rapidement. Les incertitudes cibles des mesures à réaliser seront détaillées.

4.2.1.1. PRINCIPE DE L'EXPERIENCE

Nous avons vu que les principales contraintes pour la validation du calcul de la concentration du ^{14}C avec le formulaire DARWIN étaient la connaissance initiale des impuretés en azote et la récupération des gaz lors de la dissolution du combustible. On se propose ici de s'affranchir de ces deux contraintes en étudiant séparément chacune des deux voies majeures de formation du ^{14}C que sont les réactions $^{14}\text{N}(n,p)$ et $^{17}\text{O}(n,\alpha)$. L'idée consiste à irradier des matériaux riches en ^{14}N et en ^{17}O , en connaissant précisément la quantité de matière initiale, et à mesurer la quantité de ^{14}C ainsi formée. Pour rappel l'abondance isotopique de l' ^{17}O est de 0,038%, ce qui implique d'utiliser un support spécifique enrichi en ^{17}O (contrairement à l' ^{14}N qui compose 99,6% de l'azote naturel). La connaissance de la quantité de ^{14}C formée nous permet de remonter au taux de réaction d'activation, puis à la section efficace qui est ce que nous cherchons. Notons qu'il s'agit là d'une mesure de section efficace moyennée sur un spectre qui sera celui de l'expérience.

On donne ici un aperçu des techniques expérimentales qui ont été employées dans le passé pour étudier ces sections efficaces.

Étude de la section $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$ (dans son état fondamental) :

- Irradiation d'une chambre à ionisation remplie d'azote avec des neutrons émis *via* les réactions $^9\text{Be}(^2\text{H},n)$ et $^7\text{Li}(^2\text{H},n)$ pour (Bonner & Brubaker, 1936), puis avec la réaction $^7\text{Li}(p,n)$ (Johnson & Barschall, 1950) pour la zone 150 keV – 2100 keV. (Gabbard, 1959) utilisent également une chambre d'ionisation remplie d'azote (ou azote – argon) avec une source $^7\text{Li}(p,n)$, $^3\text{H}(p,n)$ et $\text{D}(d,n)^3\text{He}$ pour couvrir la zone 1300 keV – 4300 keV,
- Bombardement d'une cible enrichie en ^{14}C avec des protons pour étudier la réaction inverse $^{14}\text{C}(p,n)^{14}\text{N}$ pour des énergies incidentes de 1100 keV – 2600 keV (Roseborough, 1951), puis (Sanders, 1956) pour la plage énergétique 670 keV – 3400 keV, puis (Wong, 1967) entre 6 MeV et 14 MeV,
- Irradiation d'un scintillateur gazeux rempli d'azote (Morgan, 1979),

- Irradiation par faisceaux monocinétiques d'une cible d'adénine $\text{C}_5\text{H}_5\text{N}_5$ placée dans une chambre d'ionisation (Gledenov, 1994),
- Irradiation et mesures par temps de vol sur cibles en adénine et en polyimide $\text{C}_{22}\text{H}_{10}\text{O}_5\text{N}_2$ (Wagemans, 2000).

Étude de la section $^{17}\text{O}(n,\alpha)^{14}\text{C}$:

- Bombardement α d'une cible en acétylène enrichie en ^{14}C et étude de la réaction inverse $^{14}\text{C}(\alpha,n)^{17}\text{O}$ (Bair, 1966),
- Irradiation d'une cible Nb_2O_5 réalisée par oxydation dans de l'eau enrichie à 37,5% en ^{17}O sur un morceau de Nb pur, détection des pulses α (Koehler & Graff, 1991),
- Irradiation d'un échantillon d'eau enrichie en ^{17}O à 10%, puis mesure du ^{14}C formé par scintillation liquide (Versilov, 1998),
- Irradiation à l'ILL d'échantillons gazeux enrichis en ^{17}O , mesures par temps de vol (Wagemans, 1998).

Au vu de cette revue bibliographique, nous proposons d'utiliser la technique de scintillation liquide, employée par (Versilov, 1998) pour mesurer la quantité de ^{14}C produite. En effet, cette technique est relativement peu coûteuse, facile à mettre en place et bien maîtrisée. Une description du principe de la scintillation liquide est effectuée dans la section suivante.

Les matériaux retenus pour l'étude des réactions $^{14}\text{N}(n,p)$ et $^{17}\text{O}(n,\alpha)$ sont respectivement la mélamine $\text{C}_3\text{H}_6\text{N}_6$ et l'eau enrichie en ^{17}O à 80%. Ce choix s'appuie sur la compatibilité de ces matériaux avec la mesure de scintillation liquide (voir paragraphe suivant), ainsi que sur le comportement chimique favorable du ^{14}C produit dans ces matériaux : nous voulons au maximum limiter la production de ^{14}C sous forme gazeuse pour ne pas s'exposer au risque d'en perdre une partie au moment de l'analyse.

Il est raisonnable de supposer que le ^{14}C produit dans la matrice organique de mélamine restera piégé dans cette même matrice, et combiné pour former d'autres molécules organiques. Pour l'eau enrichie, les composés formés se décomposent en une partie organique (alcanes et alcènes) et une partie inorganique ($^{14}\text{CO}_2$ essentiellement). La bibliographie n'est pas suffisamment exhaustive pour fournir des données chiffrées quant au comportement du ^{14}C formé sur l' ^{17}O et le ^{14}N (Yankwich, 1946) (Yankwich, 1956). L'hypothèse supposée conservatrice d'un rejet gazeux à hauteur de 10% de la quantité totale de ^{14}C formé dans l'eau enrichie a été adoptée par (Versilov, 1998). Cette hypothèse s'appuie sur l'ajout de soude dans l'eau enrichie permettant de dissoudre les rejets inorganiques de type $^{14}\text{CO}_2$ directement dans l'eau enrichie. Nous avons calculé le poids neutronique de l'ajout de la soude dans l'eau enrichie ; celui-ci étant négligeable, cette technique peut être reprise pour notre expérience. Il serait intéressant de prévoir une analyse du volume d'air libre dans les conteneurs de matière irradiée, et ce dans l'optique de tenir compte de toutes

les formes chimiques du ^{14}C formé. Nous verrons que le type de conteneur choisi permet de réaliser cette mesure.

4.2.1.2. DESCRIPTION DE LA SCINTILLATION LIQUIDE ET INCERTITUDES CIBLES

Dans le reste de ce chapitre, les contraintes et les discussions autour de la mesure par scintillation liquide découlent des échanges ayant eu lieu dans le cadre de cette thèse avec le Laboratoire d'Analyses Radiochimiques et Chimiques (LARC) du Département d'Etudes des Combustibles (DEC) de Cadarache, et sont par conséquent propres à leur dispositif expérimental.

La mesure par scintillation liquide permet un seuil de détection en activité assez bas, de l'ordre de 0,1 Bq avec une précision associée à la mesure avoisinant 10% (à 1σ). Pour obtenir une précision autour de 5% (à 1σ) sur la concentration en ^{14}C , il est nécessaire d'obtenir une activité d'1 Bq en ^{14}C pour l'échantillon mesuré. Nous verrons dans la suite de ce chapitre qu'une incertitude de mesure de 5% prédomine devant les autres postes d'incertitude. Cette valeur d'incertitude de mesure de 5% à 1σ est retenue comme objectif.

La détection par scintillation liquide est fondée sur la conversion des particules β^- émises par la désexcitation du ^{14}C (ou tout autre noyau ayant une radioactivité du même type) en un signal lumineux plus facilement détectable. Pour cela l'échantillon de matière contenant le noyau radioactif est introduit dans un liquide scintillant. Les électrons des molécules du milieu scintillant vont alors être excités par le rayonnement β^- , et vont émettre un rayonnement lumineux en se désexcitant à leur tour. Ces photons seront détectés par des photomultiplicateurs qui permettront d'amplifier et de convertir le signal lumineux en un signal électrique mesurable. Ce principe est résumé schématiquement sur la Figure 4.3.

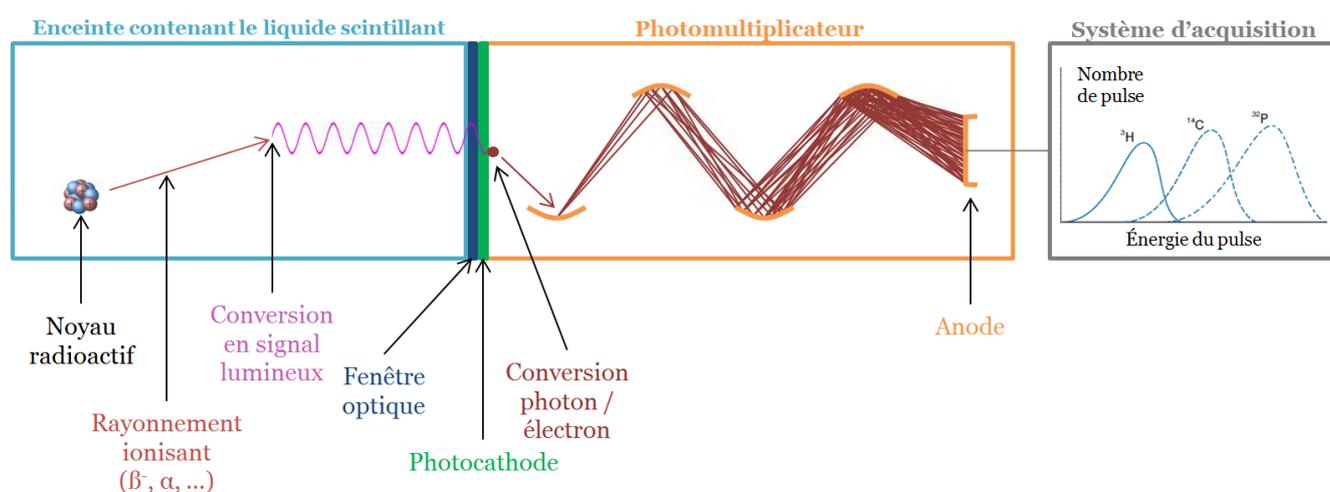


Figure 4.3 - Principe de la mesure par scintillation liquide

Le faible parcours dans la matière des β^- (de l'ordre de 10 mm par MeV dans l'eau) impose des tailles d'échantillons faibles. Ceci limite la quantité de matière irradiée qui peut être

introduite dans le liquide scintillant. Dans le cas de la mélamine, la technique la plus appropriée pour récupérer le ^{14}C est le piégeage du $^{14}\text{CO}_2$ dans le liquide scintillant, issu de la combustion de la mélamine. Une quantité maximale de 50 mg de carbone peut être utilisée par mesure de scintillation liquide, soit l'équivalent de 175 mg de mélamine brûlée. Ceci impose d'avoir une activité d'1 Bq en ^{14}C dans 175 mg de mélamine pour atteindre nos objectifs en termes d'incertitude de 5% à 1σ , soit une activité volumique de 9 Bq/cm³ de mélamine. Pour l'eau enrichie, l'activité volumique cible est de l'ordre du Bq/cm³ : l'eau enrichie peut en effet être directement versée dans le liquide scintillant pour des volumes de l'ordre de quelques cm³.

Un point important est la formation parasite de tritium ^3H , qui par décroissance β^- (demi-vie 12,3 ans) va contribuer au spectre final mesuré : en effet les énergies moyennes des spectres d'émission du ^3H et du ^{14}C sont proches, respectivement de 5,707 keV et de 49,475 keV dans JEFF-3.1.1. Un calcul avec le module INVERSION de DARWIN/PEPIN2 montre que le tritium sera formé dans l'eau enrichie à 80% par les réactions $^{17}\text{O}(n,^3\text{H})$ et $^{16}\text{O}(n,^3\text{H})$ respectivement à hauteur de 69% et 31%. Il est donc important de ne pas négliger la voie de production sur l' ^{17}O . La réaction $^{14}\text{N}(n,^3\text{H})$ est la principale contributrice de la production de tritium dans la mélamine (>99,9%).

Lors des études de conception du programme expérimental, il s'agira de vérifier que l'activité en ^3H n'excède pas un certain niveau par rapport à celle du ^{14}C afin de limiter l'interférence entre les deux spectres d'émission de ces isotopes. Dans le cas contraire, la séparation du ^3H et du ^{14}C s'imposera, ce qui n'est pas souhaitable car ce processus introduira forcément des biais supplémentaires dans le procédé expérimental. La tolérance maximale sur le ^3H est une activité du même ordre que celle du ^{14}C .

4.2.2. OPTIMISATION DU DISPOSITIF EXPERIMENTAL

La source de neutrons retenue pour l'irradiation de la mélamine et de l'eau enrichie en ^{17}O est le réacteur expérimental MINERVE. Après avoir succinctement présenté les caractéristiques du réacteur expérimental et du massif critique retenu pour l'irradiation, nous montrerons les choix de conception qui ont été faits pour optimiser le dispositif expérimental et exploiter au mieux les caractéristiques du cœur du réacteur MINERVE.

4.2.2.1. PRESENTATION DU REACTEUR MINERVE

Le réacteur MINERVE, donné sur la Figure 4.4, est une maquette critique, c'est-à-dire un réacteur expérimental de faible puissance (<100 W) permettant de fournir un flux neutronique significatif pour effectuer des expérimentations, mais qui reste faible pour limiter l'irradiation des matériaux. Dans MINERVE, le flux atteint au centre du cœur est de l'ordre de $10^9 \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$, à comparer à un flux REP qui est de l'ordre de $10^{13} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$. Malgré

cette faible intensité, le flux est suffisant pour pouvoir observer et mesurer des phénomènes représentatifs des réacteurs de puissance.

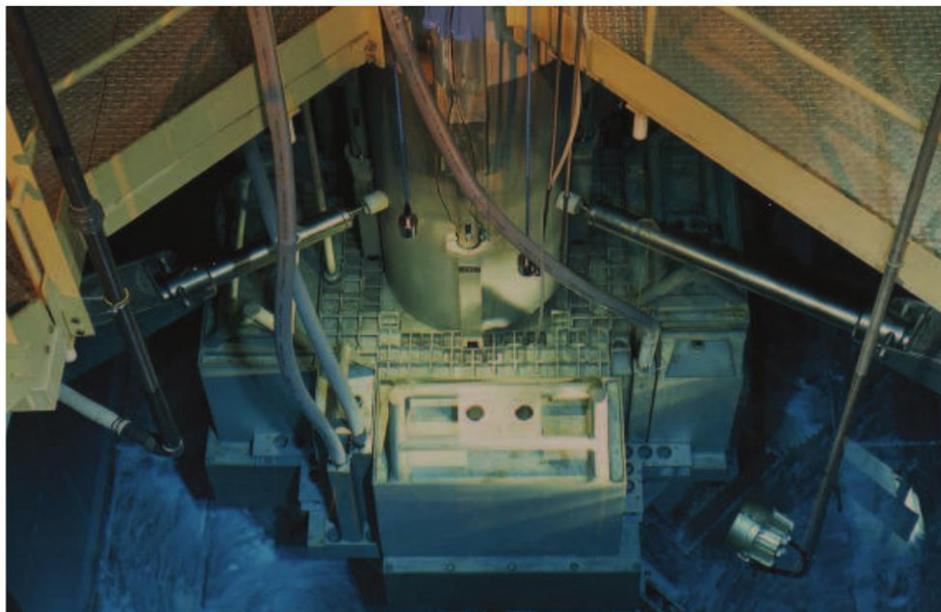


Figure 4.4 - Cœur du réacteur expérimental MINERVE

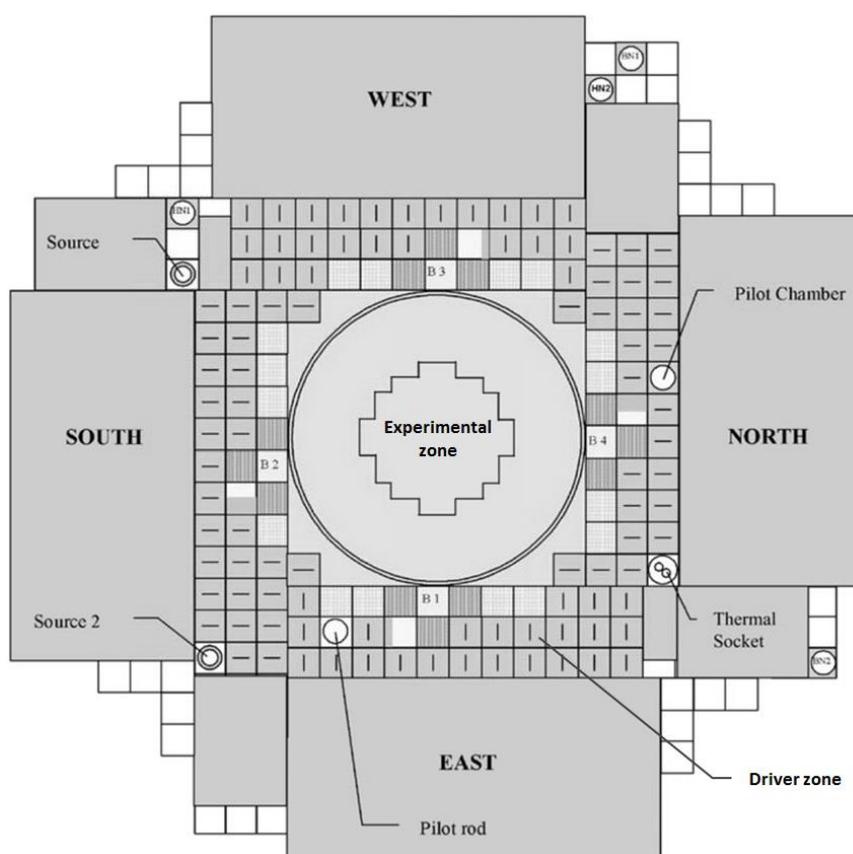


Figure 4.5 - Vue en coupe axiale du réacteur MINERVE, extraite de (Gruel, 2011)

Le réacteur se décompose en deux parties principales, comme indiqué sur la Figure 4.5 : la zone centrale (désignée par *Experimental zone*) où différents réseaux de crayons peuvent être chargés selon le type de cœur de réacteur à simuler, et la zone périphérique nourricière (désignée par *Driver zone*), constituée de plaques d'alliage aluminium / uranium enrichi de 90 à 93% en ^{235}U . Cette dernière est entourée de réflecteurs en graphite.

Le massif expérimental R1-UO₂ a été utilisé pour les études de conception, car il est bien caractérisé et fournit un spectre neutronique représentatif des REP-UOX (Bernard & Leconte, 2009). Un espace aménagé au centre du cœur est généralement prévu pour pouvoir disposer un échantillon à irradier.

Pour la conception de ce programme expérimental, nous avons choisi de disposer un panier porte-échantillon en alliage d'aluminium au centre du cœur, qui accueillera les conteneurs de matière à irradier. L'aluminium étant quasiment transparent aux neutrons, le flux neutronique n'est pas perturbé par ce matériau. Les paragraphes suivants donnent des détails techniques sur le panier et sur les conteneurs de matière à irradier.

4.2.2.2. TYPE DE CONTENEUR ET POSITIONNEMENT

Notons tout d'abord que les conteneurs doivent nécessairement être irradiés au niveau du plan médian du cœur, et ce pour deux raisons. D'une part la hauteur fissile du cœur MINERVE n'est que de 50 cm, ce qui induit des gradients de flux importants ailleurs que sur la zone centrale du cœur. Se positionner au centre du cœur sur une zone de flux quasiment plat, comme l'illustre la Figure 4.6, permet de réduire l'incertitude sur le positionnement des échantillons. D'autre part les niveaux d'activité requis suggèrent d'optimiser le temps d'irradiation et donc de se placer à la zone où le flux est le plus intense pour obtenir l'activité la plus élevée possible pour minimiser la durée d'exploitation du réacteur.

Comme abordé précédemment, une partie du ^{14}C formé lors de l'irradiation de l'eau enrichie comme de la mélamine peut vraisemblablement passer en phase gazeuse, même si cette proportion est supposée faible. Les conteneurs doivent donc vérifier l'ensemble des critères suivants : i) être transparents aux neutrons, et donc ne pas perturber localement le flux neutronique, ii) être étanches et retenir les éventuels rejets de carbone gazeux et iii) permettre l'expansion et la récupération des gaz potentiellement formés.

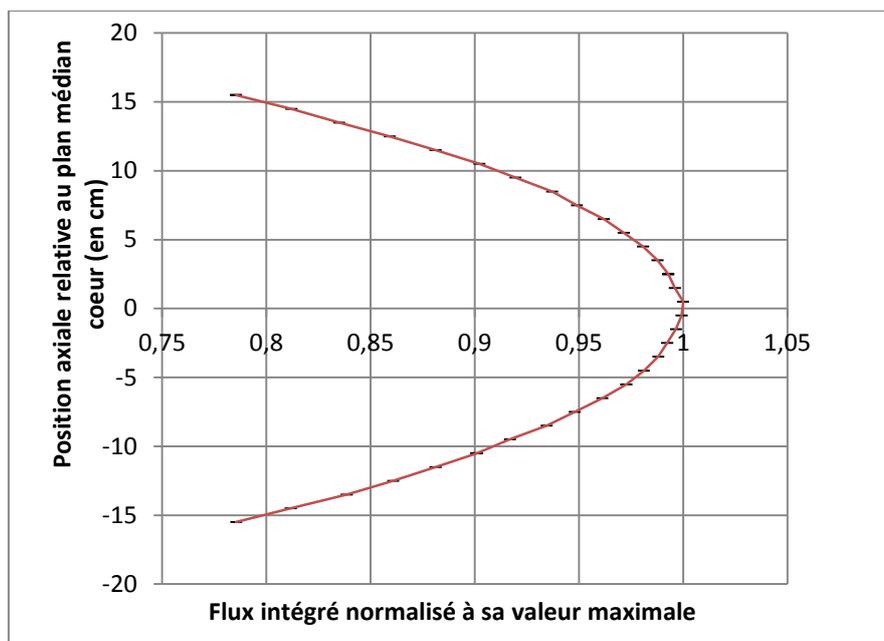


Figure 4.6 - Allure du flux axial total en fonction de la hauteur dans un des tubes du panier (incertitudes à 1σ fournies par TRIPOLI-4®)

Ces critères orientent les choix de conception des conteneurs vers un alliage en aluminium qui respecte le critère de transparence aux neutrons, fermé par vissage et dont l'étanchéité sera garantie par un joint de silicone (faible poids neutronique) pressé au moment du vissage. La récupération des gaz pour analyse et détection du ^{14}C oriente également vers un bouchon avec un septum, c'est-à-dire laissant apparent une partie du joint en silicone qu'il suffirait de percer avec une aiguille pour extraire le volume libre présent dans le conteneur pour analyse. Une illustration du type de bouchon qui pourrait être utilisé est proposée sur la Figure 4.7.



Figure 4.7 - Bouchon en aluminium disposant d'un septum

Plusieurs configurations ont été étudiées pour tester le nombre et la disposition des conteneurs dans le cœur de MINERVE. Les contraintes vis-à-vis du nombre de mesures d'activité à réaliser pour avoir une précision suffisante ainsi que celles décrites au paragraphe précédent ont guidé le choix de la géométrie et de la disposition des conteneurs.

La prise en compte des contraintes de nombre et de positionnement nous amène à un compromis d'un panier percé de quatre canaux, au sein desquels huit échantillons de matière sont disposés, répartis sur deux étages. Des cales en alliage d'aluminium sont utilisées pour permettre aux échantillons d'atteindre le plan médian cœur. Une illustration de ce dispositif est donnée sur les Figure 4.8 et Figure 4.9. Les dimensions des conteneurs sont données dans le Tableau 4.2.

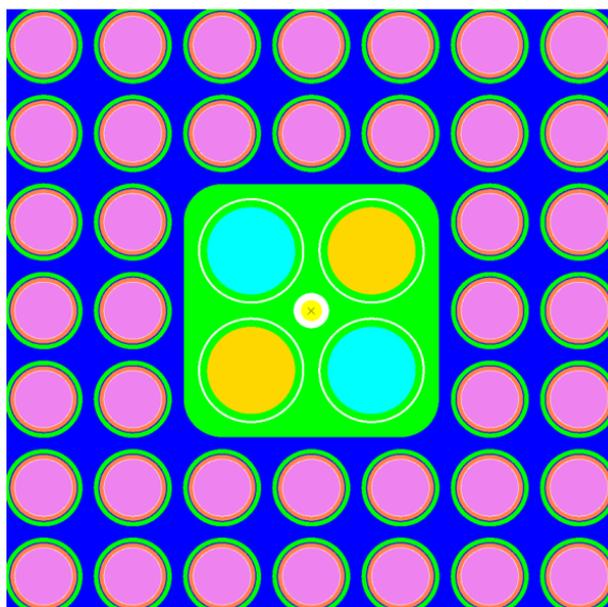


Figure 4.8 - Vue en coupe axiale du panier au centre du réseau de crayons combustibles R1UO₂

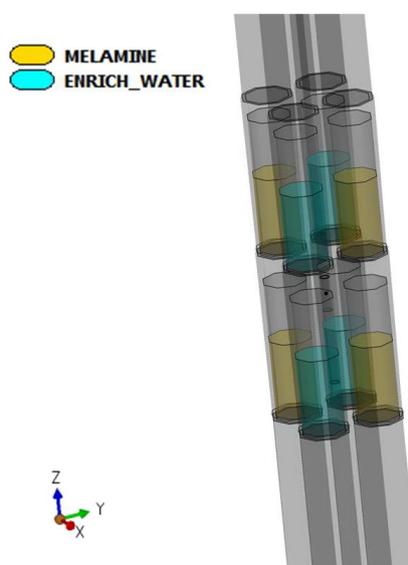


Figure 4.9 - Vue 3D des canaux percés dans le panier inséré dans le cœur du réacteur MINERVE

Tableau 4.2 - Dimension des conteneurs de matière à irradier en aluminium

Rayon interne	Rayon externe	Hauteur totale	Hauteur bouchon + joint	Epaisseur fond	Volume de matière	Volume libre
6,2 mm	7,2 mm	55 mm	9 mm	1 mm	3 cm ³	≈2,4 cm ³

Avec ces données, et en considérant que les échantillons sont disposés de sorte à ce que leur contenu soit le plus proche possible du plan médian cœur, l'incertitude sur la connaissance du flux peut être estimée à partir du calcul de traverse axiale de flux de la Figure 4.6. Dans la plage [-4 cm ; +4 cm] autour du plan médian, qui contient les matières à irradier, la variation maximale du flux est estimée à 2,5%. Nous considérerons donc une incertitude de 2,5% sur la valeur moyenne du flux au sein du matériau à irradier.

Dès lors, ayant quatre échantillons d'eau enrichie et quatre échantillons de mélamine, nous pouvons utiliser un de chaque pour effectuer une analyse fine des gaz qu'il contient. En fonction de la proportion de ^{14}C dans les gaz par rapport à la quantité totale (gaz + matériau irradié), nous pourrions trancher s'il est nécessaire d'effectuer cette analyse pour chaque échantillon. Le nombre total d'échantillons assure une répétabilité correcte de la mesure.

Avec ces dimensions, le haut des conteneurs supérieurs se trouvent à une altitude de +6,9 cm par rapport au plan médian, et le bas des conteneurs inférieurs se trouvent à une altitude de -4,1 cm de sorte que les matières à irradier soient exactement de part et d'autres du plan médian (même flux vu dans la partie supérieure que dans la partie inférieure).

4.2.2.3. SUIVI DE FLUENCE

Nous verrons dans la section 4.3 que la durée d'irradiation nécessaire pour obtenir les activités cibles se chiffre à plusieurs dizaines d'heures. Les contraintes d'exploitation du réacteur imposent d'effectuer plusieurs cycles d'irradiation de 6h. Ceci ne pose pas de problème du point de vue de l'activation, car la durée entre les cycles d'irradiation, pouvant être de quelques jours, est très négligeable devant la demi-vie du ^{14}C . La réalisation de plusieurs cycles nécessite toutefois d'effectuer un suivi de fluence, afin de pouvoir modéliser l'irradiation précisément et pouvoir estimer la quantité de ^{14}C produite en fonction de la fluence.

Pour répondre au besoin de suivi de l'historique de puissance discontinu, plusieurs dispositifs peuvent être utilisés. Tout d'abord, la chambre à fission étalonnée située dans la chaussette thermique (*thermal socket* sur la Figure 4.5) peut être utilisée pour effectuer un suivi de puissance. Un canal central dans le panier (voir Figure 4.8) est réalisé, afin de disposer une chambre à fission au centre du cœur. Cette dernière sera utilisée pour faire un suivi précis de la fluence au niveau des échantillons, et sera calibrée par rapport à celle de la chaussette thermique.

Des fils d'or pourront également être disposés au centre cœur à plusieurs stades des cycles d'irradiation : en effet, la section efficace thermique de la réaction $^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$ est un standard en neutronique, c'est-à-dire qu'elle est connue de manière très précise (0,2% environ au point thermique) et permet d'être utilisée pour la dosimétrie. Il est raisonnable de viser une incertitude d'1% pour le niveau de flux du réacteur MINERVE. La demi-vie du ^{198}Au est de 2,69 jours ce qui ne permet pas de faire du suivi fin de fluence sur plusieurs cycles d'irradiation, mais permet ponctuellement de vérifier que la puissance cœur reste stable au cours des différentes irradiations. Nous proposons donc l'utilisation d'au moins trois fils d'or, en début, milieu et fin d'irradiation pour suivre le niveau de puissance cœur. Il pourrait également être envisagé d'autres types de dosimètre, comme par exemple des dosimètres au ^{59}Co , au ^{55}Mn , ou à l' ^{155}In ayant une demi-vie de 5,27 ans, 2,58 heures et 54,2 minutes. Étant donné l'ordre de grandeur des durées d'irradiation pour notre étude, nous avons choisi de nous orienter sur l'utilisation de l'or.

4.3. PRESENTATION DES RESULTATS DE CALCUL

Nous présentons dans cette section les résultats des calculs effectués pour la conception de l'expérience d'activation du ^{14}C . Ces calculs sont effectués en deux étapes : la première consiste à calculer un flux moyen multi-groupes avec TRIPOLI-4® dans les échantillons étudiés, la deuxième consiste à utiliser ce flux moyen pour réaliser un calcul d'activation avec DARWIN2.3. En effet, les chaînes de filiation utilisées par le formulaire DARWIN2.3 sont complètes et permettent de prendre en compte toutes les voies de formation et disparition du ^{14}C .

4.3.1. CALCUL DU FLUX AVEC TRIPOLI-4®

La première étape des calculs de conception consiste à calculer un flux multi-groupes avec TRIPOLI-4®. Ces calculs ont été menés avec deux types de modélisation, que nous présenterons dans un premier temps. La méthode de normalisation du flux est présentée dans un deuxième temps.

4.3.1.1. MODELISATIONS UTILISEES

Deux modélisations TRIPOLI-4® du réacteur MINERVE ont été utilisées pour la conception de l'expérience. La première est une version complète et détaillée de chaque zone du cœur. La deuxième, simplifiée, présente un niveau de détail équivalent uniquement sur le réseau de crayons R1-UO₂ et la zone centrale, le reste (zone nourricière, réflecteurs graphite et piscine) étant homogénéisé par blocs. Ces deux modélisations sont respectivement représentées sur les Figure 4.10 et Figure 4.11.

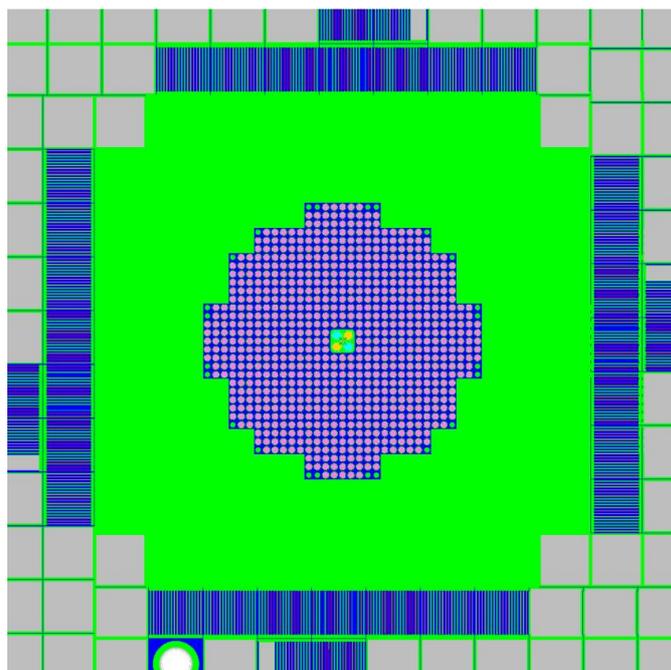


Figure 4.10 - Géométrie TRIPOLI-4® complète du cœur MINERVE en coupe axiale

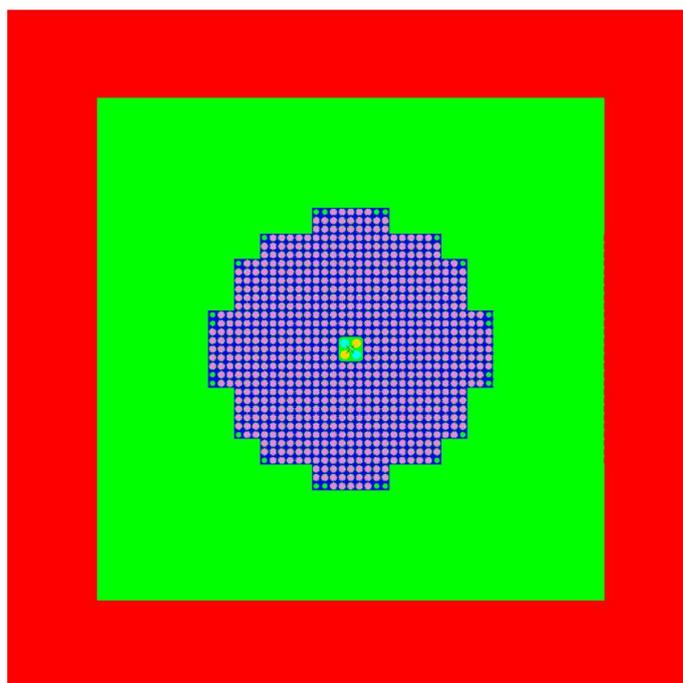


Figure 4.11 - Géométrie TRIPOLI-4® simplifiée du cœur MINERVE en coupe axiale

Le modèle simplifié a été utilisé pour établir les premiers calculs de conception sur le type de panier, le positionnement et la nature des échantillons, dont les résultats sont donnés à la section 4.2.2. En effet, ce dernier présente l'avantage de fournir des résultats proches du modèle complet avec un temps de calcul diminué d'un facteur 4 environ. Le modèle détaillé a

été utilisé quant à lui pour calculer plus finement le flux à la position des matériaux à irradier, dans la configuration déterminée avec le modèle simplifié.

4.3.1.2. NORMALISATION A LA PUISSANCE CŒUR

La normalisation du flux calculé par TRIPOLI-4® à la puissance du réacteur s'effectue grâce à des données fournies par le Service de Physique Expérimentale en charge de l'exploitation du réacteur MINERVE. Ces données proviennent du programme expérimental MAESTRO (Leconte, 2013-2) dont la configuration est analogue (réseau R1-UO₂, panier central en aluminium) du programme expérimental pour le ¹⁴C.

Les données sont présentées dans le Tableau 4.3. Elles proviennent également d'une chambre à fission contenant un dépôt d'²³⁵U et située au centre du cœur. Un facteur de normalisation $f_{MAESTRO}$ a été calculé pour la chambre à fission du programme MAESTRO. Il permet de passer d'un nombre de fissions par seconde (c/s) pour une masse de dépôt d'²³⁵U donnée en g, à une puissance totale du cœur, et s'exprime donc en W.(c/s).g.

