



HAL
open science

Capacités de conversion des transuraniens en Réacteurs à Sels Fondus (RSF)

Laura Mesthiviers

► **To cite this version:**

Laura Mesthiviers. Capacités de conversion des transuraniens en Réacteurs à Sels Fondus (RSF). Physique [physics]. Université Grenoble Alpes [2020-..], 2022. Français. NNT: 2022GRALI093 . tel-04048655

HAL Id: tel-04048655

<https://theses.hal.science/tel-04048655v1>

Submitted on 28 Mar 2023

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

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

THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ GRENOBLE ALPES

École doctorale : I-MEP2 - Ingénierie - Matériaux, Mécanique, Environnement, Énergétique, Procédés, Production

Spécialité : **MEP : Mécanique des fluides, Énergétique, Procédés**

Unité de recherche : Laboratoire de Physique Subatomique et Cosmologie

Capacité de conversion des transuraniens en Réacteurs à Sels Fondus (RSF)

Transuranic elements burning efficiency in Molten Salt Reactors (MSR)

Présentée par :

Laura MESTHIVIERS

Direction de thèse :

Daniel HEUER Directeur de recherche émérite, CNRS	Co-Directeur de thèse
Elsa MERLE Professeure des universités, Institut Polytechnique de Grenoble	Co-Directrice de thèse
Gérald SENENTZ Ingénieur, Orano	Co-Encadrant de thèse

Thèse soutenue publiquement le **9 décembre 2022** , devant le jury composé de :

Laurent DERÔME Professeur des universités, UGA	Président
Eric DUMONTEIL Directeur de recherche, CEA	Rapporteur
Andreas PAUTZ Professeur des universités, EPFL	Rapporteur
Fanny COURTIN Ingénieure Docteure, CEA	Examinatrice
Gabriele GRASSI Docteur en sciences, OECD/NEA	Examineur
Daniel HEUER Directeur de recherche émérite, CNRS	Co-Directeur de thèse
Elsa MERLE Professeure des universités, G-INP	Co-Directrice de thèse
Gérald SENENTZ Ingénieur, Orano	Co-Encadrant de thèse

Plus tard, j'irai vivre en Théorie, car en Théorie, tout se passe bien.

Remerciements

Merci tout d'abord à Florent pour son soutien indéfectible. Cette thèse existe aussi grâce à toi. Notamment avec tes veillées tard dans la nuit où tu mangeais avec moi du gâteau au chocolat de minuit entre l'écriture de deux paragraphes de ce manuscrit ou quand je te faisais un exposé d'une heure de théorie physique pour te montrer une figure dont j'étais super fière.

Merci à Iris, mon petit chat pour ses ronrons si affectueux. Tu étais un vrai rayon de bonheur au quotidien, un miaouss quasi parfait, qui me manque beaucoup.

Merci à Qualie – *aka* le Qualinasson, *aka* le Qualinosaure, *aka* le Chevalnapan – pour son soutien moral et les acrobaties réalisées ensemble, pommes à toi ! Bon, il y a eu des moments où j'avais plutôt envie de te mettre en barbecue...

Papa, maman, merci pour votre accompagnement. Au-delà de cette thèse, je vous remercie pour tous ces moments où vous m'avez aidée à batailler, pour toutes les opportunités que j'ai pu prendre grâce à votre soutien.

Merci à Thibault, Amandine, Béatrice et l'ensemble de mes amis qui ont été à l'écoute, m'ont donné des coups de main de temps à autre pour simplifier ma vie.

Merci à Elsa Merle, Daniel Heuer, Gabriele Grassi et Nicolas Buche pour m'avoir fait confiance au tout début de cette aventure sur le développement de ces petits RAPTORS, qui n'étaient presque une idée farfelue et exploratoire mais finalement tellement prometteuse !

Merci à Elsa et Daniel pour m'avoir appris presque tout ce que je sais sur les réacteurs à sels fondus, pour m'avoir soutenue et encouragée quand il y avait besoin. Encore en école d'ingénieur, je ne pensais pas avoir le bon profil pour faire une thèse. Après plus de trois ans, il faut croire que si finalement :)

Merci à l'équipe MSFR, rapprochée comme étendue, pour les discussions autour d'un café où nous refaisons le monde.

Bien évidemment, ce projet n'aurait pas eu lieu sans le soutien d'Orano R&D (Bertrand Morel, Gérald Senentz et Léa Tillard notamment). Ma visite de la Hague aura été une expérience magique, un énorme merci pour cette opportunité.

Merci au petit jardin informatique du LPSC qui a vu pousser les serveurs de calcul pour pouvoir réaliser toutes ces études.

Un grand merci aux membres de mon jury, Fanny Courtin, Laurent Derôme, Gabriele Grassi, Elsa Merle, d'avoir accepté la tâche d'évaluer mon travail. Un merci tout spécial pour mes rapporteurs, Éric Dumonteil et Andreas Pautz pour avoir survécu à la lecture du manuscrit. Nos discussions ont été enrichissantes et j'ai été plus que ravie de vous rencontrer.

Merci à toutes celles et ceux que je n'ai pas mentionné.e.s mais qui se reconnaîtront.

Table des matières

Remerciements	i
Table des matières	iii
1 État des lieux de l'utilisation de l'énergie nucléaire et de la production de déchets	1
1.1 Importance de l'énergie nucléaire dans le mix énergétique mondial et français	3
1.1.1 Utilisation de l'énergie nucléaire	3
1.1.2 Le nucléaire : une particularité française	3
1.1.3 Avantages et risques perçus de l'électronucléaire	5
1.2 Fonctionnement d'un réacteur nucléaire	7
1.2.1 Fission d'un noyau	7
1.2.2 Conditions à la fission	9
1.3 Gestion actuelle des matières valorisables et déchets	13
1.3.1 Définition d'un déchet nucléaire et d'une matière valorisable	13
1.3.2 Les cycles du combustible	15
1.3.3 En France	17
1.3.4 Dans le monde	18
1.4 Vers un nucléaire plus durable : recherches sur la gestion future des matières valorisables et déchets	19
1.4.1 Adaptation des réacteurs en opération	20
1.4.2 Études de concepts de nouvelle génération	25
1.4.3 Conclusions sur les possibilités d'amélioration de la fermeture du cycle	28
1.5 Objectif de la thèse : valoriser les matières radioactives par l'étude d'un réacteur incinérateur	30
2 Le Réacteur à Sels Fondus (RSF) : histoire d'un réacteur innovant et de son adaptation à l'évolution des besoins	32
2.1 Premiers réacteurs nucléaires artificiels	34
2.1.1 De la découverte de la radioactivité à l'intuition de la réaction en chaîne	34
2.1.2 Les piles nucléaires : premières expériences de réaction en chaîne contrôlée	34
2.2 Invention des RSF et perspectives d'utilisation	35
2.2.1 Réacteur prototype : ARE	36
2.2.2 MSRE	37
2.2.3 MSBR	38

2.3	Vue d'ensemble des projets de R&D historiques dans le monde	38
2.3.1	Intérêt français et conception d'un réacteur de référence	38
2.3.2	Développements soviétiques et russes	40
2.3.3	Autres développements des réacteurs à sels fondus	41
2.4	Dynamique actuelle : un puissant regain d'intérêt	42
2.4.1	Projets français et européens	42
2.4.2	Projets actuels dans le monde	45
2.4.3	SMR/AMR	46
2.4.4	Start-ups : vers une démocratisation de l'énergie nucléaire ?	47
2.5	Conclusion	49
3	Définition et méthodes de caractérisation d'un réacteur convertisseur à sels fondus	51
3.1	Objectifs de l'étude	53
3.2	Définition d'un convertisseur	53
3.2.1	Sel solvant	53
3.2.2	Combustible	54
3.2.3	Choix d'un sel solvant	54
3.3	Codes de simulation pour les RSF	60
3.3.1	Codes de transport neutronique	60
3.3.2	Criticité au démarrage : OCTAV	61
3.3.3	Évolution temporelle : code d'évolution de matériaux REM	63
3.3.4	Vieillir une composition : ECI	65
3.3.5	Estimation du nombre de colis vitrifiés produits : CALCIFER	65
3.3.6	Code système d'optimisation multicritères : SONGe	67
3.3.7	Simuler un parc de réacteurs : ISF	72
3.4	Méthodes de caractérisation neutroniques	74
3.4.1	Sensibilités de la corrélation volume avec la teneur en actinides	74
3.4.2	Efficacité de conversion	76
3.4.3	Production d'éléments délétères	77
3.4.4	Contre-réactions de température	79
3.4.5	Irradiation des matériaux	80
3.5	Conclusions du chapitre	82
4	Caractérisation d'un réacteur convertisseur de plutonium à sels fondus	85
4.1	Isotopie du combustible utilisé	87
4.2	Sensibilités du volume critique du cœur	87
4.2.1	Évolution du volume critique selon l'enrichissement du chlore	88
4.2.2	Sensibilité à la qualité isotopique du vecteur de plutonium	90
4.2.3	Effet du matériau du réflecteur radial	92
4.2.4	Effet de la part hors cœur	95
4.2.5	Sensibilité à la masse volumique	96
4.2.6	Impact de la base de données sur le calcul du volume critique	97
4.2.7	Impact de la variation de volume sur la réactivité	99
4.2.8	Conclusions sur les sensibilités sur le volume critique	100
4.3	Cas enveloppe du volume critique	101
4.4	Études neutroniques du réacteur en fonctionnement	102

4.4.1	Paramètres d'étude sur l'influence de la composition initiale sur l'évolution du réacteur	102
4.4.2	Évolution temporelle du réacteur	104
4.4.3	Efficacité de conversion	117
4.4.4	Effluents de retraitement envoyés à la vitrification	125
4.4.5	Production de chlore et de soufre	127
4.4.6	Dégâts d'irradiation	132
4.4.7	Contre-réactions de température	139
4.4.8	Perte de réactivité en réacteur	149
4.4.9	Production de colis CSD-V et radiotoxicité associée	150
4.5	Capacités d'extraction de chaleur par optimisation multicritères du circuit combustible avec le code SONGe	155
4.5.1	Paramètres physico-chimiques des sels	155
4.5.2	Validation de l'hypothèse de la puissance spécifique de $150 \text{ MW}_{\text{th}} \cdot \text{m}^{-3}$	156
4.5.3	Augmentation de la puissance spécifique et coût d'optimisation	160
4.5.4	Conclusions d'optimisation	161
4.6	Conclusions du chapitre	162
4.6.1	Sensibilités	162
4.6.2	Évolution temporelle des matières	162
4.6.3	Efficacités de conversion	163
4.6.4	Contre-réactions de température	163
4.6.5	Dégâts d'irradiation	164
4.6.6	Production de colis de verre de déchets et radiotoxicité	164
4.6.7	Évacuation de la puissance thermique	164
5	Convertisseur de plutonium à géométrie modifiée pour la suppression des neutrons thermiques	167
5.1	Origine de l'étude	169
5.2	Géométries développées	169
5.3	Caractéristiques neutroniques au démarrage	170
5.3.1	Criticité au démarrage	170
5.3.2	Proportion de fissions initiale	172
5.4	Évolution temporelle	174
5.4.1	Paramètres de simulation	174
5.4.2	Évolution molaire des actinides	175
5.4.3	Teneur en transuraniens	178
5.4.4	Isotopie des actinides	180
5.4.5	Volume de sel combustible	183
5.4.6	Production de chlore et de soufre	184
5.5	Efficacité de fission	188
5.5.1	Mobilisation de plutonium	188
5.5.2	Évolution de la proportion de fissions	189
5.5.3	Consommation des transuraniens	190
5.6	Contre-réactions de température	194
5.6.1	Contre-réaction Doppler	194
5.6.2	Effet de densité	195
5.7	Production de colis CSD-V et radiotoxicité	197

5.7.1	Production de CSD-V	197
5.7.2	Radiotoxicité associée	198
5.8	Conclusions	200
6	Définition d'un convertisseur de transuraniens pour la fermeture des cycles électronucléaires (RAPTOR)	202
6.1	Contexte	204
6.1.1	De la nécessité des hypothèses sur les combustibles à étudier	204
6.2	Contraintes de modélisation	206
6.2.1	Contraintes physiques et chimiques	206
6.2.2	Contraintes industrielles	206
6.2.3	Hypothèses de retraitement	207
6.2.4	Résumé du concept RAPTOR	208
6.3	Caractérisation des sept configurations au démarrage	213
6.4	Caractérisation temporelle des matières	216
6.4.1	Évolution temporelle des cas 100% plutonium : réinjection du plutonium ?	216
6.4.2	Évolution temporelle des cas plutonium + actinides mineurs	220
6.4.3	Retraitement du combustible : explicite ou implicite ?	225
6.4.4	Réacteur 100% actinides mineurs : cas AI	230
6.4.5	Productions de chlore et de soufre	231
6.5	Efficacité de conversion des RAPTOR	235
6.5.1	Mobilisation de matière	235
6.5.2	Proportion de fissions	236
6.5.3	Bilan de consommation	237
6.6	Dégâts d'irradiation	244
6.6.1	Création de lacunes par déplacements d'atomes	244
6.6.2	Production de gaz : hélium et hydrogène	244
6.6.3	Conclusions	248
6.7	Contre-réactions de température	248
6.7.1	Démarrage	248
6.7.2	Évolution temporelle	249
6.7.3	Conclusions	252
6.8	Colis vitrifiés et radiotoxicité	252
6.8.1	Influence du temps de refroidissement avant vitrification	252
6.8.2	Vitrification totale du sel combustible	253
6.8.3	Efficacité du retraitement	255
6.9	Conclusions	258
7	Intégration de RSF incinérateurs à un parc électronucléaire	263
7.1	Hypothèses des scénarios de déploiement	264
7.1.1	Définition de la trajectoire cible de la demande électrique	264
7.1.2	Caractéristiques des réacteurs	264
7.1.3	Modélisation des parcs	265
7.2	Scénarios de déploiement au sein d'un parc	268
7.2.1	Cycle ouvert	268
7.2.2	Cycle semi-fermé	279
7.2.3	Cycle semi-fermé ⁺ (multirecyclage REP)	290

7.2.4	Conclusions	302
7.3	Devenir des matières en fin de scénario	302
7.3.1	Production de colis de déchets vitrifiés (CSD-V)	302
7.3.2	Impact du temps de fonctionnement des RAPTOR sur la production de CSD-V	304
7.4	Conclusions et perspectives	305
Conclusion générale et perspectives		307
A Paramètres physico-chimiques des sels adoptés pour un réacteur convertisseur		314
A.1	Composition des sels choisis	315
A.1.1	Sel combustible	315
A.1.2	Sel intermédiaire	315
A.2	Détermination des propriétés physico-chimiques	316
A.2.1	La masse volumique	317
A.2.2	La capacité calorifique	320
A.2.3	La conduction thermique	322
A.2.4	La viscosité dynamique	323
A.3	Matériau de structure	325
A.3.1	Composition	326
A.3.2	Masse volumique	326
A.3.3	Capacité calorifique	326
A.3.4	Conductivité thermique	326
A.4	Synthèse	327
A.5	Perspectives	327
B Géométrie du réacteur pour la thermohydraulique		330
B.1	Présentation générale de la géométrie	331
B.2	Description des composants du circuit combustible	331
B.2.1	Général	331
B.2.2	Cœur	332
B.2.3	Pompe	332
B.2.4	Niveau libre	332
B.2.5	Protection neutronique	332
B.2.6	Disque de jonction entre la pompe et les échangeurs de chaleur	333
B.2.7	Réflecteur radial	334
B.2.8	Tubes échangeurs de chaleur	334
B.2.9	Retour	335
B.3	Liste des paramètres	337
C Évolution de composition du réflecteur radial en NiCrW sous flux neutronique à haute énergie		342
C.1	Configuration du réacteur	343
C.2	Évolution du réflecteur radial	344
D Impact du remplacement du graphite par du MgO dans les géométries modifiées pour la consommation des neutrons peu énergiques		348

Table des matières

D.1 Configurations avec le MgO	349
D.2 Caractéristiques au démarrage	349
D.3 Évolution temporelle	351
D.3.1 Évolution de la composition du sel combustible	351
D.3.2 Bilan de consommation	351
D.3.3 Contre-réactions de température	354
D.4 Conclusion	355
Bibliographie	I
Table des figures	XIII
Liste des tableaux	XXIX
Acronymes	XXXIII

1

État des lieux de l'utilisation de l'énergie nucléaire et de la production de déchets

Ce chapitre présente le nucléaire dans le mix énergétique, jusqu'aux notions de matière valorisable et de déchets du point de vue législatif. Il fait ensuite un état des lieux des différents cycles du combustible existant et précise la stratégie adoptée par les pays possédant du nucléaire civil quant à la gestion des matières produites. Enfin, la question de durabilité du nucléaire est abordée avec les études pour la fermeture du cycle du combustible.

Sommaire

1.1	Importance de l'énergie nucléaire dans le mix énergétique mondial et français	3
1.1.1	Utilisation de l'énergie nucléaire	3
1.1.2	Le nucléaire : une particularité française	3
1.1.3	Avantages et risques perçus de l'électronucléaire	5
1.2	Fonctionnement d'un réacteur nucléaire	7
1.2.1	Fission d'un noyau	7
1.2.2	Conditions à la fission	9
1.3	Gestion actuelle des matières valorisables et déchets	13
1.3.1	Définition d'un déchet nucléaire et d'une matière valorisable	13
1.3.2	Les cycles du combustible	15
1.3.3	En France	17
1.3.4	Dans le monde	18
1.4	Vers un nucléaire plus durable : recherches sur la gestion future des matières valorisables et déchets	19
1.4.1	Adaptation des réacteurs en opération	20
1.4.2	Études de concepts de nouvelle génération	25

1.4.3	Conclusions sur les possibilités d'amélioration de la fermeture du cycle	28
1.5	Objectif de la thèse : valoriser les matières radioactives par l'étude d'un réacteur incinérateur	30

1.1 Importance de l'énergie nucléaire dans le mix énergétique mondial et français

1.1.1 Utilisation de l'énergie nucléaire

L'utilisation de la fission nucléaire pour la production d'énergie est récente comparé à l'usage du charbon ou du gaz. La découverte du neutron en 1932 permet l'élaboration rapide des premières piles nucléaires dans les années 40 comme Chicago-1 ou ZOÉ (détails dans la section 2.1.1). Le potentiel énergétique de la fission nucléaire de l'uranium 235 en Réacteur à Eau Pressurisée (REP) (3.9 TJ/kg) dépasse de loin le charbon (24 MJ/kg) ou le pétrole brut (46 MJ/kg), pouvant limiter de fait l'extraction minière [1]. Le nucléaire civil découlant cependant souvent de l'activité militaire, peu de pays *in fine* ont accès à ce mode de production d'électricité. Ainsi, dans le mix énergétique mondial, l'énergie nucléaire, par la production d'électricité, est presque anecdotique à 5% du mix énergétique mondial en 2018 (figure 1.1). La majorité du parc mondial s'est constitué dans les années 60 à 90, en Amérique du Nord, en Europe et en Russie. Depuis, seule la Chine a réellement un programme de déploiement important et constant de centrales électrogènes avec 17 réacteurs en construction à ce jour [2]. La croissance de la demande énergétique (+1.5% par an) se traduit principalement par un développement économique Chinois et Sud-Américain, et démographique Africain [3]. L'utilisation de ressources fossiles reste encore la réponse pour faire face à ce besoin croissant d'énergie.

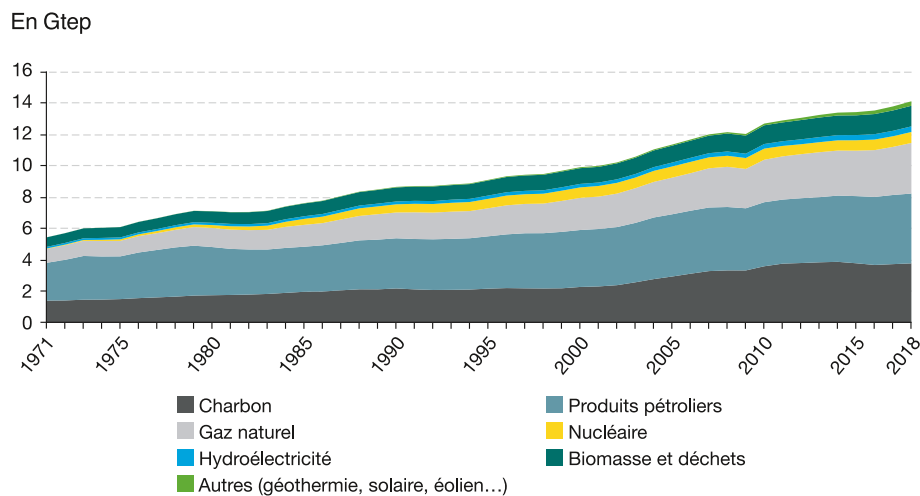
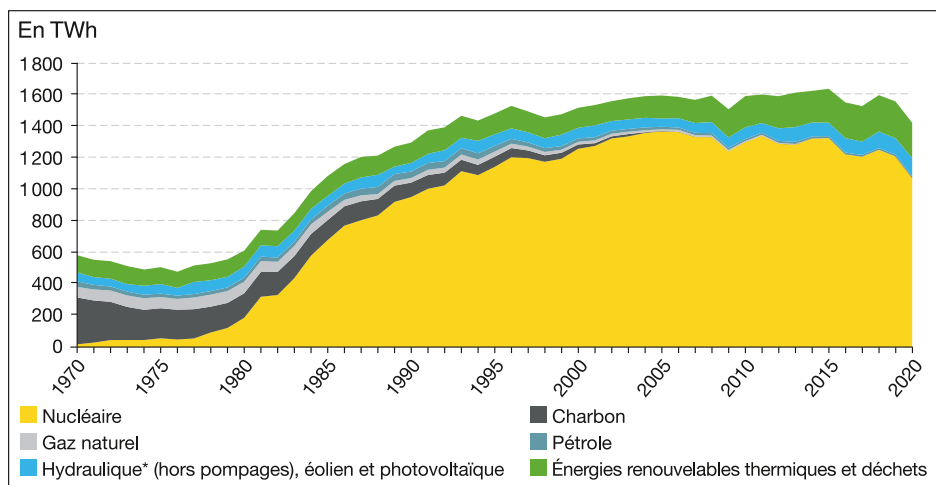


FIGURE 1.1 – Consommation mondiale d'énergie primaire par source d'énergie depuis 1971 [3]

1.1.2 Le nucléaire : une particularité française

Bien qu'un certain nombre de pays dispose de centrales électronucléaires, peu les utilisent comme moyen de production principal d'électricité. Avec le premier choc pétrolier en 1973, la construction de centrales en France métropolitaine s'est accélérée pour l'indépendance énergétique vis-à-vis du pétrole. Les figures 1.2 et 1.3 montrent la rapide montée du nucléaire en France pour la production d'énergie. Permettant une électricité nucléaire à plus de 70% depuis 1995 (hormis 2020), l'impact sur le mix énergétique est

notable puisque 40% de l'énergie primaire est d'origine nucléaire par l'électrification d'un grand nombre de moyens de production, des transports (train, tramways) et du chauffage résidentiel notamment [3, 4].

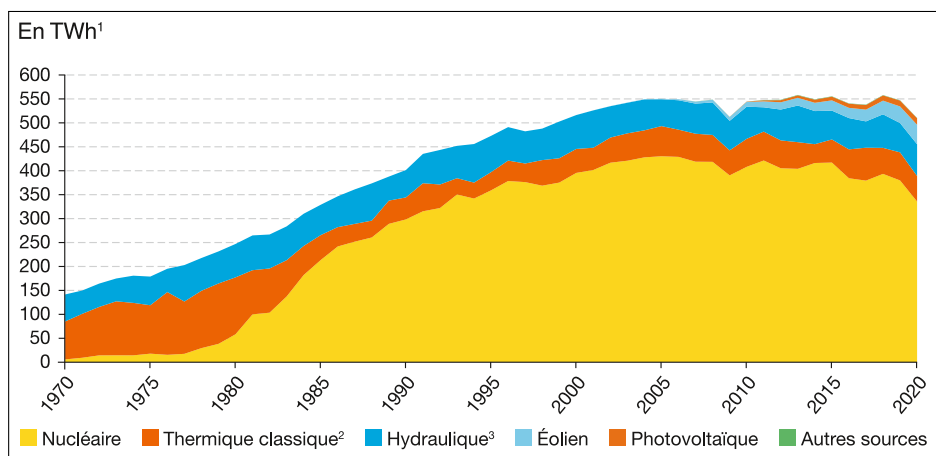


* Y compris énergies marines.

Champ : jusqu'à l'année 2010 incluse, le périmètre géographique est la France métropolitaine.

À partir de 2011, il inclut en outre les cinq DROM.

FIGURE 1.2 – Consommation d'énergie primaire par source d'énergie en France depuis 1970 [3]



¹ 1 TWh = 1 milliard de kWh.

² Thermique à combustibles fossiles (charbon, fioul, gaz naturel), biomasse ou déchets.

³ Y compris énergie marémotrice.

Champ : jusqu'à l'année 2010 incluse, le périmètre géographique est la France métropolitaine.

À partir de 2011, il inclut en outre les cinq DROM.

FIGURE 1.3 – Production nette d'électricité en France par source d'énergie depuis 1970 [3]

Avec l'accident de Fukushima (risque du nucléaire, voir section 1.1.3) et le changement climatique, des changements dans le mix énergétique ont été amorcés par la rédaction de l'article L100-4 du code de l'Énergie en 2015, stipulant des objectifs à atteindre de déploiement ou d'arrêts de moyens de production [5]. Ainsi, l'arrêt progressif de centrales au charbon et le déploiement des énergies renouvelables (hors hydraulique) depuis la fin des années 2000 doivent permettre une meilleure décarbonation de l'électricité et de la production d'énergie dans son ensemble. La réduction de la part du nucléaire dans l'électricité à hauteur de 50% (contre 70% aujourd'hui) est prévue pour 2035 (révision en

1.1. Importance de l'énergie nucléaire dans le mix énergétique mondial et français

2021), précédemment 2025 (décidé en 2015). Divers scénarios d'évolution du parc ont été envisagés et publiés par Réseau de Transport Électrique (RTE) en 2021 pour atteindre la neutralité carbone en 2050 [6]. Parmi ces scénarios, aucun n'envisage une part du nucléaire à plus de 50% à cause d'un déploiement d'un nouveau parc trop lent par rapport à l'objectif de neutralité carbone en 2050. L'adaptation du parc actuel, ainsi que du réseau électrique au déploiement important des énergies renouvelables, est donc essentielle.

1.1.3 Avantages et risques perçus de l'électronucléaire

La contradiction apparente entre le besoin de sources d'énergies décarbonnées et le renouvellement tardif du parc nucléaire existant peut s'expliquer par une dépendance au sentier des décisions politiques et au coût élevé pour changer de chemin [7] ou bien à une ambivalence vis-à-vis de cette source d'énergie. Chaque année et depuis 1990, l'Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire (IRSN) effectue un sondage sur les risques perçus par les Français, notamment sur les risques nucléaires et radiologiques. Les questions détaillées permettent de mettre en perspective les réponses avec le contexte socio-économique ou l'actualité.

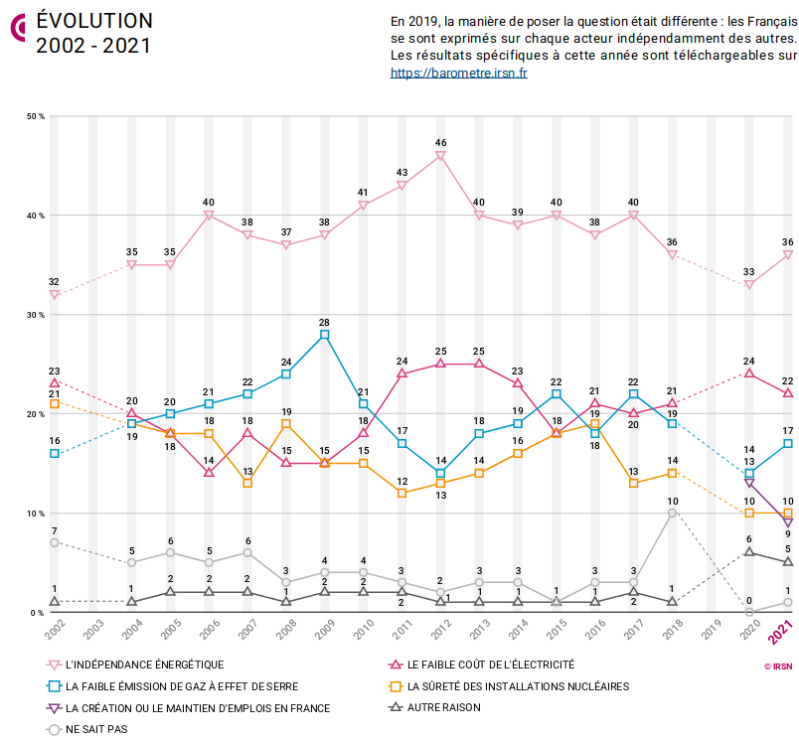


FIGURE 1.4 – Évolution de la perception des avantages de l'énergie nucléaire en France. Réponse à la question "Quel est aujourd'hui, selon vous, l'argument le plus fort pour le nucléaire?" [8]

La figure 1.4 montre que l'indépendance énergétique est l'argument phare pro nucléaire depuis 2002. Les faibles émissions de gaz à effet de serre et le faible coût de l'électricité sont également cités comme points forts du nucléaire. Que l'avantage écologique perçu ne soit pas plus important peut surprendre, alors qu'il est acquis que le nucléaire fait partie des sources de production d'électricité les moins carbonnées [5/12 gCO₂ eq · h/kW pour le nucléaire français / non français, 11 pour l'éolien, 40 pour le photovoltaïque] [9, 10]. Nombre de personnes sont pourtant persuadées du contraire, peut-être à cause des informations parfois contradictoires qui sont mises à disposition

du grand public. *Le guide de l'électricité verte* de Greenpeace présente un classement des fournisseurs d'électricité et des sources de production d'électricité [11] et a fait l'objet d'un article de vérification des faits [12].

Le contexte politique, économique ou sanitaire peut grandement influencer la perception du grand public sur les inconvénients du nucléaire. L'accident de Fukushima (Japon) en 2011 a largement fait augmenter les inquiétudes de la population vis-à-vis de la sûreté (figure 1.5). Les campagnes de mise aux normes et une communication plus importante ont permis de diminuer les craintes du risque d'accident au profit de la production de déchets sur les deux dernières années étudiées (2020, 2021) avec les batailles médiatiques autour du projet Centre industriel de stockage géologique (Cigéo), solution de stockage géologique profond pour les déchets de haute activité. En effet, la production de déchets hautement radioactifs est souvent l'argument principal présenté par les mouvements antinucléaires pour justifier l'abandon de ce moyen de production.

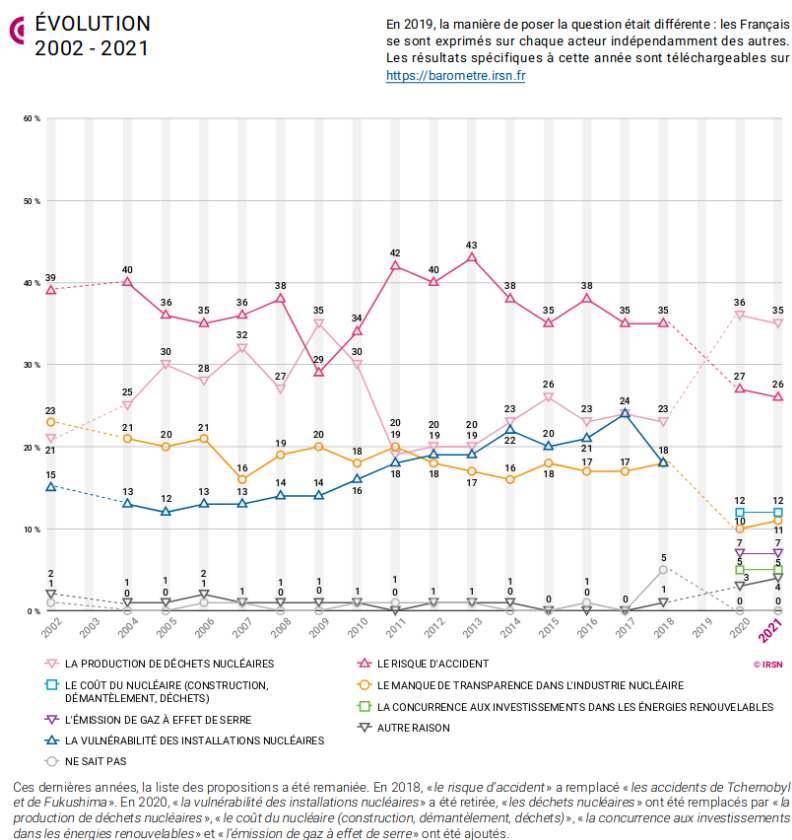


FIGURE 1.5 – Évolution de la perception des inconvénients ou risques de l'énergie nucléaire en France. Réponse à la question "Quel est aujourd'hui, selon vous, l'argument le plus fort contre le nucléaire?" [8]

1.2 Fonctionnement d'un réacteur nucléaire

Schématiquement, les réacteurs nucléaires sont des bouilloires sous pression, qui font fonctionner des alternateurs pour la production d'électricité et, en guise de résistance chauffante, un matériau qui fissionne et libère de la chaleur. Derrière ce principe simple, il existe bien entendu quelques subtilités. Tout matériau ne peut pas fissionner et les matériaux qui fissionnent ne le font pas n'importe comment. On s'attachera donc à présenter les deux points clés du fonctionnement du cœur d'un réacteur nucléaire : les noyaux pour la fission et les conditions pour qu'ils le fassent.

1.2.1 Fission d'un noyau

Un noyau fissionne lorsque celui-ci se coupe en deux, de manière induite ou spontanée, pour gagner en stabilité. Ce type de réaction fait partie des quatre types principaux de désintégrations nucléaires (α , β , γ et fission spontanée) qui permettent aux noyaux de gagner en stabilité (l'émission γ est une désexcitation d'un noyau, le nombre de protons et de neutrons est donc conservé). La stabilité d'un noyau dépend de l'équilibre entre le nombre de protons (Z) et le nombre de neutrons (N) dans le noyau. Trop de l'un ou l'autre conduira souvent à une désintégration pour équilibrer les deux masses en incluant un équilibre entre les forces entrant en jeu dans le noyau : force électromagnétique répulsive entre les protons (portée infinie), force attractive entre les nucléons par la force forte (portée à l'échelle du noyau) et la masse du proton, plus faible que celle du neutron, qui est avantageuse mais implique la répulsion électromagnétique.

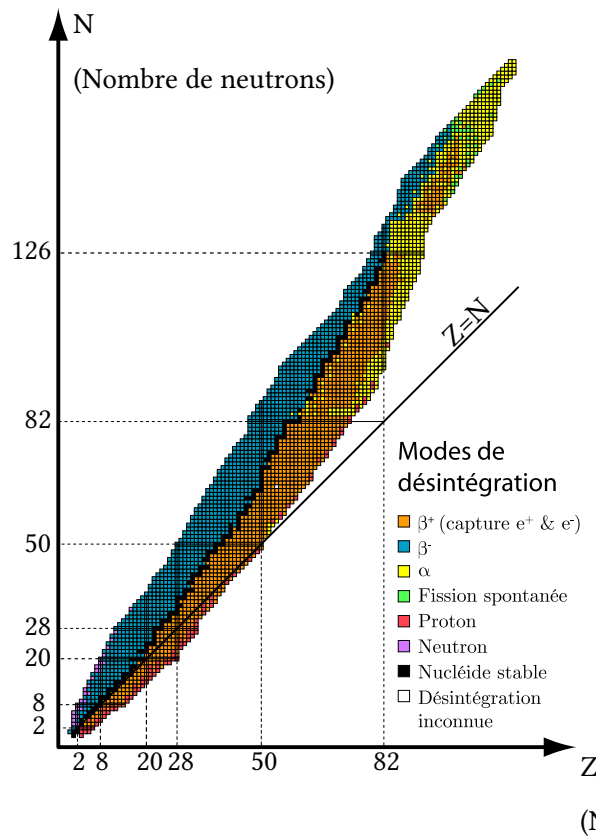


FIGURE 1.6 – Charte des nucléides colorés selon leur mode de désintégration principal (d'après [13])

La figure 1.6 représente l'ensemble des isotopes connus sous la forme d'une charte des nucléides en fonction du nombre de protons et nombre de neutrons. Les désintégrations de fission spontanée et α concernent des noyaux à grand nombre de protons (vert et jaune) qui ont besoin de perdre beaucoup de nucléons d'un coup. Les émissions β et de capture électronique concernent en revanche la majorité des noyaux (bleu et orange). Quelques noyaux très légers expulsent soit un proton, soit un neutron (rouge et violet). Les noyaux en noir sont les noyaux stables et forment la vallée de la stabilité. On peut noter que la stabilité correspond à des quantités similaires protons/neutrons pour les noyaux légers ($Z < 20$) puis à davantage de neutrons que de protons pour les noyaux plus lourds.

La fission induite est une fission provoquée en induisant un déséquilibre dans le noyau, l'apport d'énergie avec des neutrons. Les noyaux les plus à même de fissionner font partie de la famille des actinides ($Z > 88$). Ces noyaux sont peu nombreux à l'état naturel à cause de leur disparition progressive par désintégrations depuis leur création juste après le big bang. Parmi eux, certains sont dits fissiles, c'est-à-dire, qui fissionnent quelle que soit l'énergie du neutron incident. La figure 1.7 identifie les isotopes présents naturellement aujourd'hui dans l'environnement (symboles pleins) ainsi que les isotopes fissiles (orange).

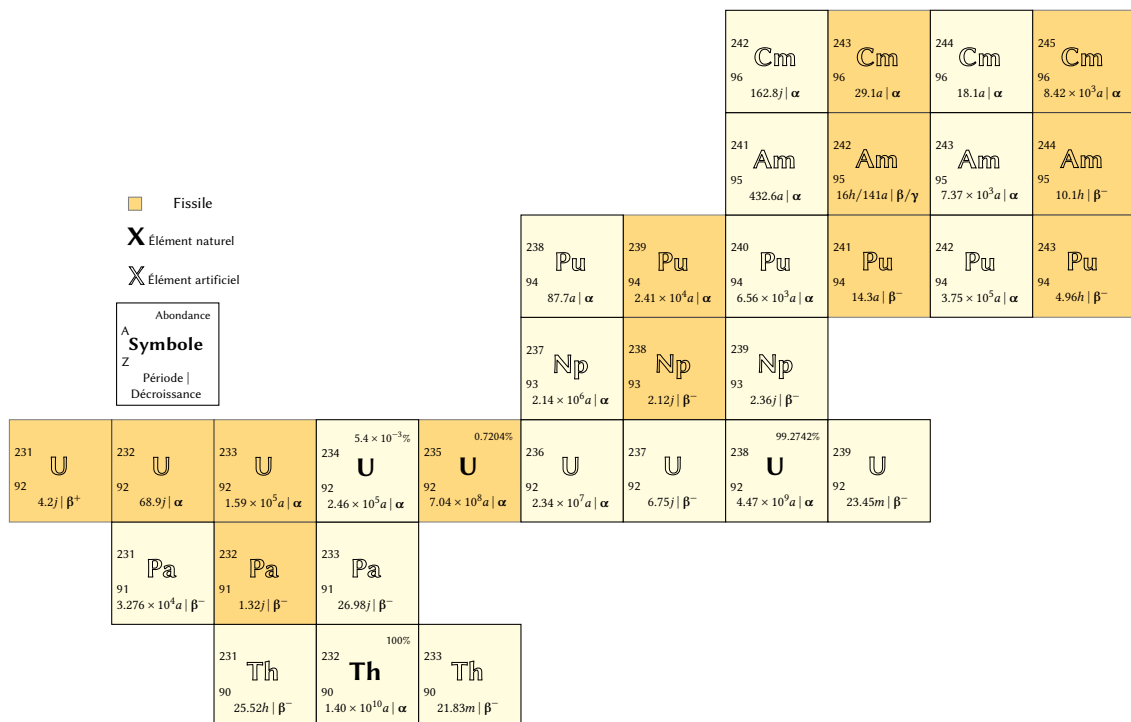


FIGURE 1.7 – Diagramme NZ de certains actinides avec le recensement des isotopes fissiles et naturellement présents.