Tableau 4.3 - Données expérimentales MAESTRO pour la normalisation

Masse d' ²³⁵ U dans chambre (en g)	Nombre de coups / seconde	Puissance expérimentale du cœur (en W)	Facteur $f_{MAESTRO}$ (en W.(c/s) ⁻¹ .g)
4,500.10 ⁻⁶	411,47	28,99	3,17.10 ⁻⁷

De manière générale, le facteur f dépend peu de la puissance du cœur et est une constante propre à la configuration du réacteur sur les gammes de puissance de MINERVE. Ainsi, quelle que soit la puissance P à laquelle le cœur opère, pour une masse m_{235U} d'²³⁵U dans la chambre à fission en centre cœur, le taux de fissions $\tau_{f,c\grave{a}f}$ dans la chambre sera tel que :

$$f = \frac{P}{\tau_{f,c\grave{a}f}} \cdot m_{235U} \quad (4.1)$$

En calculant le taux de fissions global dans l'ensemble des milieux fissiles du cœur $\tau_{f,coeur}$, avec TRIPOLI-4®, nous pouvons déduire la puissance cœur calculée $P_{calc,coeur}$:

$$P_{calc,coeur} = \tau_{f,coeur} \cdot \bar{E}_f \quad (4.2)$$

Avec \bar{E}_f qui représente l'énergie moyenne dégagée par fission, que nous prenons égale à 200 MeV. En substituant P par l'expression de $P_{calc,coeur}$ dans l'équation (4.1), nous obtenons :

$$f = 2,84 \cdot 10^{-7} W \cdot (c/s) \cdot g \quad (4.3)$$

Ce résultat paraît cohérent compte tenu de la teneur plus importante de matériaux hydrogénés dans le panier MAESTRO par rapport à celui proposé pour l'irradiation de la

mélamine et de l'eau enrichie. Ceci conduit à une thermalisation plus importante des neutrons et donc à un taux de fissions dans la chambre à fissions au centre du cœur plus important. Il est donc logique d'avoir un facteur f du même ordre de grandeur que celui de MAESTRO, mais légèrement plus faible.

Dès lors, ce facteur f peut être utilisé pour normaliser le flux. Considérons une constante α exprimant le rapport entre le taux de fissions réel dans la chambre à fissions en centre cœur et le taux de fissions calculé par TRIPOLI-4® dans la chambre à fission en centre cœur $\tau_{f,c\grave{a}f}^{T4}$. Nous supposons un fonctionnement du réacteur de MINERVE à 80W, qui est le maximum autorisé, afin de maximiser la fluence pour une durée d'exploitation donnée. En notant $\tau_{f,c\grave{a}f}^{80W}$ le taux de fissions réel dans la chambre à fissions en centre cœur, et en substituant $\tau_{f,c\grave{a}f}$ par $\tau_{f,c\grave{a}f}^{80W}$ dans l'équation (4.1), il vient :

$$\alpha = \frac{\tau_{f,c\grave{a}f}^{80W}}{\tau_{f,c\grave{a}f}^{T4}} = \frac{80W}{\tau_{f,c\grave{a}f}^{T4} \cdot f} \cdot m_{235U} \quad (4.4)$$

On obtient donc une expression de la constante de normalisation entre le taux de fissions réel que nous mesurons à 80W et le taux de fissions calculé par TRIPOLI-4®. Cette constante de normalisation correspond également à la constante de normalisation du flux. Si nous considérons $\Sigma_{f,g}^{235U}$ la section efficace macroscopique de fission de l' ^{235}U à dilution infinie dans la chambre à fission (pas d'autoprotection dans la chambre à fission étant donnée l'épaisseur du dépôt d' ^{235}U) dans le groupe g et φ_g le flux intégré sur le groupe g , le taux de fissions dans la chambre en centre cœur à 80W peut s'écrire selon :

$$\tau_{f,c\grave{a}f}^{80W} = \sum_{g=1}^{281} N_{235U} \cdot \sigma_{f,g}^{235U} \cdot \varphi_g^{80W} \quad (4.5)$$

Si $\tilde{\varphi}_g$ correspond au flux intégré sur le groupe g calculé par TRIPOLI-4®, et que l'on combine (4.4) et (4.5), le même taux de fissions peut également s'écrire selon :

$$\tau_{f,c\grave{a}f}^{80W} = \alpha \cdot \tau_{f,c\grave{a}f}^{T4} = \alpha \cdot \sum_{g=1}^{281} N_{235U} \sigma_{f,g}^{235U} \varphi_g^{T4} \quad (4.6)$$

Par identification pour chaque groupe, il vient alors :

$$\forall g \in \llbracket 1, 281 \rrbracket, \varphi_g^{80W} = \alpha \cdot \varphi_g^{T4} \quad (4.7)$$

Ainsi, en calculant avec TRIPOLI-4® le taux de fissions en centre cœur, et le flux dans les échantillons, nous pouvons successivement : i) déterminer le facteur de normalisation α à partir de la conservation du facteur f pour évaluer le rapport entre le taux de fissions réel à la puissance de 80W et celui calculé par TRIPOLI-4®, ii) se servir de cette constante α pour calculer un flux multigroupe « réel » $\{\varphi_g^{80W} \mid g \in \llbracket 1, 281 \rrbracket\}$ à une puissance de

fonctionnement du réacteur MINERVE de 80W à partir du flux multi-groupes calculé par TRIPOLI-4® $\{\varphi_g^{T4} \mid g \in [1,281]\}$.

4.3.2. RESULTATS OBTENUS

Nous utilisons le solveur DARWIN/PEPIN2 pour effectuer un calcul d'activation de 1 cm³ de matériau pour chaque échantillon, avec les flux calculés au préalable avec TRIPOLI-4®. La puissance est normalisée à 80W avec la méthode décrite à la section précédente. Ces données nous permettent de calculer la quantité de ^{14}C produite dans les échantillons contenant l'eau enrichie et la mélamine. Des calculs d'activation complémentaires ont été également réalisés pour estimer la quantité de ^{14}C produite dans le reste du cœur, afin de la comparer à celle produite dans les échantillons.

4.3.2.1. ACTIVITE DANS LES ECHANTILLONS

A partir de la configuration étudiée, nous pouvons déterminer les activités obtenues pour une irradiation à 80W de 6h, c'est-à-dire une journée de fonctionnement du réacteur MINERVE, et une irradiation équivalente à 8 jours de fonctionnement du réacteur. Pour cela, DARWIN/PEPIN2 est utilisé pour simuler l'irradiation d'un cm³ d'eau enrichie et d'un cm³ de mélamine à partir des flux TRIPOLI-4®. Les résultats sont répertoriés dans le Tableau 4.4. Nous rappelons que les activités volumiques cibles pour la mélamine et l'eau enrichie sont respectivement de 9 Bq/cm³ et d'1 Bq/cm³ (voir section 4.2.1.2).

Nous observons qu'au bout de 8 jours d'irradiation la mélamine et l'eau enrichie dépassent le niveau d'activité cible garantissant le niveau d'incertitude expérimentale visé. Cette durée de 8 jours permet également d'assurer une marge raisonnable quant au passage éventuel d'une partie du ^{14}C en phase gazeuse dans les conteneurs : cette marge en activité recouvre l'hypothèse supposée conservatrice de (Versilov, 1998) d'une quantité de 10% du ^{14}C formé dans l'eau enrichie qui passe en phase gazeuse.

En pratique, plusieurs sources d'incertitude seront à associer à la mesure de l'activité en ^{14}C . Toutes ces sources d'incertitude sont rappelées ici :

- Incertitude statistique liée à la mesure par scintillation liquide : légèrement inférieure à 5% (à 1σ) pour les activités cible obtenues au bout de 8 jours d'irradiation,
- Incertitude liée à la position axiale (et donc à la fluence moyenne) des échantillons : de l'ordre de 2,5% (à 1σ),
- Incertitude liée à la mesure de la fluence dans la chambre à fission en centre cœur : de l'ordre de 2% (à 1σ)
- Incertitude sur la concentration initiale en ^{17}O et en ^{14}N : inférieures à 0,1%.

Ces incertitudes supposées indépendantes se combinent quadratiquement et donnent une incertitude totale avoisinant les 5,9% à 1σ , qui correspond à l'incertitude cible fixée (voir section 4.2.1.2).

Notons enfin que les quantités prévues de ^{14}C et ^3H dans la mélamine n'imposent a priori pas de séparer ces deux noyaux car les activités obtenues sont du même ordre de grandeur pour ces deux isotopes. Nous pouvons donc nous affranchir d'une étape de séparation supplémentaire.

Tableau 4.4 - Résultats des calculs d'activité du ^{14}C et du ^3H en fonction du matériau irradié et de la durée d'irradiation

Résultats pour une journée d'irradiation (=6h)		
Matériau	Activité volumique en ^{14}C (Bq/cm ³)	Activité volumique en ^3H (Bq/cm ³)
Mélamine – $\text{C}_3\text{H}_6\text{N}_6$	2,0	2,7
Eau enrichie – H_2^{17}O	0,19	0,04
Résultats pour 8 jours d'irradiation (=48h)		
Matériau	Activité volumique en ^{14}C (Bq/cm ³)	Activité volumique en ^3H (Bq/cm ³)
Mélamine – $\text{C}_3\text{H}_6\text{N}_6$	16,0	21,6
Eau enrichie – H_2^{17}O	1,6	0,32

Ainsi, l'expérience proposée dans ce chapitre démontre la faisabilité d'une expérience permettant valider les voies de formation du ^{14}C pour une durée d'irradiation de 8 jours à 80W dans le réacteur MINERVE. Cette expérience présente l'avantage d'être relativement facile à mettre en œuvre, pourvu que la durée d'irradiation soit assurée.

4.3.2.2. ESTIMATION DE LA PRODUCTION EN ^{14}C HORS ECHANTILLONS

Dans le cadre d'études préliminaires pour établir le dossier de sûreté de l'expérience, nous avons également calculé la production du ^{14}C dans le reste du cœur MINERVE. La formation de ^{14}C par activation directe de l' ^{17}O naturellement présent dans l'eau de la piscine réacteur et des lames d'eau, de la totalité du graphite présent dans MINERVE, et de l'azote contenu dans les volumes d'air du réacteur, a été calculée. Les taux de réaction directement calculés par TRIPOLI-4® sont directement rapportés à une durée d'irradiation de 48h.

La concentration en ^{13}C du graphite choisie est celle de l'abondance naturelle du ^{13}C , ce qui est conservatif vis-à-vis de plus de 57 années de fonctionnement de MINERVE (de 1959 à 1976 à Fontenay aux Roses et de 1977 à 2017 à Cadarache) et donc de l'activation du ^{12}C en ^{13}C sur cette

durée. Notons également que seule l'activation du ^{13}C a été étudiée ici, en utilisant les sections efficaces du ^{13}C de l'évaluation JEFF-3.2 (JEFF-3.1.1 ne contenant que le C naturel).

Les résultats de cette étude sont présentés dans le Tableau 4.5. Nous observons que l'activité en ^{14}C contenue dans la totalité des échantillons irradiés est bien inférieure à la quantité de ^{14}C produite dans le reste du cœur et donc à l'activité des matériaux qui composent le réacteur (ordre de grandeur : facteur > 2 entre les deux termes). Notons par ailleurs que cet ordre de grandeur est conservatif pour les raisons évoquées précédemment.

Tableau 4.5 – Comparaison de l'activité en ^{14}C induite par activation des échantillons et des structures du réacteur MINERVE pour 48h d'irradiation

Matériau irradié	Voie de formation du ^{14}C testée	Activité totale en ^{14}C (Bq)
Mélatamine et eau enrichie des échantillons	$^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$ et $^{17}\text{O}(n,\alpha)^{14}\text{C}$	208
Quantité d'eau totale dans le réacteur (sauf eau enrichie)	$^{17}\text{O}(n,\alpha)^{14}\text{C}$	224
Graphite	$^{13}\text{C}(n,\gamma)^{14}\text{C}$	240
Quantité d'air totale dans le réacteur	$^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$	32

Cette étude suggère ainsi que la quantité de ^{14}C produite dans les échantillons est inférieure à celle produite par l'activation naturelle du réacteur MINERVE. Malheureusement, le référentiel de sûreté de MINERVE n'a pas permis la production de ^{14}C dans les conteneurs, bien que d'une part la quantité produite soit faible vis-à-vis de l'activation des structures du cœur et que d'autre part toutes les précautions soient prises pour rendre étanches les conteneurs en aluminium.

4.3.2.3. PERSPECTIVES

L'expérience n'a pas pu être réalisée bien que la faisabilité de principe ait été démontrée, et ce en raison de la faible disponibilité du réacteur MINERVE en 2017 car sollicité pour une autre programme expérimental. Pour autant, la faisabilité étant acquise, il est possible d'envisager une expérience similaire sur un autre réacteur expérimental : le CEA a par exemple déjà établi des collaborations avec le Řež Research Center en République Tchèque, qui dispose de deux réacteurs de faible puissance qui pourraient être des candidats potentiels.

Le CEA examine actuellement l'ensemble des possibilités en termes de réacteurs disponibles et de collaborations potentielles pour pallier la fermeture d'EOLE et MINERVE pour les années à venir et en attendant le développement du réacteur ZEPHYR. Dans ce cadre, l'expérience proposée dans ce chapitre pourrait être adaptée et réalisée dans un autre réacteur expérimental.

RESUME DU CHAPITRE 4 :

- Le ^{14}C est un nucléide formé dans les combustibles REP par activation des impuretés azote *via* la réaction $^{14}\text{N}(n,p)$ et par l'activation de l' ^{17}O naturellement présent *via* la réaction $^{17}\text{O}(n,\alpha)$. Le calcul de la concentration en ^{14}C dans le combustible avec DARWIN2.3 n'est pas validé expérimentalement aujourd'hui, en l'absence de mesures exploitables. Les principaux freins à cela sont à ce jour une méconnaissance de la concentration initiale en impuretés ^{14}N dans le combustible (car inférieure au seuil de détection).
- Nous proposons une expérience permettant de s'affranchir des deux contraintes précédentes, le but étant de valider les sections efficaces des réactions $^{14}\text{N}(n,p)$ et $^{17}\text{O}(n,\alpha)$ contribuant à la formation du ^{14}C , avec une précision cible de l'ordre de 5%. Pour cela, nous proposons d'irradier de la mélamine, riche en ^{14}N , et l'eau enrichie en ^{17}O à 80%. Une mesure par scintillation liquide de l'activité en ^{14}C dans les échantillons irradiés permet de remonter, moyennant la connaissance du flux, au taux de réaction d'activation. La faisabilité de cette expérience a été démontrée pour le réacteur expérimental MINERVE avec un flux neutronique représentatif des REP : la précision cible est atteinte et garantie pour une irradiation de 8 jours à une puissance de 80 W.
- Le programme expérimental n'a pas pu être réalisé dans le réacteur MINERVE. Pour autant, la faisabilité démontrée dans ce chapitre pourra constituer une base de travail pour exporter cette conception dans un autre réacteur expérimental.

CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES

Rappel de contexte

Le formulaire de calcul DARWIN2.3 a été développé au CEA avec le soutien de ses partenaires industriels pour répondre à l'ensemble des besoins liés au cycle du combustible. Il calcule le bilan matière en évolution, ainsi que différentes grandeurs physiques d'intérêt pour le cycle qui en découlent, à savoir la puissance résiduelle, les émissions et spectres α , β , γ , neutrons, les activités, et la radio-toxicité. La spécificité du calcul du bilan matière vient du grand nombre d'isotopes (plusieurs milliers) qui entrent en jeu, et donc des données nucléaires associées, et du couplage des équations de Boltzmann et de Bateman.

La validation expérimentale du calcul du bilan matière se fait par comparaison avec des mesures de rapports isotopiques réalisées sur des tronçons de combustibles irradiés en réacteur de puissance. Les éléments de validation expérimentale disponibles montrent que le calcul de la concentration de certains nucléides d'intérêt pour la physique des REP et du cycle associé pourrait être amélioré. C'est dans ce contexte d'amélioration de la précision des calculs effectués avec le formulaire DARWIN2.3 qu'ont été réalisés ces travaux de thèse.

Proposition de voies d'amélioration du calcul du bilan matière

En s'appuyant sur la méthode VVQI traditionnellement utilisée pour assurer la maîtrise des biais et des incertitudes de calcul des formulaires de neutronique, plusieurs voies d'amélioration de l'estimation du bilan matière avec DARWIN2.3 peuvent être identifiées :

- L'ajustement des données nucléaires à partir de la validation expérimentale du formulaire DARWIN2.3,
- La proposition de nouvelles expériences pour valider les données nucléaires impliquées dans la formation de nucléides pour lesquels nous ne disposons pas d'expérience pour valider le calcul de la concentration.

Les travaux de cette thèse ont porté, dans un premier temps, sur une étude d'assimilation des données intégrales de l'ensemble de la validation expérimentale du formulaire DARWIN2.3. Ceci permet de ré-estimer certaines données nucléaires et d'émettre des recommandations d'évolution d'évaluations. Dans un deuxième temps, une étude de faisabilité d'une expérience pour valider les sections efficaces impliquées dans la formation du ^{14}C avec le formulaire DARWIN2.3 a également été réalisée.

Assimilation des données intégrales

Une analyse des sources d'incertitudes à prendre en compte dans le processus d'assimilation des données intégrales a été effectuée. Ces incertitudes peuvent être classées en trois catégories :

- Les incertitudes sur les données nucléaires,
- Les incertitudes liées à la mesure et à la méthodologie d'interprétation des expériences post-irradiation (PIE),
- Les incertitudes « de modélisation » : il s'agit de sources d'incertitude associées aux modèles de calcul implémentés dans les solveurs de calculs de DARWIN2.3.

Une approche bayésienne analytique a par la suite été utilisée pour effectuer une assimilation de l'ensemble de la validation expérimentale de DARWIN2.3 avec le code d'analyse des données nucléaires CONRAD. Celle-ci repose sur deux étapes de calcul. Dans un premier temps, les données nucléaires sont ajustées avec une méthode des moindres carrés généralisés. Nous avons choisi de combiner les incertitudes liées à la mesure, à la méthodologie d'interprétation des PIE, et les incertitudes « de modélisation » afin de corréliser les écarts Calcul / Expérience lors de cette étape d'ajustement des données nucléaires. Dans un deuxième temps, les incertitudes des données nucléaires non-ajustées sont prises en compte en dehors de la procédure d'ajustement, à travers une méthode de marginalisation analytique.

L'analyse des résultats de l'assimilation des données intégrales permet de dégager des tendances statistiquement significatives sur certaines données nucléaires. Ces tendances concernent essentiellement les sections efficaces de capture des actinides et les rendements cumulés de fission thermique des actinides majeurs, et sont résumées sur le Tableau 5.1. La plupart de ces tendances sont en accord avec les données de la littérature, notamment issues des programmes de validation de la bibliothèque JEFF-3.1.1 (mesures d'oscillation, d'activation, ...). Sur la base de ces résultats, des recommandations d'évaluation de données nucléaires ont été effectuées.

Nous montrons avec un calcul APOLLO2 en géométrie cellule que l'utilisation de l'ensemble des évaluations recommandées suite au travail d'assimilation des données intégrales va généralement dans le sens d'une réduction des écarts C/E pour le calcul du bilan matière. Nous montrons en effet une amélioration du calcul de la concentration de certains actinides d'intérêt pour le cycle du combustible, comme par exemple l'²³⁶U, le ²³⁸Pu, l'²⁴³Am, ou encore les isotopes du curium. Une amélioration du calcul de certains produits de fission d'intérêt pour le cycle du combustible est également observée comme par exemple pour les isotopes du césium, de l'euporium, du gadolinium.

Les recommandations d'évaluation pour les sections efficaces pourront être proposées pour les futures versions de JEFF. Concernant les rendements de fission, il est plus difficile de conclure : en effet, certaines tendances obtenues par assimilation des données intégrales

paraissent élevées par rapport à l'incertitude *a priori* que nous avons de certains rendements de fission dans JEFF-3.1.1.

Tableau 5.1 - Résumé des tendances significatives à 1σ obtenues par assimilation des données intégrales de la validation expérimentale de DARWIN2.3

Tendance significative à 1σ obtenue	Donnée nucléaire ajustée
<i>Entre -10% et -5%</i>	$y_c(^{144}\text{Ce}, ^{239}\text{Pu})$
<i>Entre -5% et -3%</i>	$y_c(^{144}\text{Ce}, ^{235}\text{U})$
<i>Entre -3% et 0%</i>	-
<i>Entre 0% et +3%</i>	$^{236}\text{U}(n, \gamma)$
<i>Entre +3% et +5%</i>	$^{238}\text{U}(n, 2n)$ $^{240}\text{Pu}(n, \gamma)$ $^{242}\text{Pu}(n, \gamma)$
<i>Entre +5% et +10%</i>	$^{243}\text{Am}(n, \gamma)$ $^{103}\text{Rh}(n, \gamma)$ $y_c(^{106}\text{Ru}, ^{239}\text{Pu})$ $y_c(^{133}\text{Cs}, ^{235}\text{U})$ $^{153}\text{Eu}(n, \gamma)$ $^{154}\text{Eu}(n, \gamma)$
<i>Plus de +10%</i>	$^{237}\text{Np}(n, 2n)$ $^{241}\text{Am}(n, \gamma)$ $^{242}\text{Cm}(n, \gamma)$ $^{245}\text{Cm}(n, \gamma)$ $^{247}\text{Cm}(n, \gamma)$

Validation des voies de formation du ^{14}C

Le calcul avec DARWIN2.3 de la concentration en ^{14}C , qui est un nucléide d'intérêt pour le cycle du combustible, n'est pas validé expérimentalement à ce jour. L'absence de données expérimentales exploitables dépend de deux causes principales : les difficultés à récupérer le ^{14}C produit (car une partie de ce dernier est en phase gazeuse), et la méconnaissance de la teneur initiale en impuretés en ^{14}N dans le combustible, car inférieure au seuil de détection. Nous proposons donc un programme expérimental permettant de s'affranchir de ces limites, ayant pour objectif la validation des sections efficaces de formation du ^{14}C .

L'expérience proposée consiste en l'irradiation de mélamine $\text{C}_3\text{H}_6\text{N}_6$ riche en ^{14}N , ainsi qu'en l'irradiation d'eau enrichie ^{17}O , afin de pouvoir étudier séparément les réactions $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$ et $^{17}\text{O}(n,\alpha)^{14}\text{C}$. L'irradiation de ces matériaux produit du ^{14}C qui est un émetteur β^- , que nous pouvons détecter avec un procédé de scintillation liquide.

La faisabilité de principe d'un tel programme est démontrée dans cette thèse pour une irradiation dans la maquette critique MINERVE. Les résultats des travaux de conception indiquent qu'un niveau d'activité suffisant est obtenu pour atteindre une incertitude expérimentale cible de 5% pour une durée d'irradiation d'environ 48h. Cependant, en raison d'un manque de temps lié à l'arrêt définitif du réacteur MINERVE en 2017, le programme n'a pas pu être réalisé.

Éléments de perspectives

Les évaluations recommandées dans cette thèse sont déduites des travaux d'assimilation des données intégrales réalisés *via* l'exploitation de l'ensemble de la validation expérimentale du calcul du bilan matière avec DARWIN2.3. Il sera intéressant de tester la compatibilité de ces évaluations avec d'autres domaines d'application de physique des réacteurs et du cycle, comme par exemple sur des calculs de criticité. Cette démarche est très importante en vue de la proposition de ces évaluations pour les futures versions de JEFF. Pour certaines des données nucléaires étudiées dans cette thèse, comme par exemple la section efficace de capture du ^{103}Rh , nous avons vu qu'il est difficile de conclure pleinement sur les tendances obtenues lors de l'assimilation des données intégrales. Des travaux spécifiques sont à prévoir sur ces données nucléaires pour pouvoir expliquer certains écarts C/E.

Concernant la base de validation expérimentale du formulaire DARWIN2.3, il sera important de fournir des points de mesure supplémentaires pour un certain nombre de nucléides d'intérêt pour le cycle du combustible, et ce à travers l'analyse de nouvelles PIE. En effet, pour certains produits de fission métalliques d'intérêt pour le cycle (^{109}Ag , ^{101}Ru notamment), il est difficile d'extraire une tendance sur les données nucléaires en raison de la dispersion des écarts C/E entre eux. Des travaux internes au CEA sont en cours pour déterminer si des mesures de ratios isotopiques peuvent avoir subi une contamination au cours du procédé d'analyse. De nouvelles analyses de produits de fission métalliques sont prévues pour 2020 et pourront également apporter des éléments en ce sens.

Nous avons vu par ailleurs que le calcul de certains nucléides d'intérêt pour le cycle du combustible avec DARWIN2.3 n'est pas validé expérimentalement. C'est le cas par exemple du ^3H , du ^{14}C , du ^{36}Cl ou encore du ^{60}Co . Une feuille de route pour exprimer les besoins en matière de données nucléaires et recenser les installations susceptibles de pouvoir répondre à ces besoins est en cours d'élaboration au CEA. Il est nécessaire de pouvoir inclure des besoins du cycle du combustible dans cette feuille de route. À ce titre, l'expérience sur le ^{14}C présentée dans cette thèse est un bon candidat pour cette feuille de route étant donné que sa faisabilité de principe a été démontrée. Il faudra poursuivre les actions en ce sens pour d'autres noyaux d'intérêt pour le cycle du combustible.

Enfin, de nouvelles fonctionnalités seront disponibles dans la future plateforme DARWIN3, incluant le code APOLLO3 et solveur d'évolution MENDEL. En particulier, une méthode de calcul des sensibilités à partir du flux adjoint et des concentrations adjointes est en cours de développement. Elle permettra de calculer directement la sensibilité du bilan matière aux données nucléaires, mais aussi de toutes les grandeurs physiques qui découlent du bilan

matière (puissance résiduelle notamment). Cette méthode ouvrira de nouvelles perspectives sur les calculs de sensibilité multi-groupes des grandeurs physiques aux données nucléaires pour les calculs en évolution, et donc sur l'assimilation de données intégrales multi-groupes.

ANNEXE A. PARAMETRES MARGINALISES DANS L'ASSIMILATION DES DONNEES INTEGRALES

Tableau A.1 - Liste des paramètres marginalisés lors de l'assimilation des données intégrales, et incertitudes associées (à 1σ)

Paramètre	Incertitude relative (%)	Paramètre	Incertitude relative (%)
$^{100}\text{Ru}(n, \gamma)$	10.0	$y_c(^{143}\text{Pr}, ^{239}\text{Pu})$	1.1
$^{101}\text{Ru}(n, \gamma)$	10.0	$y_c(^{143}\text{Pr}, ^{241}\text{Pu})$	2.1
$^{108}\text{Pd}(n, \gamma)$	12.4	$y_c(^{144}\text{Ce}, ^{241}\text{Pu})$	2.3
$^{109}\text{Ag}(n, \gamma)$	2.7	$y_c(^{145}\text{Nd}, ^{235}\text{U})$	1.1
$^{129}\text{I}(n, \gamma)$	8.5	$y_c(^{145}\text{Nd}, ^{239}\text{Pu})$	1.1
$^{134}\text{Cs}(n, \gamma)$	10.9	$y_c(^{145}\text{Nd}, ^{241}\text{Pu})$	2.9
$^{135}\text{Cs}(n, \gamma)$	5.9	$y_c(^{146}\text{Nd}, ^{235}\text{U})$	1.0
$^{135}\text{Xe}(n, \gamma)$	8.7	$y_c(^{146}\text{Nd}, ^{239}\text{Pu})$	1.0
$^{142}\text{Nd}(n, \gamma)$	2.0	$y_c(^{146}\text{Nd}, ^{241}\text{Pu})$	2.6
$^{143}\text{Nd}(n, \gamma)$	2.0	$y_c(^{147}\text{Nd}, ^{235}\text{U})$	1.8
$^{145}\text{Nd}(n, \gamma)$	5.0	$y_c(^{147}\text{Nd}, ^{239}\text{Pu})$	1.9
$^{147}\text{Nd}(n, \gamma)$	15.4	$y_c(^{147}\text{Nd}, ^{241}\text{Pu})$	4.2
$^{147}\text{Pm}(n, \gamma)$	19.0	$y_c(^{148}\text{Nd}, ^{235}\text{U})$	0.7
$^{147}\text{Sm}(n, \gamma)$	1.9	$y_c(^{148}\text{Nd}, ^{239}\text{Pu})$	1.0
$^{148}\text{Nd}(n, \gamma)$	7.3	$y_c(^{148}\text{Nd}, ^{241}\text{Pu})$	3.4
$^{148}\text{Pm}(n, \gamma)$	13.2	$y_c(^{149}\text{Pm}, ^{235}\text{U})$	2.0
$^{148\text{m}}\text{Pm}(n, \gamma)$	5.0	$y_c(^{149}\text{Pm}, ^{239}\text{Pu})$	2.5
$^{149}\text{Sm}(n, \gamma)$	1.1	$y_c(^{149}\text{Pm}, ^{241}\text{Pu})$	4.9
$^{150}\text{Sm}(n, \gamma)$	3.1	$y_c(^{150}\text{Nd}, ^{235}\text{U})$	1.0
$^{151}\text{Eu}(n, \gamma)$	15.0	$y_c(^{150}\text{Nd}, ^{239}\text{Pu})$	1.3
$^{151}\text{Sm}(n, \gamma)$	6.3	$y_c(^{150}\text{Nd}, ^{241}\text{Pu})$	2.8
$^{152}\text{Sm}(n, \gamma)$	2.9	$y_c(^{151}\text{Pm}, ^{235}\text{U})$	1.7
$^{153}\text{Eu}(n, \gamma)$	5.0	$y_c(^{151}\text{Pm}, ^{239}\text{Pu})$	2.3
$^{154}\text{Gd}(n, \gamma)$	6.0	$y_c(^{151}\text{Pm}, ^{241}\text{Pu})$	28.4
$^{155}\text{Eu}(n, \gamma)$	19.6	$y_c(^{152}\text{Sm}, ^{235}\text{U})$	1.1
$^{155}\text{Gd}(n, \gamma)$	3.8	$y_c(^{152}\text{Sm}, ^{239}\text{Pu})$	2.9
$^{156}\text{Eu}(n, \gamma)$	143	$y_c(^{152}\text{Sm}, ^{241}\text{Pu})$	7.3
$^{156}\text{Gd}(n, \gamma)$	30.0	$y_c(^{153}\text{Eu}, ^{235}\text{U})$	4.8
$^{157}\text{Gd}(n, \gamma)$	5.0	$y_c(^{153}\text{Eu}, ^{239}\text{Pu})$	7.9
$^{158}\text{Gd}(n, \gamma)$	10.0	$y_c(^{153}\text{Eu}, ^{241}\text{Pu})$	57

Annexe A. Paramètres marginalisés dans l'assimilation des données intégrales

$^{232}\text{U}(n, f)$	15.0	$y_c(^{154}\text{Sm}, ^{235}\text{U})$	3.2
$^{232}\text{U}(n, \gamma)$	30.0	$y_c(^{154}\text{Sm}, ^{239}\text{Pu})$	4.2
$^{234}\text{U}(n, \gamma)$	3.1	$y_c(^{154}\text{Sm}, ^{241}\text{Pu})$	23.7
$^{235}\text{U}(n, f)$	0.32	$y_c(^{155}\text{Eu}, ^{235}\text{U})$	4.2
$^{236}\text{Pu}(n, f)$	15	$y_c(^{155}\text{Eu}, ^{239}\text{Pu})$	17.1
$^{236}\text{U}(n, f)$	21.3	$y_c(^{156}\text{Gd}, ^{235}\text{U})$	1.7
$^{237}\text{Np}(n, \gamma)$	4.5	$y_c(^{156}\text{Gd}, ^{239}\text{Pu})$	6.5
$^{238}\text{Pu}(n, f)$	12.0	$y_c(^{156}\text{Gd}, ^{241}\text{Pu})$	130
$^{238}\text{U}(n, f)$	2.3	$y_c(^{157}\text{Gd}, ^{235}\text{U})$	7.2
$^{238}\text{U}(n, \gamma)$	0.85	$y_c(^{157}\text{Gd}, ^{239}\text{Pu})$	10.7
$^{239}\text{Pu}(n, f)$	1.3	$y_c(^{157}\text{Gd}, ^{241}\text{Pu})$	94
$^{241}\text{Pu}(n, f)$	1.5	$y_c(^{158}\text{Gd}, ^{235}\text{U})$	13.8
$^{242m}\text{Am}(n, f)$	4.6	$y_c(^{158}\text{Gd}, ^{239}\text{Pu})$	15.9
$^{242m}\text{Am}(n, \gamma)$	23.3	$y_c(^{158}\text{Gd}, ^{241}\text{Pu})$	70
$^{243}\text{Cm}(n, f)$	5.5	$y_c(^{160}\text{Gd}, ^{235}\text{U})$	15.3
$^{247}\text{Cm}(n, f)$	50	$y_c(^{160}\text{Gd}, ^{239}\text{Pu})$	15.2
$^{95}\text{Mo}(n, \gamma)$	4.4	$y_c(^{160}\text{Gd}, ^{241}\text{Pu})$	42.9
$y_c(^{101}\text{Ru}, ^{235}\text{U})$	1.7	$y_c(^{79}\text{Se}, ^{235}\text{U})$	10.8
$y_c(^{101}\text{Ru}, ^{239}\text{Pu})$	4.8	$y_c(^{79}\text{Se}, ^{239}\text{Pu})$	16.6
$y_c(^{101}\text{Ru}, ^{241}\text{Pu})$	5.8	$y_c(^{79}\text{Se}, ^{241}\text{Pu})$	30.7
$y_c(^{103}\text{Ru}, ^{235}\text{U})$	2.7	$y_c(^{90}\text{Sr}, ^{235}\text{U})$	2.3
$y_c(^{103}\text{Ru}, ^{239}\text{Pu})$	1.2	$y_c(^{90}\text{Sr}, ^{239}\text{Pu})$	2.7
$y_c(^{103}\text{Ru}, ^{241}\text{Pu})$	4.9	$y_c(^{90}\text{Sr}, ^{241}\text{Pu})$	4.9
$y_c(^{103}\text{Ru}, ^{241}\text{Pu})$	11.7	$y_c(^{93}\text{Zr}, ^{235}\text{U})$	1.4
$y_c(^{106}\text{Ru}, ^{235}\text{U})$	2.6	$y_c(^{93}\text{Zr}, ^{239}\text{Pu})$	3.4
$y_c(^{107}\text{Pd}, ^{235}\text{U})$	4.3	$y_c(^{93}\text{Zr}, ^{241}\text{Pu})$	5.2
$y_c(^{107}\text{Pd}, ^{239}\text{Pu})$	5.8	$y_c(^{95}\text{Zr}, ^{235}\text{U})$	1.1
$y_c(^{107}\text{Pd}, ^{241}\text{Pu})$	6.0	$y_c(^{95}\text{Zr}, ^{239}\text{Pu})$	2.0
$y_c(^{108}\text{Pd}, ^{235}\text{U})$	5.2	$y_c(^{95}\text{Zr}, ^{241}\text{Pu})$	3.8
$y_c(^{108}\text{Pd}, ^{239}\text{Pu})$	5.8	$y_c(^{99}\text{Mo}, ^{235}\text{U})$	1.5
$y_c(^{108}\text{Pd}, ^{241}\text{Pu})$	8.8	$y_c(^{99}\text{Mo}, ^{239}\text{Pu})$	0.90
$y_c(^{109}\text{Ag}, ^{235}\text{U})$	6.5	$y_c(^{99}\text{Mo}, ^{241}\text{Pu})$	4.4
$y_c(^{109}\text{Ag}, ^{239}\text{Pu})$	16.4	BurnUp	2.0
$y_c(^{109}\text{Ag}, ^{241}\text{Pu})$	14.6	$\tau(^{106}\text{Ru})$	0.26
$y_c(^{125}\text{Sb}, ^{235}\text{U})$	5.2	$\tau(^{125}\text{Sb})$	0.0090
$y_c(^{125}\text{Sb}, ^{239}\text{Pu})$	12.8	$\tau(^{129m}\text{Te})$	0.30
$y_c(^{126}\text{Sn}, ^{235}\text{U})$	9.5	$\tau(^{134}\text{Cs})$	0.030
$y_c(^{126}\text{Sn}, ^{239}\text{Pu})$	17.9	$\tau(^{135}\text{I})$	0.30
$y_c(^{126}\text{Sn}, ^{241}\text{Pu})$	26.3	$\tau(^{135}\text{Xe})$	0.22
$y_c(^{129}\text{I}, ^{235}\text{U})$	4.5	$\tau(^{137}\text{Cs})$	0.10
$y_c(^{129}\text{I}, ^{239}\text{Pu})$	6.1	$\tau(^{144}\text{Ce})$	0.070
$y_c(^{129}\text{I}, ^{241}\text{Pu})$	28.0	$\tau(^{147}\text{Nd})$	0.091
$y_c(^{133}\text{Cs}, ^{241}\text{Pu})$	2.7	$\tau(^{147}\text{Pm})$	0.0076
$y_c(^{135}\text{Cs}, ^{235}\text{U})$	3.4	$\tau(^{148m}\text{Pm})$	0.34
$y_c(^{135}\text{Cs}, ^{239}\text{Pu})$	3.2	$\tau(^{154}\text{Eu})$	0.044

Annexe A. Paramètres marginalisés dans l'assimilation des données intégrales

$y_c(^{135}\text{Cs}, ^{241}\text{Pu})$	3.4	$\tau(^{155}\text{Eu})$	0.29
$y_c(^{135}\text{I}, ^{235}\text{U})$	3.4	$\tau(^{156}\text{Eu})$	0.53
$y_c(^{135}\text{I}, ^{239}\text{Pu})$	3.7	$\tau(^{236}\text{Pu})$	0.21
$y_c(^{135}\text{I}, ^{241}\text{Pu})$	3.4	$\tau(^{237}\text{U})$	0.15
$y_c(^{135}\text{Xe}, ^{235}\text{U})$	3.4	$\tau(^{239}\text{Np})$	0.17
$y_c(^{135}\text{Xe}, ^{239}\text{Pu})$	3.2	$\tau(^{241}\text{Pu})$	0.28
$y_c(^{135}\text{Xe}, ^{241}\text{Pu})$	3.4	$\tau(^{242}\text{Cm})$	0.043
$y_c(^{137}\text{Cs}, ^{241}\text{Pu})$	2.2	$\tau(^{95}\text{Nb})$	0.018
$y_c(^{140}\text{La}, ^{235}\text{U})$	1.5	$\tau(^{95}\text{Zr})$	0.0094
$y_c(^{140}\text{La}, ^{239}\text{Pu})$	1.1	$\tau(^{99}\text{Mo})$	0.015
$y_c(^{140}\text{La}, ^{241}\text{Pu})$	1.9	<i>Branching Ratio</i> ($^{242}\text{Am} \rightarrow ^{242}\text{Cm}$)	0.72
$y_c(^{142}\text{Ce}, ^{235}\text{U})$	1.7	<i>Isomeric Ratio</i> ($^{147}\text{Pm} \rightarrow ^{148m}\text{Pm}$)	15
$y_c(^{142}\text{Ce}, ^{239}\text{Pu})$	1.1	<i>Isomeric Ratio</i> ($^{237}\text{Np} \rightarrow ^{236m}\text{Np}$)	20
$y_c(^{142}\text{Ce}, ^{241}\text{Pu})$	2.9	<i>Isomeric Ratio</i> ($^{241}\text{Am} \rightarrow ^{242m}\text{Am}$)	5
$y_c(^{143}\text{Pr}, ^{235}\text{U})$	1.4		

ANNEXE B. ÉVOLUTION DES ECARTS C/E AVEC LES TENDANCES OBTENUES APRES AJUSTEMENT ET MARGINALISATION AVEC CONRAD

Nous avons illustré dans le Chapitre 3 l'impact des tendances obtenues sur les données nucléaires par assimilation des données intégrales avec CONRAD sur le calcul du bilan matière du ^{244}Cm et de l' ^{154}Eu . Cet impact est pour rappel quantifié par CONRAD, qui recalcule les écarts C/E sur le bilan matière avec les paramètres obtenus après ajustement et marginalisation. Nous pouvons alors voir l'évolution des C/E avant et après ajustement et marginalisation.

Dans cette Annexe, nous proposons de compléter les informations du Chapitre 3 en donnant l'évolution des écarts C/E pour des nucléides autres que le ^{244}Cm ou l' ^{154}Eu , à savoir les ^{234}U , ^{235}U , ^{236}U , ^{237}Np , ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu , ^{241}Am , $^{242\text{m}}\text{Am}$, ^{243}Am , ^{242}Cm , ^{243}Cm , ^{245}Cm , ^{246}Cm , ^{247}Cm , ^{103}Rh , ^{106}Ru , ^{133}Cs , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{144}Ce , ^{153}Eu , ^{155}Eu , ^{154}Gd , ^{155}Gd . Une réduction du biais C/E sur le calcul de la concentration des nucléides cités est généralement observée, et illustre l'amélioration du calcul du bilan matière avec les tendances obtenues après ajustement et marginalisation.

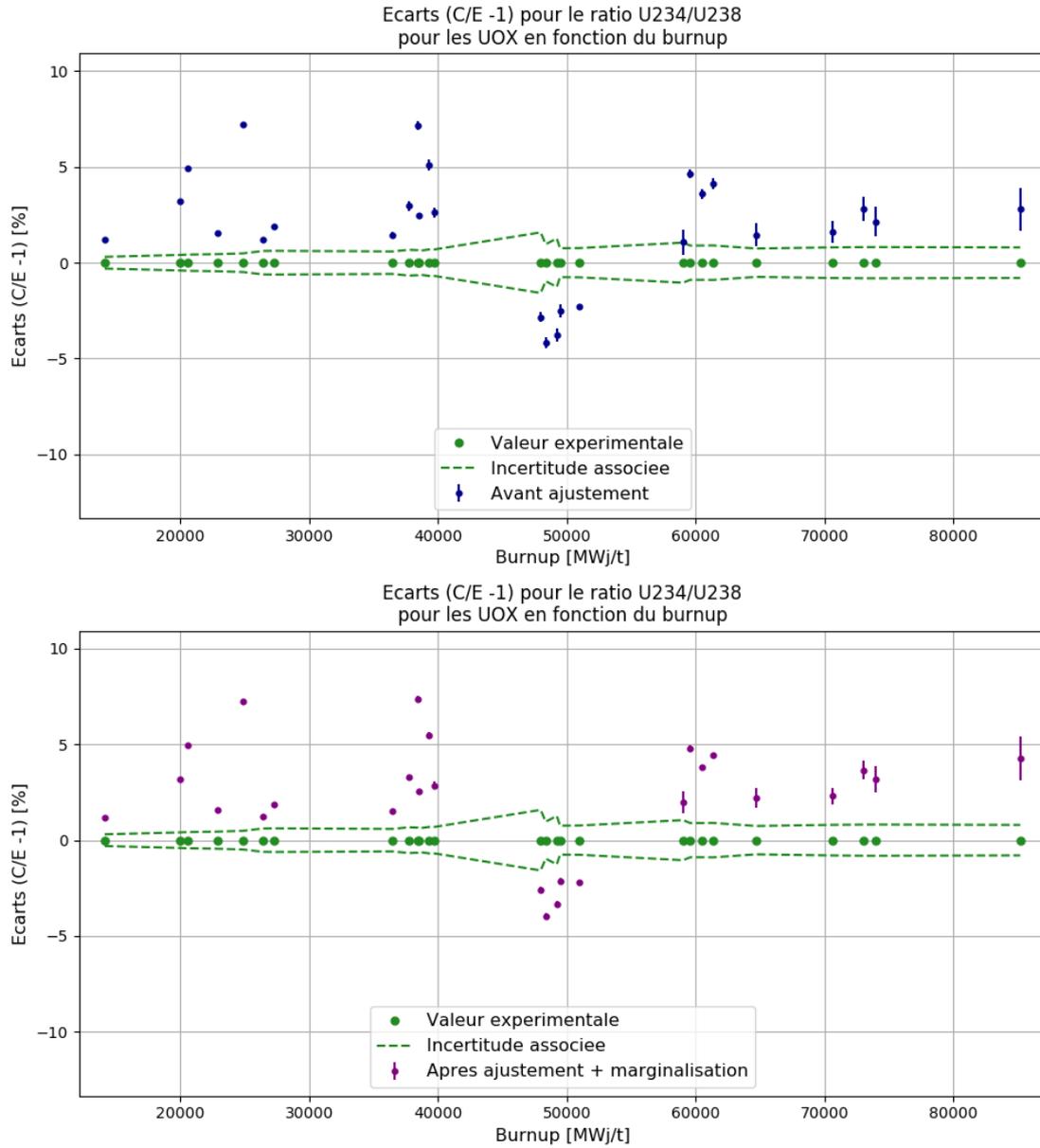


Figure B.1 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{234}U pour les combustibles UOX

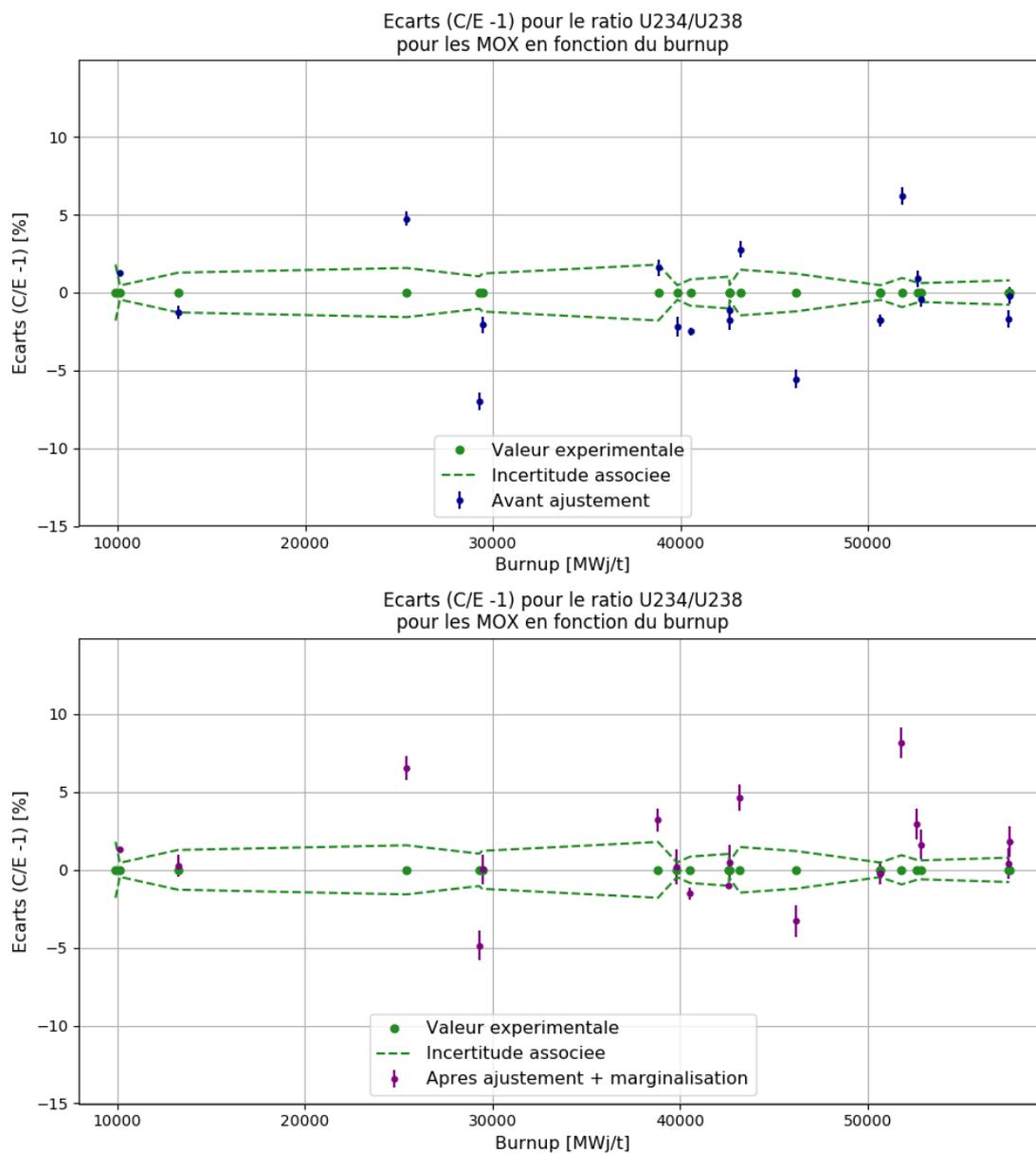


Figure B.2 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{234}U pour les combustibles MOX

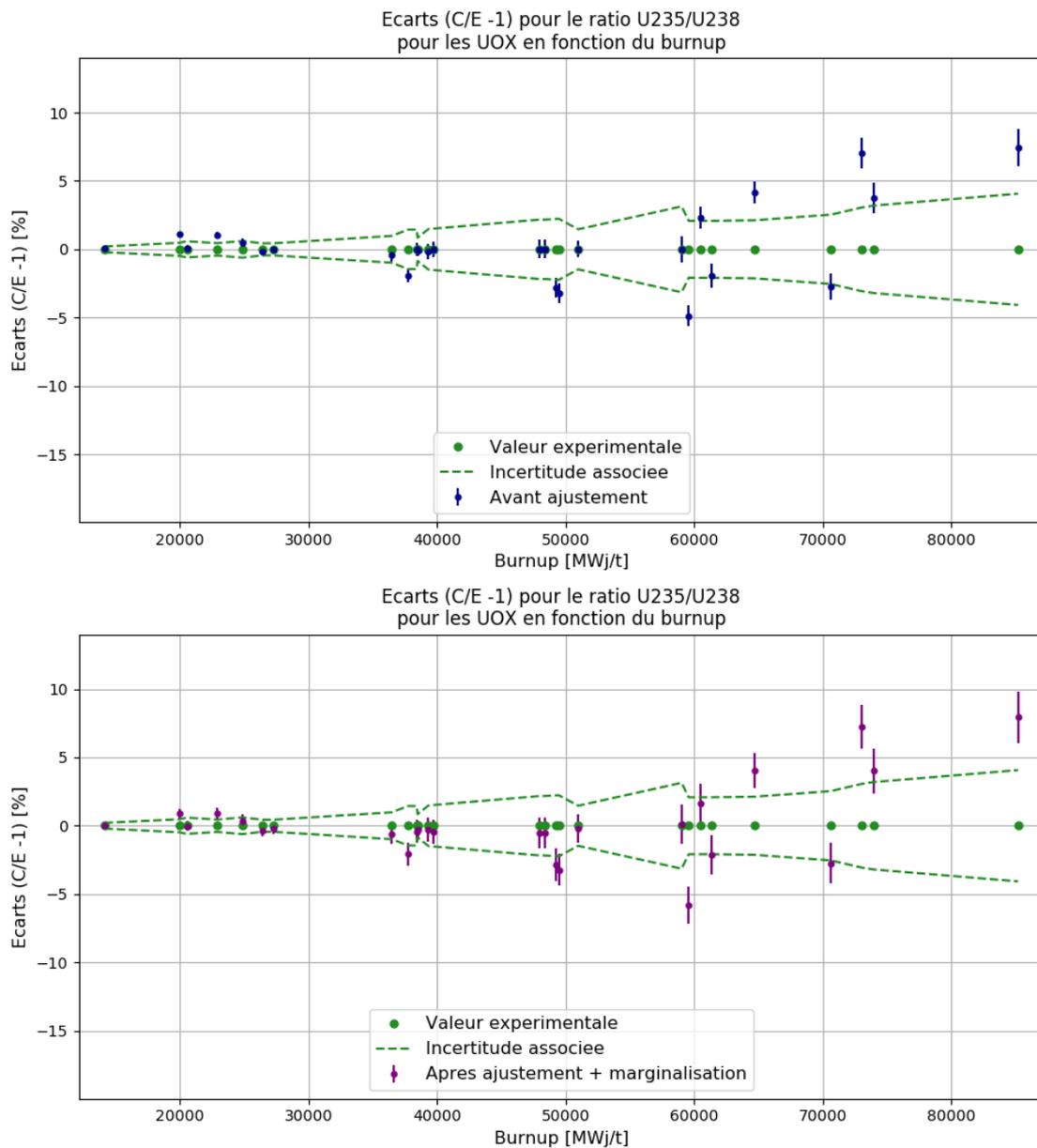


Figure B.3 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{235}U pour les combustibles UOX

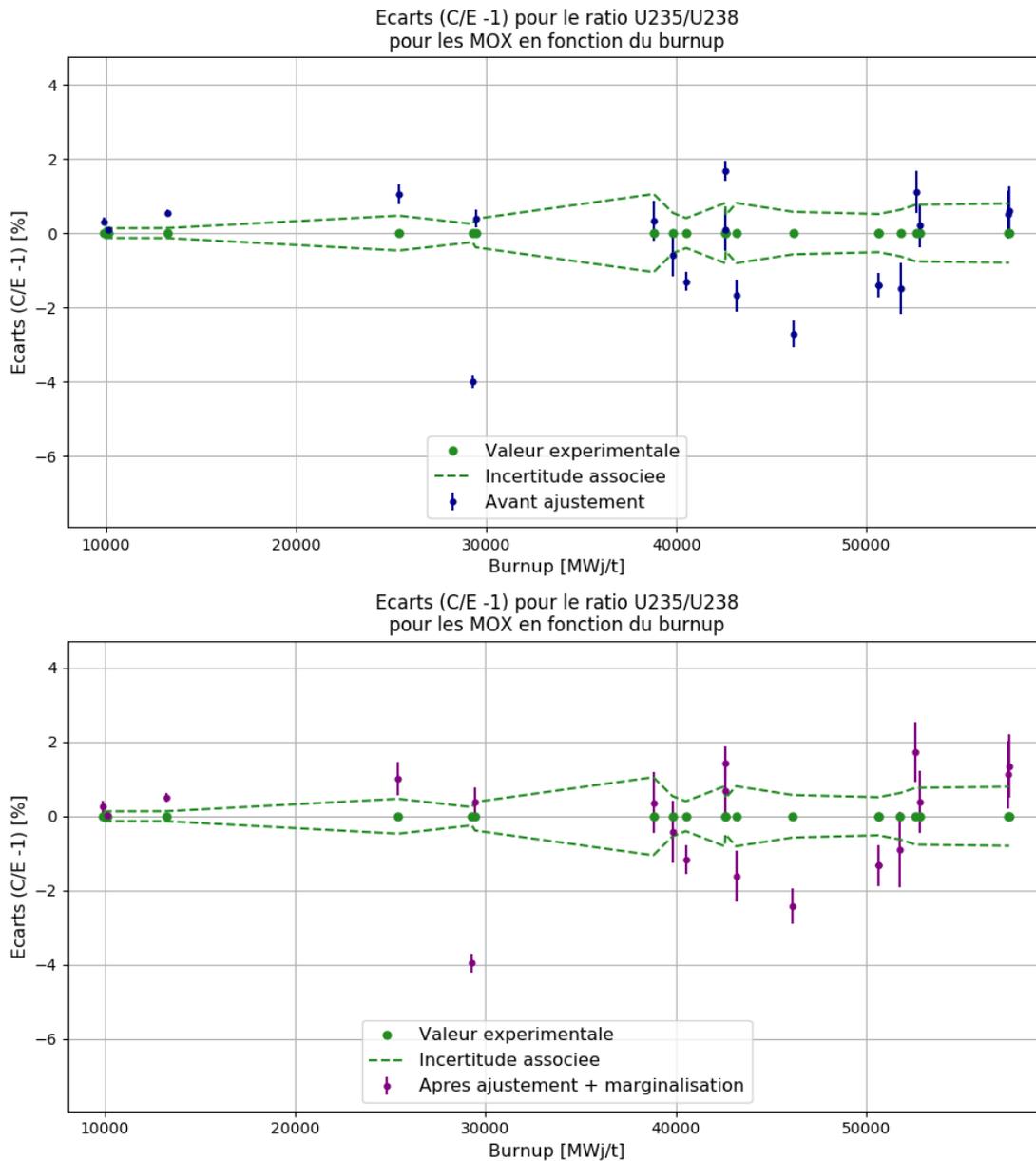


Figure B.4 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{235}U pour les combustibles MOX

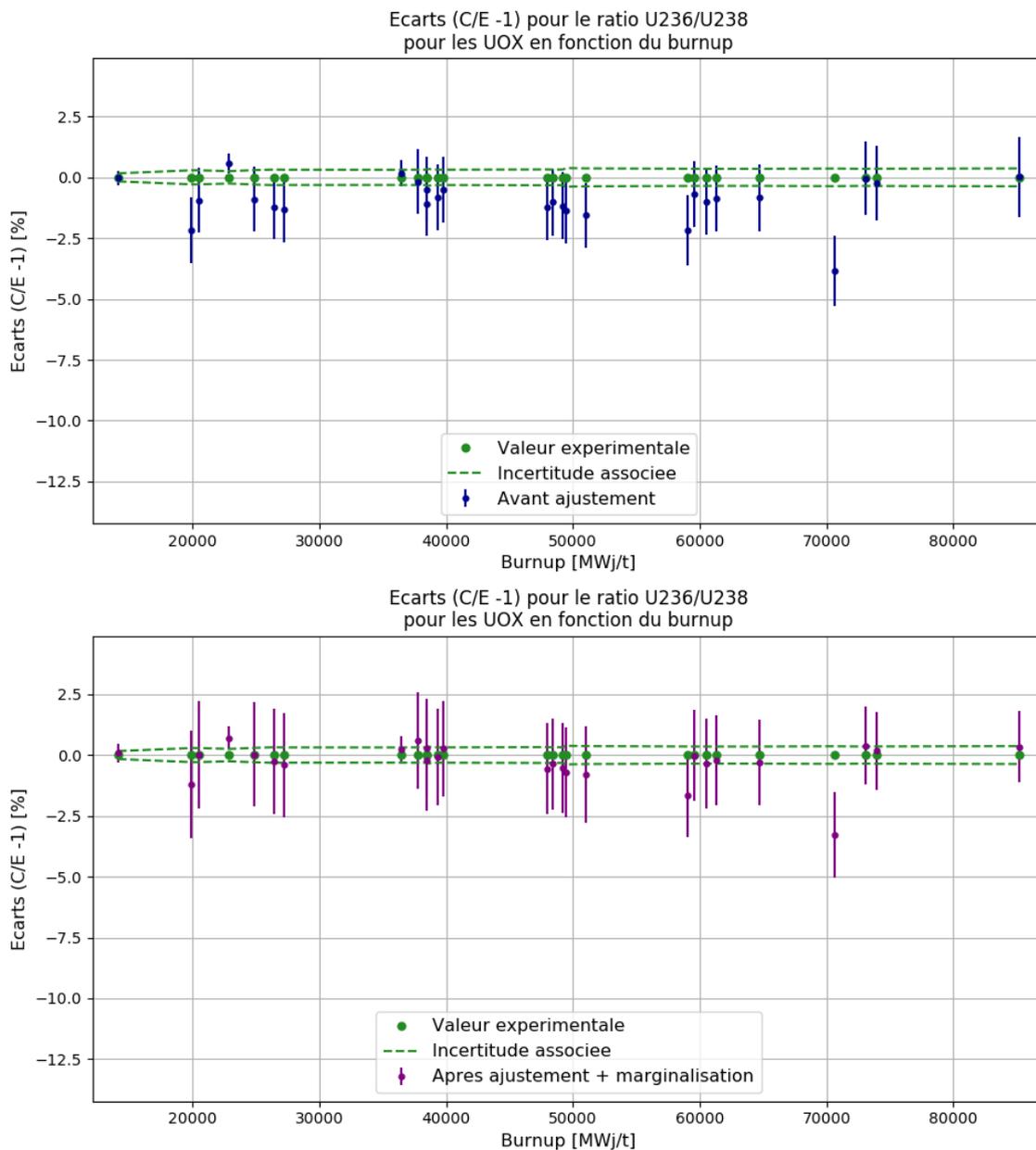


Figure B.5 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{236}U pour les combustibles UOX

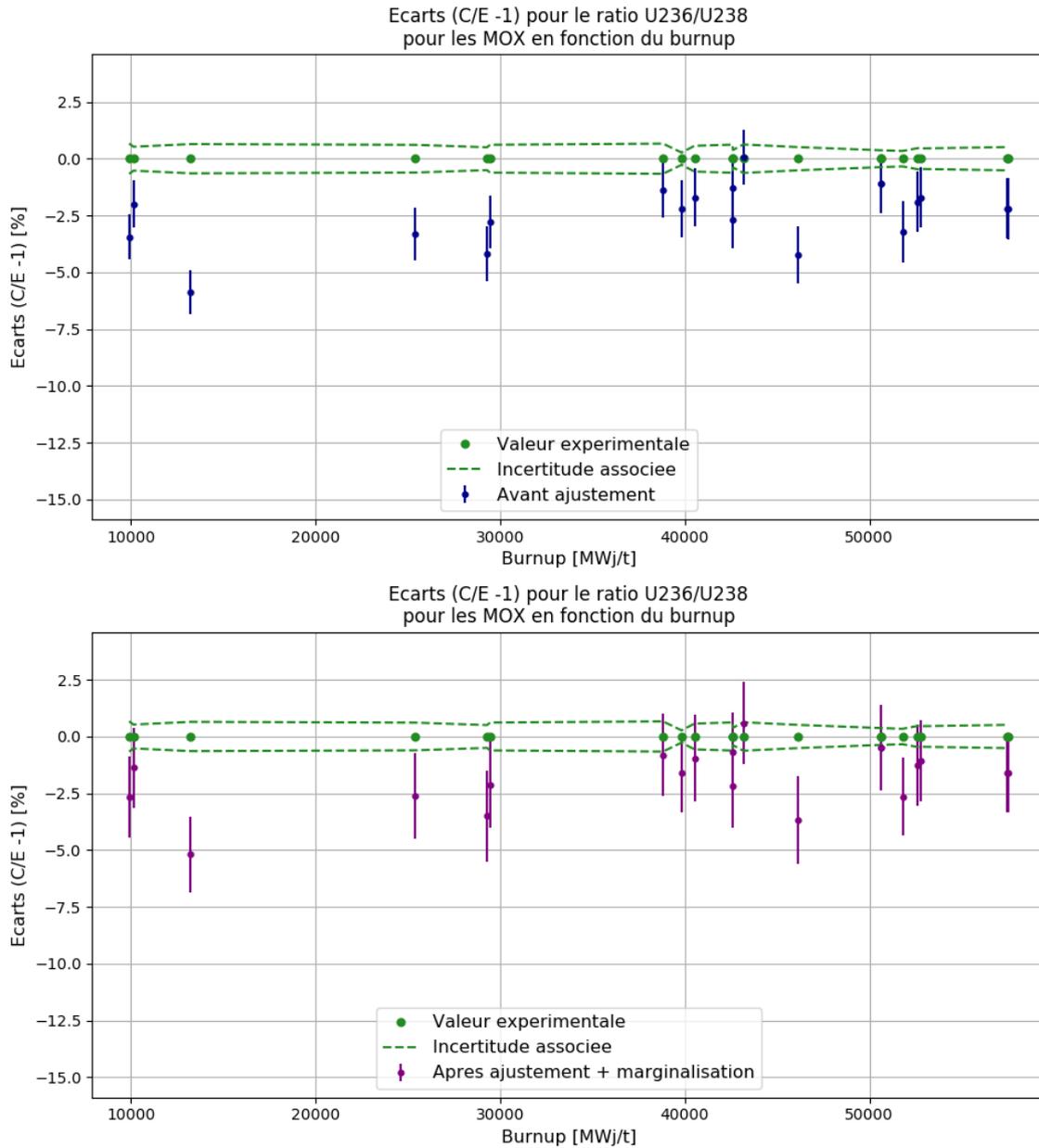


Figure B.6 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{236}U pour les combustibles MOX

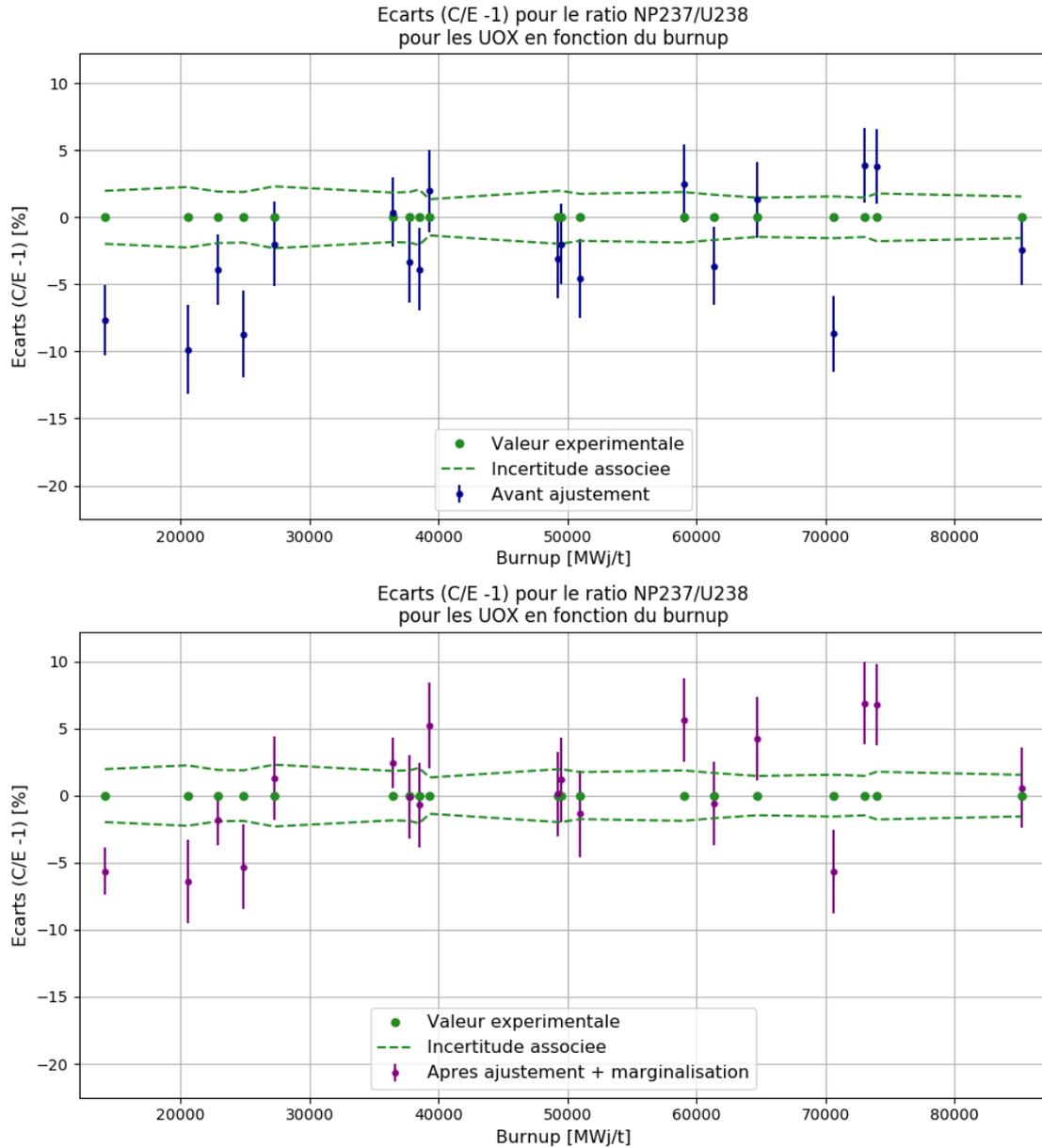


Figure B.7 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{237}Np pour les combustibles UOX

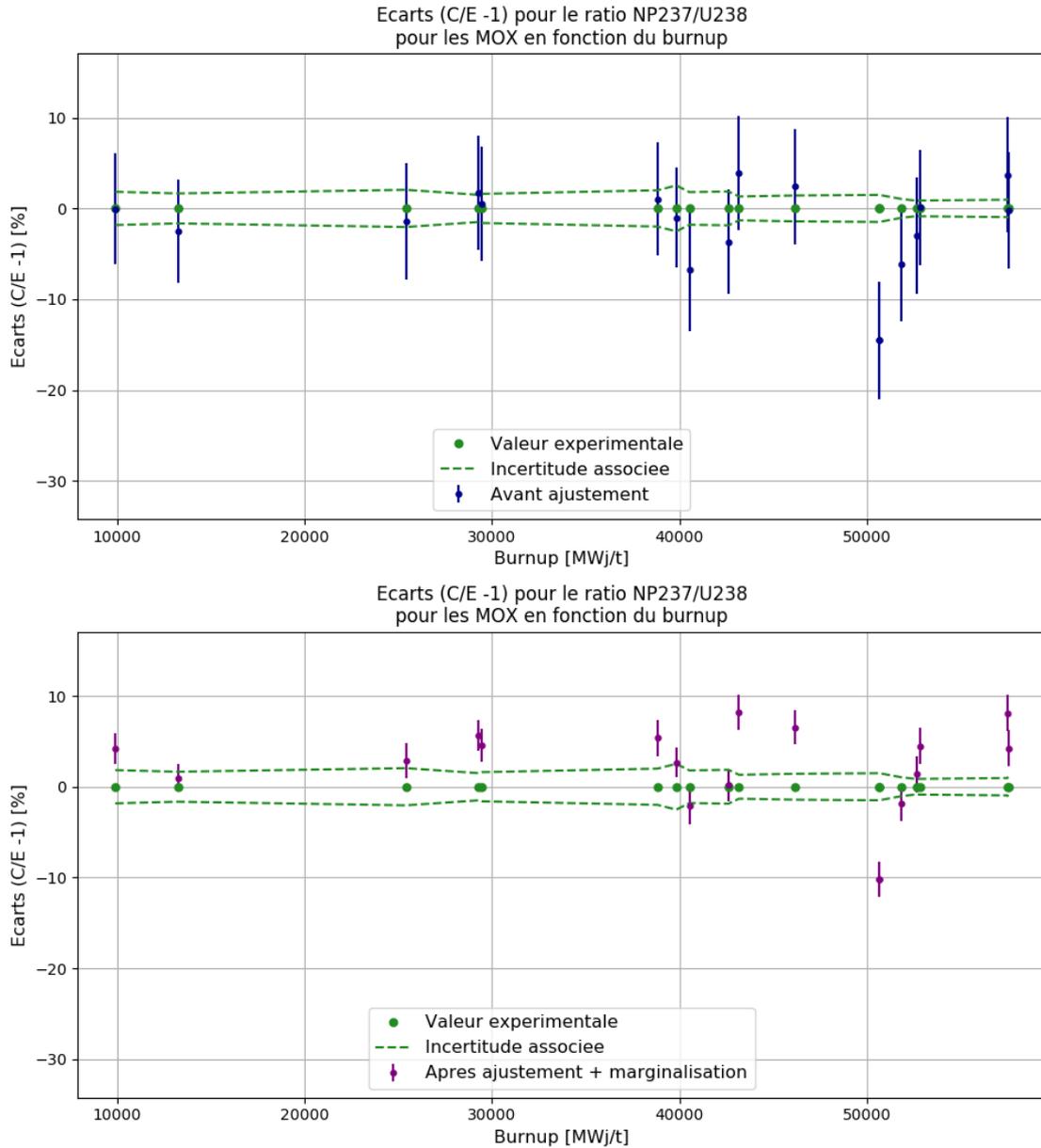


Figure B.8 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{237}Np pour les combustibles MOX

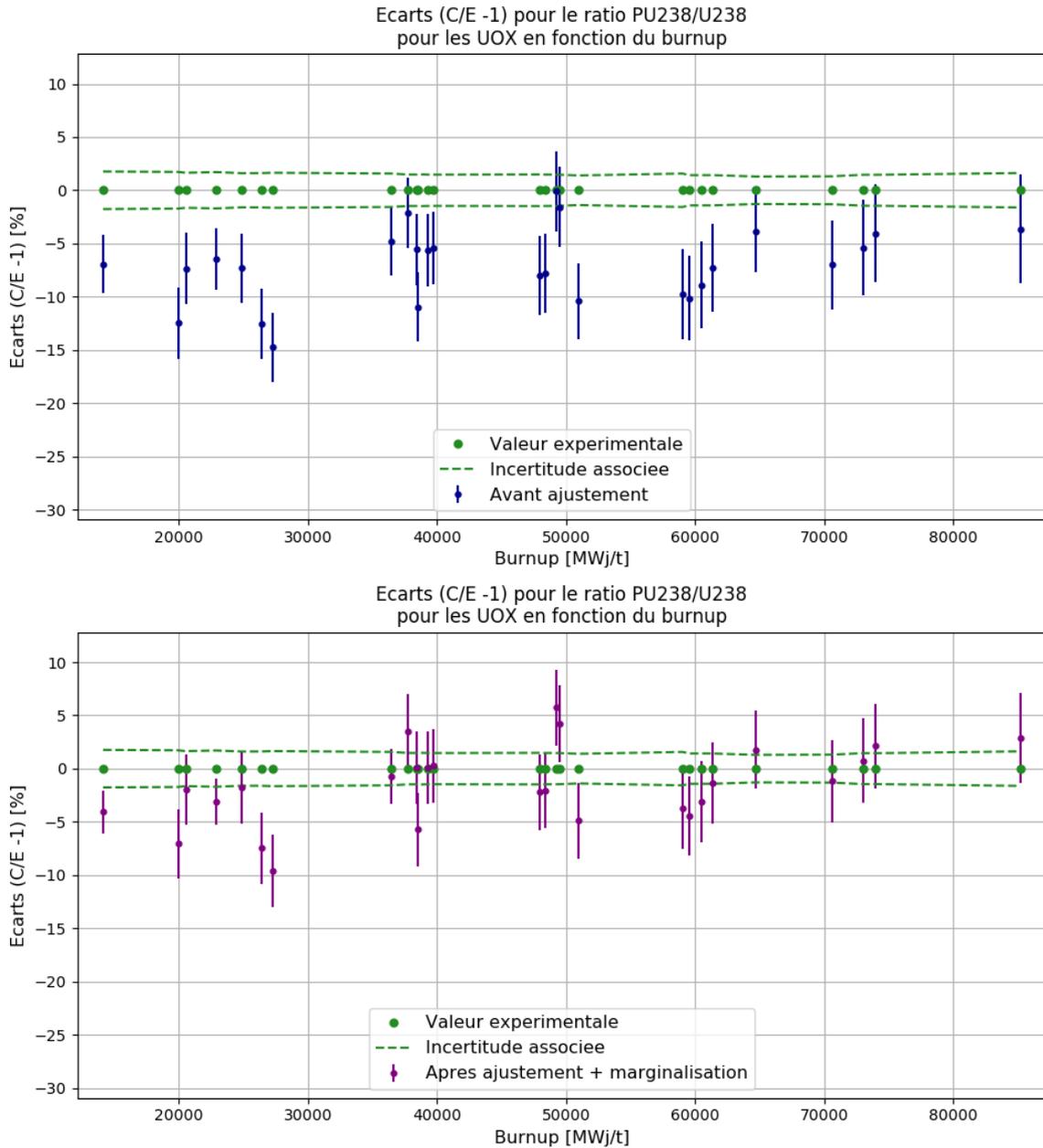


Figure B.9 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{238}Pu pour les combustibles UOX