L'uranium 235 (0.72% de l'uranium naturel) reste le seul isotope naturellement présent aujourd'hui qui peut être directement utilisé en réacteurs après extraction minière. Le thorium 232 et l'uranium 238, également naturellement présents et en quantités plus importantes que l'uranium 235, sont dits fertiles. En capturant un neutron, une cascade de décroissances radioactives produit un isotope fissile (respectivement, l'uranium 233 et le plutonium 239), comme illustré par la figure 1.8. L'utilisation de ces éléments permet une régénération du combustible nucléaire (cycle de régénération) et est donc plus durable.

Le chapitre 2 portera notamment sur le concept de Réacteur à Sels Fondus (RSF), qui vise à utiliser la régénération du combustible. Enfin, l'uranium 234 est issu de la décroissance de l'uranium 238.

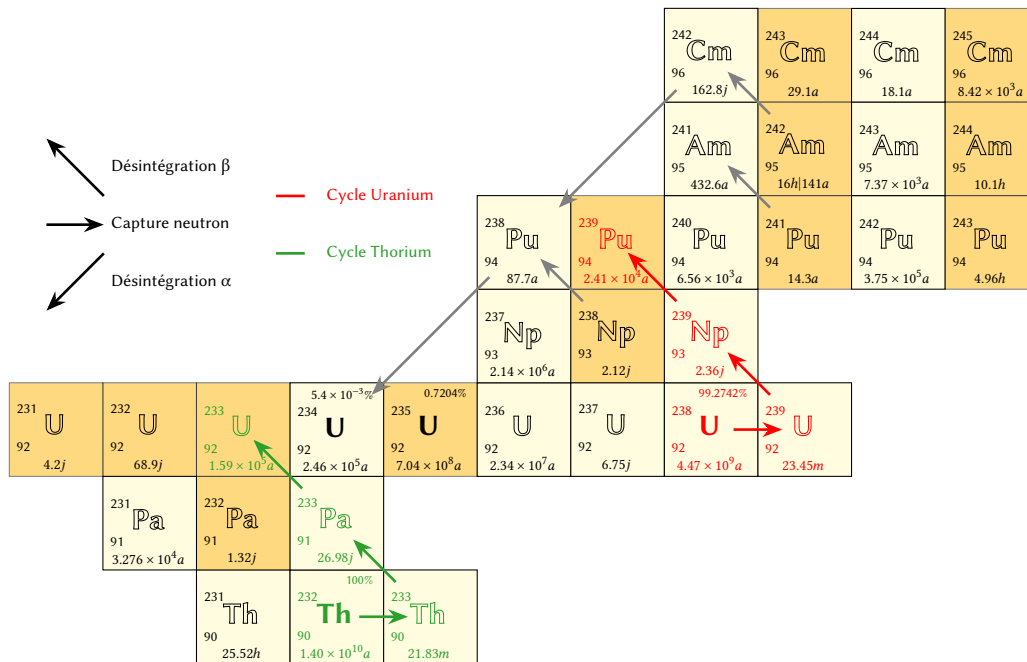


FIGURE 1.8 – Schéma des cycles de régénération du combustible avec les isotopes fertiles naturellement présents. Adapté de [14]

1.2.2 Conditions à la fission

Comme introduites en début de section, certaines conditions sont nécessaires pour que les fissions induites se produisent en suffisamment grandes quantités pour que l'énergie libérée soit exploitable. Bien que l'uranium 235 soit fissile, des neutrons de haute énergie ont une probabilité d'interaction plus faible que des neutrons plus lents. La figure 1.9 montre l'évolution de cette probabilité d'interaction de fission, la section efficace, pour l'uranium 235. Plus un neutron perd de l'énergie et plus la probabilité de créer une fission est importante. Il est donc intéressant de ralentir les neutrons pour maximiser le nombre de fissions et pour diminuer la masse d'uranium nécessaire pour garantir la puissance du système.

Pour cela, des modérateurs (graphite, eau légère H_2O , eau lourde D_2O) peuvent être placés autour du combustible pour faire perdre de l'énergie aux neutrons par collisions successives, les matériaux dits "légers" étant les plus efficaces (faible nombre de nucléons). Avec la modération des neutrons se pose la problématique des captures stériles, c'est-à-dire la capture de neutrons par des noyaux qui ne vont pas fissionner (uranium 235 y compris) et qui ne produisent pas d'éléments fertiles par décroissances. La figure 1.8 indique également quelques décroissances α et β parmi les AM (Actinides Mineurs, actinides hors thorium, uranium et plutonium) et la figure 1.10 présente quelques sections efficaces de capture et fission d'actinides, en comparaison avec l' ^{235}U . Les noyaux ^{239}Pu et ^{238}U capturent moins les neutrons que l'uranium ne fissionne, à quantité identique et pour des neutrons dits thermiques [$<10^{-6}$ MeV], hors résonances de capture. En zone épithermique [10^{-6} - 10^{-3} MeV], les résonances de capture et fission s'entremêlent. En

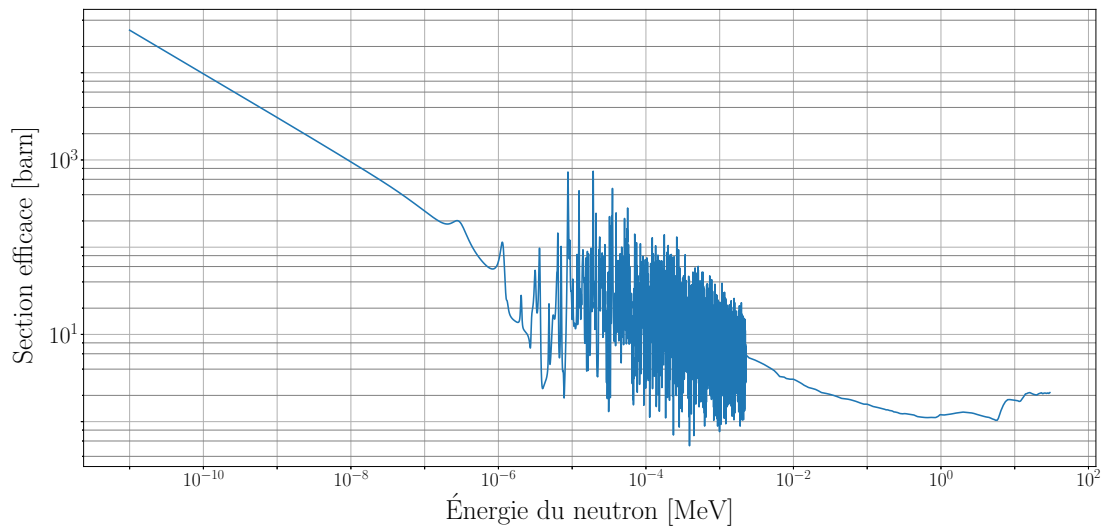


FIGURE 1.9 – Probabilité d'interaction de fission pour l'uranium 235 (base de données JEFF 3.3 [15])

zone rapide [$>10^{-3}$ MeV], les captures s'effondrent au profit de la fission pour tous les noyaux suffisamment lourds, par exemple ^{238}U ou Actinides Mineurs (AM), car l'apport d'énergie du neutron est suffisant pour dépasser le seuil de la barrière coulombienne de fission.

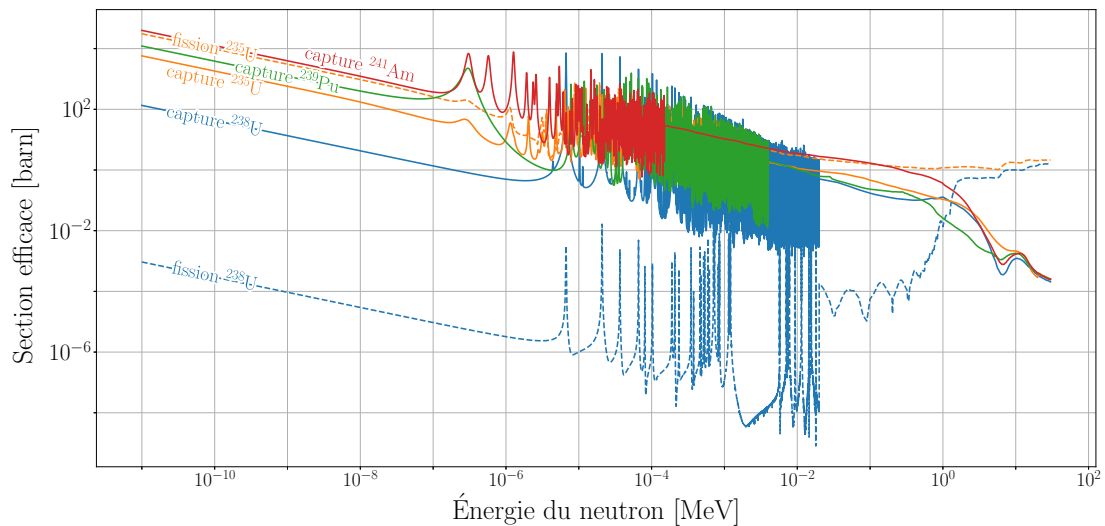


FIGURE 1.10 – Probabilité d'interaction de fission et capture pour différents actinides (base de données JEFF 3.3)

L'enrichissement de l'uranium en ^{235}U est nécessaire pour maximiser l'absorption des neutrons sur l' ^{235}U qui fissionne 90% du temps environ pour éviter les captures stériles (combustible et modérateur) et la production d'éléments neutrophages (produits de fission et actinides mineurs). L'uranium naturel est utilisé directement dans les réacteurs Canadian Deuterium Uranium (CANDU) (section 1.4.1.b).

Un noyau qui fissionne se sépare en deux noyaux de taille souvent inégale appelés produits de fission (PF) et libère plusieurs neutrons et de l'énergie qui chauffe le combustible puis le caloporteur (matériau qui transmet la chaleur au reste du système de conversion d'énergie). La taille des noyaux (nombre de nucléons) dépend du noyau fissionné et de l'énergie du neutron incident et leur probabilité de création suit la courbe de la figure 1.11.

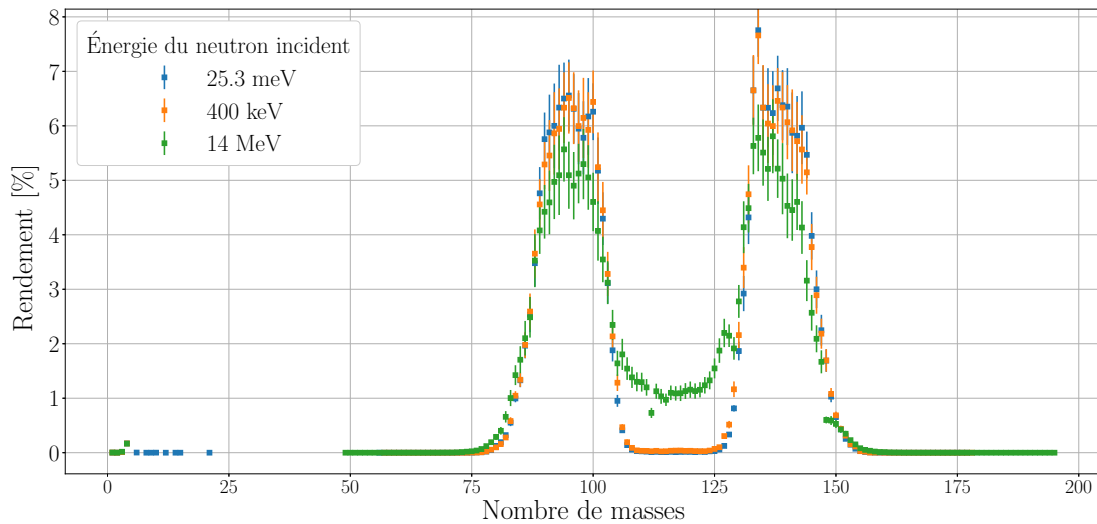


FIGURE 1.11 – Rendements de fission de ^{235}U en fonction du nombre de nucléons et selon l'énergie du neutron incident (base de données JEFF 3.3)

Le flux neutronique, nombre de neutrons produits suite aux différentes interactions, dont la fission, permet de créer une réaction en chaîne sous réserve que la perte de neutrons (absorptions ou fuites) soit inférieure à la production. La réaction en chaîne auto-entretenu permet à un réacteur nucléaire de fonctionner. Le coefficient de multiplication k_{eff} est l'estimateur de l'équilibre entre les pertes et les productions, et est défini par l'équation 1.1.

$$\begin{aligned}
 k_{eff} &= \frac{\text{nombre neutrons génération } i+1}{\text{nombre neutrons génération } i} \\
 &= \frac{\sum_i \Sigma_f^i \Phi}{\sum_i \Sigma_a^i \Phi + \text{fuites}} \quad (1.1)
 \end{aligned}$$

avec Σ_f^i la section efficace macroscopique de fission de l'élément i définie par $N^i \cdot \sigma^i$, densité volumique atomique \times section efficace microscopique, Φ le flux neutronique, Σ_a^i la section efficace macroscopique de capture de l'élément i . Le taux de réaction τ peut être défini comme le produit $\Sigma\Phi$, représentant l'intégrale des réactions sur tout le spectre neutronique. En fonction de la valeur du k_{eff} , trois régimes se distinguent :

- $k_{eff} < 1$: sous-criticité. Trop de fuites ou d'absorptions, risque d'extinction du réacteur.
- $k_{eff} = 1$: criticité. Équilibre entre les fuites et absorptions et les productions, réaction auto-entretenu.
- $k_{eff} > 1$: surcriticité. Production supérieure, risque d'emballlement du réacteur.

Afin de pouvoir estimer la population neutronique, et donc la réactivité, l'équation de Boltzman (équation 1.2) est résolue, ici sans terme source extérieur ni fission spontanée. La présentation de l'équation est inspirée de [14].

$$\begin{aligned}
 \frac{1}{v} \frac{\partial \psi(r, \Omega, E, t)}{\partial t} = & -\Omega \cdot \nabla(\psi(r, \Omega, E, t)) - \Sigma_t(r, E)\psi(r, \Omega, E, t) \\
 & + \int_0^\infty dE' \int_{4\pi} d\Omega' \Sigma_s(E' \rightarrow E, \Omega' \rightarrow \Omega)\psi(r, \Omega', E', t) \\
 & + \frac{1}{4\pi} \int_0^\infty dE' v_p(r)\Sigma_f(r, E')\chi_p(E' \rightarrow E)\phi(r, E', t) \\
 & + \sum_i \frac{1}{4\pi} \lambda_f P_{f_i}(r, t)\chi_{d_f}(E)
 \end{aligned} \tag{1.2}$$

avec v la vitesse des neutrons, $\psi(r, \Omega, E, t)$ le flux angulaire en r orienté suivant Ω à l'énergie E à l'instant t et le flux scalaire $\phi(r, E, t) = \int_{4\pi} \psi(r, \Omega, E, t) d\Omega'$. Cette équation bilan tient compte :

- des termes puits, consommateurs de neutrons, qui sont le **transport** (déplacement des neutrons) et l'**intégralité des interactions** (tous types de réactions neutroniques)
- des termes sources, producteurs de neutrons, par **diffusions élastiques et inélastiques** (changement d'énergie ou de direction), **fissions** (émission de neutrons prompts) et **décroissances émettrices de neutrons retardés** (produits de fission précurseurs)

Cette équation peut être résolue numériquement par deux grandes familles de méthodes : déterministe et stochastique. Les méthodes déterministes s'intéressent à la résolution directe par discrétisation en énergie et en mailles suffisamment fines pour une résolution précise, ce qui est très coûteux en temps et en mémoire. Cependant, une fois la résolution effectuée, toute information sur le système est disponible.

Les méthodes stochastiques, appelées Monte-Carlo ¹, sur lesquelles reposent des codes comme Monte-Carlo N Particles (MCNP) [16] ou Serpent [17], ne résolvent pas l'équation de Boltzmann (1.2) directement mais modélisent et suivent la vie des neutrons, de leur création jusqu'à leur disparition (absorption ou fuite du système), ce qui permet d'établir une solution à l'équation. Ne sont calculés que les tallies, paramètres du système demandés par l'utilisateur. Un grand nombre de tallies, associé à une bonne précision du résultat, est très coûteux en temps de calcul. Les études de ce travail de thèse utilisant des codes stochastiques, de plus amples explications sur le principe de fonctionnement seront données en section 3.3.1.

1. Le nom provient des jeux de hasard de Monte-Carlo

1.3 Gestion actuelle des matières valorisables et déchets

1.3.1 Définition d'un déchet nucléaire et d'une matière valorisable

Une convention établie par les membres de l'Agence Internationale de l'Énergie Atomique (AIEA) donne les premiers standards de gestion des matières radioactives en 1997 [18]. Ainsi, les États sont responsables des matières produites sur leur sol et donc de leur gestion (traitement et sûreté). Ils peuvent recourir aux services de traitement des combustibles d'autres pays si un accord est établi entre les deux parties prenantes. Depuis 1961, des règles sur les transports des matières radioactives doivent être suivies selon le type de matière et les quantités à faire circuler [19]. Ces règles sont régulièrement réévaluées en fonction de l'avancée des connaissances techniques et de l'évolution des mesures de radioprotection.

La définition d'un déchet nucléaire est peu précise, car elle indique uniquement qu'un déchet nucléaire est une matière qui ne sera pas réutilisée. Des versions successives d'une classification des déchets ont été publiées par l'AIEA pour fournir une base aux instances nationales de régulation [20]. Elle propose des solutions de gestion principalement basées sur la demi-vie et la radiotoxicité des éléments à confiner.

En France, la loi n°2006-739 (actualisation de la loi de 1991 portant sur les solutions de gestion de déchets nucléaires) a notamment mis à jour le code de l'environnement avec les définitions suivantes, extraites de l'article L.542-1-1 [21, 22].

[...]

Une substance radioactive est une substance qui contient des radionucléides, naturels ou artificiels, dont l'activité ou la concentration justifie un contrôle de radioprotection.

Une matière radioactive est une substance radioactive pour laquelle une utilisation ultérieure est prévue ou envisagée, le cas échéant après traitement.

Un combustible nucléaire est regardé comme un combustible utilisé lorsque, après avoir été irradié dans le cœur d'un réacteur, il en est définitivement retiré.

Les déchets radioactifs sont des substances radioactives pour lesquelles aucune utilisation ultérieure n'est prévue ou envisagée ou qui ont été requalifiées comme tels par l'autorité administrative en application de l'article L. 542-13-2.

Les déchets radioactifs ultimes sont des déchets radioactifs qui ne peuvent plus être traités dans les conditions techniques et économiques du moment, notamment par extraction de leur part valorisable ou par réduction de leur caractère polluant ou dangereux. [...]

Ainsi, sont considérés déchets radioactifs au sein du combustible irradié, les AM (demi-vies radioactives de quelques centaines d'années à plusieurs dizaines de milliers d'années) et les PF (demi-vies entre 30 ans et 10^5 années pour la plupart d'entre eux), deux catégories produites par l'irradiation de l'uranium ou du plutonium dans le combustible nucléaire.