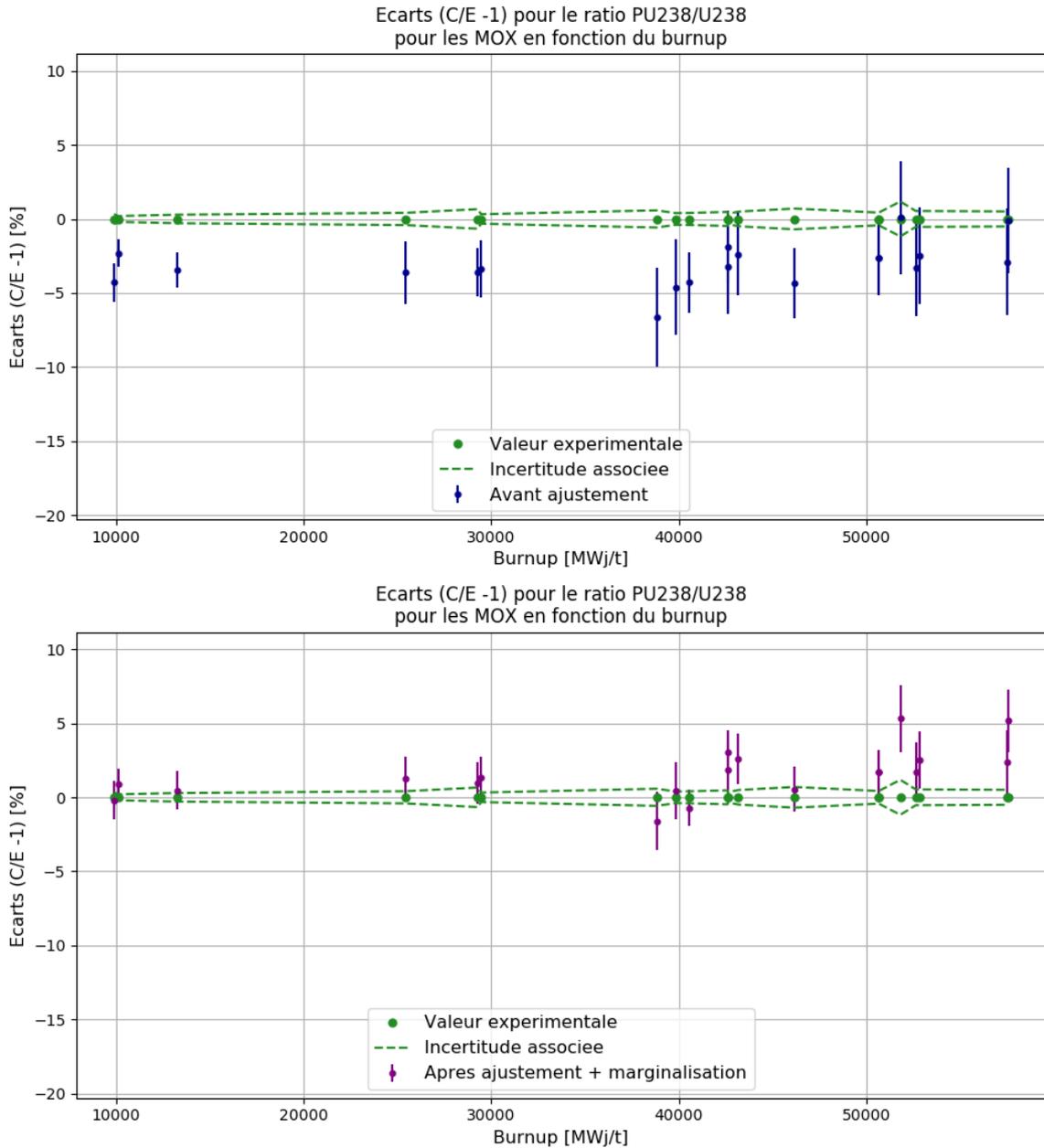


Figure B.10 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{238}Pu pour les combustibles MOX

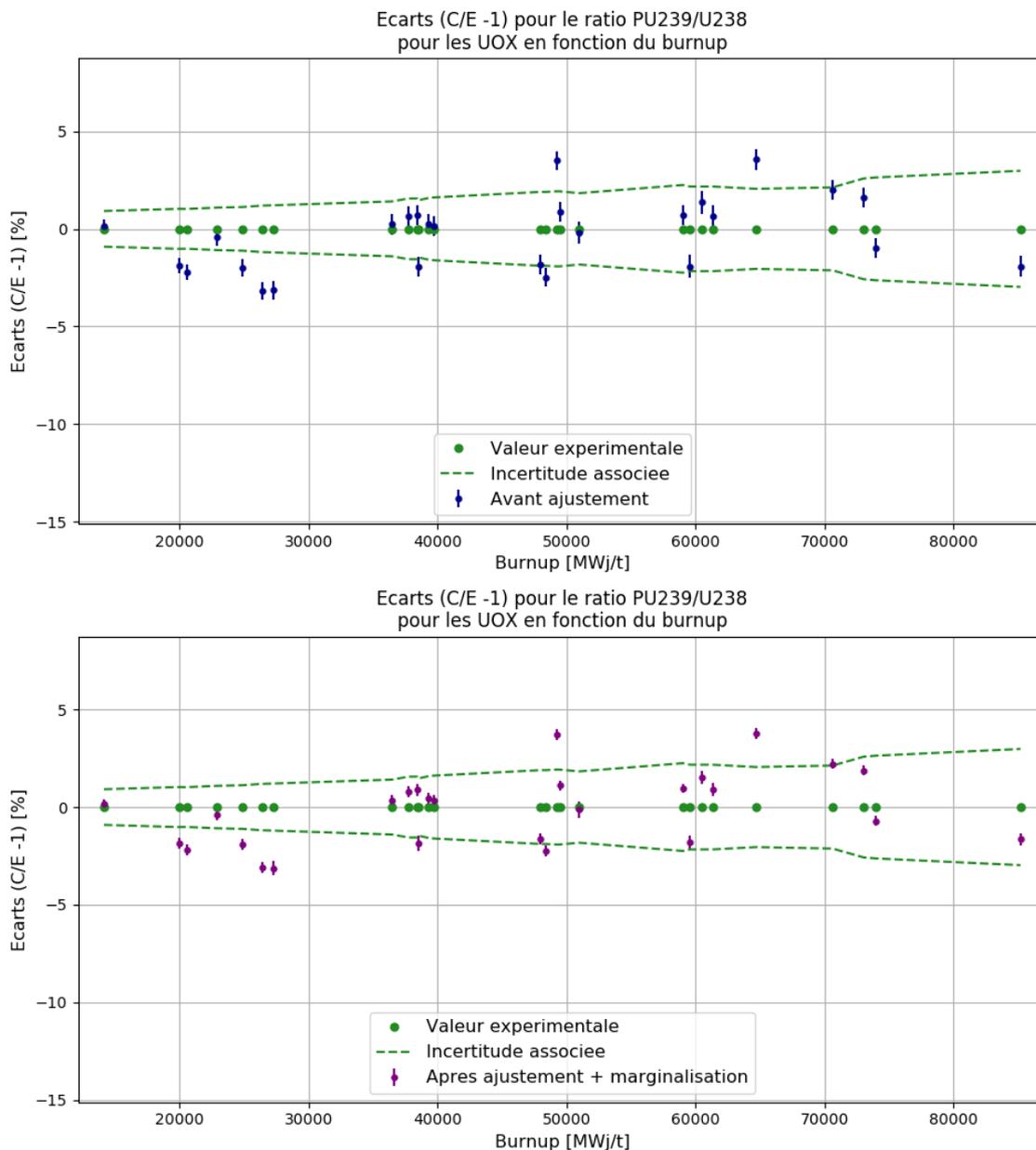


Figure B.11 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{239}Pu pour les combustibles UOX

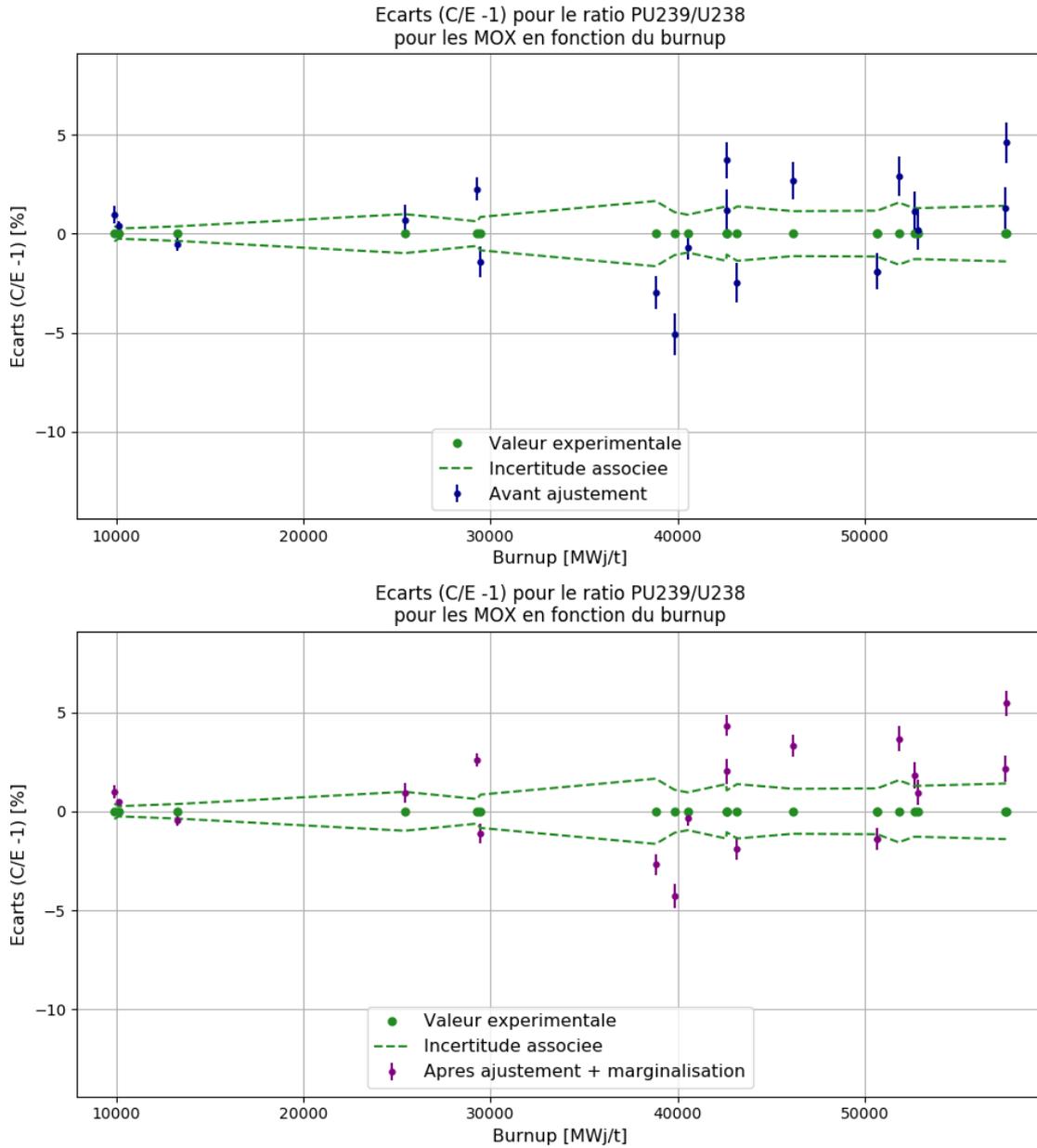


Figure B.12 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{239}Pu pour les combustibles MOX

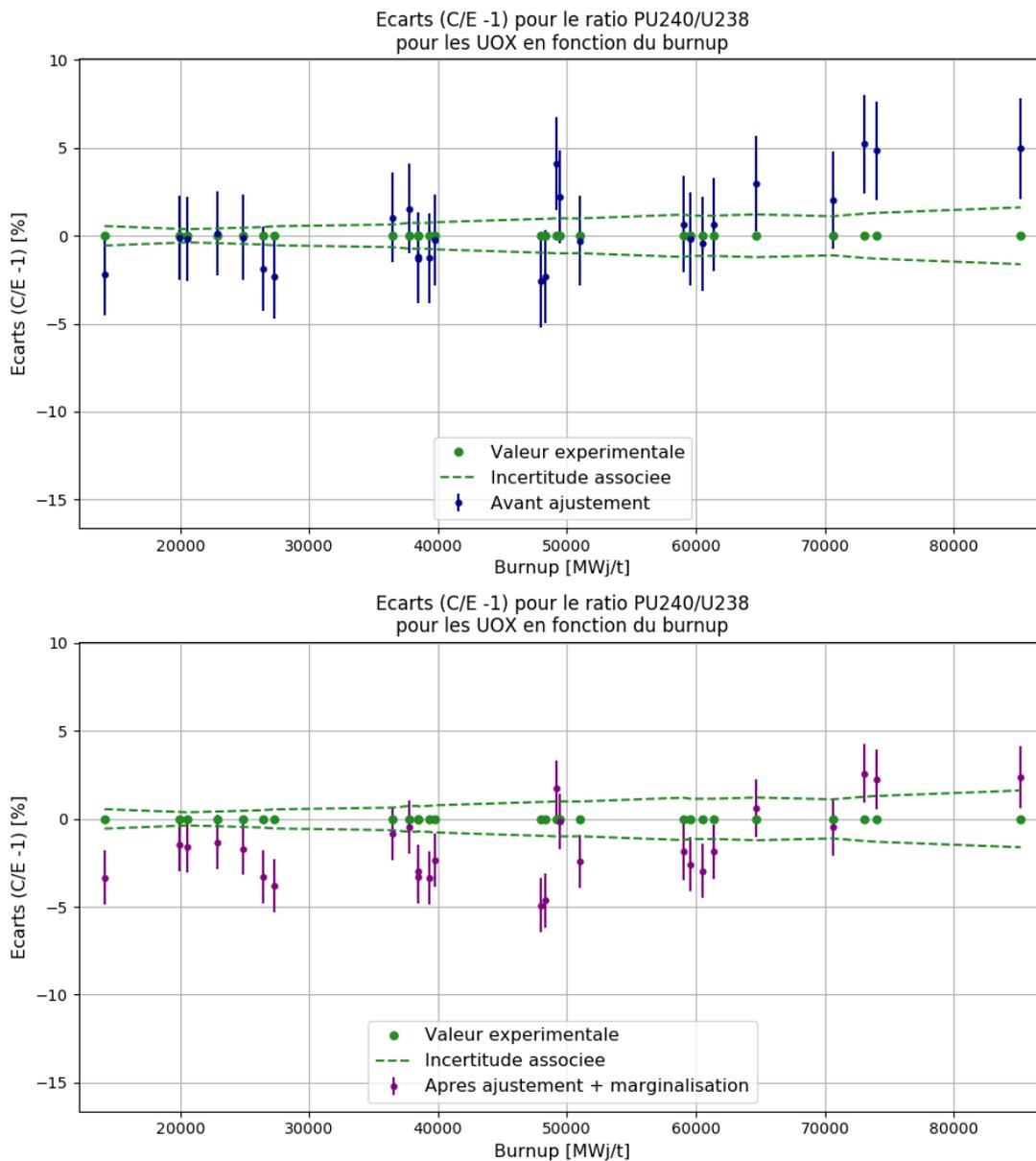


Figure B.13 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{240}Pu pour les combustibles UOX

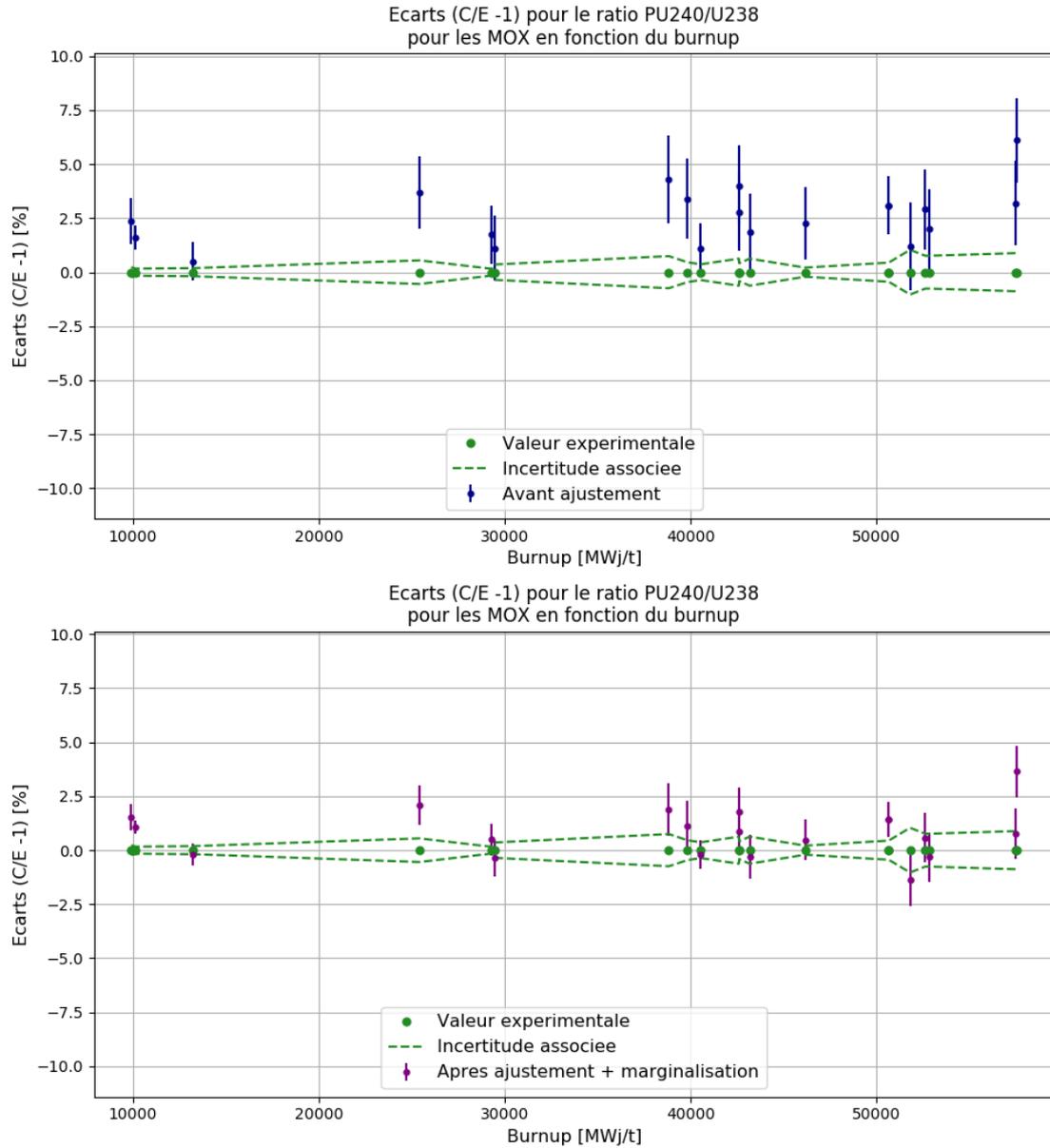


Figure B.14 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{240}Pu pour les combustibles MOX

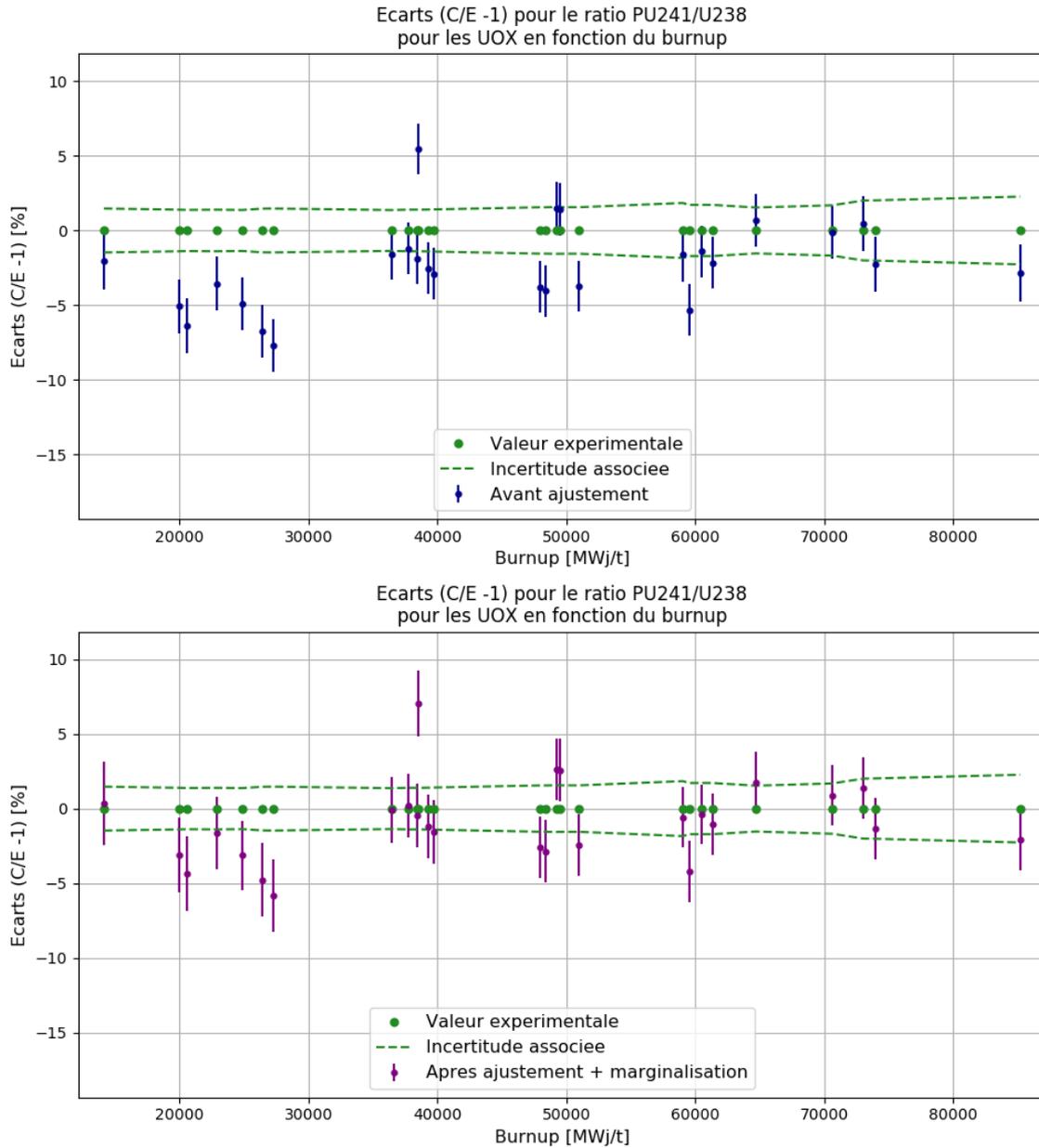


Figure B.15 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{241}Pu pour les combustibles UOX

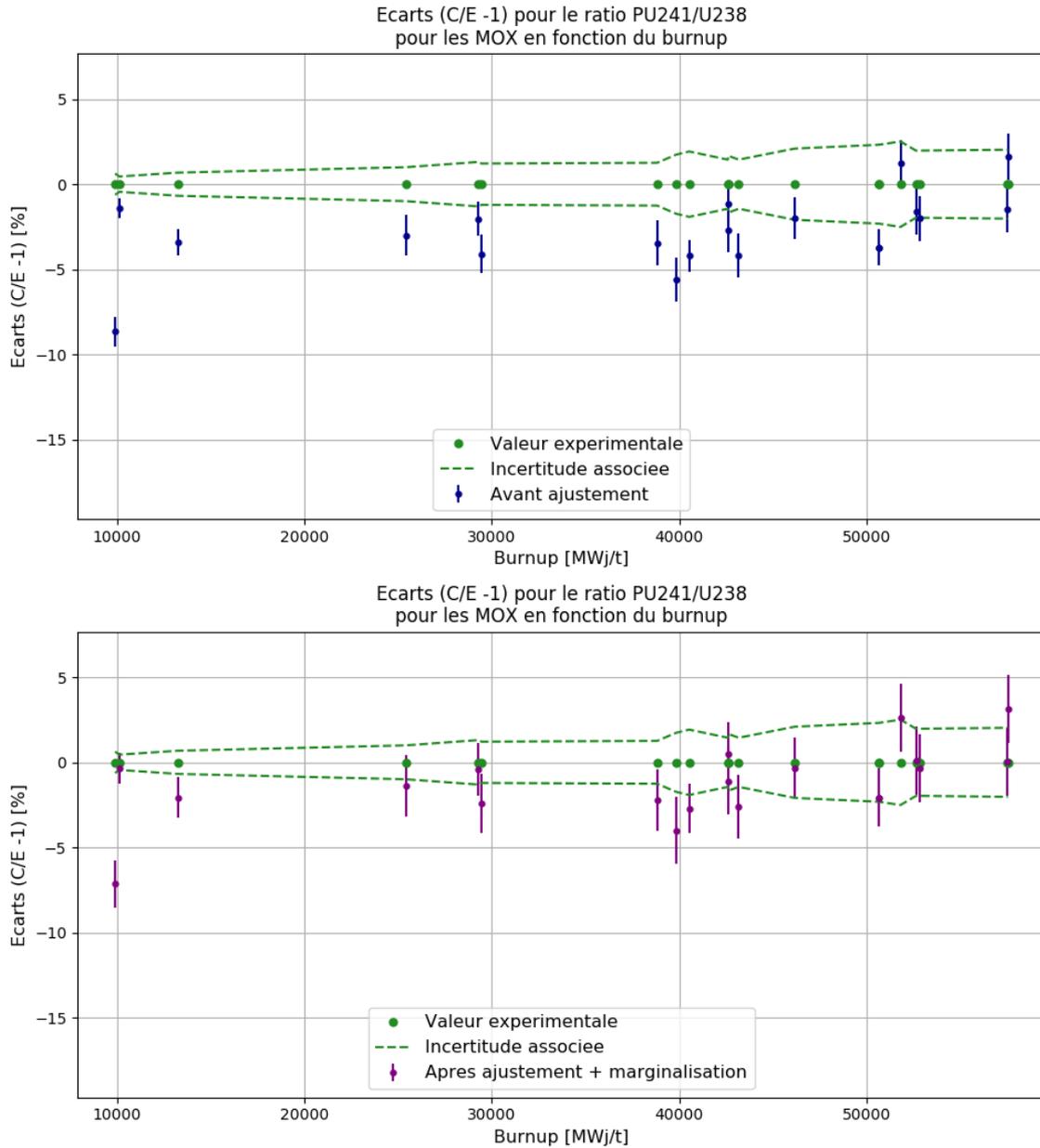


Figure B.16 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{241}Pu pour les combustibles MOX

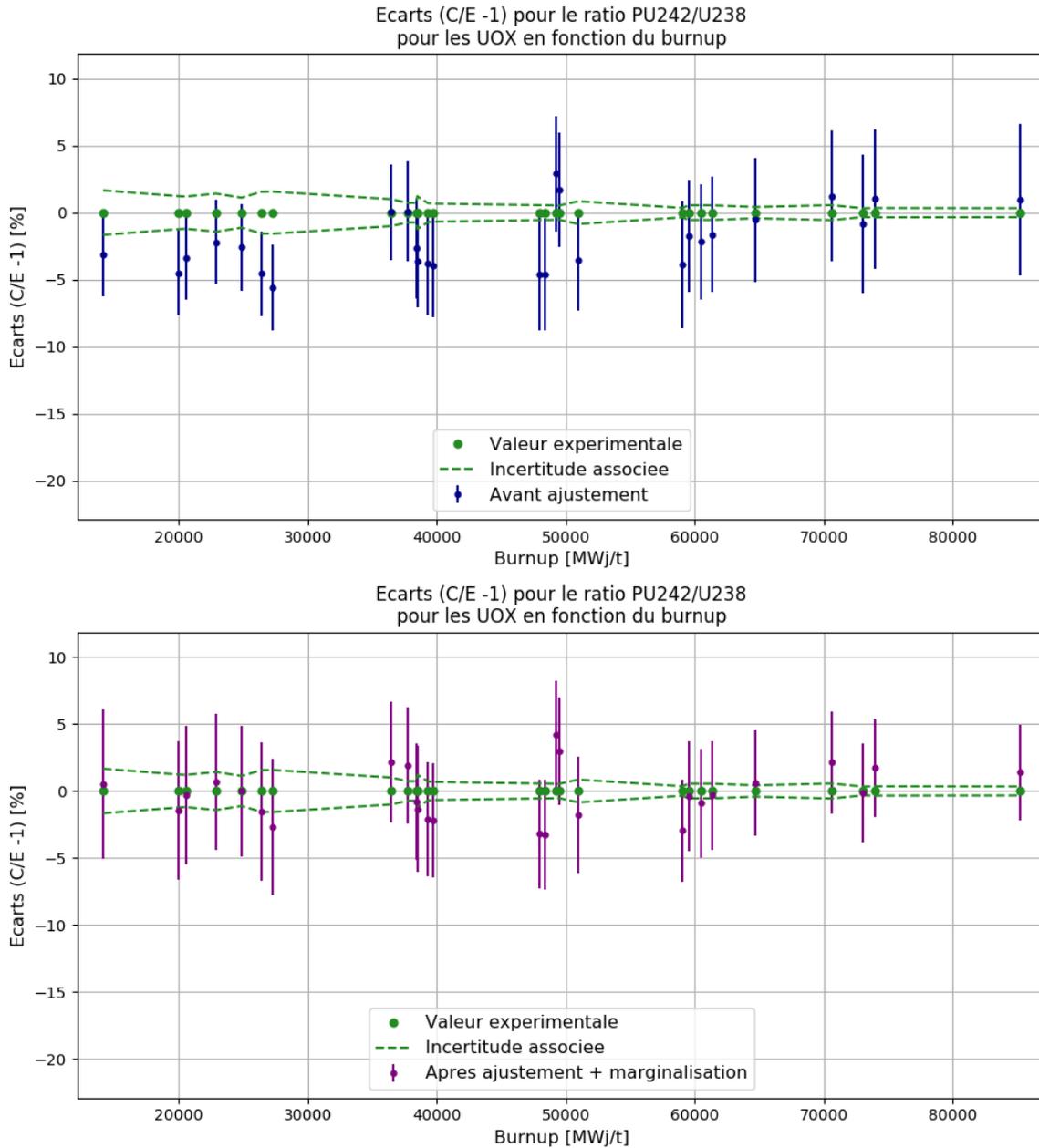


Figure B.17 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{242}Pu pour les combustibles UOX

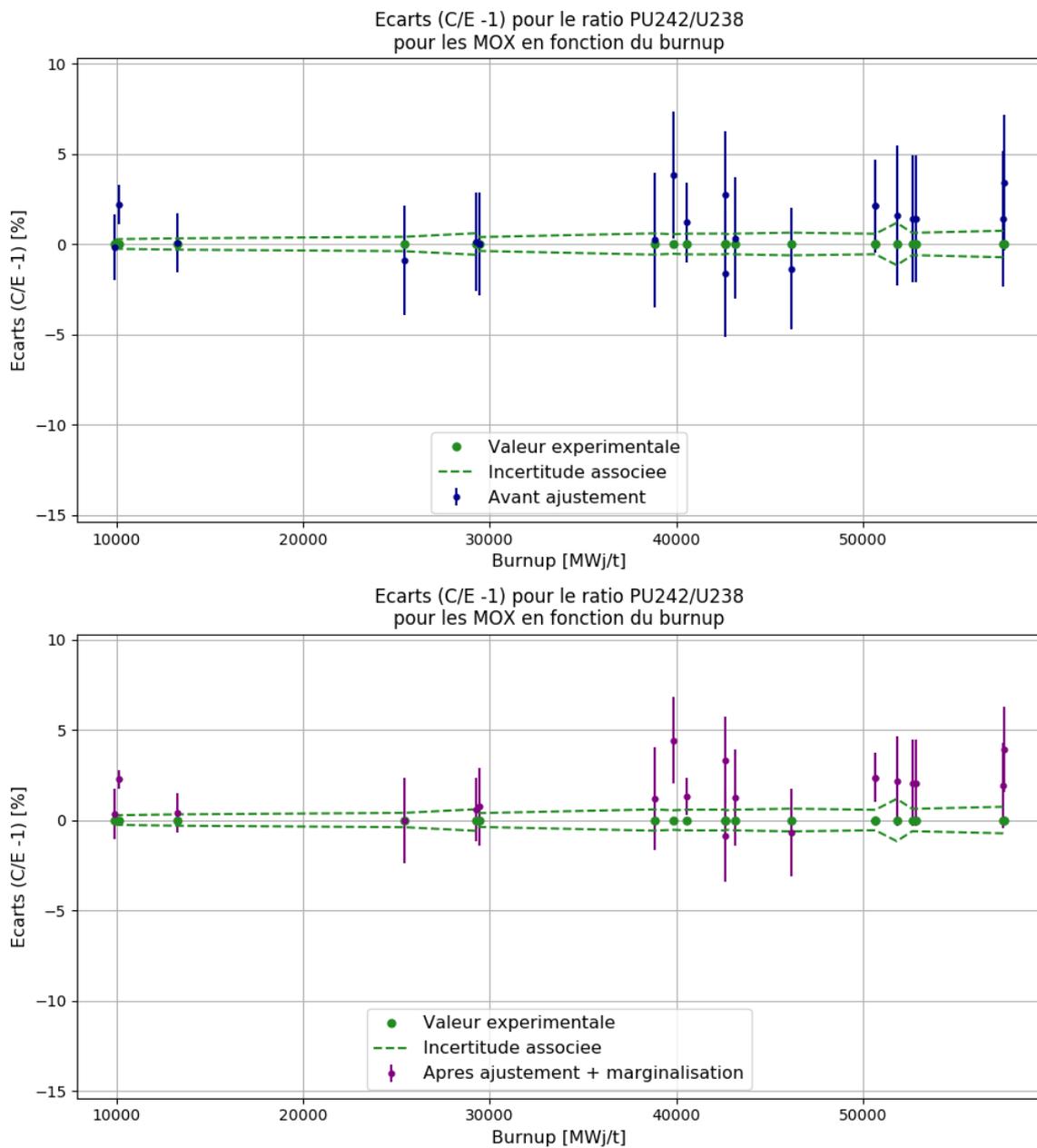


Figure B.18 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{242}Pu pour les combustibles MOX