Pour que la radiotoxicité² de ces éléments devienne comparable à la radioactivité naturelle, il faut généralement considérer 10 demi-vies. Il est d'usage de comparer la radiotoxicité des matières produites suite à l'irradiation neutronique à la radiotoxicité de la matière utilisée pour fabriquer ledit combustible, souvent l'uranium.

Outre le combustible usé, les matériaux de structure comme les gaines, grille-support ou eau de refroidissement, qui sont situés dans le circuit primaire deviennent également radioactifs par activation neutronique. Des circuits de décontamination/gestion de ces déchets sont spécifiques à leur type (liquide, gaz...) et leur niveau de radioactivité (faible activité, moyenne activité...). La figure 1.12 présente les catégories de déchets radioactifs en France.

Période radioactive* / Activité**	Vie très courte (VTC) (période < 100 jours)	Principalement vie courte (VC) (période ≤ 31 ans)	Principalement vie longue (VL) (période > 31 ans)
Très faible activité (TFA) < 100 Bq/g	VTC Gestion par décroissance radioactive	TFA Stockage de surface (Centre industriel de regroupement, d'entreposage et de stockage)	FA-VL Stockage à faible profondeur à l'étude
Faible activité (FA) entre quelques centaines de Bq/g et un million de Bq/g		FMA-VC Stockage de surface (centres de stockage de l'Aube et de la Manche)	MA-VL Stockage géologique profond en projet (projet Cigéo)
Moyenne activité (MA) de l'ordre d'un million à un milliard de Bq/g	Non applicable		HA Stockage géologique profond en projet (projet Cigéo)
Haute activité (HA) de l'ordre de plusieurs milliards de Bq/g			

*Période radioactive des éléments radioactifs (radionucléides) contenus dans les déchets
 ** Niveau d'activité des déchets radioactifs

FIGURE 1.12 – Classification des matières radioactives selon leur activité et leur période radioactive avec leur solution de gestion en France [23]

Il est à noter que l'industrie électronucléaire française est responsable, fin 2020, de 60.1% du volume de la radioactivité artificielle produite en France, car la recherche, le médical et la défense notamment génèrent également des effluents radioactifs qui ont besoin d'être traités et stockés [24]. Concernant les niveaux de radioactivité, les déchets de haute activité à vie longue tels que les AM – ne représentent que 0.2% du volume de déchets radioactifs produits, mais concentrent 94.9% de la radioactivité artificielle produite.

L'Uranium Appauvri (Uapp) et l'Uranium de Retraitement (URT) sont des matières valorisables, au même titre que le plutonium, produit de l'irradiation neutronique sur l'²³⁸U principalement. L'uranium de retraitement peut être réenrichi en Uranium de Retraitement Enrichi (URE) et utilisé comme combustible. Cela a été réalisé entre 1994 et 2013 dans la centrale de Cruas [25, 26] et devrait reprendre à partir de 2023 [27]. L'uranium appauvri peut être utilisé dans les réacteurs régénérateurs, prochaine génération envisagée après les EPR2, ou être réenrichi, ce qui résulterait en de l'uranium très appauvri et en de l'URE. Le choix de réenrichir ces deux matières dépend des coûts techniques et économiques, ainsi que de la stratégie de gestion des substances radioactives.

2. Toxicité pour les organismes vivants liée aux rayonnements ionisants émis par les noyaux radioactifs. Cette notion sera abordée dans les différents chapitres de cette thèse.

1.3.2 Les cycles du combustible

Le combustible nucléaire usé est un mélange de différents éléments (uranium, plutonium, actinides mineurs et produits de fission)³. Soit le combustible usé dans son entièreté est considéré comme un déchet, soit il est entreposé en vue d'être retraité afin d'extraire des matières valorisables (U et Pu), qui peuvent être recyclées dans de nouveaux combustibles, et alors seuls les Produit de Fission (PF) et AM sont envoyés dans le circuit de conditionnement des déchets. Des différences sur la vision stratégique ou les contextes socio-économiques, ou bien la capacité d'effectuer le retraitement ont conduit les pays disposant d'un parc électronucléaire à adopter diverses stratégies d'utilisation du combustible [28]. Les États-Unis et le Canada notamment n'effectuent qu'un seul passage en réacteur (*once-through*) et considèrent donc le combustible usé comme un déchet. D'autres, comme le Japon, la France, et certains pays européens, retraitent le combustible UOX usé et effectuent un monorecyclage du plutonium, mais d'autres matières valorisables ne sont pas ou peu valorisées (Uapp, URT...).

1.3.2.a Cycle ouvert

Un cycle du combustible ouvert consiste en la consommation de combustible nucléaire fabriqué à partir d'uranium, qui ne sera pas retraité pour récupérer les matières valorisables. Ainsi, l'ensemble du combustible usé sera stocké. Deux types de cycles ouverts sont généralement considérés et sont basés sur deux technologies de réacteur à eau pressurisée [28] :

- Réacteur à Eau Lourde / Heavy Water Reactor (HWR) (voir section 1.4.1.b)
- Réacteur à Eau Légère / Light Water Reactor (LWR)

Bien que macroscopiquement les deux types de cycles ouverts se ressemblent, quelques différences peuvent être notées. Le cycle LWR nécessite plus d'uranium par TWh_e mais produit moins de combustible usé. Le cycle HWR mène à un taux d'irradiation du combustible plus faible, amenant à des compositions distinctes de plutonium dans le combustible usé (teneur de plutonium fissile plus importante pour les HWR). Le tableau 1.1 synthétise quelques différences notables sur les deux cycles.

3. Par exemple, un combustible d'Oxydes d'Uranium (UOX) enrichi à 3.7% usé à 45 GW.j/t contient environ 95% d'uranium, 1% de plutonium, 4% de produits de fission et 0.1% actinides mineurs [teneurs massiques]

TABLEAU 1.1 – Synthèse du bilan matière des cycles ouverts LWR et HWR [28]

Cycle	Extraction [kg/TWh _e]	Sous-produit d'enrichissement (238U) [kg/TWh _e]	Combustible frais [kg/TWh _e]	Taux de combustion [GWj/tML]	Plutonium produit [kg/TWh _e]	AM produits [kg/TWh _e]
LWR	20677	18635	2042.5	60	25.75	3.76
HWR	18693	0	18693	7.5-15	50.47 ^a	3.76

^a Plutonium fissile uniquement comptabilisé

1.3.2.b Cycle semi-fermé / monorecyclage du plutonium

Dans ce cycle, actuellement utilisé en France et illustré par la figure 1.13, le plutonium est séparé de l'uranium et des (AM+PF) via le procédé PUREX permettant une séparation supérieure à 99.8% [29] et est réutilisé une seule fois (monorecyclage) dans le combustible Mélanges d'OXydes (MOX). 24 réacteurs sont autorisés à fonctionner avec du combustible MOX (environ 8% de Pu et 92% d'U), inséré à hauteur de 33% dans le cœur et complété avec des assemblages UOX, c'est ce que l'on appelle gestion partielle. Les combustibles MOX permettent une production représentant environ 10% de l'électricité à l'échelle du parc français. Les assemblages de MOX usé sont entreposés en piscine en attendant d'être éventuellement retraités.

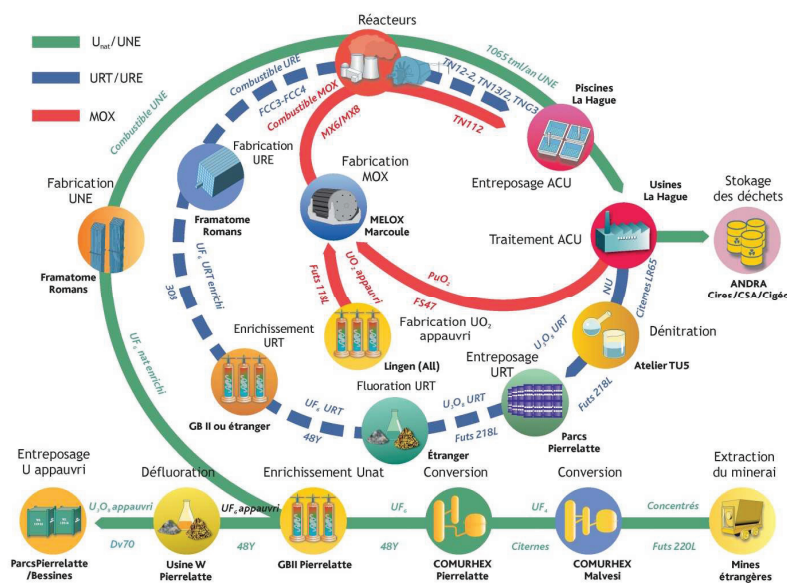


FIGURE 1.13 – Vue schématique du cycle du combustible français avec le transport des matières et déchets [30]

1.3.2.c Cycle semi-fermé⁺ (multirecyclage) et fermé

Le cycle du combustible est dit fermé lorsque la plus grande partie des matières valorisables disponibles est réutilisée, notamment par des réacteurs de 4^e génération et les cycles de régénération (sections 1.2.1 et 1.4.2). Le multirecyclage du plutonium en réacteurs à eau est une étape supplémentaire vers la fermeture du cycle en réutilisant cette matière valorisable : c'est un cycle semi-fermé (appelé ici semi-fermé⁺)[31]. Cela permet de limiter l'accumulation du plutonium, voire de stabiliser les inventaires et de favoriser le recyclage au lieu du minage d'uranium. Pour autant, la fermeture du cycle n'est pas complète, car l'uranium naturel enrichi est nécessaire à la fabrication des combustibles [32].

Par ailleurs, le multirecyclage avec du combustible MOX pose un certain nombre de défis à cause de la dégradation du vecteur isotopique : les proportions de ²³⁹Pu et ²⁴¹Pu, fissiles, diminuent au profit de celles des noyaux pairs, absorbants ou stériles. La dégradation du vecteur isotopique conduit alors à augmenter la teneur en plutonium dans les crayons, mais celle-ci est limitée pour des raisons de sûreté. Ainsi, d'autres teneurs, compositions et géométries d'assemblages sont étudiées pour le multirecyclage en REP/European/Evolutionary Pressurised Reactor (EPR) (section 1.4.1).

1.3.3 En France

Le parc électronucléaire français comporte 56 réacteurs en 2022, dont 34 utilisant de l'Uranium Naturel Enrichi (UNE) et 22 un mélange d'oxydes d'uranium et de plutonium (MOX) pour 1/3 de leur combustible au lieu d'UOX [26]. Ce sont environ 33.3 kg/TWh_e de plutonium qui sont produits chaque année en France par l'irradiation du combustible UOX et avec une production d'électricité de 360 TWh_e en 2021 (sur une production totale de 523 TWh_e), près de 10.8 tonnes de plutonium ex-UOX sortent des réacteurs chaque année au sein des combustibles usés à retraiter [2, 4, 33]. Ce monorecyclage du plutonium est possible grâce à l'usine de retraitement de la Hague ainsi qu'à l'usine de fabrication de combustible MELOX.

Le flux de plutonium ex-UOX peut être complètement réinjecté en réacteur en utilisant environ 10% de MOX au sein du parc (1/3 des réacteurs utilisent 30% de MOX en cœur, ce qui génère ≈ 120 tonnes de MOX usé chaque année, soit 2350 tonnes entreposées au total en 2020 [23]. En supposant qu'il reste environ 7 tonnes de plutonium dans ce combustible usé de 120 tonnes initiales chargées chaque année (≈ 6%) [26], environ 137 tonnes de plutonium ex-MOX sont en attente de retraitement depuis le début du recyclage du plutonium en REP.

En ne considérant que les flux d'AM provenant des combustibles UOX, la production annuelle s'élève à environ 2.5 kg/TWh_e, soit 840 kg en 2020 avec 30% des réacteurs moxés [33]. Si l'on ajoute ceux produits par l'irradiation du MOX, la masse finale annuelle est de 2.7 t (soit 8.2 kg/TWh_e tous combustibles confondus), bien que ces AM issus du MOX usé ne sont pas envoyés aux déchets, car ce combustible n'est actuellement pas retraité. Les déchets moyenne/haute activité - vie longue sont conditionnés en colis pour le stockage géologique profond. D'une part, les produits de fission (PF) et actinides mineurs (AM) sont incorporés dans une matrice de verre dans un Conteneur Standard de Déchets - Vitrifiés (CSD-V) qui permet de contenir les éléments radioactifs sur plusieurs milliers d'années avant que l'environnement géologique ne prenne le relais et que la décroissance radioactive fasse son œuvre. D'autre part, les structures sont compactées

dans des Conteneur Standard de Déchets - Compactés (CSD-C). Ainsi, la production de chacun de ces conteneurs a été de 815 CSD-V et 706 CSD-C en 2018 pour 1200 t de combustible chargé [26, 34]. Ces colis sont entreposés à la Hague pour refroidir avant de pouvoir *a priori* être envoyés au stockage géologique profond Cigéo à Bure, toujours en projet en attendant la délivrance de l'autorisation de création.

1.3.4 Dans le monde

Comme mentionné en introduction de cette section, quelques pays pratiquent le retraitement à l'échelle industrielle pour eux-mêmes ou des clients étrangers : France, Inde, Russie, et Royaume-Uni jusqu'en 2018 [35]. Le tableau 1.2 présente les capacités de retraitement et stratégies de gestion des matières radioactives pour les pays disposant de centrales électronucléaires. La majorité des pays se sont orientés vers un cycle ouvert, plus facile à mettre en place avec une petite flotte de réacteurs (on note que les Pays-Bas par exemple en sont un contre-exemple). Les pays avec un programme nucléaire à grande échelle comme la France ou la Russie disposent de leur propre usine de retraitement de combustible pour une semi-fermeture du cycle.

TABLEAU 1.2 – Stratégies de cycle du combustible dans le monde, d'après [35]

Pays	Usine de retraitement à l'échelle industrielle		Combustible utilisé en cours de retraitement dans un autre pays	Retraitement du combustible arrêté ou quasiment arrêté	Stockage direct du combustible utilisé prévu	Pas de décision finale
	Existante	Planifiée				
Allemagne				√	√	
Argentine						√
Belgique ^a				√	√	√
Brésil						√
Bulgarie ^a			√			
Canada					√	
Chine ^b		√			√	
Espagne				√	√	
États-Unis d'Amérique				√	√	
Finlande				√	√	
France	√					
Hongrie ^{a,c}				√	√	
Inde	√	√				
Italie			√			
Japon ^d		√	√			
Lituanie					√	

Suite à la page suivante

1.4. Vers un nucléaire plus durable : recherches sur la gestion future des matières valorisables et déchets

TABLEAU 1.2 – Stratégies de cycle du combustible dans le monde, d’après [35] (Suite)

Pays	Usine de retraitement à l'échelle industrielle		Combustible utilisé en cours de retraitement dans un autre pays	Retraitement du combustible arrêté ou quasiment arrêté	Stockage direct du combustible utilisé prévu	Pas de décision finale
	Existante	Planifiée				
Mexique						√
Pays-Bas			√			
République de Corée						√
République tchèque ^a				√	√	
Roumanie					√	
Royaume-Uni ^e	√			√	√	
Russie	√	√				
Slovaquie				√	√	
Slovénie					√	
Suède				√	√	
Suisse				√	√	
Turquie					√	
Ukraine ^f			√	√		√

^a Politique mixte : une partie du combustible a été ou sera retraitée, le reste est ou sera stocké directement.

^b La politique principale en Chine est retraitée sur le territoire national. Cependant, une partie du combustible, principalement des réacteurs CANDU, devrait être stocké directement.

^c Les combustibles usés les plus anciens sont renvoyés en Russie mais aucune exigence de renvoi des déchets en Hongrie.

^d L'usine de Rokkasho-mura est construite et est en phase de tests.

^e Le Royaume-Uni a arrêté le retraitement suite à l'expiration des contrats.

^f Une partie du combustible usé est envoyée en Russie pour retraitement. Le reste en entreposage en attendant une décision finale.

1.4 Vers un nucléaire plus durable : recherches sur la gestion future des matières valorisables et déchets

Afin de répondre à des exigences sociétales, économiques, environnementales et éthiques, la question de la fermeture du cycle s'impose dans certains pays disposant de nucléaire civil. Elle passe par une meilleure réutilisation des matières valorisables

(uranium appauvri, plutonium) dans des réacteurs de génération IV (voir chapitre 2) et une gestion optimisée des déchets, avec par exemple une reclassification des AM en matière valorisable. Cette section fait donc l'inventaire des moyens possibles pour y arriver avec tout d'abord l'adaptation des réacteurs existants (section 1.4.1) avant d'explorer des concepts encore en étude (section 1.4.2).

Si le réacteur ne consomme que du plutonium, on peut calculer la quantité consommée chaque année par fissions pour une puissance $P=100 \text{ MW}_{\text{th}}$:

$$m = \frac{E_{\text{produite}} \cdot M}{N_A \cdot E_f} = 39.3 \text{ kg/an}$$

avec m la masse de combustible consommée, E_{produite} l'énergie produite en un an par le réacteur ($3.1536 \times 10^7 \cdot P^4$), M la masse molaire du plutonium (environ 240 g/mol), N_A le nombre d'Avogadro et E_f l'énergie libérée par une fission (environ 200 MeV). Pour comparer, mettons ce résultat dans une unité plus pratique :

$$m_{\text{TWh}} = \frac{m}{8760 \cdot P} = 44.9 \text{ kg/TWh}_{\text{th}} = 112.1/136 \text{ kg/TWh}_e \text{ (rendement de 40\% et 33\%)}$$

On peut donc chaque année consommer théoriquement par fissions 44.9 kg/TWh_{th} de plutonium (plus largement, de noyaux lourds). C'est cette consommation nette plafond que l'on souhaite donc approcher⁵.

1.4.1 Adaptation des réacteurs en opération

1.4.1.a REP

L'adaptation des REP pour la fermeture du cycle du plutonium est envisagée avec l'étude d'assemblages très divers (figure 1.14), dédiés à la consommation accrue de plutonium (notamment MIX/MOXEUS et CORAIL) [32, 36].

Assemblage MOX/EUS | MIX Le MOX/EUS | MIX (Mixed OXydes on Enriched Uranium Support) est un combustible à base d'uranium enrichi et de plutonium. L'utilisation d'un seul type de crayon permet d'éviter les soucis d'interface dans le cœur. La géométrie de l'assemblage est identique à celui que l'UOX utilise (264 crayons/assemblage d'un réacteur français), un des critères à étudier pour la compatibilité avec les réacteurs existants français, avec la neutronique, la sûreté, etc. [37]. La composition du combustible dépend de deux variables qui s'articulent entre elles pour garantir un taux de combustion (burn-up) donné : la teneur en plutonium et l'enrichissement en ²³⁵U. Ainsi, pour un vecteur isotopique du plutonium très dégradé, deux possibilités coexistent : soit la teneur en plutonium augmente pour un enrichissement fixé, soit l'enrichissement en ²³⁵U augmente pour une teneur en plutonium fixée. Cependant, des limites de sûreté existant là encore pour encadrer les plages de variation possibles de ces deux grandeurs. Ce choix de stratégie impacte notamment le taux d'incinération du plutonium en REP-MIX (figure 1.14a).

4. Hypothèse de disponibilité à 100% du réacteur

5. Pour un combustible uranium enrichi à 5% en ²³⁵U, la masse consommée est plus faible du fait de la masse plus légère de l'uranium. Ainsi, on attend une consommation de 44.5 kg/TWh_{th}, soit 134.8 kg/TWh_e avec un rendement thermodynamique de 33%.