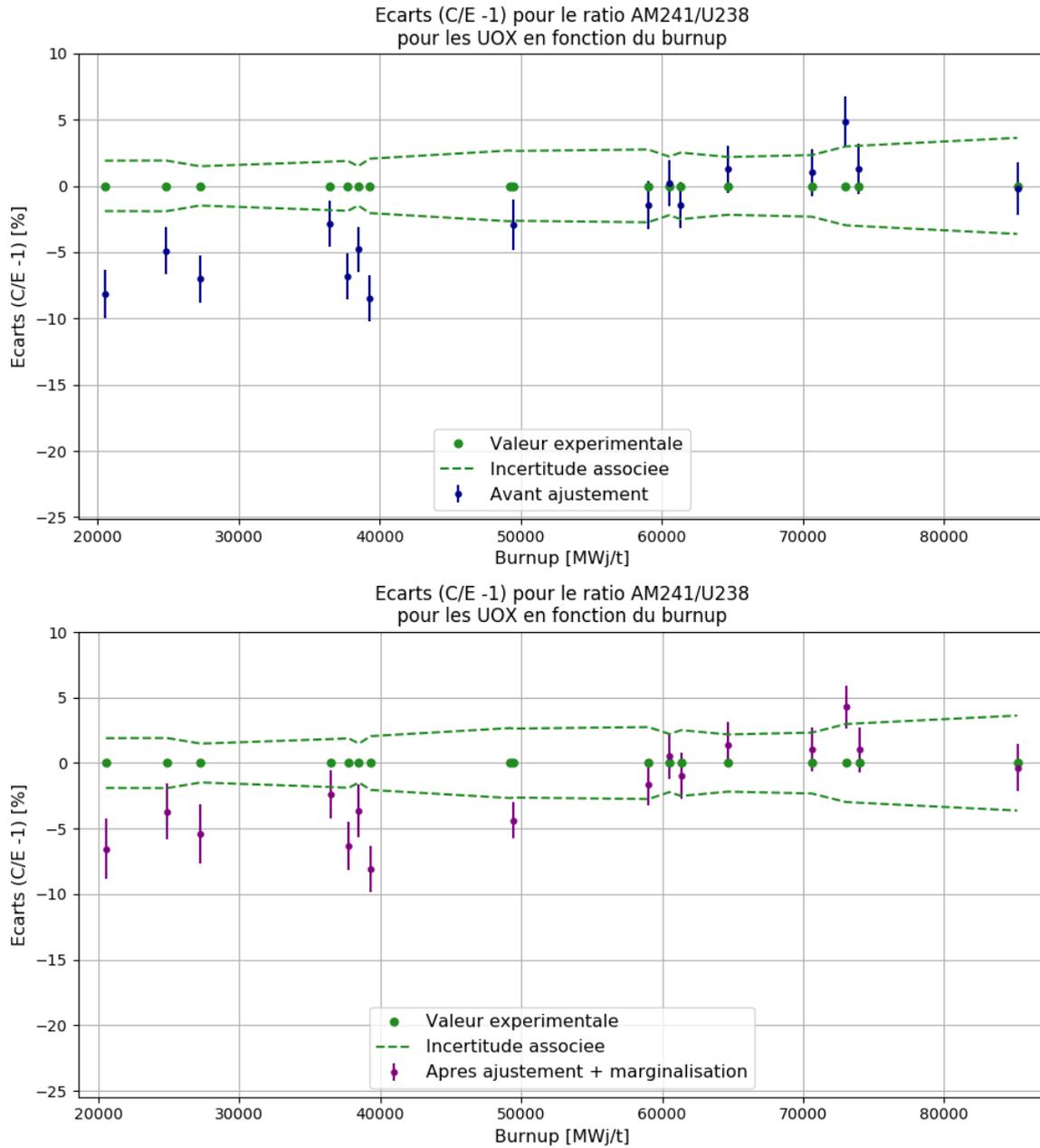


Figure B.19 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{241}Am pour les combustibles UOX

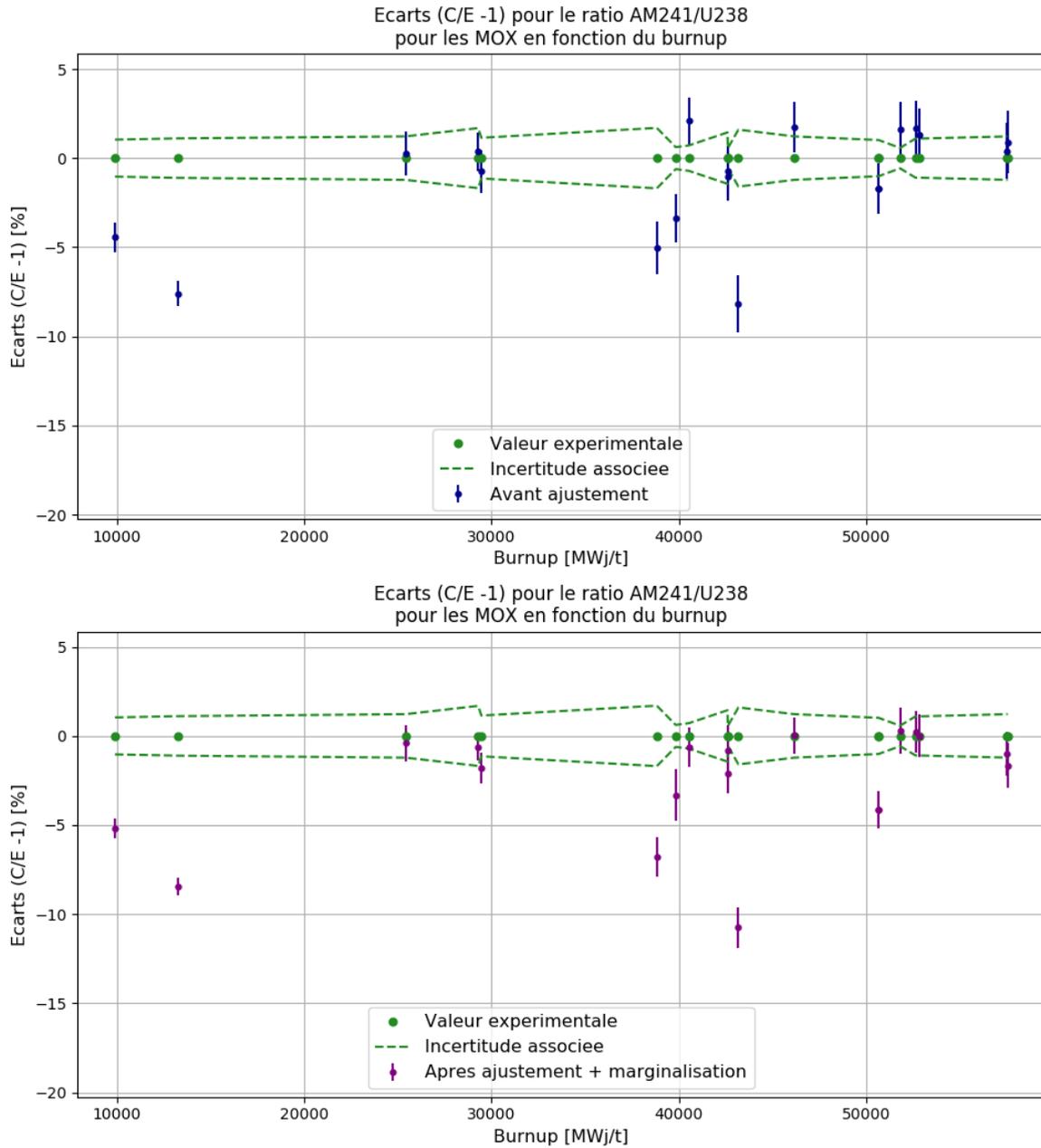


Figure B.20 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{241}Am pour les combustibles MOX

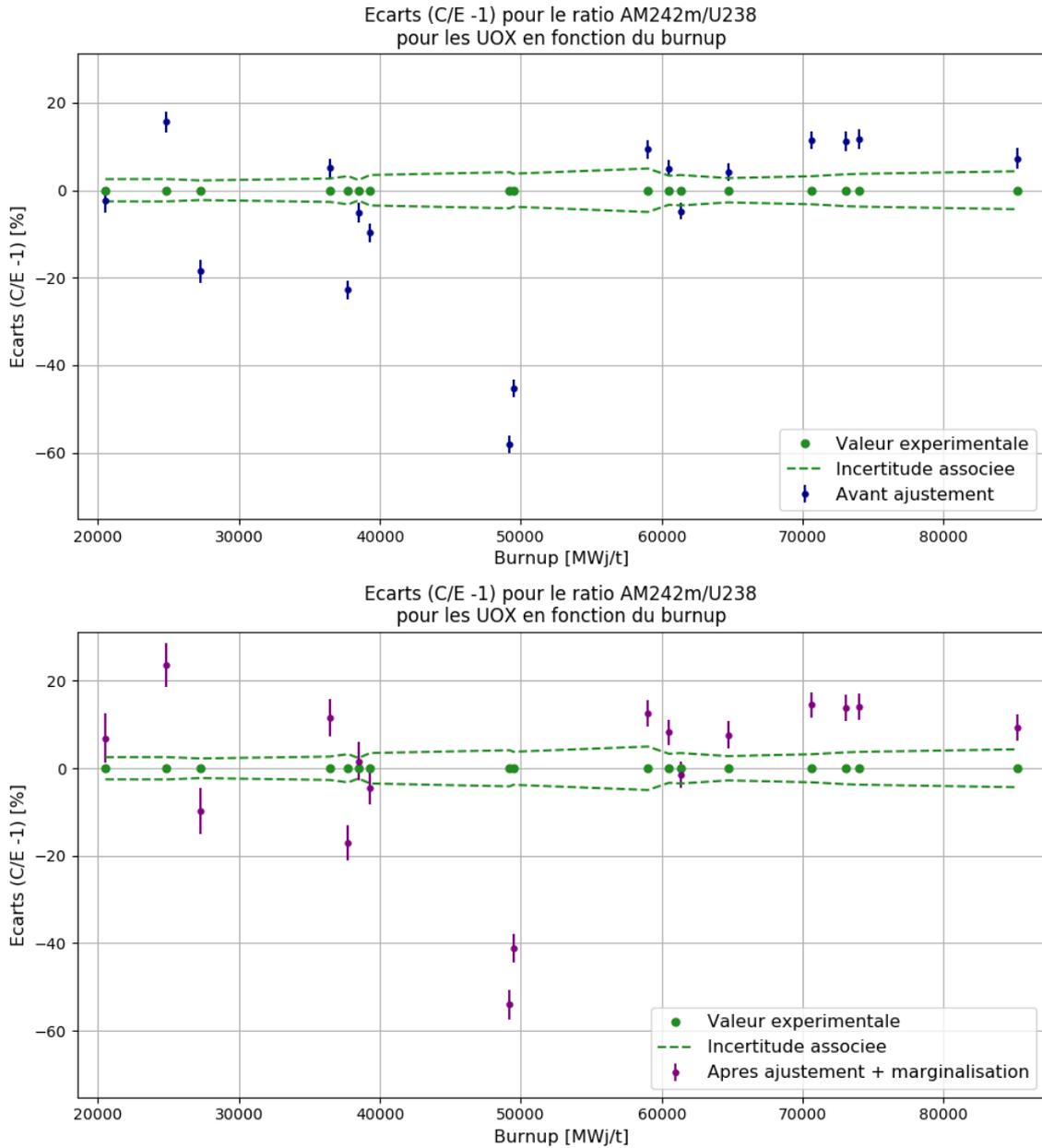


Figure B.21 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{242m}Am pour les combustibles UOX

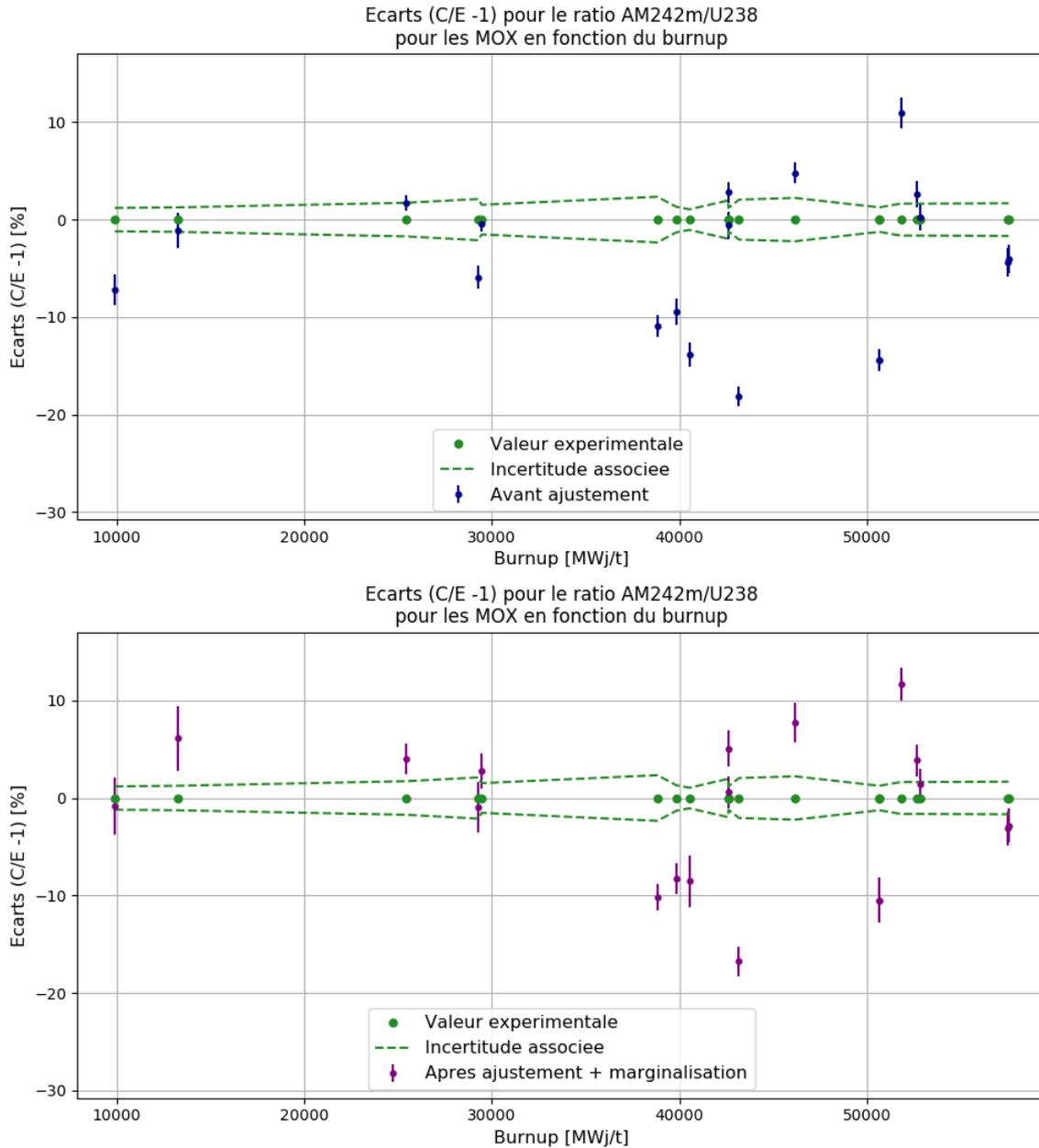


Figure B.22 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{242m}Am pour les combustibles MOX

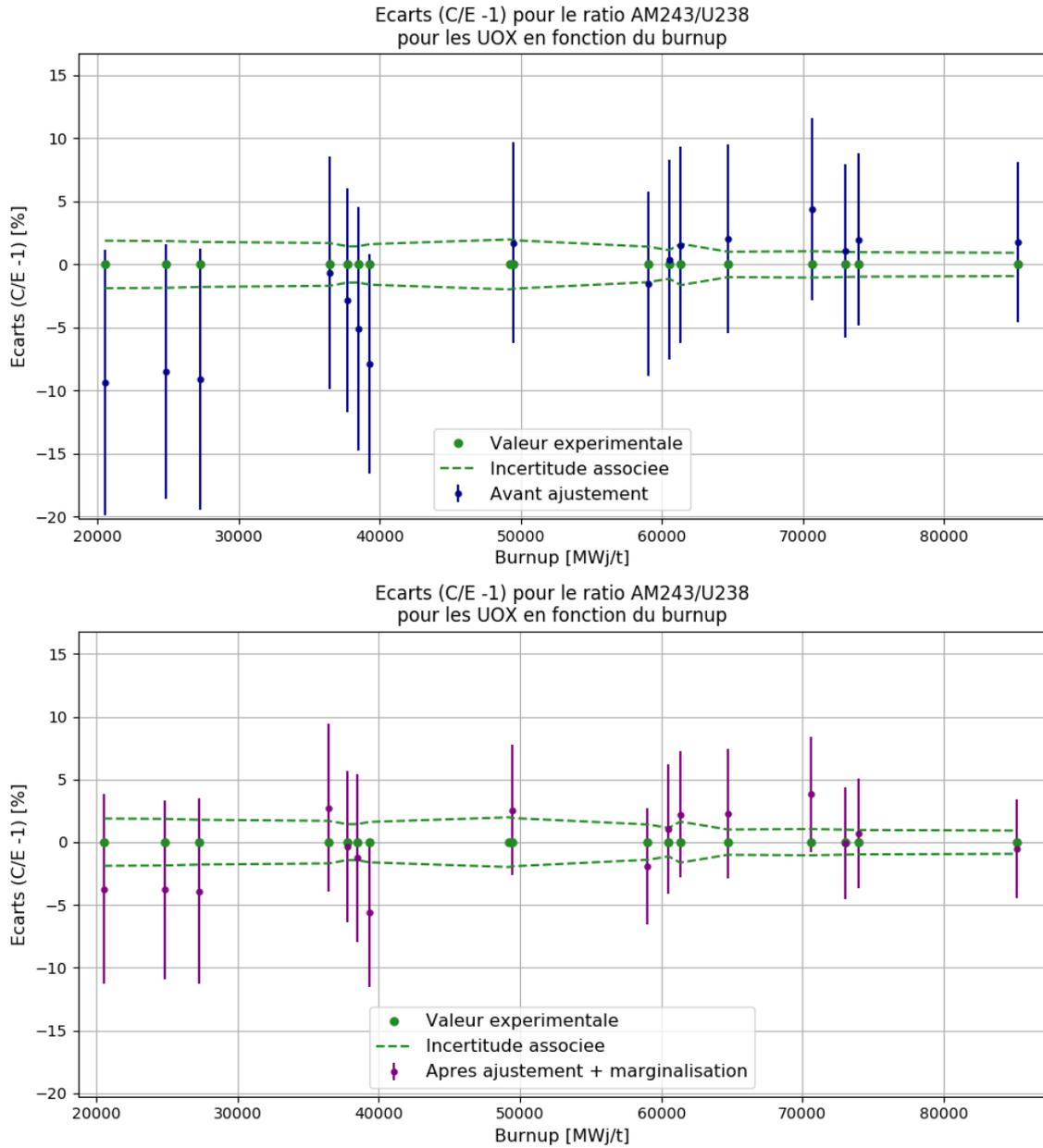


Figure B.23 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{243}Am pour les combustibles UOX

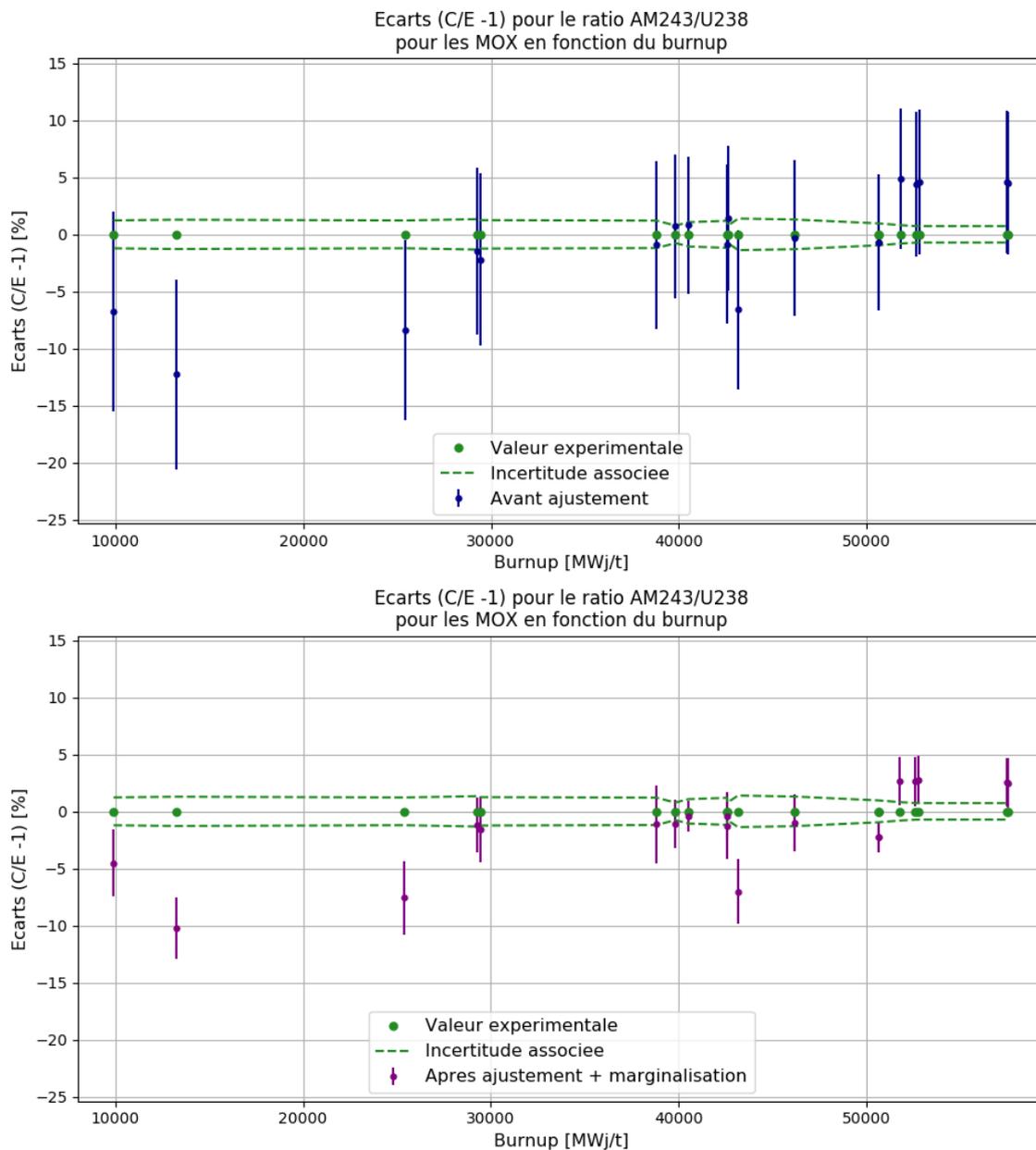


Figure B.24 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{243}Am pour les combustibles MOX

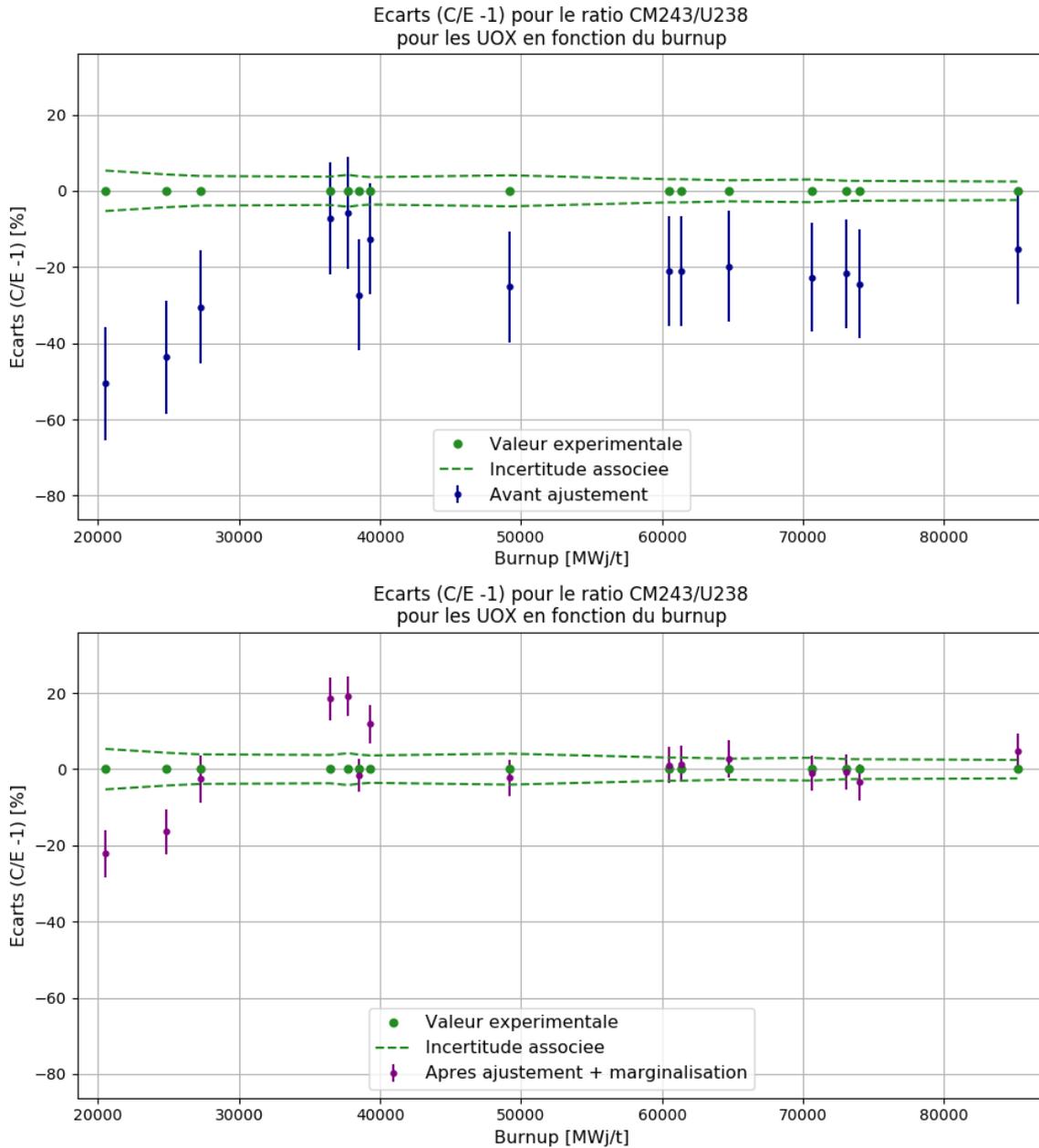


Figure B.25 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{243}Cm pour les combustibles UOX

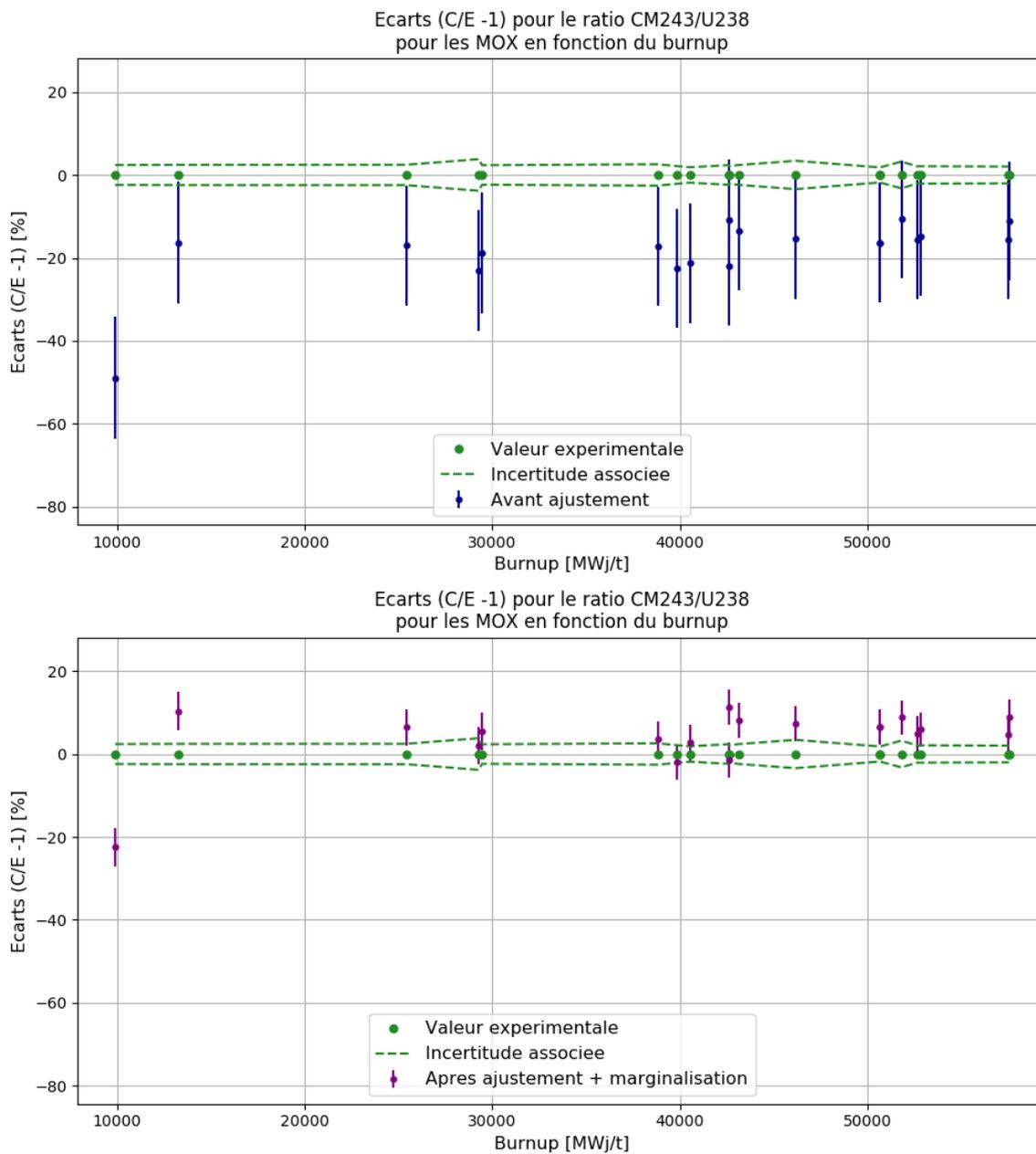


Figure B.26 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{243}Cm pour les combustibles MOX

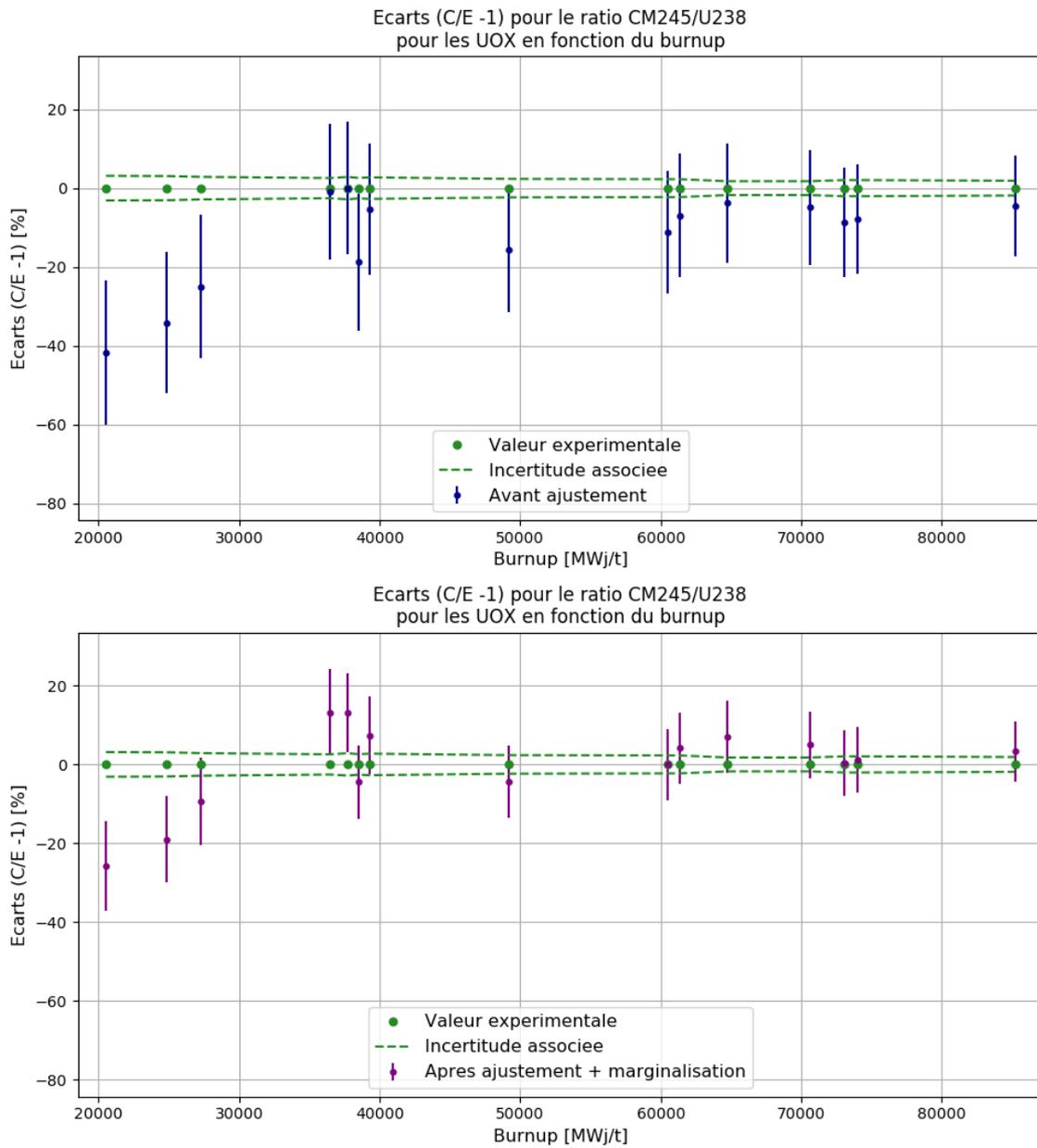


Figure B.27 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{245}Cm pour les combustibles UOX

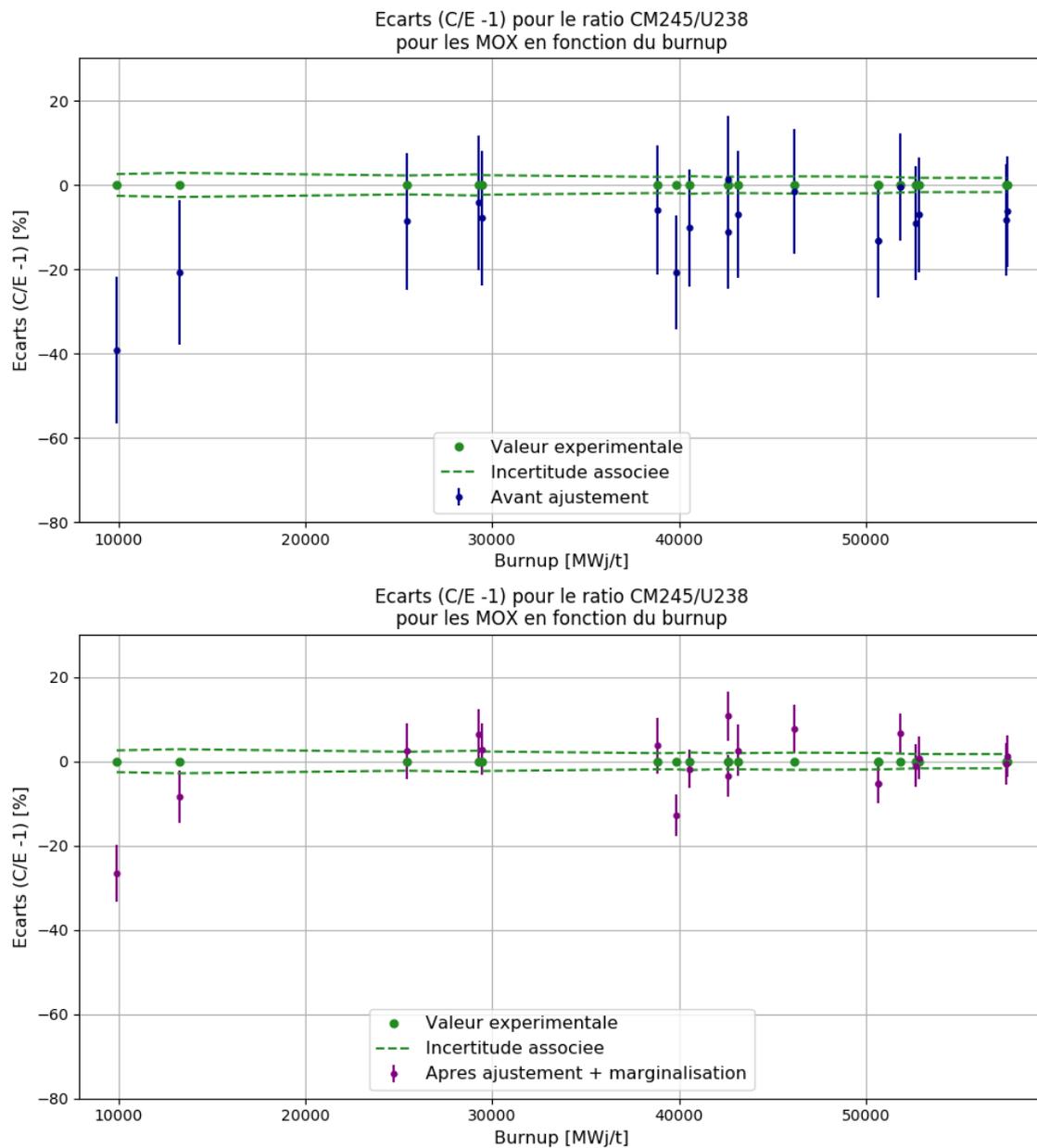


Figure B.28 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{245}Cm pour les combustibles MOX

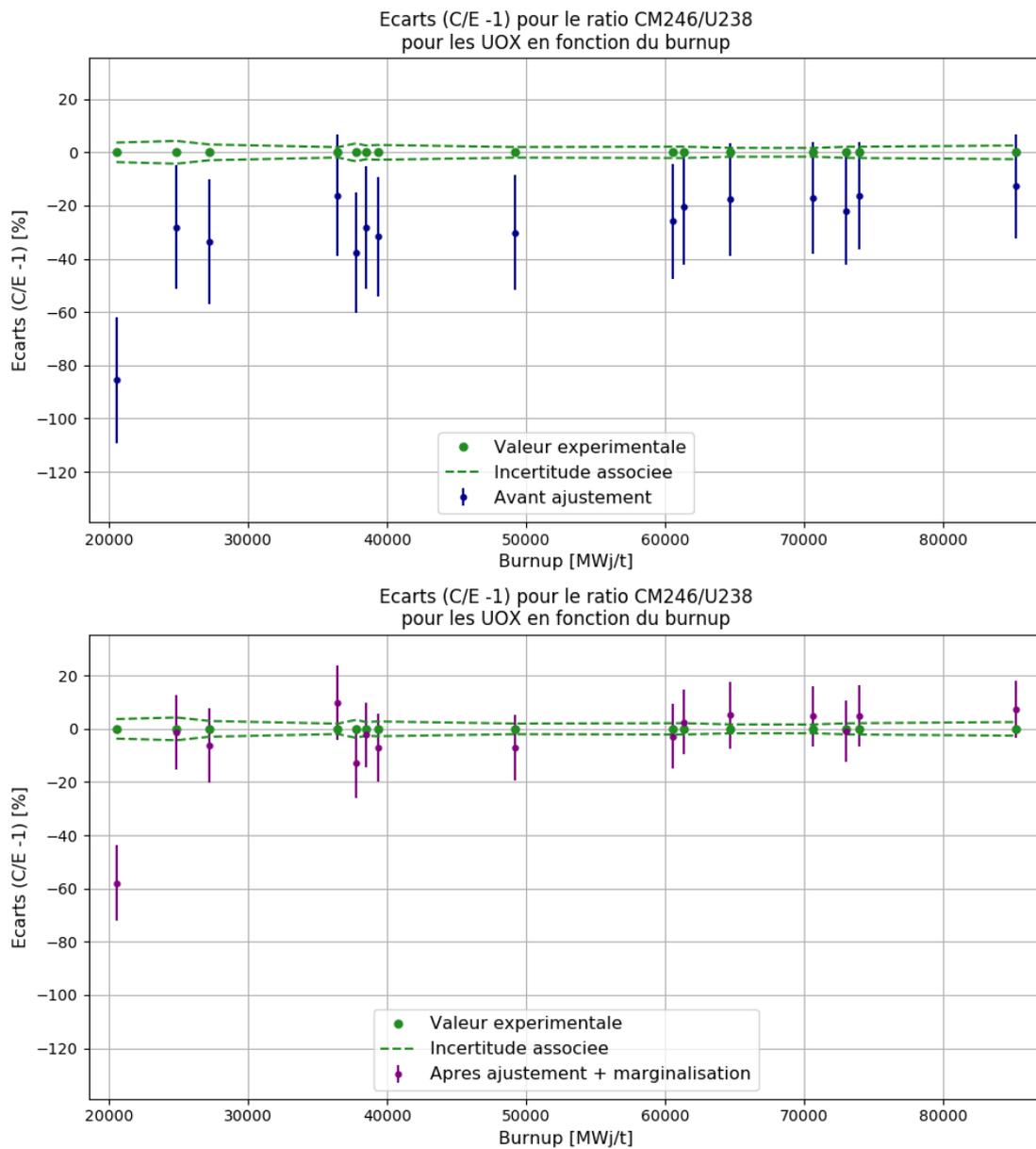


Figure B.29 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{246}Cm pour les combustibles UOX

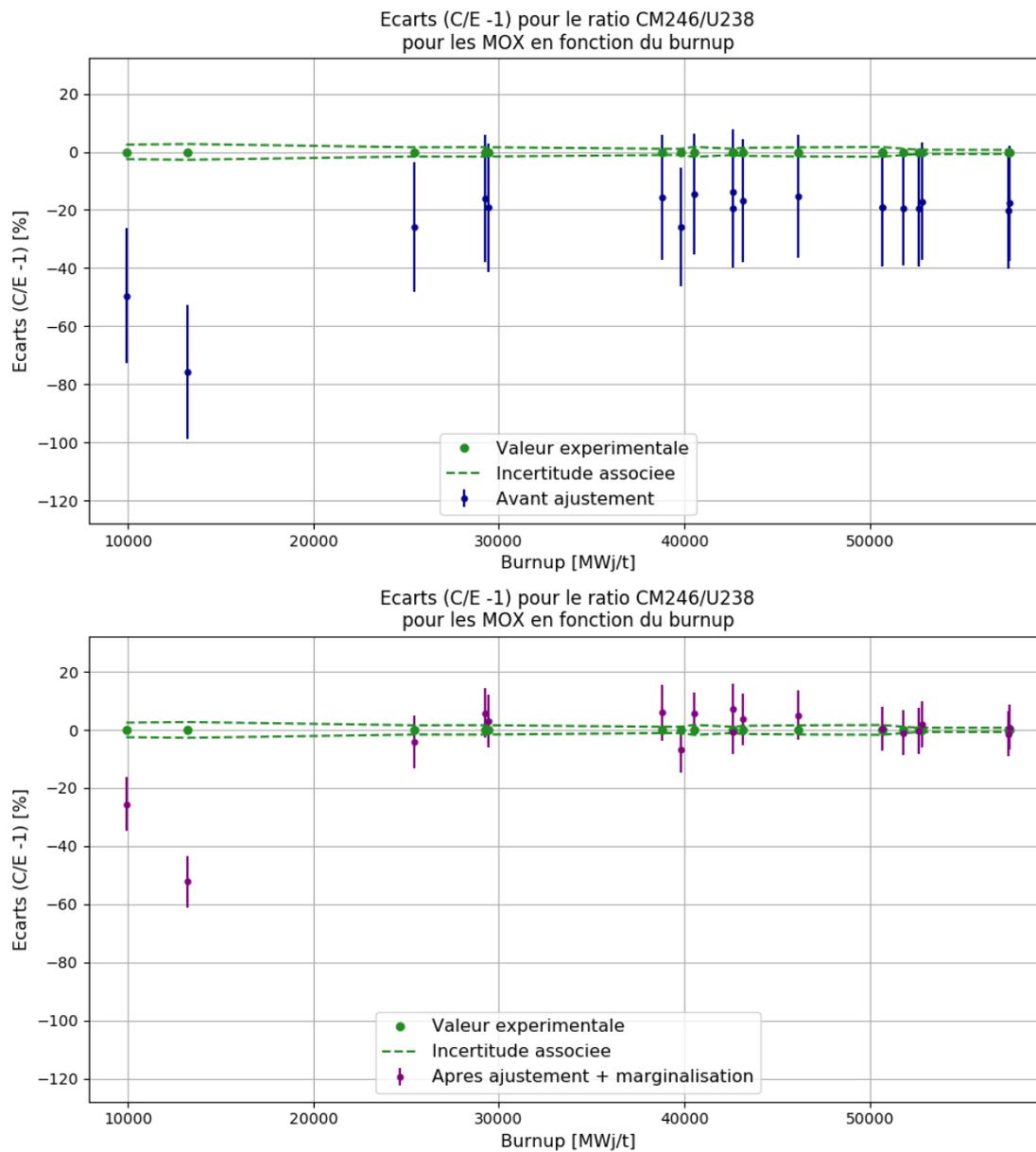


Figure B.30 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{246}Cm pour les combustibles MOX

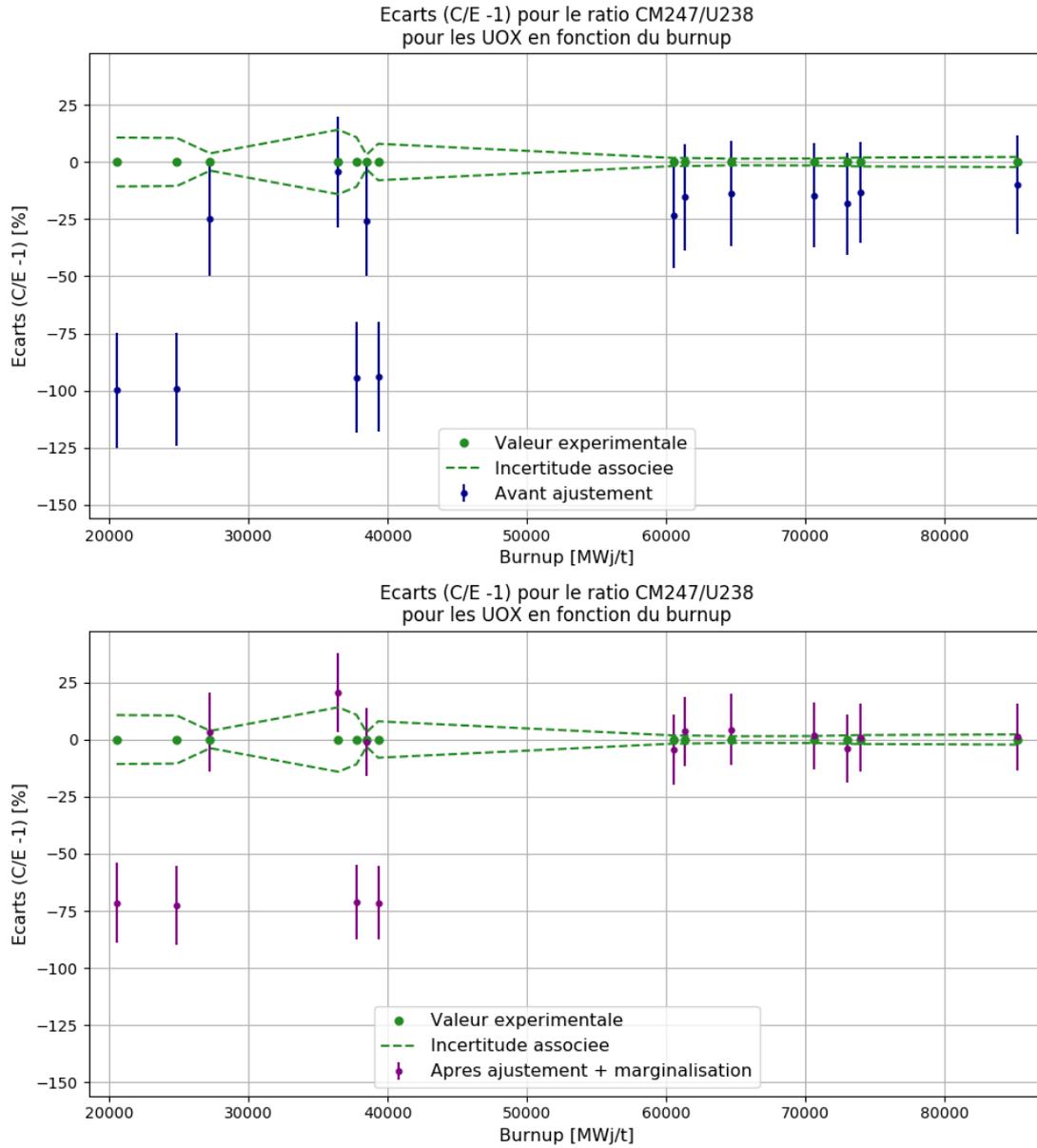


Figure B.31 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{247}Cm pour les combustibles UOX

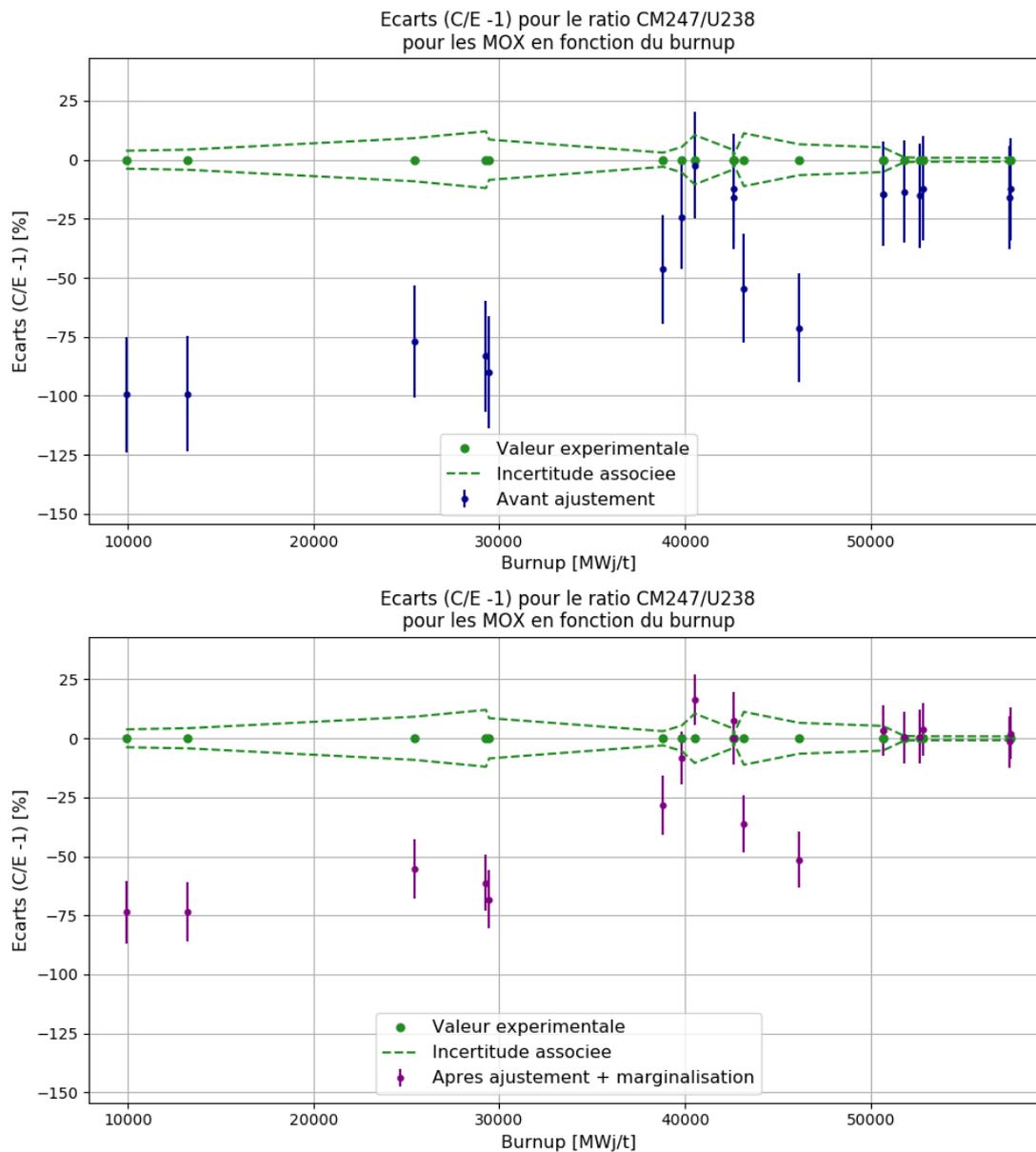


Figure B.32 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{247}Cm pour les combustibles MOX

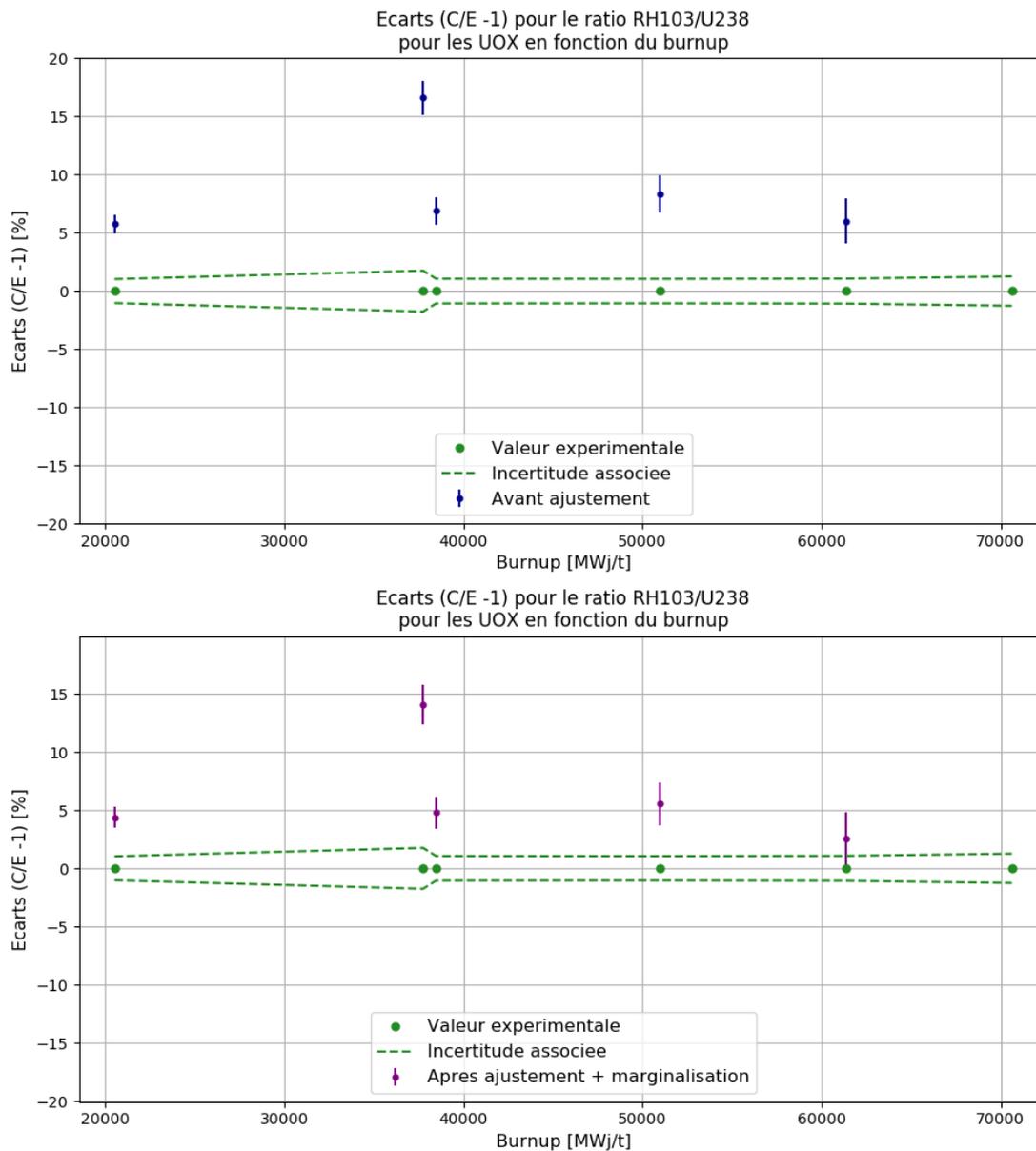


Figure B.33 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{103}Rh pour les combustibles UOX

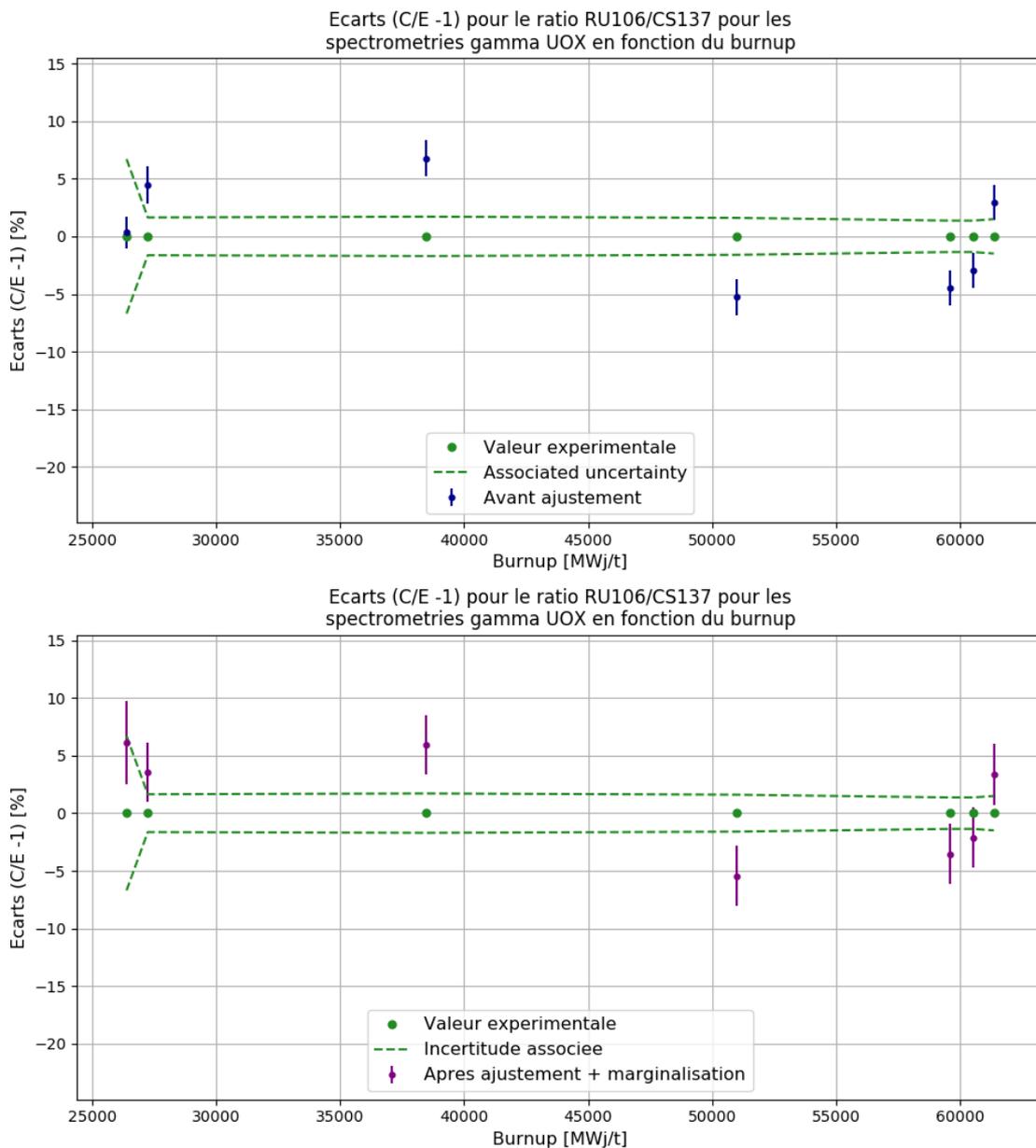


Figure B.34 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{106}Ru pour les spectrométries gamma UOX

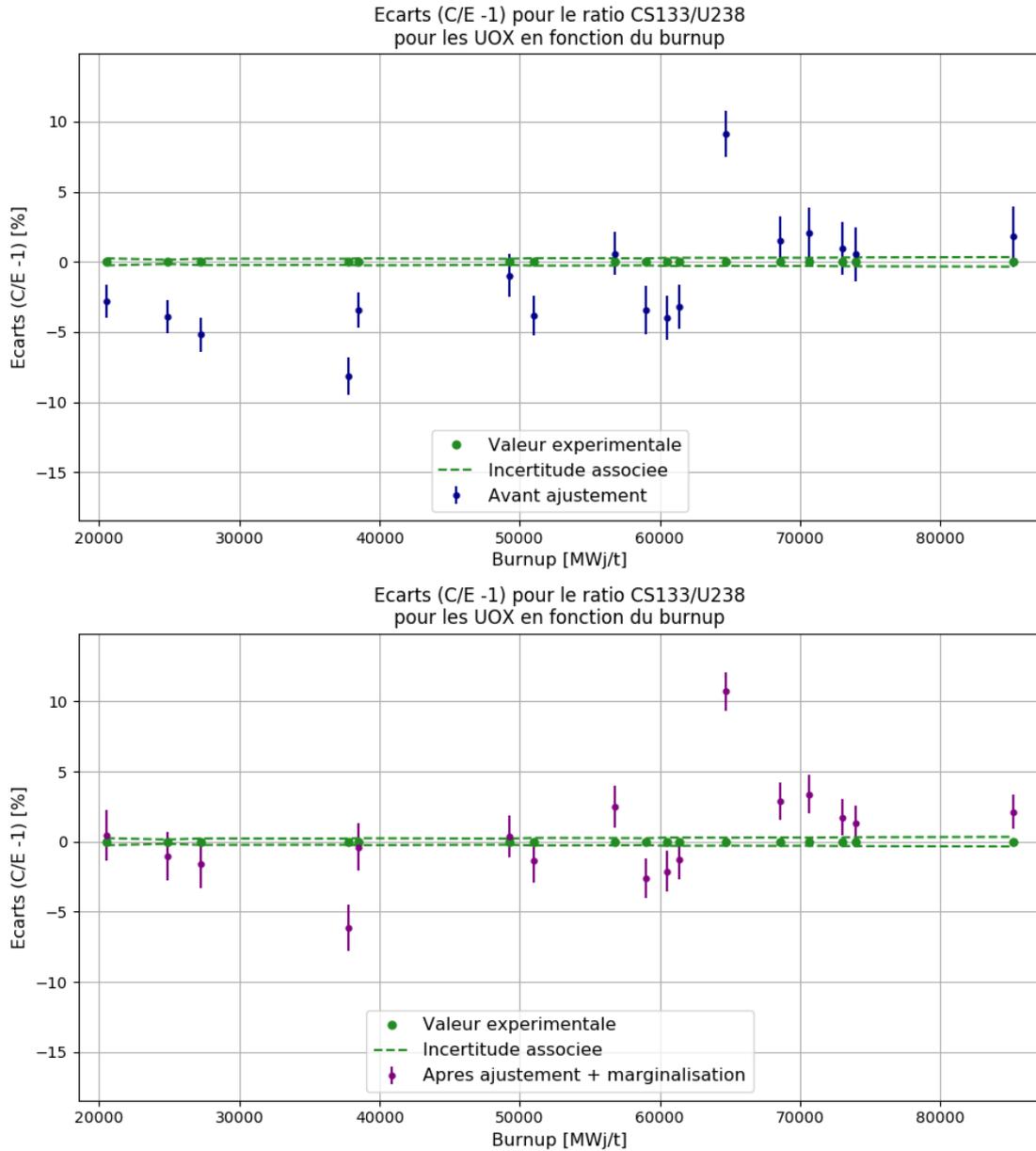


Figure B.35 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{133}Cs pour les combustibles UOX

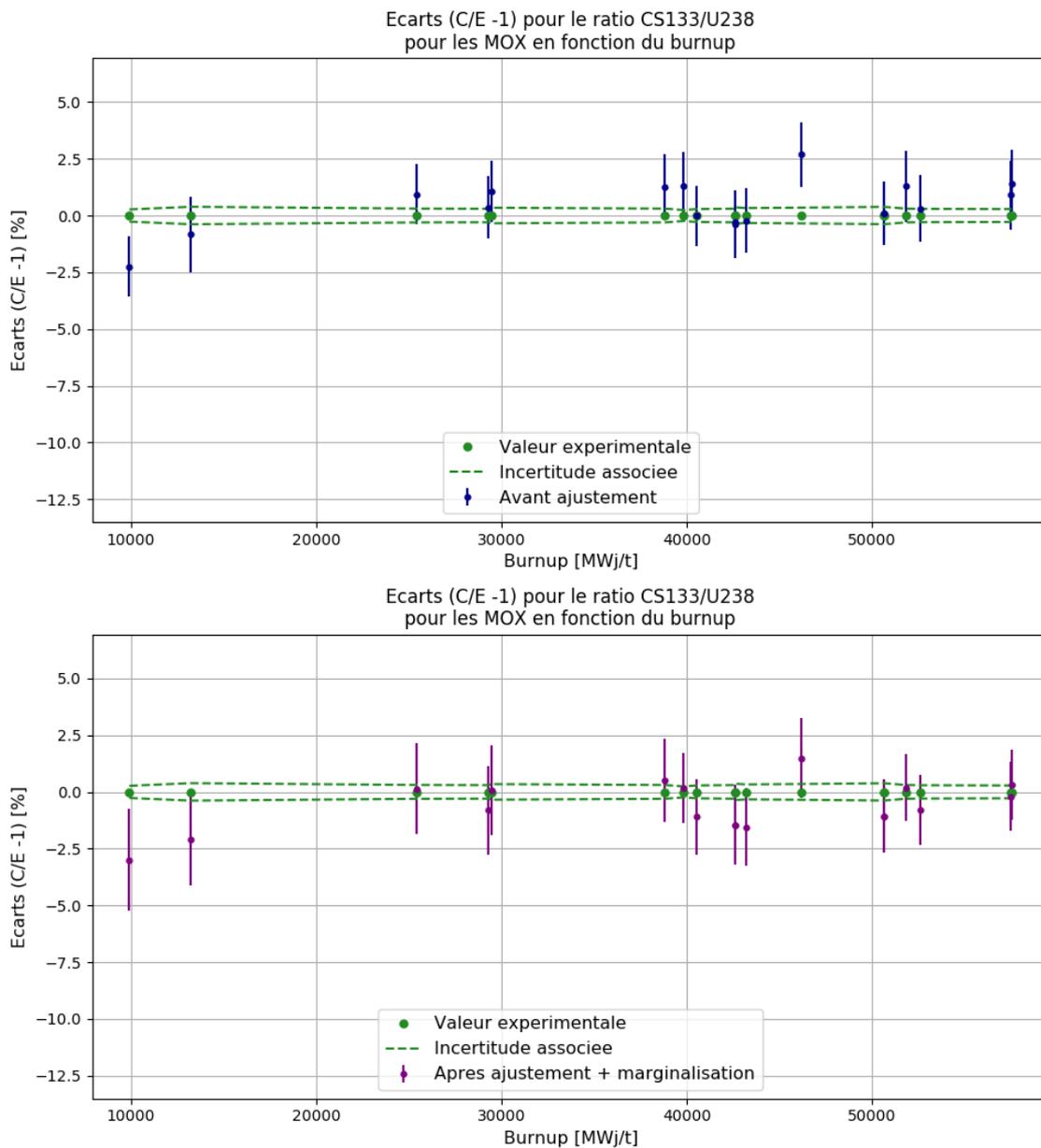


Figure B.36 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{133}Cs pour les combustibles MOX

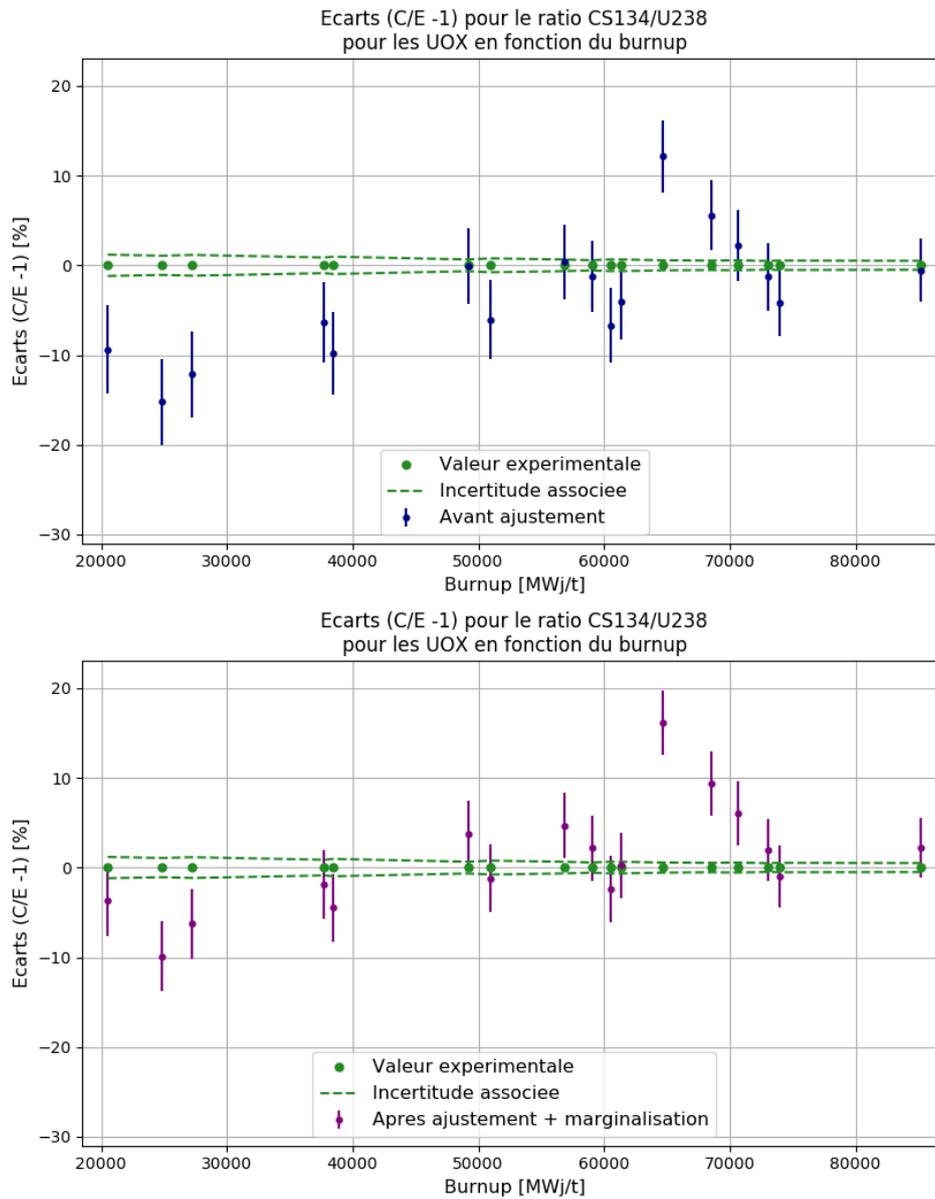


Figure B.37 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{134}Cs pour les combustibles UOX