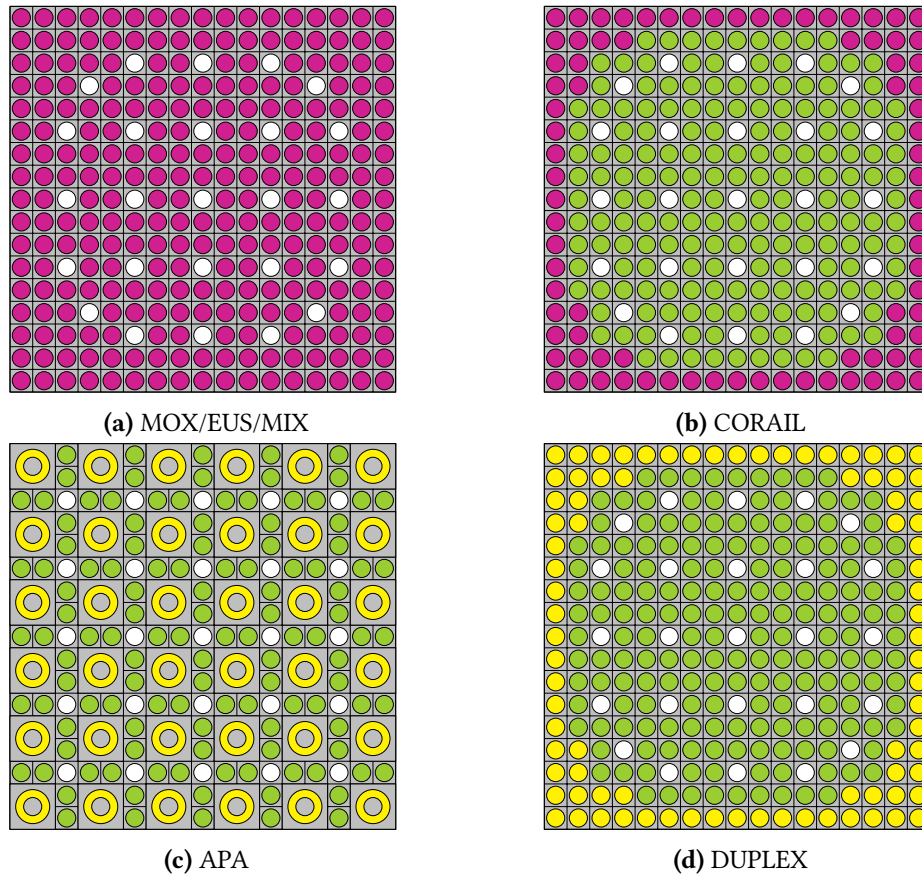


FIGURE 1.14 – Différents concepts d’assemblage pour le multirecyclage en REP (●/● (Pu,Ce)Ox, ● crayons UOX, ● crayons MOX, ○ tube-guide pour les barres de contrôle) [37]

L’avantage du support uranium est la faible sensibilité à la qualité isotopique du plutonium. Par exemple, malgré la présence d’uranium, ce type d’assemblage permet de consommer théoriquement environ 58 kg/TWh_e de plutonium (teneur en plutonium initial de 12% et enrichissement en ²³⁵U de 3.9% [36]). En France, les combustibles MIX sont étudiés par les industriels [38]. Dans ces études, la teneur en plutonium est actuellement fixée à 8% et c’est l’enrichissement en ²³⁵U qui s’adapte au vecteur plutonium considéré. Le plutonium issu d’un combustible MIX utilisé est utilisé dans les études des réacteurs Réacteur Alimenté en Plutonium et autres Transuraniens pour Orano (RAPTOR) dans le chapitre 6 ainsi que pour les scénarios de modélisation de déploiement de parc dans le chapitre 7.

Assemblage CORAIL Également compatible avec les réacteurs en exploitation et les installations du cycle en France, l’assemblage COMbustible Recyclable A ILôt (CORAIL) est hétérogène puisqu’il contient des crayons d’UOX et de MOX. En ayant du combustible MOX sur la périphérie, cela permet d’éviter les interfaces de puissance inter assemblage, mais rend difficile la réversibilité d’un cœur CORAIL et son utilisation en gestion partielle. Comme dans chaque assemblage il y a une interface de puissance entre les crayons UOX et MOX, la teneur en matière fissile de l’UOX et du MOX doit être ajustée de manière à limiter cet effet. Ici dans [36], 180 crayons d’UOX et 84 de MOX peuvent être distribués de différentes manières. Un exemple est montré en figure 1.14b avec les crayons MOX

en périphérie de l'assemblage⁶ avec une consommation de 7 kg/TWh_e de plutonium (crayons UOX : enrichissement en ²³⁵U de 5.2%; crayons MOX : teneur Pu de 11.3% et 0.25% d'²³⁵U) [36].

Assemblage APA Le concept APA (Advanced Plutonium Assembly) utilise des crayons annulaires de (Pu,Ce)Ox, plutonium sur matrice de cérium (matériau transparent aux neutrons remplaçant l'uranium, fertile), pour augmenter le rapport de modération localement et ainsi augmenter la proportion de neutrons thermiques. La consommation de plutonium s'en trouve améliorée. Ici, il y a 120 crayons UOX (enrichissement de 5% en ²³⁵U) et 36 (Pu,Ce)Ox (figure 1.14c) [37]. De même, comme il n'y a pas de présence d'²³⁸U dans les crayons (Pu,Ce)Ox, la production de plutonium est limitée. À noter qu'au déchargement, la qualité isotopique est très dégradée (faible proportion de ²³⁹Pu) et qu'une consommation de 68 kg/TWh_e est estimée [40]. On peut également remarquer que le fort taux de modération des neutrons au niveau des crayons de plutonium limite la production d'actinides mineurs en regard de la consommation de plutonium.

La place des tubes-guide étant différente, le design APA est donc incompatible avec la configuration actuelle des couvercles de cuve des REP. La forme annulaire des crayons de plutonium étant plus compliquée à mettre en œuvre (fabrication et comportement dans l'assemblage), le CEA a orienté ses études vers l'assemblage APA/DUPLEX (figure 1.14d).

Assemblage DUPLEX L'assemblage DUPLEX est identique à l'assemblage CORAIL dans l'agencement des crayons et à l'assemblage APA dans les compositions des crayons (crayons MOX remplacés par des crayons de (Pu,Ce)Ox) (figure 1.14d). Avec l'absence d'uranium dans ces crayons et donc l'absence de capture sur l'²³⁸U (fertile), le plutonium est mieux consommé (25 kg/TWh_e) [36].

Assemblage PLUTON Ce concept élimine la présence d'uranium dans l'assemblage, utilisant du PuO₂ sur matrice inerte dans 228 crayons combustibles en PuO₂/Al₂O₃ et absorbants en PuO₂/ Al₂O₃/ Gd₂O₃. Ce design est très bon pour la consommation de plutonium (134 kg/TWh_e), mais les coefficients de contre-réaction sont très insatisfaisants par l'absence de ²³⁸U (effet Doppler) et malgré la présence de barres modératrices hydrogénées (coefficient de vide).

Points clefs À ce jour, le retraitement du MOX est chimiquement possible grâce aux recherches effectuées au CEA (25 tonnes de combustibles de Phénix irradiés retraités [26]), mais avec des aménagements des systèmes de retraitement par rapport à l'UOX. Le facteur limitant n'est pas tant la chimie, mais la physique du cœur car le spectre neutronique en REP est durci dû à l'introduction de crayons MOX, ainsi que les adaptations ou créations des usines de retraitement et de fabrication des combustibles (isotopies différentes, volumes à traiter etc.). Ceci induit une diminution du nombre de neutrons retardés, impactant le pilotage du réacteur, ainsi qu'une teneur maximale en plutonium pour éviter que le coefficient de vidange ne devienne positif. Si celui-ci était positif, en cas de perte du caloporteur, la réactivité augmenterait. Il est cependant à noter que le temps de refroidissement sous eau du combustible utilisé augmente (de 3 ans à 5 ans) pour diminuer l'activité β et γ du combustible [41].

6. Les crayons MOX peuvent aussi être au centre du réseau de l'assemblage [39].

1.4. Vers un nucléaire plus durable : recherches sur la gestion future des matières valorisables et déchets

Sous réserve de retraiter le combustible utilisé, une fois intégrés dans le parc, ces concepts permettraient de stabiliser l'inventaire en plutonium en France (figure 1.15). On voit sur cette figure que les cycles ouvert ainsi que semi-fermé avec le MOX – simple recyclage – ne permettent pas de stabiliser l'inventaire en plutonium. Avec les hypothèses de composition et de taux de combustion, le concept CORAIL le stabilise à un tonnage supérieur à celui initial. Seuls les assemblages pour REP APA et MOX/EUS ainsi que le réacteur HTR (voir section 1.4.2.a) permettent de réduire le tonnage initial après un passage à un maximum (t+15 ans pour APA et MOX/EUS ; t+30 ans pour le HTR), mais le concept HTR met beaucoup plus de temps pour arriver à l'équilibre (env. 70 ans). À l'équilibre, hormis PLUTON, ce sont MOX/EUS et APA qui consomment le plus de plutonium. Par ailleurs, leur taux de production d'actinides mineurs est également faible, ce qui est intéressant pour réduire l'impact des déchets ultimes (table 1.3).

TABLEAU 1.3 – Inventaire des caractéristiques pour différents concepts d'assemblage en REP [36, 40]

		UOX	MOX	MOX/EUS MIX	CORAIL	APA	DUPLEX	PLUTON
Quantité initiale de plutonium par assemblage	kg	–	62	62	19	23	19	28.8
Taux de combustion (GW · j/t)	60	60	60	60	60	60	N.C. ^a	
Bilan du plutonium	kg/TWh _e	26	-70	-58	-7	-60	-25	-134
Production d'AM	kg/TWh _e	3.7	17.4	22.5	9.4	12.1	9.5	12
Taux de production d'AM	kg/kg _{Pu}	–	0.25	0.38	1.34	0.20	0.38	0.088
Fraction du parc pour la stabilisation de l'inventaire en plutonium	%	–	–	31	79	30	51	N.C. ^a

^a Non Communiqué

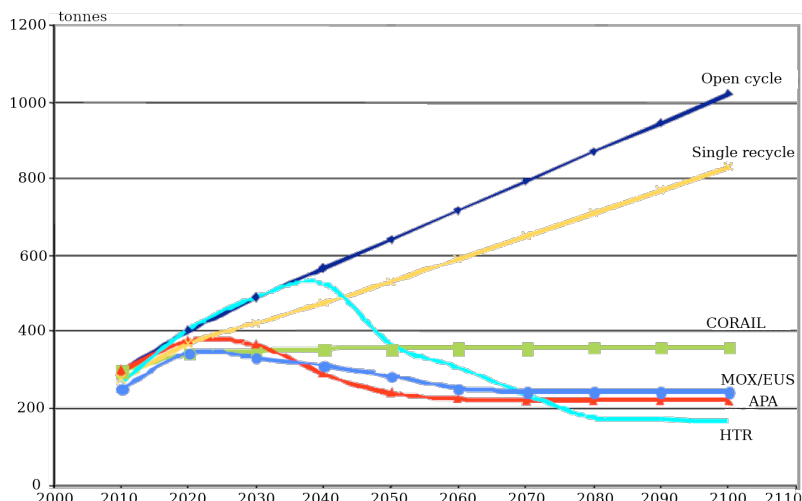


FIGURE 1.15 – Évolution de l'inventaire français en plutonium pour différents scénarios d'intégration de nouveaux concepts dans un parc de 60 GW_e d'EPR, d'après [40]

Le multirecyclage en REP permet de réutiliser le plutonium produit par l'irradiation des combustibles UOX, mais a une incidence limitée sur la consommation d'uranium naturel (-10%)⁷ par rapport à la consommation actuelle et produit une quantité supérieure significative d'actinides mineurs (+30%) [42]. En effet, l'utilisation du plutonium favorise la production d'actinides mineurs en spectre thermique par captures neutroniques et par décroissances des différents isotopes du plutonium. La Commission Nationale d'Évaluation 2 des recherches et études relatives à la gestion des matières et des déchets radioactifs (CNE2) souligne la nécessité d'une consommation accrue du plutonium. De nouveaux concepts de réacteurs sont également à l'étude dans cette optique.

Un cycle totalement fermé serait donc un cycle du combustible ne nécessitant pas d'extraction de nouvelles matières et ne réutiliserait que ce qui est disponible en entreposage. Un tel cas pourrait éventuellement être envisagé avec une flotte de réacteurs régénérateurs, produisant leur matière fissile pour maintenir la criticité en utilisant de la matière fertile – telle que l'²³⁸U disponible en grandes quantités grâce à l'uranium appauvri – par les cycles de régénération ²³²Th/²³³U et ²³⁸U/²³⁹Pu (section 1.2.1). Un déploiement massif de ces réacteurs est cependant inenvisageable à l'heure actuelle à l'échelle mondiale, car la charge initiale en matière fissile demande de grands "stocks", inexistants à ce jour ou bien nécessiterait l'utilisation d'²³⁵U, donc un puisement important dans les ressources minières.

7. Le gain peut être amélioré jusqu'à 20% si l'URT est réenrichi.

1.4.1.b Réacteur modéré à eau lourde - CANDU

Les réacteurs HWR, comme les CANDU, font l'objet d'études sur le monorecyclage de plutonium. Jusqu'à maintenant, il n'y a pas eu d'expérimentation sur l'utilisation de plutonium comme combustible dans des réacteurs à eau lourde. Un important travail théorique a cependant été effectué et le projet collaboratif canada-coréen Direct Use of spent PWR fuel In CANDU (DUPIC) étudie la possibilité de réutiliser le plutonium issu des REP (après un refroidissement de 10 à 20 ans puis dégazage), mais sans séparation de l'uranium du plutonium. Cependant, cette stratégie ne serait que pour un monorecyclage. En France, ce scénario ne semble pas envisageable puisqu'aucun réacteur de puissance ne fonctionne à l'eau lourde [40]. Pour les pays disposant de réacteurs appropriés, il serait possible d'augmenter le burn-up du combustible de 18 (en sortie de réacteur) à 21 GW-jour/tonne. La masse finale de plutonium serait donc diminuée, mais resterait un équivalent du MOX en France (légère baisse du stock de combustible usagé : figures 1.15,1.16).

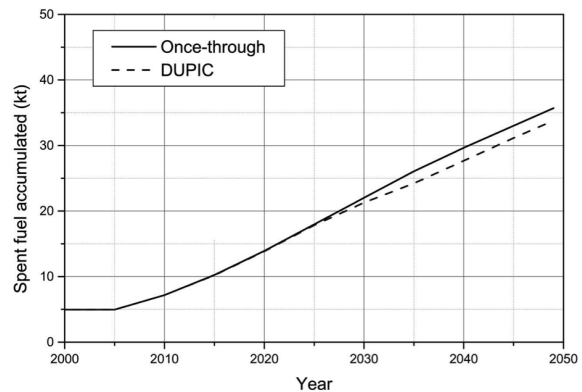


FIGURE 1.16 – Évolution temporelle du stock de combustible usagé pour le cycle ouvert «once-through» et le monorecyclage DUPIC [43]

1.4.2 Études de concepts de nouvelle génération

Des concepts de réacteur non déployés à l'échelle industrielle, car à l'étude, se prêtent au traitement de la problématique de fermeture du cycle et de réutilisation du plutonium. Ils sont décrits dans cette section. On notera que des recherches sur la transmutation des AM sont menées en Russie, en Inde et en France notamment dans le cadre de développement de réacteurs rapides de génération IV. Deux moyens pour y parvenir sont envisagés : insérer des aiguilles d'AM dans le cœur ou les placer dans tout ou partie du réflecteur radial [solution hétérogène] [44], ou bien les inclure directement dans le combustible solide en pastilles MOX [45] ou liquide en sels fondus [46] [solution homogène].

1.4.2.a High Temperature Reactor (HTR)

Les réacteurs haute-température (700-900°C) utilisent soit de l'uranium soit un mélange uranium/ plutonium dans une matrice de graphite, le tout sous forme de boulets contenant des particules de combustible (voir figure 1.17) ou de blocs hexagonaux refroidis à l'hélium. L'oxyde d'uranium ou de plutonium/uranium est recouvert de plusieurs couches de matériaux carbonés, qui retiennent les produits de fission. Avec ce type de réacteur, il serait possible de consommer 100 kg/TW_e de plutonium (rendement thermodynamique de 40%) et stabiliser l'inventaire national en quelques dizaines d'années (figure 1.15), et ce, malgré un spectre neutronique thermique. Cependant, vu la composition du combustible, il est nécessaire de poursuivre les études sur le retraitement [40], actuellement non faisable.

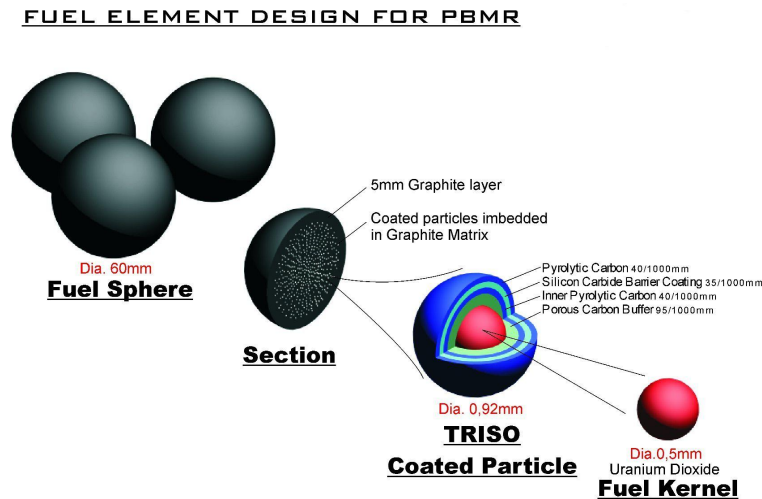


FIGURE 1.17 – Coupe d'un boulet de combustible (TRISO) d'un réacteur HTR (type PBMR)[47]

1.4.2.b Réacteurs à neutrons rapides à combustible solide

Réacteur à neutrons rapides à caloporteur sodium

Un réacteur rapide à caloporteur sodium contient dans son cœur des crayons de matière fissile refroidis par du sodium liquide (RNR-Na), qui va circuler dans la cuve primaire et passer dans les échangeurs pour transmettre sa chaleur au circuit secondaire (figure 1.18). Il y a ensuite création de vapeur dans le circuit tertiaire pour la production d'électricité et enfin, refroidissement avec le circuit quaternaire. Dans le cas d'un RNR-Na, il n'y a pas de modérateur et la température du caloporteur primaire varie entre 440 et 550°C. En France, une solide expertise des RNR-Na existe grâce à de nombreuses études R&D et à l'exploitation de plusieurs réacteurs expérimentaux ou de puissance (Rapsodie, Phénix, Superphénix). Un démonstrateur technologique (Astrid) a été, pendant plusieurs années, en étude pour permettre de valider plusieurs critères cruciaux pour le développement des RNR-Na [49].

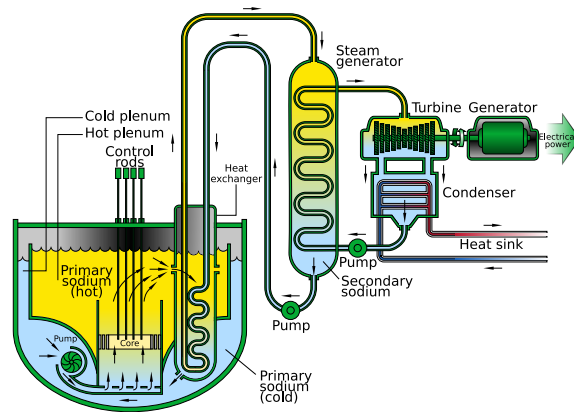


FIGURE 1.18 – Coupe schématique d'un RNR-Na au design intégré, d'après [48]

Le planning d'Astrid présenté en [50] prévoit un début de construction en 2019 pour un début des essais en 2023. Le CEA a présenté fin-2018 les conclusions de l'avant-projet détaillé pour la suite du projet Astrid [51], qui est largement soutenu par la CNE2 [42]. Cependant, mi-2019, le gouvernement français a mis fin au projet, car le besoin d'une nouvelle génération de réacteurs n'est pas immédiat [52].