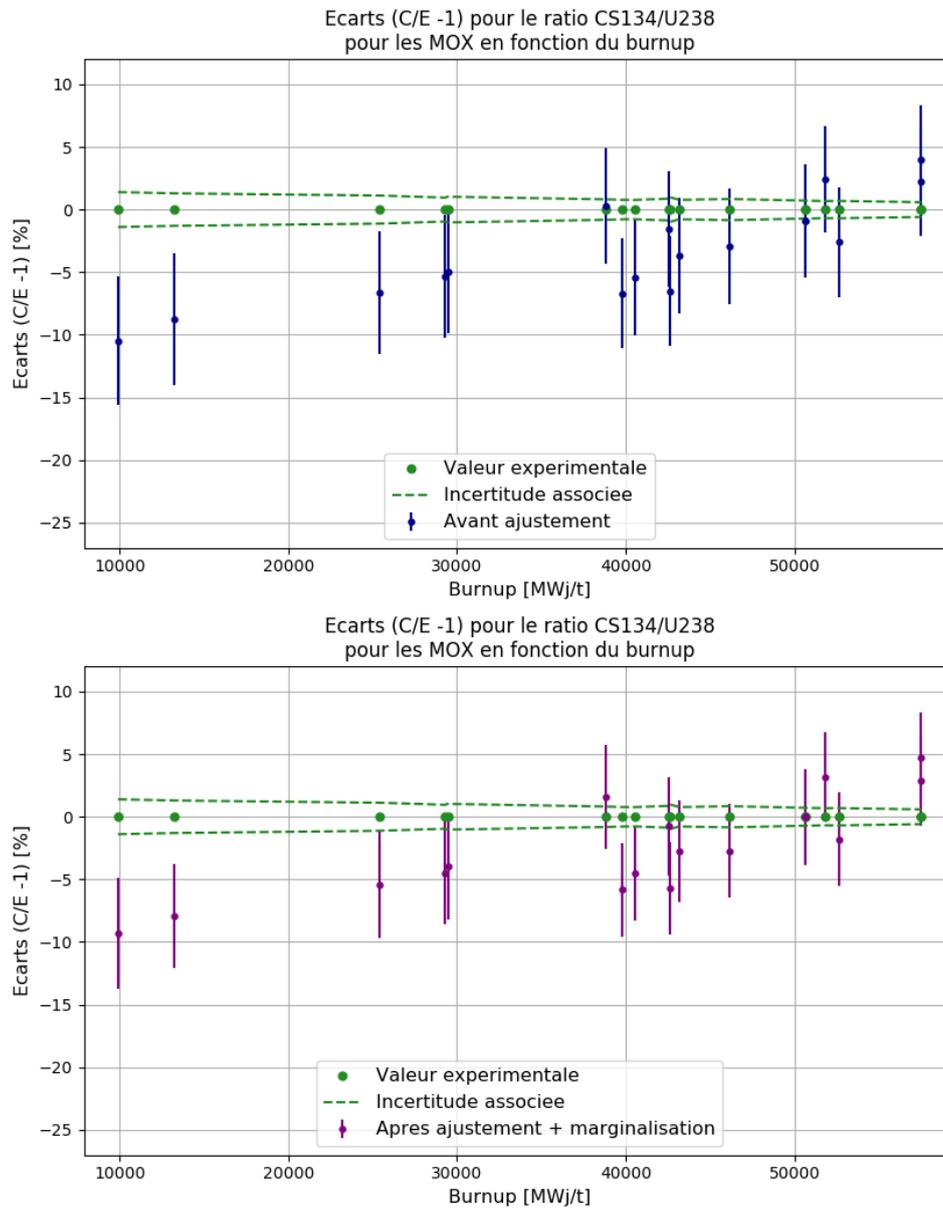


Figure B.38 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{134}Cs pour les combustibles MOX

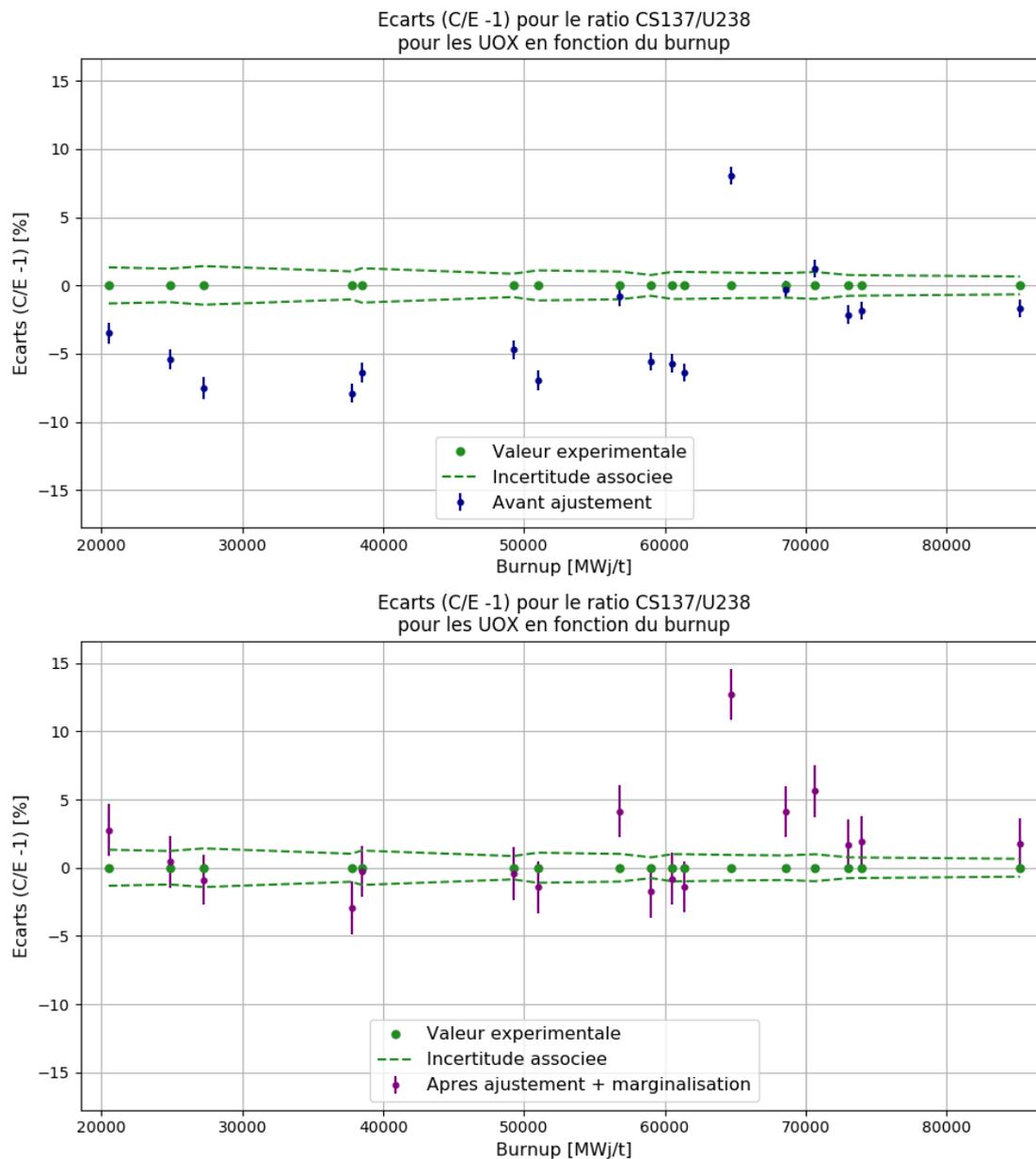


Figure B.39 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{137}Cs pour les combustibles UOX

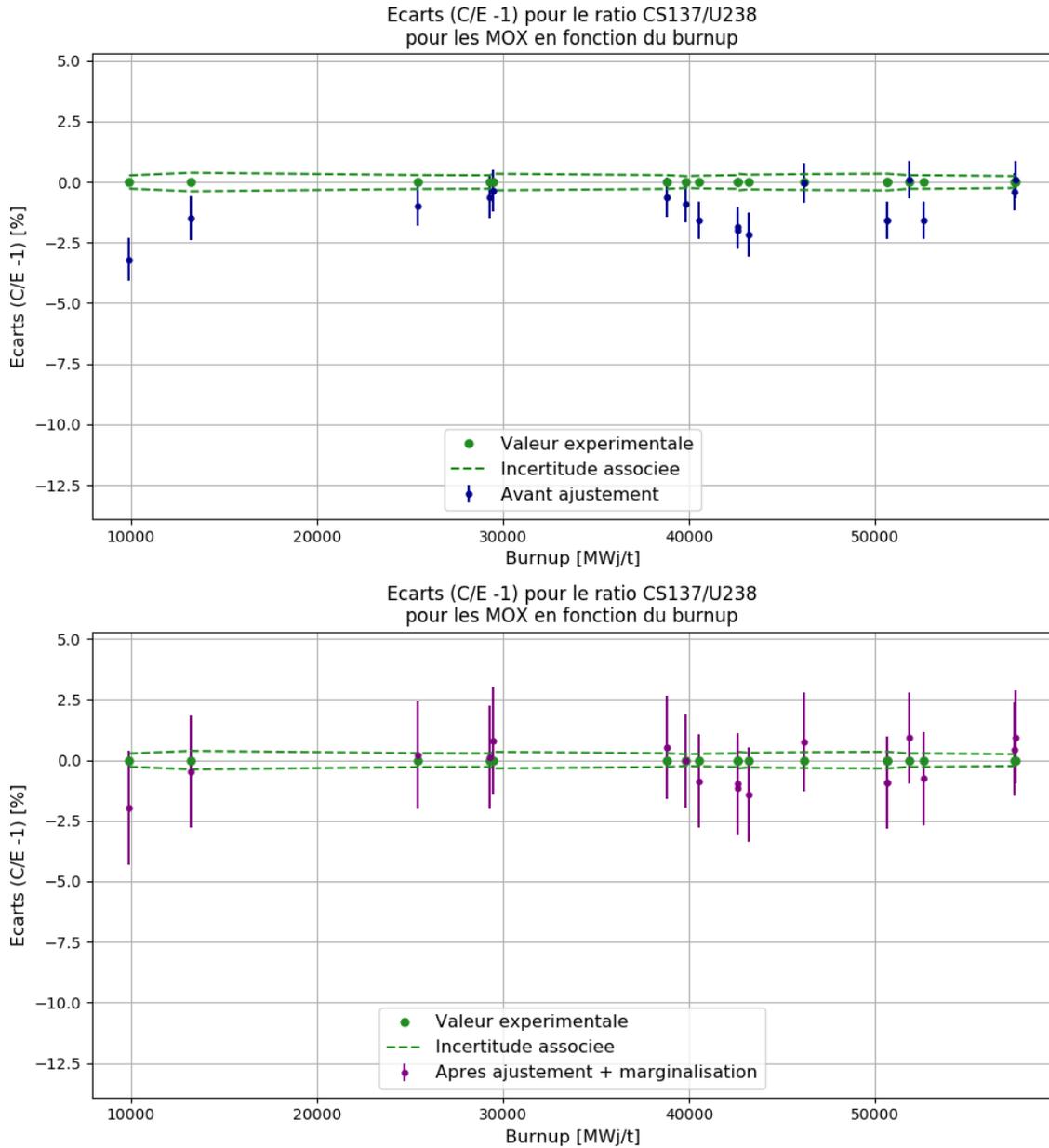


Figure B.40 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{137}Cs pour les combustibles MOX

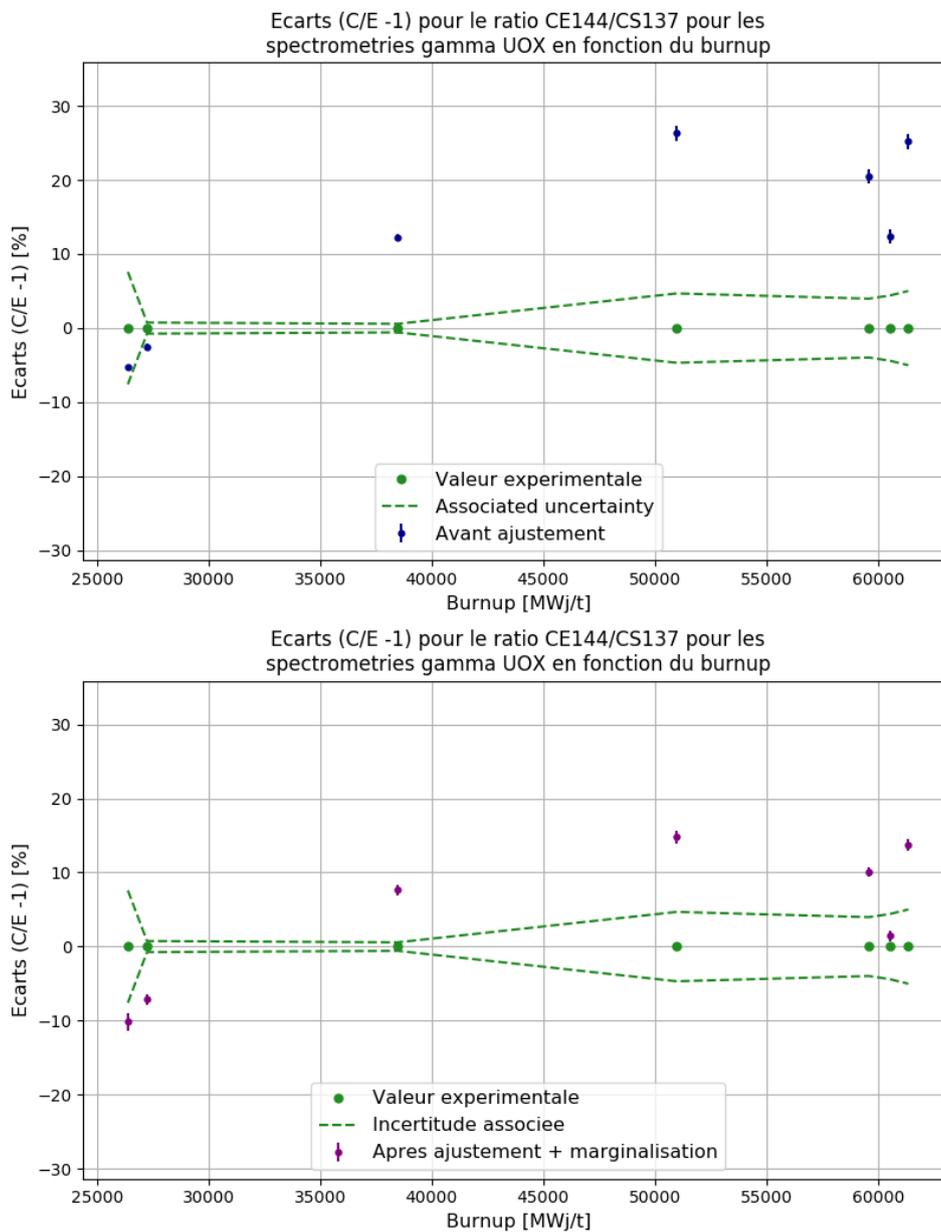


Figure B.41 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{144}Ce pour les spectrométries gamma UOX

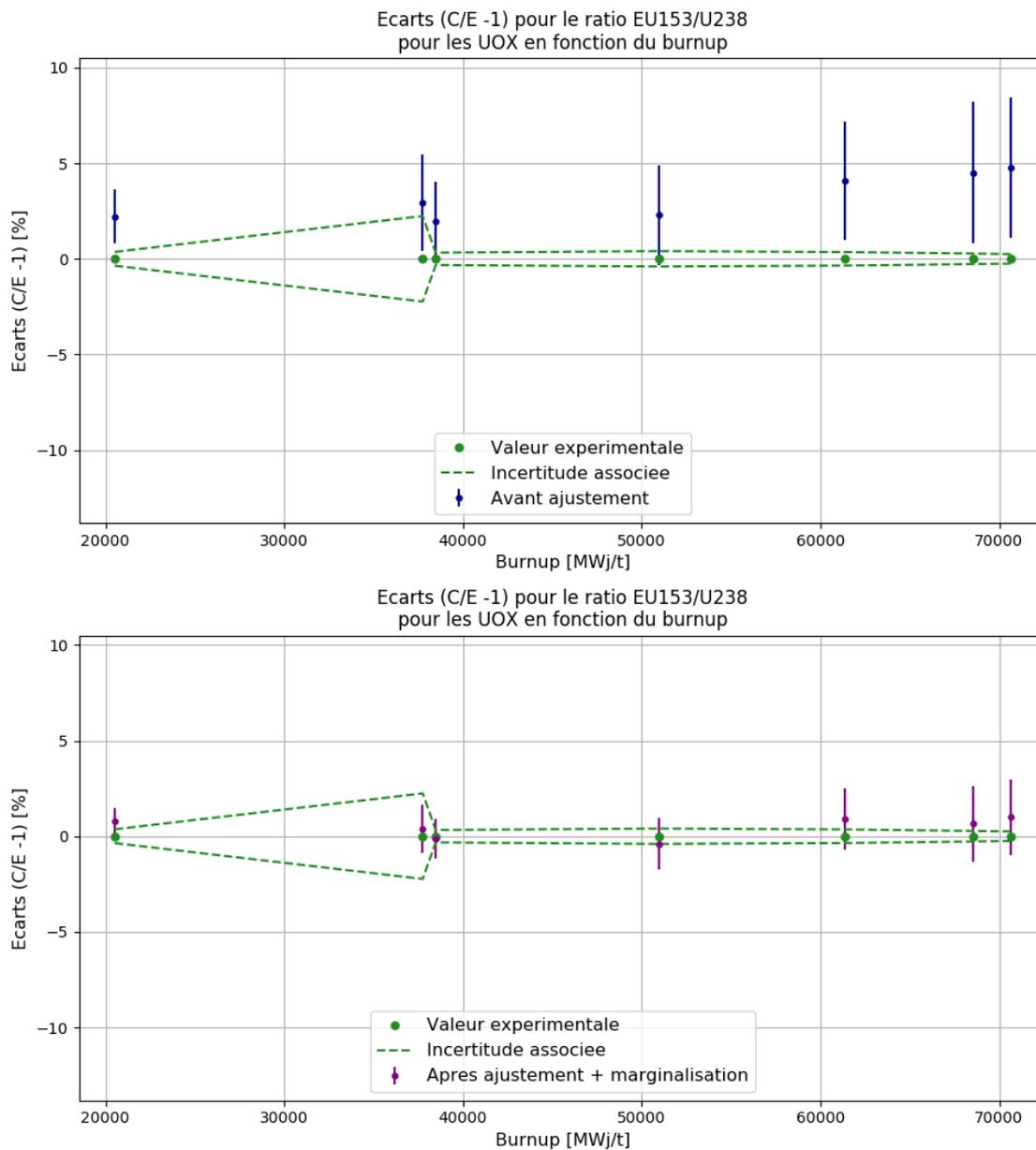


Figure B.42 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{153}Eu pour les combustibles UOX

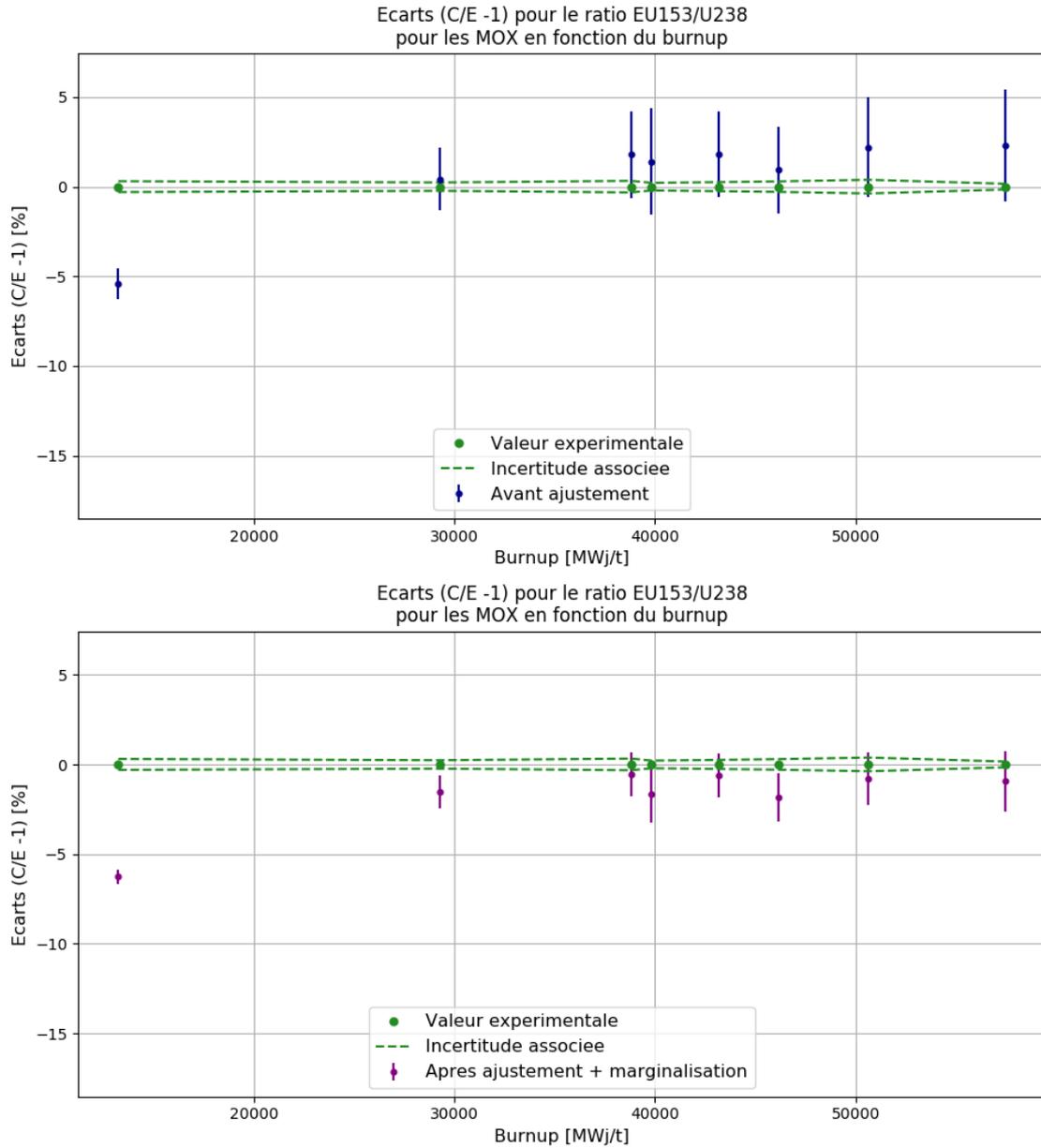


Figure B.43 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{153}Eu pour les combustibles MOX

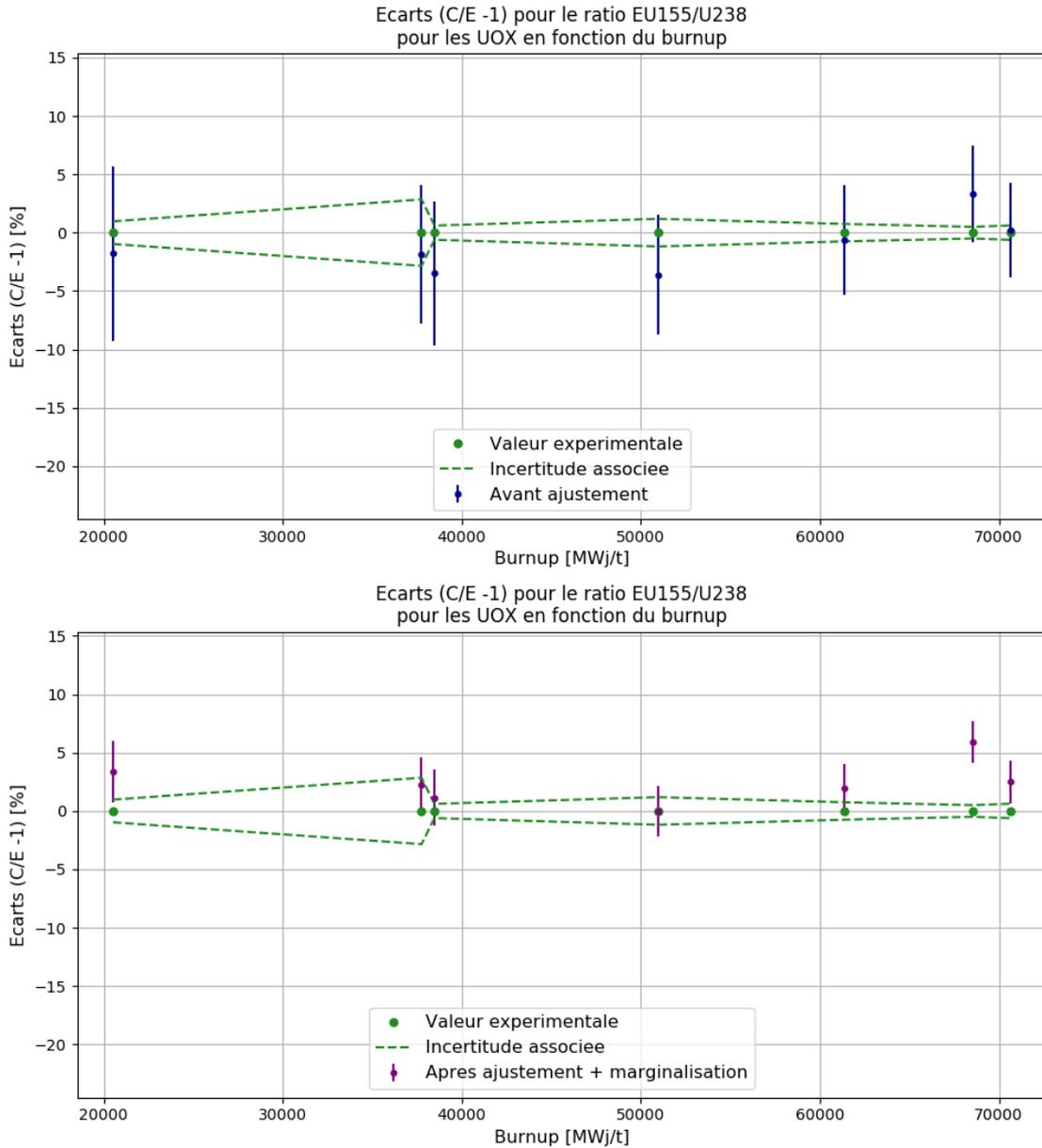


Figure B.44 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{155}Eu pour les combustibles UOX

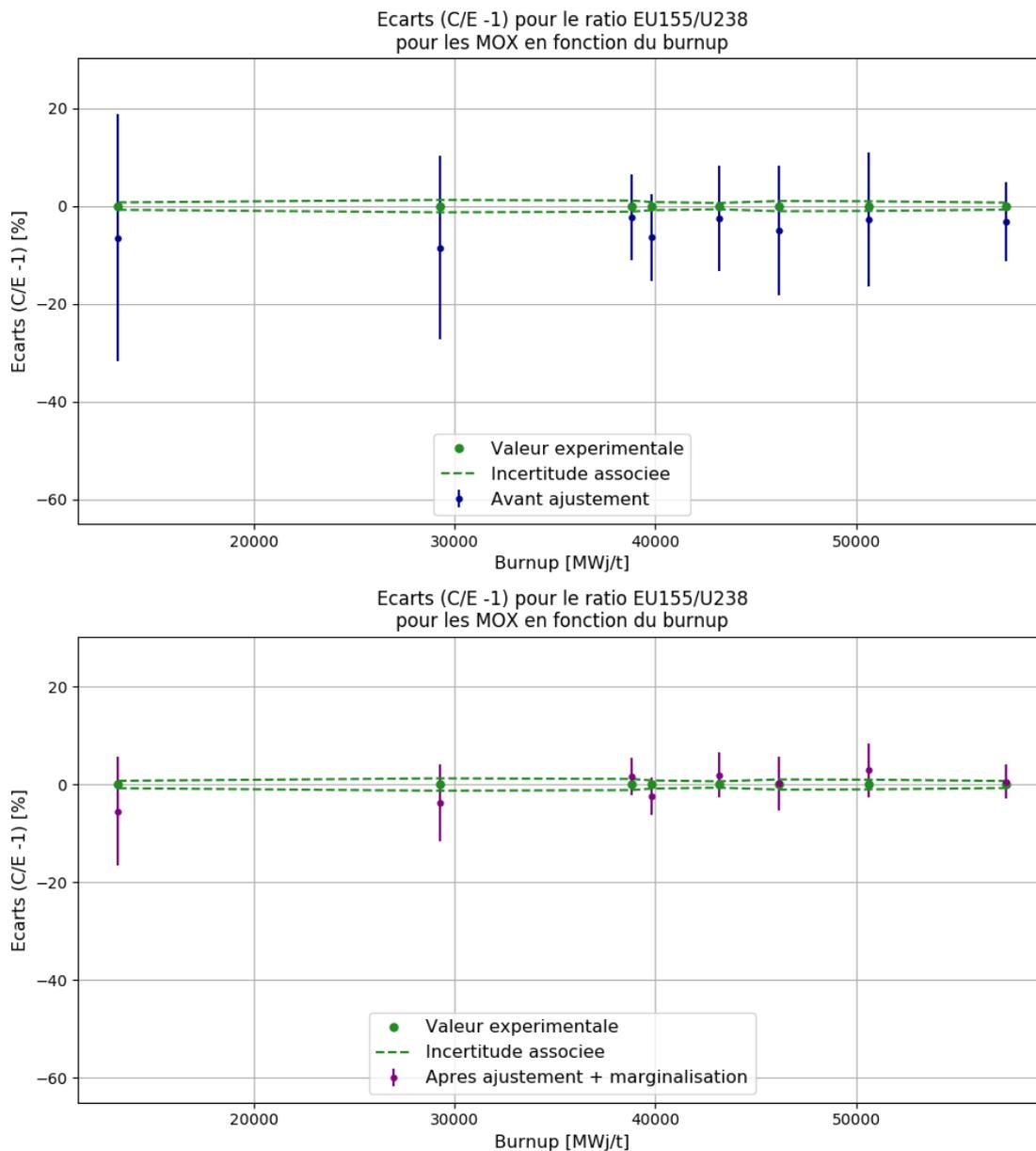


Figure B.45 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{155}Eu pour les combustibles MOX

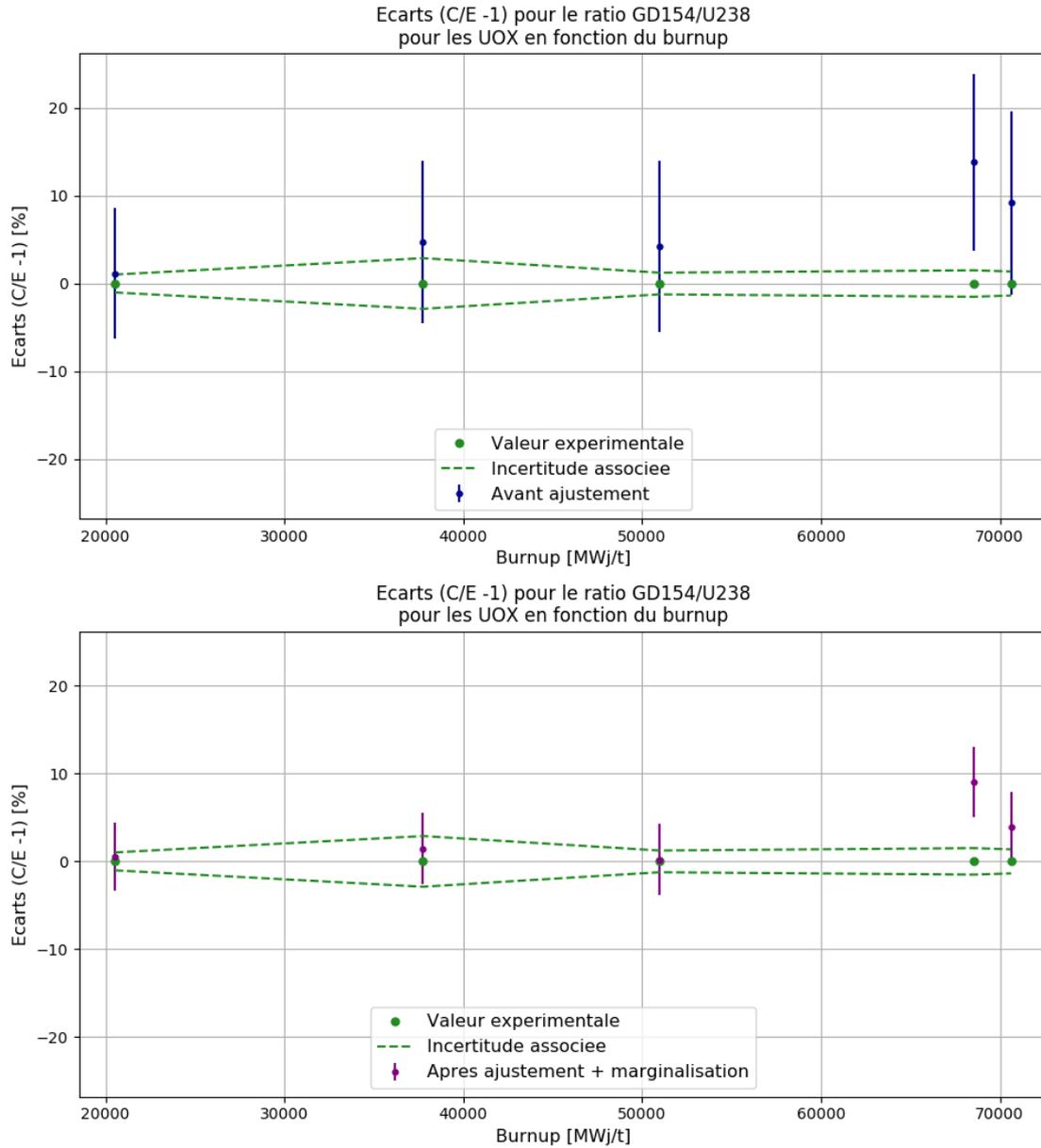


Figure B.46 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{154}Gd pour les combustibles UOX

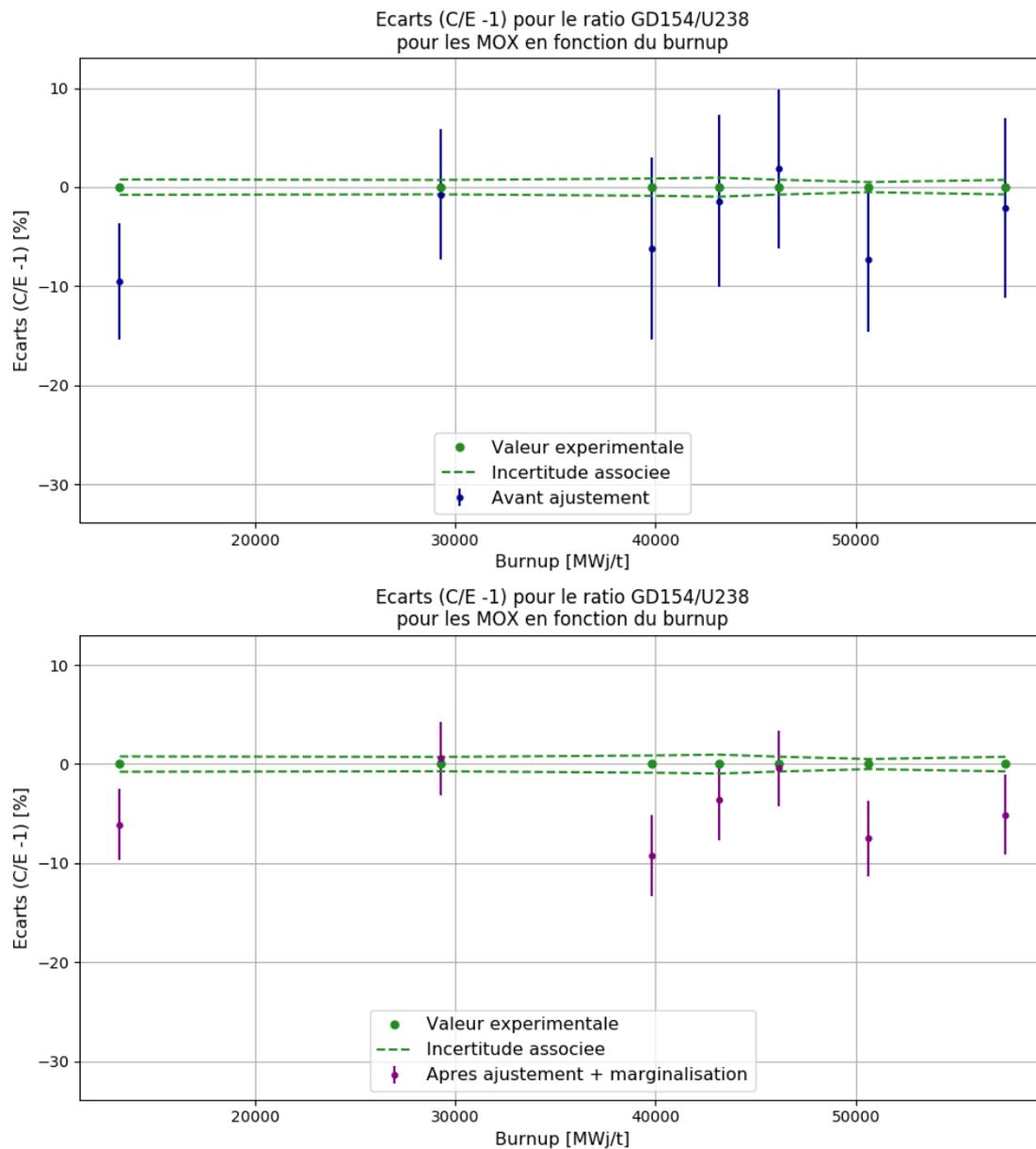


Figure B.47 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{154}Gd pour les combustibles MOX