Réacteur à neutrons rapides à caloporteur plomb Des études reprennent le concept du RNR-Na et remplacent le sodium par du plomb pour éviter les interactions avec l'eau et l'air. Certaines utilisent un mélange plomb/bismuth (similaire à celui utilisé auparavant dans les sous-marins nucléaires russes), mais le bismuth est un matériau plutôt rare, donc non envisageable pour une production à grande échelle [49]. Le plomb présente

également de nombreux inconvénients comme son haut pouvoir corrosif, sa température de fusion élevée (qui peut être diminuée en ajoutant du bismuth) et sa toxicité chimique. L'utilisation du plomb augmente également le coefficient de vidange : +15 \$⁸ pour le projet européen Elsy (1500 MW_{th}), +3 \$ pour le projet Alfred (300 MW_{th}) mené actuellement pour mieux connaître la technologie. La réduction du coefficient de vidange est principalement liée à une réduction de la taille et de la puissance du réacteur. Même si l'interaction plomb eau/air ne pose pas de problème, le risque d'une explosion vapeur est non nul. Aucune donnée publique sur la consommation de plutonium/combustible ne semble exister aujourd'hui.

Réacteur à neutrons rapides à caloporteur gaz Le principe est identique à celui d'un RNR-Na excepté que le caloporteur est gazeux (hélium). Le gaz étant transparent, l'entretien et l'inspection du cœur sont facilités, il est chimiquement inerte et impacte peu la neutronique en fonctionnement normal et accidentel en cas de perte de l'hélium. Cependant, il faut prendre en compte la perte de caloporteur, car l'hélium est un gaz léger qui peut s'échapper facilement, entraînant une dépressurisation et qui peut induire une montée en température rapide. Afin de diminuer l'inventaire en plutonium, une grande puissance volumique est nécessaire : 50 à 100 MW_{th}/m³. Il faut en contrepartie dimensionner le système de refroidissement pour que celui-ci soit assuré en toutes circonstances [54].

De nombreuses contraintes technologiques sont présentes avec ce concept : les caractéristiques des pastilles de combustible en carbure sont encore mal connues par rapport au combustible oxyde, la fabrication des gaines n'est pas simple (faisabilité industrielle) et un matériau transparent aux neutrons doit être utilisé. Enfin, celles-ci doivent résister à de hautes températures (typiquement 1600°C). Afin d'avoir plus de connaissances sur cette technologie, un démonstrateur du consortium V4G4⁹ (Allegro) est en projet [49]. Aucune donnée sur la consommation de combustible n'est disponible à ce jour.

1.4.2.c Réacteur piloté par accélérateur - ADS

Les ADS sont des réacteurs conçus spécifiquement pour l'incinération de noyaux lourds. De nombreux projets d'Accelerator Driven System (ADS) émergent dans le monde. En Europe, le projet MYRRHA basé en Belgique a passé l'étape de la maquette et la construction de l'accélérateur va débuter. Le réacteur – sous-critique – utilise des neutrons produits par spallation (source protonique de 600 MeV et de 0.1 à 4 mA) pour être critique [55]. Avec une cible en plomb-bismuth, le rendement de spallation¹⁰ est environ $\nu_x = 12$. En supposant que le nombre de neutrons produits par fission vaut $\nu = 2.5$, le réacteur est sous-critique à $k_{eff} = 0.95$, l'importance de source vaut $\phi^* = 1.5$, le courant est $I = 4$ mA et l'énergie libérée par fission vaut $E_{fiss} = 200$ MeV, la puissance maximale du réacteur peut être calculée par :

$$P_{th} = \phi^* \cdot I \cdot E_{fiss} \cdot \frac{\nu_x}{\nu} \cdot \frac{k_{eff}}{1 - k_{eff}} = 109 \text{ MW}_{th}$$

8. Le dollar \$ donne une information sur la réactivité. Réactivité en \$ = $\frac{\rho}{\beta_{eff}}$, 1 \$ équivaut à 1 β_{eff} . [53]

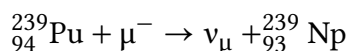
9. République tchèque, Hongrie, Pologne et Slovaquie

10. le nombre de neutrons produit par proton incident

Le réacteur étant sous-critique malgré la production de neutrons retardés, une plus grande quantité doit être injectée dans le cœur grâce à un accélérateur, permettant la criticité. Cette quantité de neutrons étant modulable, il est possible d'augmenter significativement la proportion d'actinides mineurs et de plutonium présents en réacteur (jusqu'à 50 % en volumique), qui sont de grands consommateurs de neutrons. En ADS, il serait possible de transmuter 95 kg/TW_e d'actinides mineurs et de plutonium [50]. Cependant, les ADS sont plutôt conçus pour la transmutation d'actinides mineurs. En ne regardant que la production de ceux-ci en combustible UOX (840 kg d'AM/an [33]), un parc de 1.3 GW_e d'ADS (à 80% de disponibilité) suffirait à transmuter la production annuelle française.

À noter qu'il est technologiquement possible de fabriquer des accélérateurs linéaires fournissant de plus hauts courants et de plus hautes énergies. Dans le cadre du démonstrateur, le point crucial étudié est la fiabilité de l'accélérateur et non sa puissance. Celui-ci doit fournir un faisceau pulsé avec le minimum de décalages et d'arrêts pour éviter les contraintes thermiques sur la cible et le cœur du réacteur.

Projet MERIT Le projet MERIT (Multiplex Energy Recovery Internal Target) est mené au Japon par l'université de Kyoto dans le cadre de la transmutation des produits de fission à vie longue comme le ¹³⁵Cs (pas de projet de transmutation d'actinides). Cas particulier des ADS, le principe est d'utiliser un accélérateur de type ERIT (Energy Recovery Internal Target) où un faisceau de protons frappe une cible de lithium afin de produire des muons μ^- via des pions π^- . Grâce à la réaction $\mu^- + p \rightarrow n + \nu_\mu$, le ¹³⁵Cs devient du ¹³⁵Xe [56]. On pourrait imaginer une réaction similaire avec le plutonium :



Cependant, le ²³⁹Np a une section efficace neutronique de capture très faible (<1 barn) et décroît donc par β^- en ²³⁹Pu rapidement (T_{1/2}=2.356 jours). Ce schéma est donc inapplicable pour la transmutation du plutonium.

1.4.2.d RSF (Réacteurs à Sels Fondus)

Les RSF seront détaillés dans le chapitre 2. On peut d'ores et déjà noter que ces réacteurs ont une structure très différente des réacteurs classiques puisque le combustible est liquide, incorporé dans un sel solvant fondu. La forme liquide permet un retraitement en ligne et une alimentation plus régulière que les REP. La consommation est estimée dans ce travail de thèse. L'objectif étant de s'approcher de la consommation maximale théorique de 44.5 kg/TWh_{th} par fission, en évitant de régénérer le combustible.

1.4.3 Conclusions sur les possibilités d'amélioration de la fermeture du cycle

Au travers de différents concepts présentés dans ce chapitre, deux grands axes apparaissent comme intéressants pour la réutilisation du plutonium : réacteurs à spectre rapide (RNR-Na, RSF) et réacteurs à spectre thermique (REP). Les réacteurs rapides fonctionnant à haut flux neutronique, les matériaux proches du combustible sont plus fortement irradiés qu'en réacteurs thermiques. Cependant, le haut flux rapide permet de transmuter et convertir de manière efficace les transuraniens et donc de diminuer l'inventaire en

matières radioactives Haute Activité à Vie Longue (HA-VL), qui seront vitrifiées. La qualité isotopique du plutonium n'influe presque pas sur le comportement de ces deux types de réacteurs RNR.

Le multirecyclage en REP a pour avantage d'avoir une majorité des infrastructures déjà présentes et un retour d'expérience très important. Seule reste la question de la compatibilité avec les réacteurs actuels (l'assemblage APA par exemple). Hormis l'assemblage PLUTON qui actuellement ne peut être implémenté pour ses coefficients de contre-réaction non satisfaisants, les différents concepts d'assemblages étudiés pour le multirecyclage REP sont prometteurs, mais ont un impact limité par rapport aux objectifs cités par la CNE2 (consommation accrue de plutonium et transmutation des AM).

TABLEAU 1.4 – Résumé des caractéristiques principales de chaque concept à l'équilibre

	RNR-Na ^b	ADS	REP MOX	REP MOX/EUS	REP CORAIL	REP APA	REP DUPLEX	REP PLUTON	RSF incinérateur	HTR
Bilan du plutonium (kg/TWh _e)	-70	-95	-70	-58	-7	-60	-25	-134	-111 ^a	-100
Bilan du plutonium (kg/TWh _{th})	-28	-38	-23.3	-19.3	-2.3	-20	-8.3	-44.2	-44.5 ^a	-40
Rejet d'actinides mineurs (kg/TWh _e)	N.C.	—	17.4	22.5	9.4	12.1	9.5	12	—	N.C.

^a Calcul théorique

^b Rendement thermodynamique de 33% pour les REP, 40% pour les autres

Note : En bleu, les concepts permettant d'envisager la fermeture du cycle. En blanc, les concepts pour le mono- et multirecyclage

Parmi tous les concepts présentés, les plus intéressants sont le RSF incinérateur, le HTR et l'ADS, en termes de consommation de plutonium visible dans le tableau 1.4 (avec un bémol pour le HTR d'un point de vue recyclage). En outre, le recyclage du plutonium induit la production d'AM, qui vont absorber des neutrons. La capture étant prédominante par rapport à la fission sur de nombreux noyaux avec un spectre neutronique thermique (et l'on souhaite éviter la production de noyaux plus lourds), on vise à les faire fissionner : une source de neutrons de haute énergie est donc nécessaire. Ce sont donc des réacteurs à spectre rapide (ADS et RSF incinérateur) qui seraient les plus appropriés pour le recyclage du plutonium.

1.5 Objectif de la thèse : valoriser les matières radioactives par l'étude d'un réacteur incinérateur

Le travail de cette thèse s'inscrit dans un objectif de durabilité du nucléaire en explorant la possibilité de séparation et transmutation homogène en RSF. L'objectif, comme expliqué ici, est de valoriser une partie des déchets actuels, diminuer leur quantité stockée ainsi que leur radiotoxicité. L'étude d'un RSF incinérateur permet de préciser la valeur théorique calculée dans la section 1.4.2.d et d'établir un bilan de la production d'AM actualisé dans le chapitre 4.

Une présentation des concepts de RSF depuis leur création aux États-Unis post-Second Guerre mondiale est faite en chapitre 2 et réalise un inventaire des différents objectifs au cours du temps. Le chapitre 3 pose le cadre du concept étudié dans cette thèse d'un réacteur à sels fondus adapté à l'incinération et fait l'inventaire des codes et méthodes de caractérisation nécessaires aux différentes études. Le chapitre 4 applique les outils définis à l'étude des incinérateurs dans le cadre d'un recyclage du plutonium de diverses qualités isotopiques (ex-UOX, ex-MOX et ex-MIX). Le chapitre 5 reprend les mêmes vecteurs isotopiques du plutonium pour étudier différentes géométries modifiées avec des matériaux grands consommateurs de neutrons thermiques, afin de durcir le spectre neutronique et ainsi favoriser le rapport fission sur capture. Le chapitre 6 utilise les vecteurs isotopiques plutonium + actinides mineurs issus des différents cycles du combustible pour les consommer dans le concept incinérateur de transuraniens RAPTOR et évaluer l'efficacité d'incinération des matières alimentées. Enfin, le chapitre 7 utilise les différents résultats des réacteurs RAPTOR pour l'intégration de RSF incinérateurs dans un parc électronucléaire dans des scénarios préliminaires jusqu'à la fin de jeu du nucléaire.

2

Le RSF : histoire d'un réacteur innovant et de son adaptation à l'évolution des besoins

Les débuts de l'industrie nucléaire sont brièvement présentés pour se focaliser sur la conception des premiers réacteurs à sels fondus. Régulièrement étudiés, la forte dynamique de projets autour de ce concept de réacteur ne prend vraiment son essor qu'au début du XXI^e siècle. Les nombreux projets de recherche français et européens, ainsi que de par le monde, sont ensuite détaillés. Enfin, le fort intérêt croissant de l'industrie de la filière réacteur à sels fondus est souligné.

Sommaire

2.1	Premiers réacteurs nucléaires artificiels	34
2.1.1	De la découverte de la radioactivité à l'intuition de la réaction en chaîne	34
2.1.2	Les piles nucléaires : premières expériences de réaction en chaîne contrôlée	34
2.2	Invention des RSF et perspectives d'utilisation	35
2.2.1	Réacteur prototype : ARE	36
2.2.2	MSRE	37
2.2.3	MSBR	38
2.3	Vue d'ensemble des projets de R&D historiques dans le monde	38
2.3.1	Intérêt français et conception d'un réacteur de référence	38
2.3.2	Développements soviétiques et russes	40
2.3.3	Autres développements des réacteurs à sels fondus	41
2.4	Dynamique actuelle : un puissant regain d'intérêt	42
2.4.1	Projets français et européens	42
2.4.2	Projets actuels dans le monde	45

2.4.3	SMR/AMR	46
2.4.4	Start-ups : vers une démocratisation de l'énergie nucléaire?	47
2.5	Conclusion	49

2.1 Premiers réacteurs nucléaires artificiels

Découverts seulement en 1972, des réacteurs nucléaires naturels ont existé. À Oklo, au Gabon, les conditions étaient favorables il y a plusieurs milliards d'années pour que l'uranium, à teneur en isotope 235 plus importante, puisse fissionner [57]. Les physiciens n'ayant pourtant pas eu connaissance de leur existence ont été amenés petit à petit à concevoir des réacteurs nucléaires artificiels. La découverte, d'une part, de la radioactivité et les isotopes non naturels, et d'autre part, du neutron, ont laissé le champ à l'inventivité.

2.1.1 De la découverte de la radioactivité à l'intuition de la réaction en chaîne

La radioactivité, processus naturel et spontané pour des noyaux instables de gagner en stabilité par libération d'énergie, a été découverte par Henri Becquerel en 1896 en travaillant sur des sels d'uranium. En 1898, Marie et Pierre Curie confirment la découverte en identifiant de surcroît que le thorium, le radium et le polonium (ces deux derniers inconnus à l'époque) possèdent également cette propriété qu'ils vont nommer radioactivité [58, 59].

Avec ces découvertes, les recherches s'accélérent. La détection des différents types de rayonnements (α , β et γ), l'invention d'appareils de mesure et les modélisations de l'atome s'enchaînent. Le neutron est découvert en 1932 par James Chadwick et le couple Irène et Frédéric Joliot-Curie découvre la radioactivité artificielle en produisant du phosphore radioactif par irradiation d'aluminium en 1934. Enfin, en 1939, le phénomène de fission en chaîne de l'uranium, avec dégagement d'énergie, est mis en évidence par Frédéric Joliot, Hans Halban, Lew Kowarski et Francis Perrin. Ainsi, en seulement 43 ans, un nouveau pan de la physique a vu le jour avec désormais comme objectif de contrôler la fission pour récupérer l'énergie libérée.

2.1.2 Les piles nucléaires : premières expériences de réaction en chaîne contrôlée

Plusieurs équipes ont donc tenté de construire des piles atomiques à réaction en chaîne autoentretenue. Après plusieurs années à étudier les conditions favorisant la réaction en chaîne et à théoriser la formule des quatre facteurs [60], Enrico Fermi se lança dans la construction d'une maquette critique. En uranium naturel (6 t métal + 50 t oxyde), 400 t de lingots de graphite arrangés en couches successives entourèrent le cœur d'uranium (comme sur la figure 2.1), jusqu'à obtenir la taille critique permettant une réaction en chaîne autoentretenue le 2 décembre 1942 en retirant progressivement une barre de contrôle en cadmium [61]. Le fonctionnement de la pile produisit du plutonium utilisable par l'armée américaine.

En France, la pile ZOE divergea le 15 décembre 1948, sur le site du Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives (CEA) à Fontenay-aux-Roses, soit 6 ans après la Chicago Pile-1, mais seulement 15 mois après le début de la conception initiée par le haut-commissaire, Frédéric Joliot-Curie [62]. Contrairement à la pile américaine, la pile ZOE n'utilise pas de modérateur graphite, mais de l'eau lourde, fournie par la Norvège suite à un accord réalisé avant la Seconde Guerre mondiale (figure 2.2). Le manque d'uranium enrichi et de graphite de qualité suffisante a fortement contraint

la conception de la pile. ZOE est donc une pile de faible puissance, proche de Zéro (Z), à Oxyde d'uranium (O) et modérée à l'Eau lourde (E). Elle a été essentielle dans le développement de l'industrie nucléaire française par la formation de physiciens, chimistes et ingénieurs, mais aussi par les études permettant la conception des futurs réacteurs.

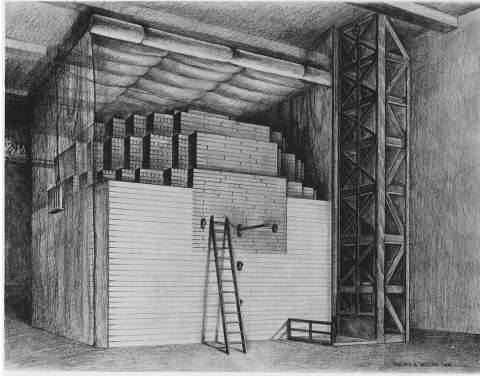


FIGURE 2.1 – Dessin représentant la construction de la Chicago Pile-1

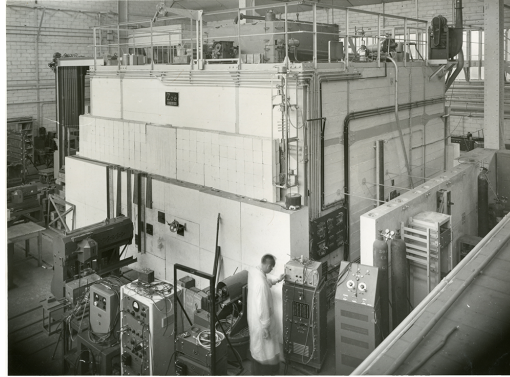


FIGURE 2.2 – Faces Sud et Est de la pile ZOE (©Archives historiques CEA [62])

On peut également citer les piles ZEEP [Zero Energy Experimental Pile] (Canada, 1945) également modérée à l'eau lourde et ancêtre des réacteurs CANDU, et F1 (URSS, 1946), pile à uranium (naturel + enrichi à 2%) et modérée au graphite [63, 64].

2.2 Invention des RSF et perspectives d'utilisation

Dès la fin de la seconde guerre mondiale, en 1946, l'armée de l'air américaine réalisa le programme exploratoire Nuclear Energy for the Propulsion of Aircraft (NEPA) pour appliquer le travail du projet Manhattan à la propulsion aéronautique. Les conclusions de ce programme ont dirigé le programme de propulsion aéronautique (Aircraft Nuclear Propulsion Program) : pouvoir produire une division aéroportée capable notamment d'atteindre tout point du globe à très grande vitesse et à basse altitude pour éviter la détection radar [65].

Des laboratoires nationaux et des entreprises privées furent mandatés pour étudier la nucléarisation des avions de différents corps de l'armée américaine (subsonique, supersonique, cargo...), des fusées, des hélicoptères ou même de générateurs d'électricité portables. Des études ont donc été entreprises pour quantifier les avantages à changer le type de motorisation (charge utile, autonomie, compacité...) et estimer la faisabilité d'un tel changement (dose reçue par l'équipage, inspection des systèmes, durée de vie du réacteur...). Différentes possibilités ont alors émergé et



FIGURE 2.3 – NB-36H en vol. Un marquage sur la queue de l'appareil indique la présence du réacteur nucléaire à bord. (photo U.S. Air Force)

plusieurs réacteurs d'essai ont été construits [66]. La série des Heat Transfert Reactor Experiment (HTRE) a progressivement permis d'étudier des excursions importantes de température avec différentes configurations de cœur (oxyde d'uranium/eau ; uranium métal/zirconium&béryllium/air). Parmi tous les concepts et modifications des aéronaves envisagés, un seul avion a effectué des vols en 1957 avec un réacteur nucléaire en fonctionnement, mais non utilisé pour la propulsion, le NB-36H (figure 2.3) [67].

2.2.1 Réacteur prototype : ARE

L'arrêt du programme ANP ne signifia pourtant pas la fin des recherches sur la propulsion nucléaire aéronautique. Les blocs de béryllium préparés en vue de la construction d'un réacteur prototype furent réutilisés par le laboratoire d'Oak Ridge (ORNL) pour la conception d'un réacteur de $2.5 \text{ MW}_{\text{th}}$ à spectre thermique. L'utilisation de sodium liquide pour le refroidissement du combustible solide au sein des blocs de béryllium (modérateur de neutrons) fut rejetée à cause des contre-réactions de réactivité positives liées à la production de xénon lors de fortes demandes de puissance. L'homogénéisation du combustible a été envisagée en alliant les recherches du laboratoire sur les sels fondus. La liquéfaction du combustible – possible au sein d'un sel fondu – permet au sel combustible de sortir en partie de la zone critique et ainsi d'auto stabiliser la réactivité du sel. Le choix du sel solvant s'est porté sur un sel fluorure, permettant le fonctionnement à très haute température (environ 1100 K) [68, 69].

Le sel combustible circulant au sein de blocs de béryllium pour modérer les neutrons, une boucle de refroidissement du modérateur en sodium liquide a été ajoutée (figure 2.4). Le réacteur a ainsi fonctionné 221 h en régime critique, dont 74 h avec une puissance supérieure au mégawatt. La corrosion des structures en Inconel par le sel combustible a mis en évidence la nécessité de développer de nouveaux matériaux comme l'Hastelloy N [70, 71].

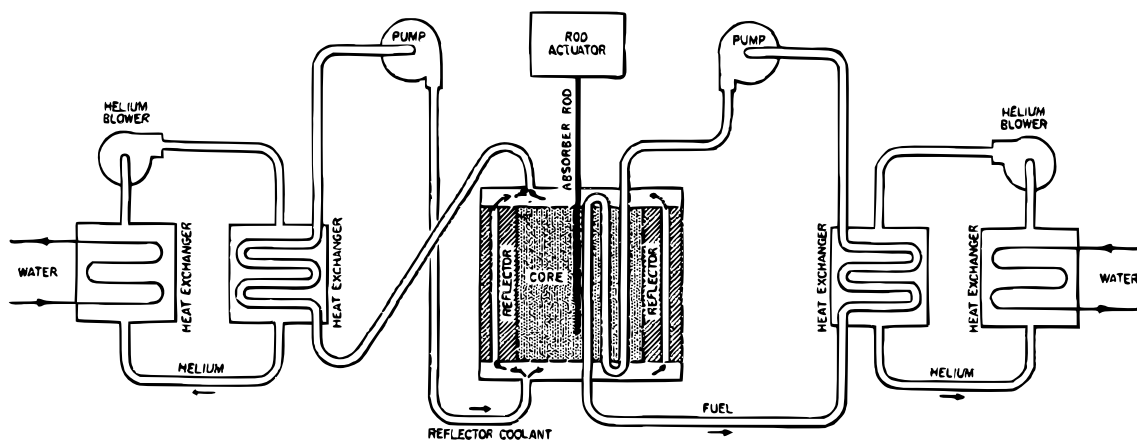


FIGURE 2.4 – Vue schématique de l’Aircraft Reactor Experiment (ARE) avec le réflecteur en béryllium et son circuit de refroidissement en sodium [gauche] ainsi que le circuit combustible en sels fondus [droite] [68]

2.2.2 MSRE

Suite au succès de l'ARE, un réacteur thermique d'étude à sels fondus de 8 MW_{th} orienté vers la production d'électricité pour le civil et permettant d'effectuer les premiers tests à haute température sur des matériaux de structure a été rapidement développé. Les sels combustibles et intermédiaire sont à base fluorure : ${}^7\text{LiF} - \text{BeF}_2 - \text{ZrF}_4 - \text{UF}_4$ pour le sel combustible et ${}^7\text{LiF} - \text{BeF}_2$ dans le circuit intermédiaire, avec un enrichissement en ${}^7\text{Li}$ pour limiter l'absorption de neutrons [70]. La modération s'effectue grâce à une matrice de graphite au lieu du béryllium, les matériaux de structure sont en Hastelloy N – alliage base nickel développé pendant le projet ARE – et deux types de combustible ont pu être utilisés (${}^{235}\text{U}$ puis ${}^{233}\text{U}$). Le projet démarra en 1960 pour un début de construction en 1962. La figure 2.5 illustre l'ensemble des circuits d'alimentation de sel et d'évacuation autour du cœur du réacteur. Le Molten Salt Reactor Experiment (MSRE) a fonctionné entre 1965 et 1969 pendant 17 000 heures, montrant la facilité de la maintenance et de la gestion du combustible. Le combustible (uranium enrichi en isotope 235 à hauteur de 32%) fut progressivement remplacé par de l' ${}^{233}\text{U}$ en 1968, le fonctionnement en ${}^{233}\text{U}$ avec un spectre thermique a alors pu être mis en évidence pendant près d'un an.

La recherche s'est également intéressée au retraitement du sel et a mis en évidence que la distillation en phase vapeur à 1000°C permet la séparation du sel fluorure ($\text{LiF}-\text{BeF}_2$) des terres rares. Le retraitement sur site devient donc possible [72]. Le fonctionnement du réacteur a permis d'éliminer pour la conception des futurs réacteurs à sels fondus le ZrF_4 , qui avait été ajouté dans le sel combustible pour éviter la précipitation d' UO_2 . Le sel résultant, ${}^7\text{LiF} - \text{BeF}_2 - \text{UF}_4$, bien que moins complexe en composition possède un point de fusion élevé (772 K) et impose une température de fonctionnement élevée (934 K). De manière similaire, le sel du circuit intermédiaire doit être chauffé à plus de 727 K pour être liquide et est très onéreux à produire, mais il est à noter que son pouvoir corrosif sur l'Hastelloy N est faible. La présence de lithium, même enrichi, génère la production de tritium (${}^3\text{H}$), volatile et radiotoxique, sous irradiation neutronique par réaction (n,α) [70].

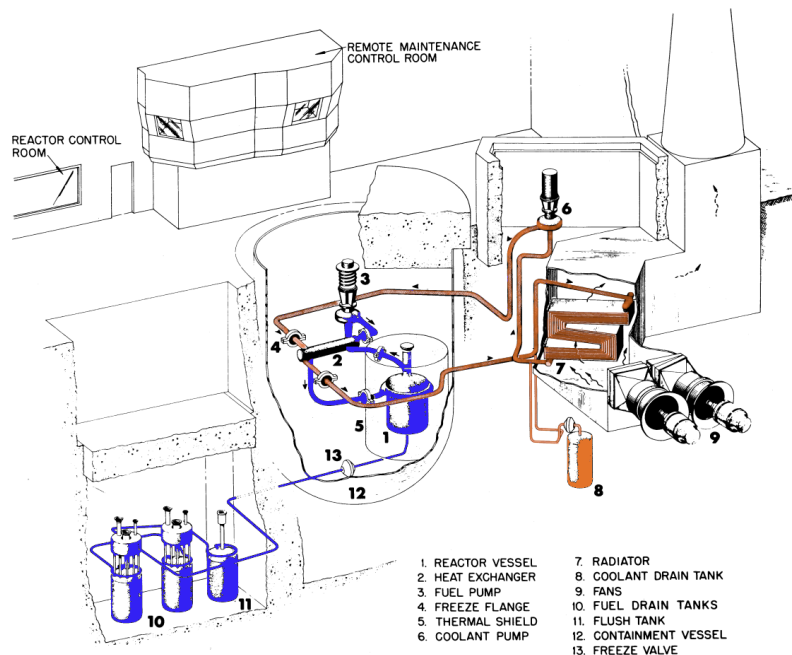


FIGURE 2.5 – Vue schématique du réacteur MSRE avec le circuit combustible en bleu et le circuit intermédiaire en orange

2.2.3 MSBR

Le lancement de la conception de réacteurs de puissance régénératifs en cycle thorium, Molten Salt Breeder Reactor (MSBR), est effectué après l'arrêt du MSRE. Les porteurs du projet avaient l'ambition de déployer massivement ces réacteurs utilisant des ressources non exploitées et présentes sur le sol étatsunien. La complexité mécanique d'un système à deux circuits de sels fondus (fertile / fissile) dans le cœur en plus du circuit de refroidissement du réflecteur graphite a fait privilégier un seul circuit avec un retraitement en ligne afin d'obtenir un taux de régénération suffisant (figure 2.6). En effet, l'objectif est d'isoler le ^{233}Pa pour qu'il décroisse hors du système et enlever les produits de fission consommateurs stériles de neutrons. Le développement s'arrête en 1976 pour des raisons budgétaires, car un projet de réacteur régénératif à métal liquide (sodium) était déjà financé en parallèle. Des points durs dans la phase de conception avaient émergé quant à la production de tritium – par capture sur le lithium du solvant – ou la fragilisation des matériaux de structure en Hastelloy N, ce qui a pu motiver à arrêter le projet [70].

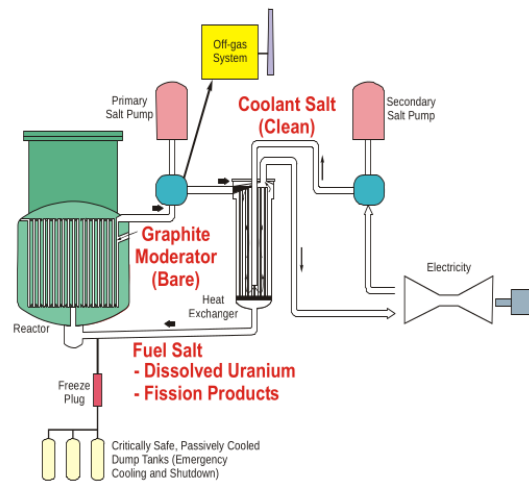


FIGURE 2.6 – Vue schématique du réacteur MSBR avec les circuits d'évacuation du sel, circuit intermédiaire et conversion d'électricité [73]

2.3 Vue d'ensemble des projets de R&D historiques dans le monde

Suite au début des recherches lancées par les Américains, plusieurs pays ont commencé à étudier les réacteurs à sels fondus : Suisse, Pologne, République fédérale d'Allemagne, Royaume-Uni, Pays-Bas, Chine, Japon, France, Russie. Certains travaux historiques de recherche sont brièvement présentés dans cette section.

2.3.1 Intérêt français et conception d'un réacteur de référence

Une première période d'études s'étend de 1973-1983 avec la réalisation de boucles d'essai et de conception d'éléments comme des pompes ou des échangeurs de chaleur en graphite par le CEA et Électricité de France (EDF). À partir de 1998, certaines études se focalisent sur la réévaluation des caractéristiques du MSBR et le développement de réacteurs similaires dans le cadre des recherches sur la transmutation (loi 1991) : Actinide Molten Salt Transmuter (AMSTER) (EDF) et Thorium Molten Salt Reactor (TMSR) (Centre National de la Recherche Scientifique (CNRS)) [71, 74]. Les études sur les différentes

versions du réacteur régénérateur ont notamment montré une sûreté insuffisante avec des coefficients de contre-réaction légèrement positifs, risquant d'entraîner des instabilités, ou une régénération limitée du combustible [75].

Une seconde phase démarre en 2004 avec un important changement : le réacteur TMSR, proche du MSBR, devient le Thorium Molten Salt Reactor - Non Modéré (TMSR-NM). Le spectre rapide du réacteur permet au moins l'isogénération du combustible et des coefficients de contre-réaction négatifs [76]. Ce concept a depuis été renommé Molten Salt Fast Reactor (MSFR) et est détaillé en section 2.3.1.b. EDF a également proposé un concept isogénérateur non modéré [75], REBUS-3700.

2.3.1.a AMSTER et REBUS

Comme indiqué précédemment, EDF a proposé deux concepts à sels fondus. AMSTER est un réacteur incinérateur de transuraniens ($2.25 \text{ GW}_{\text{th}}$) associé à de l'uranium enrichi et refroidi par un sel fondu fluorure ($61\% \text{ LiF} - 21\% \text{ BeF}_2 - 18\% (\text{AN}^1)\text{F}_4$) au sein d'une matrice de graphite [77]. L'ajout de ^{232}Th ou ^{238}U en support permet de régénérer la masse fissile et de conserver la criticité. REBUS-3700 est un réacteur orienté génération IV de $3.7 \text{ GW}_{\text{th}}$, utilisant le cycle régénérateur $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ et en sels chlorures, car la régénération du cycle plutonium est plus compliquée avec un sel solvant fluorure à cause du spectre neutronique quasi rapide ainsi qu'une solubilité plus limitée (voir sections 2.3.1.b et 3.2.1) [71, 78].

2.3.1.b MSFR

Le MSFR de référence (anciennement le TMSR-NM) est un réacteur surgénérateur de 3 GW_{th} à spectre rapide et utilisant le cycle thorium ($^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$) dans un sel de fluorure de lithium (LiF). Le sel combustible circule de la zone critique vers les échangeurs de chaleur, où la chaleur sera transférée au sel intermédiaire (figure 2.7). Il possède une couverture fertile (composée d'un sel de fluorure de thorium) pour la production d' ^{233}U . Le retraitement de la couverture fertile permet d'augmenter le taux de régénération.

Le choix d'un sel solvant fluorure a été déterminé par un meilleur taux de régénération qu'avec un solvant chlorure pour le cycle Th/U et des dégâts aux matériaux moins importants. En effet, le fluor ralentit un peu plus les neutrons, ce qui rend le spectre neutronique un peu moins dur qu'en sels chlorures (section 3.2.1). La section efficace de capture du ^{232}Th étant améliorée avec des neutrons quasi rapides ($\sigma_{\text{th}}^{\text{F}} \approx 2\sigma_{\text{th}}^{\text{Cl}}$ en cœur), un sel fluorure est donc tout indiqué pour améliorer le taux de régénération au maximum [76]. On observe que la régénération de la version chlorure s'effectue principalement dans la couverture fertile, ce qui implique un échauffement important et que le retraitement de celle-ci est essentiel pour garantir le taux de régénération. À ce jour, il semble que la faisabilité de la séparation Th/U en sel chlorure soit encore une grande inconnue.

1. AN : Actinides

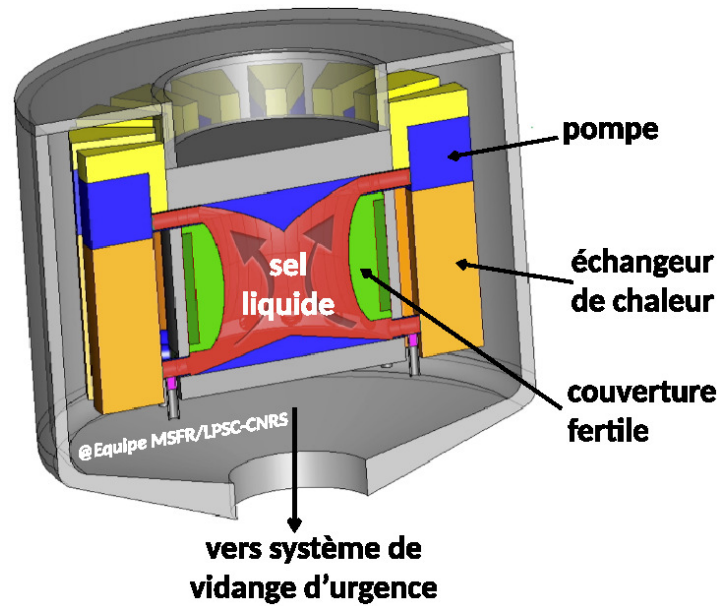


FIGURE 2.7 – Illustration du cœur du MSFR de référence avec ses éléments principaux

Cette version a été retenue en 2008 par le Generation IV International Forum (GIF) comme design de référence pour les RSF, une des technologies de réacteurs de génération IV prometteuses sur le plan de gestion des matières, de sûreté et de coût comparé à d'autres sources d'énergie [79].

2.3.2 Développements soviétiques et russes

De son côté, l'Union soviétique – puis Russie – s'est focalisée sur les propriétés des sels et les matériaux de structure entre 1976 et 1986. L'exploitation de boucles à sels fondus pour étudier les écoulements dans diverses conditions (convection naturelle, convection forcée) des sels fluorures a conduit à un Retour d'Expérience (REX) conséquent [71]. D'importantes études sur la chimie des sels ont également été menées avec des manipulations pour le retraitement. L'objectif a été de développer progressivement un concept régénératif Th/U. L'accident de Chernobyl en 1986 impacta fortement les recherches nucléaires en Union soviétique. Néanmoins, un premier concept envisageait de refroidir du combustible solide avec un sel fluorure avant d'incorporer directement le combustible dans le sel fluorure. Le concept Molten Salt Actinide Recycler and Transmuter (MOSART) est une évolution de cette version en ajoutant un traitement du sel et en retirant le graphite qui modérait les neutrons. L'objectif est également de consommer grandement les actinides (transuraniens inclus). MOSART est donc un réacteur à spectre rapide à sels fluorures de $2.4 \text{ GW}_{\text{th}}$ qui se veut flexible sur son

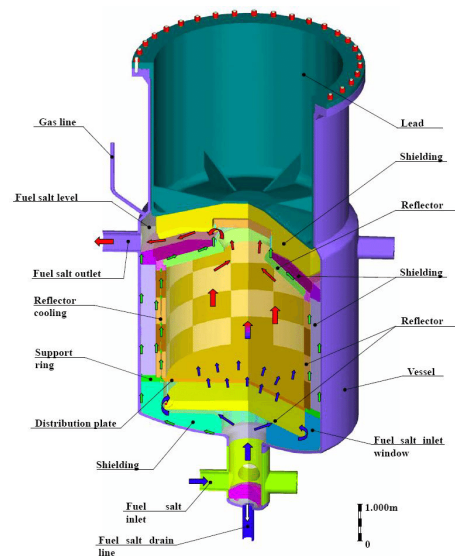


FIGURE 2.8 – Vue schématique du cœur du réacteur MOSART avec l'écoulement du sel du plénum inférieur (flèche bleue) vers le plénum supérieur (flèche rouge) [80]

utilisation (figure 2.8). Il peut être tour à tour incinérateur ou régénérateur de combustible [81]. L'objectif premier reste cependant de consommer le combustible usé des réacteurs VVER actuel (équivalent des REP pour le parc russe) [46].

2.3.3 Autres développements des réacteurs à sels fondus

Pologne/Suisse Le développement d'un réacteur à sels fondus en Europe s'est fait dès 1961 avec une ébauche de Mieczyslaw Taube sur un réacteur régénérateur rapide à sels chlorures. Les études sur son réacteur à cœur hétérogène (combustible solide refroidi par un sel chlorure fondu) – présenté en 1967 – continuèrent en Suisse lorsqu'il rejoignit l'institut Swiss Federal Institute for Reactor Research (EIR) [71]. À partir du milieu des années 70, les recherches s'orientèrent vers un cœur homogène, où le combustible est liquide dans le sel, régénérateur de fissile dans les deux voies de régénération (U/Pu et Th/U). Fin des années 70, le réacteur Salt reactor, On site reprocessing, Fast converter, Task (SOFT) fut présenté (réacteur rapide à sels chlorures en cycle U/Pu de 3 GW_{th}) avant que le projet ne s'arrête [82].