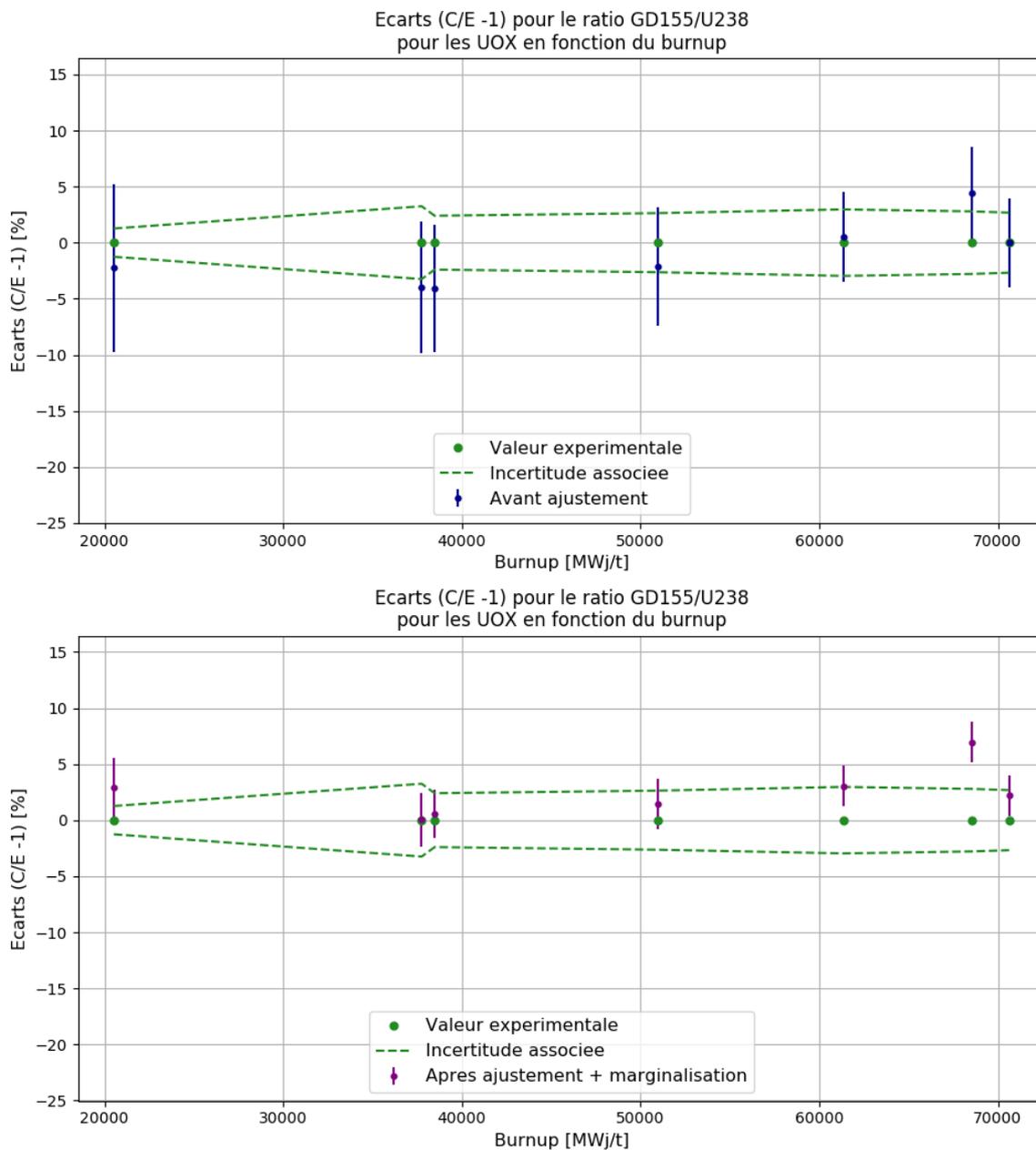


Figure B.48 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{155}Gd pour les combustibles UOX

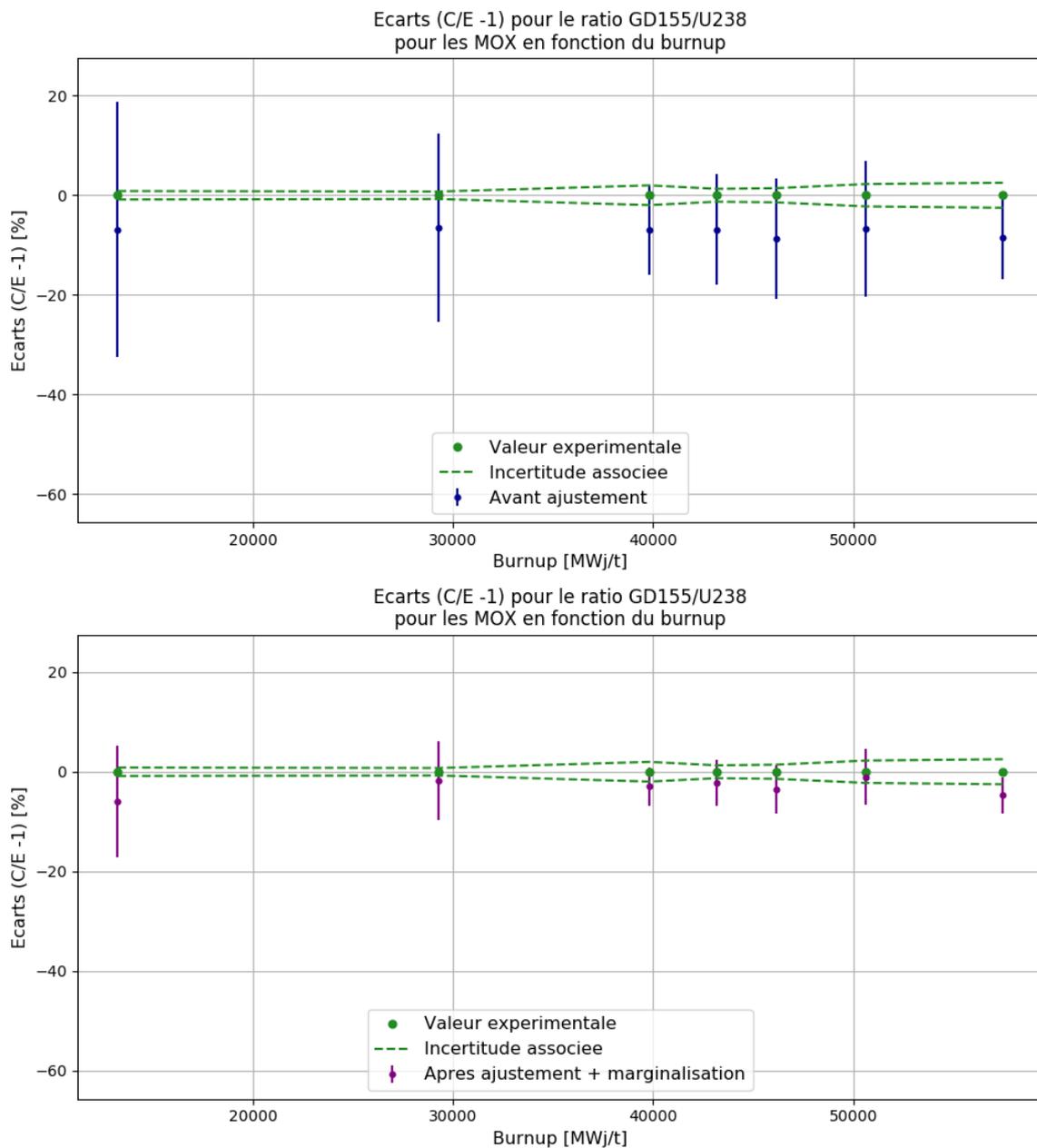


Figure B.49 - Évolution des écarts C/E pour le calcul de la concentration en ^{155}Gd pour les combustibles MOX

BIBLIOGRAPHIE

- (Archier, 2014-1) : P. Archier *et al.*, “COMAC – Nuclear data covariance matrices library for reactor applications”, Proc. Int. Conf. PHYSOR, Kyoto, Japon (2014).
- (Archier, 2014-2) : P. Archier *et al.*, “CONRAD evaluation code: development status and perspectives, *Nuclear Data Sheets* **118**, pp. 448-490 (2014).
- (Archier, 2016) : P. Archier *et al.*, “Validation of a multi-purpose depletion chain for burnup calculations through TRIPOLI-4 calculations and IFP perturbation method”, Proc. Int. Conf. PHYSOR, Sun Valley, Idaho, États-Unis (2016).
- (Arrêté INB, 2012) : Arrêté INB extrait du site www.legifrance.gouv.fr, consulté le 07/02/2018.
- (ASN, Qualification OCS, 2017) : Guide ASN n°**28**, “Qualification des outils de calcul scientifique utilisés dans la démonstration de sûreté – 1^{ère} barrière” (2017).
- (Bail, 2009) : A. Bail, “Mesures de rendements isobariques et isotopiques de produits de fission lourds sur le spectromètre de masse Lohengrin”, Thèse de l’Université de Bordeaux I (2009).
- (Bair, 1966) : J. Bair *et al.*, “Total neutron yield from the reaction $^{14}\text{C}(\alpha, n)^{17}\text{O}$ ”, *Physical review* **144**, p. 799 (1966).
- (Bastian, 2006) : C. Bastian *et al.*, “AGS, a computer code for uncertainty propagation in time-of-flight cross-section data”, Proc. Int. Conf. PHYSOR, Vancouver, Canada (2006).
- (Basunia, 2014) : M. Basunia *et al.*, “Determination of the $^{151}\text{Eu}(n, \gamma)^{152\text{m1}}\text{gEu}$ and $^{153}\text{Eu}(n, \gamma)^{154}\text{Eu}$ reaction cross-sections at thermal neutron energy”, *Nuclear Data Sheets* **119**, pp. 88-90 (2014).
- (Bayes, 1763) : T. Bayes, “An essay toward solving a problem in the doctrine of chances”, *Philos. Trans. Roy. Soc. London* **53**, pp. 370-418 (1763).
- (Benoit, 2012) : J.-C. Benoit *et al.*, “Decay heat of sodium fast reactor: comparison of experimental measurements on the PHENIX reactor with calculations performed with the French DARWIN package”, Proc. Int. PHYSOR, Knoxville, Tennessee, États-Unis (2012).
- (Bernard, 2015) : D. Bernard *et al.*, “Validation of JEFF-3.1.1 thermal and epithermal induced capture cross-sections through MELUSINE experiment analysis”, *Nuclear Science Engineering* **179**, pp. 302-312 (2015).

- (Bernard & Bouland, 2012) : D. Bernard et O. Bouland, “Americium-241 phase I: reevaluation for JEFF-3.1.1 and a step forward”, *Journal of Nuclear Science and Technology* **49**, pp. 132-166 (2012).
- (Blanchet, 2016) : D. Blanchet *et al.*, “On core-reflector interface effects in the ASTRID sodium cooled fast reactor”, Proc. Int. Conf. ICAPP, San Francisco, Californie, États-Unis (2016).
- (Bonner & Brubaker, 1936) : T. Bonner et W. Brubaker, “The disintegration of nitrogen by neutrons”, *Physical review* **49**, p. 223 (1936).
- (Boulanger, 2004) : D. Boulanger *et al.*, “High Burnup PWR and BWR MOX fuel performance: a review of Belgonucleaire recent experimental programs”, Proc. Int. Meeting on LWR Fuel Performance, Orlando, Florida, États-Unis (2004).
- (Brown, 2018) : D. Brown *et al.*, “ENDF/B-VIII.0: the 8th major release of nuclear reaction data library with CIELO-project cross sections, new standards and thermal scattering data”, *Nuclear Data Sheets* **148**, pp. 1-142 (2018).
- (Brun, 2011) : E. Brun *et al.*, “Systematic uncertainties due to statistics in Monte-Carlo burnup codes: application to a simple benchmark with TRIPOLI-4-D”, *Nuclear Science and Technology* **2**, pp. 879-885 (2015).
- (Brun, 2015) : E. Brun *et al.*, “TRIPOLI-4®: CEA, EDF and AREVA reference Monte Carlo code”, *Annals of Nuclear Energy* **82**, pp. 151-160 (2015).
- (Carmouze, 2017) : C. Carmouze *et al.*, “The Similarity/Transposition theory to assess accurately PWR-MOX 15x15 used fuel inventory with DARWIN2.3”, Proc. Int. Conf. GLOBAL, Séoul, Corée du Sud (2017).
- (Chabert, 2000) : C. Chabert *et al.*, “Qualification of the APOLLO2 assembly code using PWR-UO2 isotopic assays - the importance of irradiation history and thermo-mechanics on fuel inventory prediction”, Proc. Int. Conf. PHYSOR, Pittsburgh, Pennsylvania, États-Unis (2000).
- (Chadwick, 2011) : M. Chadwick *et al.*, “ENDF/B-VII.1 nuclear data for science and technology: cross sections, covariances, fission product yields and decay data”, *Nuclear Data Sheets* **112**, pp. 2887-2996 (2011).
- (Chambon, 2016), A. Chambon *et al.*, “Validation of HORUS3D/N against TRIPOLI-4®D for code depletion calculation of the Jules Horowitz reactor”, Proc. Int. Conf. PHYSOR, Sun Valley, Idaho, États-Unis (2016).
- (Chandramouleeswaran, 2014) : S. Chandramouleeswaran *et al.*, “Mass spectrometry: a boon to nuclear industry”, *Journal of Analytical and Bioanalytical techniques*, S6:005 (2014).

- (Coste-Delclaux, 2006) : M. Coste-Delclaux, “Modélisation du phénomène d'autoprotection dans le code de transport neutronique APOLLO2”, Thèse de Doctorat du Conservatoire National des Arts et Métiers (2006).
- (Coste-Delclaux, 2009) : M. Coste-Delclaux *et al.*, “GALILÉE: a nuclear data processing system for transport, depletion and shielding codes”, Proc. Int. WONDER, Cadarache, Saint-Paul-Lès-Durance, France (2009).
- (Damian, 2013) : F. Damian *et al.*, “ORPHEE research reactor: 3D core depletion calculation using Monte-Carlo code TRIPOLI-4®”, Proc. Int. Conf. SNA + MC, Paris, France (2013).
- (De Saint Jean, 2007) : C. De Saint Jean *et al.*, “Status of CONRAD, a nuclear reaction analysis tool”, Proc. Int. Conf. on Nuclear Data for Science and Technology, Nice, France (2007).
- (De Saint Jean, 2009) : C. De Saint Jean *et al.*, “A Monte Carlo approach to nuclear model parameter uncertainties propagation”, *Nuclear Science and Engineering* **161**, pp. 363-370 (2009).
- (Dean, 2007) : C. Dean *et al.*, “Validation of important fission product evaluations through CERES integral benchmarks”, Proc. Int. Conf. Nuclear Data for Science and Technology, Nice, France (2007).
- (Dumonteil, 2011) : E. Dumonteil *et al.*, “Biases and statistical errors in Monte-Carlo burnup calculations: an unbiased stochastic scheme to solve Boltzmann / Bateman coupled equations”, *Nuclear Science and Engineering* **167**, pp. 165-170 (2011).
- (Erradi & Santamarina, 2010) : L. Erradi et A. Santamarina, “Analysis of the MISTRAL experiment on the reactivity temperature coefficient for UOX and MOX lattices using JEFF-3.1.1 nuclear data library”, Proc. Int. Conf. PHYSOR, Pittsburgh, Pennsylvanie, États-Unis (2010).
- (Farina Arboccò, 2014) : F. Farina Arboccò *et al.*, “Experimental determination of k_0 , Q_0 factors, effective resonance energies and neutron cross-sections for 37 isotopes of interest in NAA”, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* **302**, pp. 655-672 (2014).
- (Gabbard, 1959) : F. Gabbard *et al.*, “The disintegration of nitrogen by fast neutrons”, *Nuclear Physics* **14**, pp. 277-294 (1959).
- (Gauld, 2011) : I. Gauld *et al.*, “Uncertainties in predicted isotopic compositions for high burnup PWR spent nuclear fuel”, *NUREG/CR-7012, ORNL/TM-2010/41, U.S. Nuclear Regulatory Commission* (2011).
- (Gledenov, 1994) : Y. Gledenov *et al.*, “Cross section for the $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$ reaction at 24.5, 53.5 and 144 keV”, *Zeitschrift für Physik A* **348**, pp. 199-200 (1994).

- (Gruel, 2011) : A. Gruel *et al.*, “Interpretation of fission product oscillations in the MINERVE reactor, from thermal to epithermal spectra”, *Nuclear Science and Engineering* **169**, pp. 229-244 (2011).
- (Gupta, 2017) : Y. Gupta *et al.*, “Fission fragment yield distribution in the heavy-mass region from the $^{239}\text{Pu}(n_{\text{th}},f)$ reaction”, *Physical review C* **96**, p. 014608 (2017).
- (Habert, 2009) : B. Habert, “Estimation des incertitudes dans l'évaluation des sections efficaces de réactions nucléaires”, Thèse de l'insitut polytechnique de Grenoble (2009).
- (Habert, 2010) : B. Habert *et al.*, “Retroactive generation of covariance matrix of nuclear model parameters using marginalization techniques”, *Nuclear Science and Engineering* **166**, pp. 276-287 (2010).
- (Hfaiedh, 2005) : N. Hfaiedh *et al.*, “Determination of the optimized SHEM mesh for neutron transport calculation”, Proc. Int. Conf. M&C, Avignon, France (2005).
- (Hudelot, 2006) : J.-P. Hudelot *et al.*, “The OSMOSE program for the qualification of integral cross sections of actinides: preliminary results in a PWR-UOS spectrum”, Proc. Int. Conf PHYSOR, Vancouver, Canada (2006).
- (Huy, 2018) : V. Huy, “Contribution to a better knowledge of nuclear data using integral data assimilation for a better characterization of the ASTRID core”, Thèse de l'université d'Aix-Marseille (2018).
- (IAEA, 2009) : Rapport de l'IAEA, “Post-Irradiation Examination and in-pile measurement techniques for water reactor fuels”, *TECDOC 1635* (2009).
- (IRSN C14, 2016) : Fiche de l'IRSN, “Carbone 14 et environnement”, disponible sur <http://www.irsn.fr/FR/Larecherche/publications-documentation/fiches-radionucleides/environnement/Pages/carbone-14-environnement.aspx#>, consultée le 10/09/2016.
- (IRSN H3, 2016) : Fiche de l'IRSN, “Tritium et environnement”, disponible sur <http://www.irsn.fr/FR/Larecherche/publications-documentation/fiches-radionucleides/environnement/Pages/tritium-environnement.aspx#>, consultée le 10/09/2016.
- (IRSN Kr85, 2016) : Fiche de l'IRSN, “Krypton 85 et environnement”, disponible sur <http://www.irsn.fr/FR/Larecherche/publications-documentation/fiches-radionucleides/Documents/sante/Kr85SAN.pdf>, consultée le 10/09/2016.
- (Jaboulay, 2012) : J. Jaboulay *et al.*, “Analysis of MERCI decay heat measurement for PWR UO₂ fuel rod”, *Nuclear Technology* **177**, pp. 73-82 (2012).

- (Jandel, 2014) : M. Jandel *et al.*, “Capture and fission with DANCE and NEUANCE”, Int. Workshop on Perspectives on Nuclear Data for the Next Decade, Bruyères-le-Châtel, France (2014).
- (Johnson & Barschall, 1950) : C. Johnson et H. Barschall, “Interaction of fast neutrons with nitrogen”, *Physical review* **80**, p. 818 (1950).
- (Jouault, 2017) : V. Jouault, “Amélioration de la démarche de vérification et validation du nouveau code neutronique APOLLO3”, Thèse de doctorat d'Aix Marseille Universités (2017).
- (Koehler & Graff, 1991) : P. Koehler et S. Graff, “ $^{17}\text{O}(n,\alpha)^{14}\text{C}$ cross section from 25 meV to approximately 1 MeV”, *Physical review C* **44**, p. 2788 (1991).
- (Krivtchik, 2014) : G. Krivtchik, “Analysis of uncertainty propagation in nuclear fuel scenarios”, Thèse de l'Université de Grenoble (2014).
- (Lahaye, 2014) : S. Lahaye *et al.*, “First Verification and Validation steps of MENDEL release 1.0 cycle code system”, Proc. Int. Conf. PHYSOR, Kyoto, Japon (2014).
- (Leal, 2017) : L. Leal *et al.*, “Nuclear data evaluation work at IRSN”, JEFDOC-1832, disponible sur www.oecd-nea.org/ (2017).
- (Lebrat, 2011) : J.-F. Lebrat *et al.*, “JEFF-3.1.1 nuclear data validation for sodium fast reactors”, *Journal of nuclear science and Technology* **48**, pp. 620-627 (2011).
- (Lebrat, 2015) : J.-F. Lebrat *et al.*, “Analysis of the TRAPU and DOUBLON in PHENIX for the experimental validation of the DARWIN package for fast reactors”, Proc. Int. Conf. GLOBAL, Paris, France (2015).
- (Lebrat, 2017) : J.-F. Lebrat *et al.*, “The use of representativity theory in the depletion calculations of SFR blankets”, *Annals of Nuclear Energy* **101**, pp. 429-433 (2017).
- (Leconte, 2013-1) : P. Leconte *et al.*, “OSMOSE programme: Validation of actinide nuclear data for LWR applications”, JEFDOC-1502, disponible sur <http://oecd-nea.org/> (2013).
- (Leconte, 2013-2) : P. Leconte *et al.*, “MAESTRO: an ambitious experimental programme for the improvement of nuclear data of structural, detection, moderating, and absorbing materials - first results for ^{nat}V , ^{55}Mn , ^{59}Co , and ^{103}Rh ”, Proc. Int. Conf. ANNIMA, Marseille, France (2013).
- (Leconte, 2014) : P. Leconte *et al.*, “Feedback on ^{239}Pu and ^{240}Pu nuclear data and associated covariances through the CERES integral experiments”, Proc. Int. Conf. PHYSOR, Kyoto, Japon (2014).

- (Leconte, 2016) : P. Leconte *et al.*, “Thermal neutron activation experiments on Ag, In, Cs, Eu, V, Mo, Zn, Sn and Zr in the MINERVE facility”, *EPJ Web of Conferences* **111**, p. 07001 (2016).
- (Leconte, 2017) : P. Leconte *et al.*, “Nuclear data feedback on structural, moderating and absorbing materials through the MAESTRO experimental programme in MINERVE”, JEFFDOC-1849, disponible sur www.oecd-neo.org/ (2017).
- (Lee, 2005) : Y. Lee *et al.*, “TRIPOLI-PEPIN depletion code and its first numerical benchmarks for PWR high-burnup UO₂ and MOX spent fuel”, Proc. Int. Conf. M&C, Avignon, France (2005).
- (Leinweber, 2014) : G. Leinweber *et al.*, “Europium resonance parameters from neutron capture and transmission measurements in the energy range 0.01-200 eV”, *Annals of Nuclear Energy* **69**, pp. 74-89 (2014).
- (Lerendegui-Marco, 2018) : J. Lerendegui-Marco *et al.*, “Radiative neutron capture of ²⁴²Pu in the resonance region at the CERN n_TOF-EAR1 facility”, *Physical Review C* **97**, p. 024605 (2018).
- (MacFarlane, 2012) : R. MacFarlane *et al.*, “The NJOY nuclear data processing system, version 2012”, *Rapport LA-UR-12-27079*, Laboratoire National de Los Alamos (2012).
- (Meister, 1998) : A. Meister *et al.*, “The effective temperature for Doppler broadening of neutron resonances in UO₂”, Proc. Int. Conf. PHYSOR, Long-Island, New-York, États-Unis (1998).
- (Mendoza, 2014) : E. Mendoza *et al.*, “Measurement and analysis of the ²⁴³Am neutron capture cross section at the n_TOF facility at CERN”, *Physical Review C* **90**, p. 034608 (2014).
- (Mills, 1995) : R. Mills, “Fission Product Yield Evaluation”, Thèse de l'Université de Birmingham, Royaume-Uni (1995).
- (Morgan, 1979) : G. Morgan *et al.*, “Cross sections for the ¹⁴N(n,p₀), (n,α₀) and (n,α₁) reactions from 0.5 to 15 MeV”, *Nuclear Science and Engineering* **70**, pp. 163-176 (1979).
- (Moxon, 1976) : M. Moxon *et al.*, “The neutron capture cross-section of ¹⁵¹Eu and ¹⁵³Eu in the energy range 0.1 to 100 keV”, *Annals of Nuclear Energy* **3**, pp.399-403 (1976).
- (Mughabghab, 2006) : S. Mughabghab, *Atlas of Neutron Resonances*, Elsevier (2006).
- (Muir, 2011) : D. Muir, “The contribution of individual correlated parameters to the uncertainty of integral quantities”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, **644**, pp. 55-58 (2011).

- (Noguère, 2012) : G. Noguère *et al.*, “Zero variance penalty model for the generation of covariance matrices in integral data assimilation problems”, *Nuclear Science and Engineering* **172**, pp. 164-179 (2012).
- (Noguère, 2013) : G. Noguère *et al.*, “New resonance shape analysis of the 1st resonance of Pu240 for thermal reactor application”, JEFDOC-1526, disponible sur <http://oecd-nea.org/> (2013).
- (Noguère, 2017) : G. Noguère, *Communication personnelle*, (11/2017).
- (Noguère & Doan, 2014) : G. Noguère et P.H.L. Doan, “Progress report on Eu154 buildup for DARWIN applications”, JEFDOC-1592, disponible sur <http://oecd-nea.org/> (2014).
- (OECD-NEA, 2017) : “JEFF-3.2 evaluated data library”, disponible sur http://www.oecd-nea.org/dbforms/data/eva/evatapes/jeff_32/, consulté en 11/2017.
- (OECD-NEA, 2018) : “JEFF-3.3 nuclear data library”, disponible sur <http://www.oecd-nea.org/dbdata/JEFF33/>, consulté en 02/2018.
- (Otuka, 2014) : N. Otuka *et al.*, “Towards a more complete and accurate experimental nuclear reaction data library (EXFOR): international collaboration between nuclear reaction data centers (NRDC)”, *Nuclear Data Sheets* **120**, pp. 272-276 (2014).
- (Ouisloumen, 1991) : M. Ouisloumen *et al.*, “A model for neutron scattering of heavy neutron isotopes that accounts for thermal agitation effects”, *Nuclear Science and Engineering* **107**, pp. 189-200 (1991).
- (Palau, 2018) : J.-M. Palau, *Communication personnelle* (01/2018).
- (Projet CAST, 2018) : “CAST | an Euratom research project”, disponible sur www.projetcast.eu, consulté en 01/2018.
- (Reuss, 2003) : P. Reuss, *Précis de Neutronique*, EDP Sciences (2003).
- (Riffard, 2015) : C. Riffard *et al.*, “DARWIN2 low burnup validation for burnup credit using SFCOMPO PIE database - Verification of ICF values”, Proc. Int. Conf. ICNC, Charlotte, North Carolina, États-Unis (2015).
- (Rizzo, 2018-1) : A. Rizzo *et al.*, “Nuclear Data Adjustment based on the interpretation of post-irradiation experiments with the DARWIN2.3 package”, à paraître dans *EPJ Nuclear Science and Technologies* (2018).
- (Rizzo, 2018-2) : A. Rizzo *et al.*, “Assessment of the ¹⁵³Eu and ¹⁵⁴Eu neutron capture cross sections from the Integral Data Assimilation of used nuclear fuel experiments”, à paraître dans *Annals of Nuclear Energy* (2018).
- (Roque, 2002) : B. Roque *et al.*, “Burnup credit calculation route for PWR MOX assemblies and experimental validation in MINERVE R1-MOX and SLB1 P.I.E”, Proc. Int. IAEA

- Technical committee meeting on the requirements, practices, and developments in burnup credit applications, Madrid, Espagne (2002).
- (Roque, 2003) : B. Roque *et al.*, “The French Post Irradiation Examination database for the validation of depletion calculation tools”, Proc. Int. Conf. ICNC, Tokai Mura, Japon (2003).
- (Roseborough, 1951) : W. Roseborough *et al.*, “The reaction $^{14}\text{C}(\text{p},\text{n})^{14}\text{N}$: excited states in ^{15}N ”, *Physical review* **83**, p. 1133 (1951).
- (Rothenstein, 1998) : W. Rothenstein *et al.*, “Ideal gas scattering kernel for energy-dependent cross-sections”, *Annals of Nuclear Energy* **25**, pp. 209-222 (1998).
- (Ruggieri, 2006) : J.-M. Ruggieri *et al.*, “ERANOS 2.1: International code system for GEN IV fast reactor analyses”, Proc. Int. Conf. ICAPP, Reno, Nevada, États-Unis (2006).
- (Sanchez, 2010) : R. Sanchez *et al.*, “APOLLO2 year 2010”, *Nuclear Technology* **42**, pp. 474-499 (2010).
- (Sanders, 1956) : R. Sanders *et al.*, “Study of the $^{14}\text{C}(\text{p},\text{n})^{14}\text{N}$ and $^{14}\text{C}(\alpha,\text{n})^{17}\text{O}$ reactions”, *Physical review* **104**, p. 1434 (1956).
- (San-Felice, 2013) : L. San-Felice *et al.*, “Experimental validation of the DARWIN2.3 package for fuel cycle applications”, *Nuclear Technology* **184**, pp. 217-232 (2013).
- (Santamarina, 2009) : A. Santamarina *et al.*, “The JEFF-3.1.1 nuclear data library”, JEFF Report 22, OECD-NEA data bank, disponible sur <http://www.oecd-nea.org/>.
- (Santamarina, 2013) : A. Santamarina *et al.*, “Validation of the new code package APOLLO2.8 for accurate PWR neutronic calculations”, Proc. Int. Conf. M&C, Idaho, Sun Valley, États-Unis (2013).
- (Santamarina & Bernard, 2017) : A. Santamarina et D. Bernard, “Re-estimation of nuclear data and reliable covariances using integral experiments. Application to JEFF3 library”, Proc. Int. Conf. M&C, Jeju, Corée du Sud (2017).
- (Schmitt, 1984) : C. Schmitt *et al.*, “Fission yield at different fission-product kinetic energies for thermal-neutron-induced fission on ^{239}Pu ”, *Nuclear Physics A* **940**, pp. 21-60 (1984).
- (Scotta, 2016) : J.-P. Scotta *et al.*, “Impact of the thermal scattering law of H in H₂O on the isothermal temperature reactivity coefficients for UOX and MOX lattices in cold operating conditions”, *EPJ Nuclear sciences and technologies* **2**, pp. 28-42 (2016).
- (SFCOMPO, AEN) : Base de données expérimentale SFCOMPO gérée par l’AEN, disponible sur <https://www.oecd-nea.org/sfcompo/>, consulté en 11/2017.

- (Shannon, 1948) : C. Shannon, "A mathematical theory of communication", *Bell system technical journal* **27**, pp. 379-423 & 623-656.
- (Sheppard, 1996) : S. Sheppard *et al.*, "Chlorine-36 in nuclear waste disposal - 1. Assessment results for used fuel with comparison to ^{129}I and ^{14}C ". *Waste Management* **16**, 7 (1996).
- (Shibata, 2011) : K. Shibata *et al.*, "JENDL-4.0: a new library for nuclear science and engineering", *Journal of Nuclear Science and Technology* **48**, pp. 1-30 (2011).
- (Simpson, 1974) : O. Simpson *et al.*, "The neutron total cross section of Am243", *Nuclear Science and Engineering* **55**, p. 273 (1974).
- (Skutnik, 2017) : S. Skutnik, "Proposed re-evaluation of the $^{154}\text{Eu}(n,\gamma)$ capture cross-section based on spent fuel benchmarking studies", *Annals of Nuclear Energy* **99**, pp. 80-107 (2017).
- (Smith, 1991) : D. Smith, *Probability, statistics, and data uncertainties in nuclear science and technology*, American Nuclear Society (1991).
- (Struzik, 1996) : C. Struzik *et al.*, "The METEOR / TRANSURANUS fuel performance code", Proc. Int. Conf. FUMEX, Bombay, Inde (1996).
- (Tattersal, 1960) : R. Tattersal *et al.*, "Pile oscillator measurements of resonance absorption integrals", *Journal of Nuclear Energy A* **12**, pp. 32-46 (1960).
- (Ternovykh, 2017) : M. Ternovykh *et al.*, "Decay heat power of spent nuclear fuel of power reactors with high burnup at long-term storage", *EPJ Web of Conferences* **153**, p. 07035 (2017).
- (Terranova, 2016) : N. Terranova, "Covariance evaluation for nuclear data of interest to the reactivity loss estimation of the Jules Horowitz Reactor", Thèse de l'Université de Bologne, Italie (2016).
- (Tsilanizara, 1999) : A. Tsilanizara *et al.*, "DARWIN: an evolution code system for a large range of applications", Proc. Int. Conf. Radiation Shielding (ICRS-9), Tsukuba, Japon (1999).
- (Tsilanizara, 2015) : A. Tsilanizara *et al.*, "Les fonctionnalités du formulaire de calcul de la radioactivité DARWIN et les études de radioprotection", disponible sur https://www.researchgate.net/publication/242532361_LES_FONCTIONNALITES_DU_FORMULAIRE_DE_CALCUL_DE_LA_RADIOACTIVITE_DARWIN_ET_LES_ETUDES_DE_RADIOPROTECTION. (2015)
- (Vallet, 2014) : V. Vallet *et al.*, "Deterministic approach of the decay heat uncertainty due to JEFF-3.1.1 nuclear data uncertainties with the CYRUS tool and the DARWIN2.3 depletion code", Proc. Int. Conf. PHYSOR, Kyoto, Japon (2014).

- (Vallet, 2017) : V. Vallet *et al.*, “Application of the bias transposition method on PWR decay heat calculations with the DARWIN2.3 package”, Proc. int. Conf. GLOBAL, Séoul, Corée du Sud (2017).
- (Versilov, 1998) : Y. Versilov *et al.*, “Measurements of tritium and ^{14}C production cross sections from 14.7 MeV neutrons on ^{17}O and ^{18}O ”, *Nuclear Science and Engineering* **129**, pp. 81-87 (1998).
- (Wagemans, 1998) : J. Wagemans *et al.*, “Determination of the thermal neutron induced $^{17}\text{O}(n,\alpha)$ reaction cross section”, *Physical review C* **58**, p. 2840 (1998).
- (Wagemans, 2000) : J. Wagemans *et al.*, “Experimental determination of the $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$ reaction cross section for thermal neutrons”, *Physical review C* **61**, p. 064601 (2000).
- (Wigner, 1994) : E. Wigner *et al.*, “Effect of the temperature of the moderator on the velocity distribution of neutrons with numerical calculations for H as moderator”, *Technical Report AECD-2275*, ORNL, Oak Ridge, Tennessee, États-Unis (1994).
- (Wong, 1967) : C. Wong *et al.*, “ $^{14}\text{C}(p,n)^{14}\text{N}$ reaction and the two-body force”, *Physical review* **160**, p. 769 (1967).
- (Yankwich, 1946) : P. Yankwich *et al.*, “Chemicals forms assumed by ^{14}C produced by neutron irradiation of nitrogenous substances”, *Journal of chemical physics* **14**, p.131 (1946).
- (Yankwich, 1956) : P. Yankwich *et al.*, “Chemical effects on the nuclear transformation $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$ ”, *Canadian journal of chemistry* **34**, p. 301 (1956).
- (Zoia, 2013) : A. Zoia, “Doppler broadening of neutron elastic scattering kernel in TRIPOLI-4®”, *Annals of Nuclear Energy* **54**, pp. 218-226 (2013).