Japon Le programme de réacteurs à sels fondus démarra dans les années 70 avec le concept FUJI [71]. Le concept FUJI a été proposé en 1985 et est basé sur les travaux du MSBR du laboratoire d'Oak Ridge [83]. Le concept FUJI est modéré au graphite, dans lequel un sel fluorure (avec thorium et uranium) circule (voir figure 2.9). Si le projet est validé, le réacteur mini-FUJI (visible en figure 2.9) sera l'objet de démonstration du concept complet (jusqu'à la génération d'électricité) et la possibilité d'acquérir le savoir-faire développé à Oak Ridge. Progressivement, le projet Thorium Molten-Salt Nuclear Energy Synergetic System (THORIMS-NES) envisage d'allier un réacteur à sels fondus pour la production d'énergie et un accélérateur couplé à une couverture fertile pour la production de matière fissile par spallation, permettant le déploiement rapide de nouveaux réacteurs.

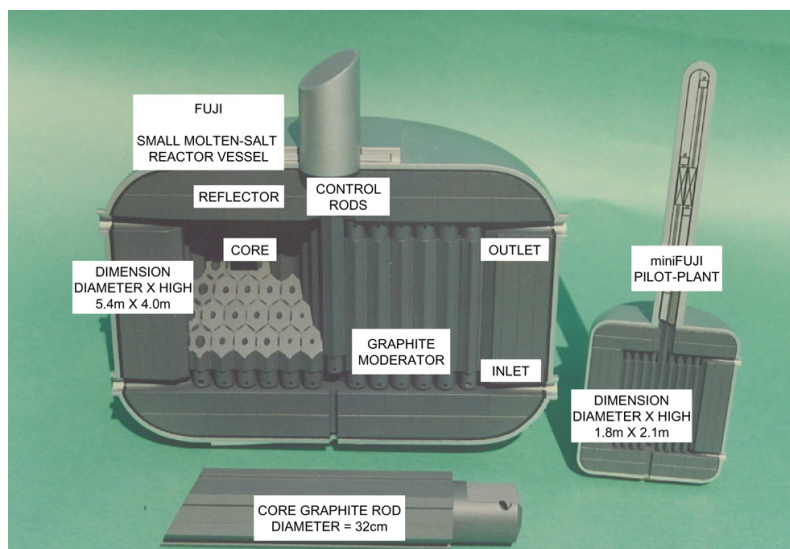


FIGURE 2.9 – Vue en coupe des cœurs FUJI et miniFUJI. À gauche, le modèle du réacteur standard FUJI (5.4 m de diamètre × 4 m de haut × 150 MWe). L'intérieur est composé à 90% de graphite avec des sels fondus circulant vers le haut à 1 m/s. À droite, le modèle miniFUJI (1.8 m de diamètre × 2.1 m de haut × 7 MWe). [83]

Chine De 1970 à 1973, le Shanghai Institute for Applied Physics (SINAP) a été chargé de vérifier les calculs théoriques avec une maquette (Critical Experimental Device (CED)) en vue de construire rapidement un réacteur de 25 MW_{th} en Chine. Le CED ressemble au MSRE dans le sens où du sel fluorure est placé au sein de blocs de graphite. À la différence du MSRE cependant, le sel peut également contenir du thorium, selon la configuration étudiée. La figure 2.10 montre la configuration du dispositif expérimental. Le combustible est un sel fluorure solide (BeF_2/UF_4 ou $BeF_2/UF_4/ThF_4$) sous forme de blocs insérés dans une matrice de graphite [84]. Plusieurs séries d'essais à très faibles puissances (200 W maximum) ont confirmé un certain nombre de calculs théoriques, mais des points durs subsistent comme la manipulation et le retraitement du combustible irradié ainsi que la corrosion des aciers. Devant ces difficultés et la volonté de développer rapidement l'industrie nucléaire, les recherches sur les RSF s'arrêtèrent pour s'orienter vers les réacteurs à eau [71].

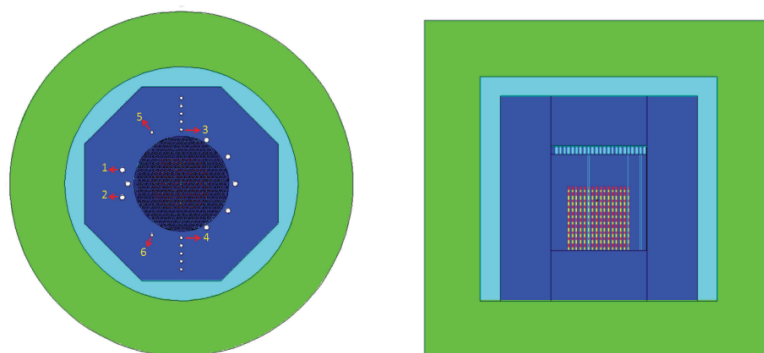


FIGURE 2.10 – Vues schématiques du CED. À gauche, vue radiale avec la position des six barres absorbantes en cadmium ; à droite, vue axiale avec la position du combustible (rouge) au sein d'une matrice de graphite (bleu foncé et jaune). L'ensemble est entouré d'air (bleu clair) [84]

2.4 Dynamique actuelle : un puissant regain d'intérêt

2.4.1 Projets français et européens

Depuis plusieurs années, des projets européens et français ont commencé à émerger autour des réacteurs à sels fondus. On peut noter un réel essor de l'intérêt envers cette famille de réacteur avec des projets plus précis et des objectifs plus concrets : réacteurs régénérateurs de puissance en cycle Th/U ou U/Pu, version incinératrice, possibilités de retraitement des sels...

Plusieurs projets français se sont succédé comme indiqué sur la figure 2.11. Le dernier projet en date sur les réacteurs à sels fondus est Innovative System for Actinide Conversion (ISAC) – financé grâce au 4^{ème} Programme Investissements d'Avenir (PIA4) – qui regroupe une majorité des acteurs de la filière nucléaire française : cycle du combustible et exploitant (Orano, Framatome, EDF) et la recherche plus académique (CEA, CNRS). Le

projet ISAC s'appuie sur le réacteur Advanced Reactor for Actinides Management in Salt (ARAMIS), co-conçu par Orano et le CEA, dédié à l'incinération des transuraniens pour réduire les volumes de matières HA-VL.



FIGURE 2.11 – Historique des projets français sur les sels fondus auxquels le CNRS a participé.

ARAMIS est un réacteur de moyenne puissance (300 MW_{th}) à spectre rapide et utilisant un solvant chlorure ($NaCl-MgCl_2$). Ce réacteur, développé dans le cadre d'une collaboration CEA-Orano après la fin du projet Astrid en 2019, a pour but de consommer, à terme, le plutonium et l'américium dans un objectif de réduction des inventaires de déchets ultimes (figure 2.12). ARAMIS est vu comme une complémentarité à la fermeture du cycle du combustible français. Le plutonium serait multirecyclé en REP puis en Réacteur à Neutrons Rapides à caloporteur sodium (RNR-Na). Ces RNR-Na assureraient également un objectif de régénération du combustible avec le cycle U/Pu. Les actinides mineurs, dont l'américium, seraient incinérés en RSF pour diminuer leur quantité et réduire les volumes définitifs à stocker dans Cigéo. La fabrication et l'utilisation de combustible solide contenant des actinides mineurs posent en effet un certain nombre de difficultés (manipulation, séparation...) [85].

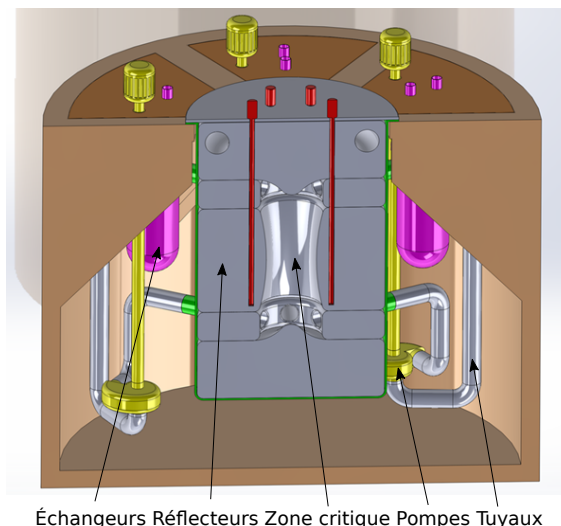


FIGURE 2.12 – Design illustratif du circuit combustible du concept ARAMIS [86]

Le réacteur en l'état actuel des réflexions et études sur la version ARAMIS-Pu contient 1.2 m³ de sel combustible en zone critique, possède un réflecteur/protection de 1 m (90 cm de MgO et 10 cm de B₄C), considère un enrichissement à 99% de ³⁷Cl dans le

sel combustible ($NaCl-MgCl_2-PuCl_3$) mais pas pour le sel intermédiaire ($NaCl-MgCl_2$). L'objectif actuel est d'extraire une puissance volumique en cœur de $250 \text{ MW}_{th}/\text{m}^3$. La température de fonctionnement (moyenne du cœur) dépend de la température de fusion du sel ternaire (environ 450°C), donc de sa composition, et de la température maximale admissible pour les matériaux de structure en fonctionnement nominal (environ 700°C), elle devrait avoisiner les 600°C . La consommation de plutonium est estimée aux alentours de 110 kg/an , soit 41.9 kg/TWh_{th} (voir section 1.4.2). Une version isogénérateur est envisageable avec l'ajout d'uranium dans le sel. Le but d'ARAMIS est, à terme, de pouvoir utiliser un sel $NaCl-MgCl_2-(Pu+Am)Cl_3$ pour aider à la fermeture du cycle du combustible, en consommant l'américium, actinide mineur très largement produit aujourd'hui (actuellement vitrifié), et en réduisant le recours aux ressources naturelles pour une puissance de parc électronucléaire donnée.

L'utilisation d'un sel chlorure qui rend le spectre neutronique plus rapide qu'un sel fluorure (section 2.3.1.b) implique des dégâts neutroniques importants, risquant de réduire la durée de vie du réacteur et imposant le changement de pièces régulièrement. La modularité du circuit combustible pour le changement d'éléments doit être prise en compte à la conception. La chimie des sels chlorures est également complexe pour le retraitement et la tenue à la corrosion. Peu de concepts de RSF chlorures ont réellement été étudiés jusqu'à présent et peu d'expérience sur la tenue des matériaux à cette seconde contrainte existe. Un retraitement du sel par des procédés hydrométallurgiques ou par voie aqueuse, comme dans les usines de la Hague, est envisagé, pour recycler notamment le chlore enrichi [85].

L'Union européenne finance également des projets de recherche sur les RSF entre les instituts de recherche européens depuis 20 ans (figure 2.13). Le projet Multi-recycling strategies of LWR SNF focusing on Molten Salt technology (MIMOSA) a pour vocation d'étudier la fermeture du cycle du combustible (section 1.3.2) à l'aide de réacteurs incinérateurs, similaires aux réacteurs étudiés dans le travail présenté dans cette thèse, et a démarré le 1^{er} juin 2022. À noter que le projet SAMOSAFER s'intéresse également au MSFR de référence modifié pour le cycle uranium/plutonium en sels chlorures et à son schéma de retraitement (thèse de H. Pitois) [87].

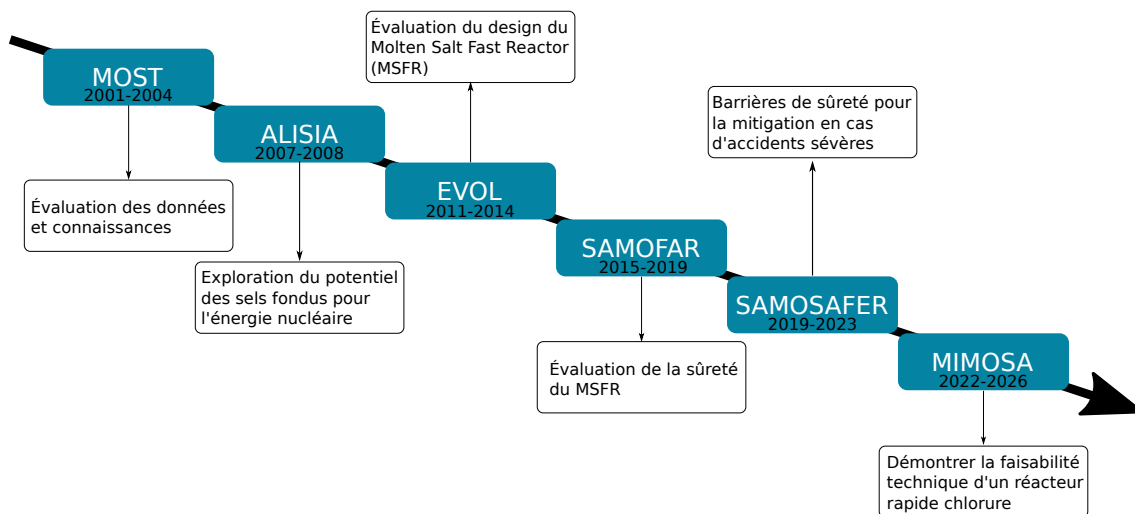


FIGURE 2.13 – Détail des projets européens sur les réacteurs à sels fondus

2.4.2 Projets actuels dans le monde

Les États-Unis ont à nouveau un intérêt pour les réacteurs à sels fondus, car le département de l'énergie a accordé une partie du financement du programme Advanced Reactor Demonstration Program (ARDP) à l'entreprise Terrapower pour le développement du réacteur MCFR (voir section 2.4.4.a) [88]. Le laboratoire d'Oak Ridge développe également l'AHTR (voir section 2.4.2.c).

Le Canada, connu pour ses réacteurs CANDU (section 1.4.1.b), s'intéresse aux AMR (section 2.4.3) pour la production de chaleur et l'alimentation de sites isolés. Les Laboratoires Nucléaires Canadiens (LNC) ont démarré en 2018 un programme d'invitation aux entreprises qui souhaitent construire un prototype de petits réacteurs de toute catégorie (section 2.4.3), avec analyse des concepts et installation sur le site de Chalk River si le projet est jugé viable [89]. Parmi les concepts retenus dans le projet à ce jour, notons l'IMSR de Terrestrial Energy (voir 2.4.4.b). Résultant de ce programme, l'autorité de sûreté canadienne a réalisé un exercice Phenomena Identification and Ranking Table (PIRT) en 2019 sur les concepts de Moltex et Terrestrial Energy, en perspective d'une autorisation de commercialisation (*licensing*).

2.4.2.a Concepts régénérateurs

La Chine développe un prototype de réacteur de puissance régénérateur en cycle thorium, le Thorium Molten Salt Reactor - Liquid Fuel (TMSR-LF), proche du MSRE [90]. Le TMSR-LF est dimensionné pour produire 395 MW_{th}, refroidi par un sel fluorure ($LiF-BeF_2-UF_4-ThF_4$) circulant dans des canaux de graphite. Le démonstrateur en cours de construction (TMSR-LF1) doit permettre de montrer la faisabilité du système et fonctionnera à 2 MW_{th}. Le TMSR-LF2, une version de 10 MW_{th} est également prévue.

L'Inde possède également un projet de recherche sur les réacteurs à sels fondus régénérateurs en cycle thorium Integral Molten Salt Breeder Reactor (IMSBR), élément disponible en quantités considérables sur son territoire, contrairement à l'uranium. L'étude d'un réacteur de 850 MW_e pour la fermeture du cycle est donc en cours avec le développement de deux designs, un type piscine et un type à boucles [91].

2.4.2.b Concepts incinérateurs

Outre les intérêts européens, les recherches sur les RSF restent d'actualité. La Russie poursuit le développement du réacteur MOSART pour l'incinération des actinides mineurs produits dans les réacteurs VVER (section 2.3.2). De puissance de 2.4 GW_{th} et de 50 m³ de sel combustible, il peut consommer 250 kg d'actinides mineurs et 500 kg de plutonium chaque année. Ce réacteur doit être précédé d'un démonstrateur pour vérifier le fonctionnement avec une alimentation en Transuraniens (TRU) ainsi que la gestion de son combustible [46].

2.4.2.c Concepts "hybrides"

Généralement, par réacteurs à sels fondus, on entend un réacteur où le combustible est dissout dans un sel solvant fondu (combustible liquide). Il existe pourtant quelques concepts à combustibles solides et refroidis aux sels fondus qui possèdent l'appellation RSF. Parmi ces designs, on trouve le Advanced High-Temperature Reactor (AHTR) d'Oak Ridge

National Laboratory (ORNL), réacteur à spectre thermique de 2.4 GW_{th} à combustible d'oxyde d'uranium enrichi (format similaire aux particules TRISO, voir section 1.4.2.a), refroidi avec un sel fluorure [92].

De manière similaire, le Thorium Molten Salt Reactor - Solid Fuel (TMSR-SF) développé en Chine est à spectre thermique et utilise des particules TRISO refroidies avec un sel $LiF-BeF_2$. D'une puissance plus réduite, 395 MW_{th}, il se classe dans la catégorie des Advanced Modular Reactor (AMR) (voir section 2.4.3).

2.4.3 SMR/AMR

Les Small Modular Reactor (SMR) sont des versions miniaturisées de réacteurs nucléaires d'une puissance maximale d'environ 300 MW_e [93]. Ces *petits* réacteurs sont vus comme un moyen d'alimenter en énergie (électrique ou thermique) toute zone difficile d'accès. D'un point de vue économique, la fabrication à grande échelle de petits modules permettrait en théorie de réduire les coûts et donc de rendre l'énergie nucléaire très abordable et compétitive vis-à-vis des moyens de production fossiles. Le design simplifié associé à des systèmes de sécurité passifs veut rendre ces réacteurs sûrs. Agents de la décarbonation de l'énergie, la communication sur les SMR en projet étaient jusqu'il y a peu sur des réacteurs à eau de type REP comme les concepts Nuward (2x 170 MW_e par EDF [94]) ou NuScale (60 MW_e par NuScale Power [95]).

Parmi ces projets, la plupart de ces projets étant encore en phase de design, quelques réacteurs à eau se distinguent : SMART, de 100 MW_e, (KAERI, Corée du Sud) autorisé à la construction et en projet de construction en Arabie Saoudite ou KLT-40S (figure 2.14), réacteur russe de propulsion navale en cours de construction (150 MW_{th}) [95]. Ce dernier est une évolution des réacteurs de bateaux brise-glace et a pour application la production de chaleur et d'électricité dans des zones reculées et peut également servir à la désalinisation.

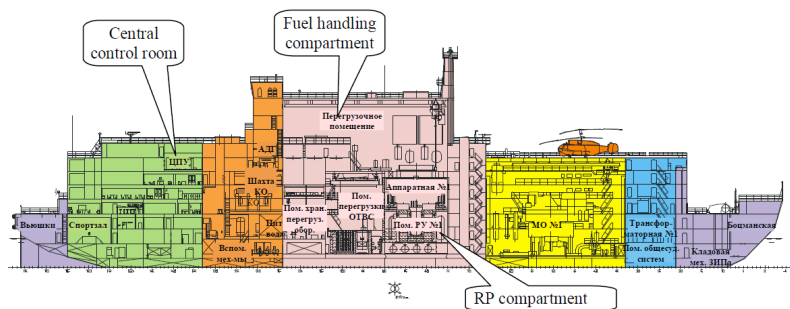


FIGURE 2.14 – Vue schématique en coupe d'une unité flottante avec deux réacteurs KLT-40S à son bord

Les AMR sont des SMR utilisant une technologie dite de 4^e génération (caloporteur sodium, plomb, gaz ; sels fondus...). Outre la production d'électricité ou de chaleur, ces réacteurs peuvent également régénérer la matière fissile. Quelques projets autour du sodium ou du plomb existent, mais restent confidentiels, la filière AMR étant en train de se construire.

2.4.4 Start-ups : vers une démocratisation de l'énergie nucléaire ?

Récemment, de jeunes entreprises se sont lancées dans la conception de petits réacteurs nucléaires à sels fondus, les AMR. L'objectif principal de ces entreprises est de contribuer à la décarbonation de l'énergie en rendant l'accès à l'électricité le plus simple, le moins encombrant et le moins cher possible. Ces start-ups conçoivent des réacteurs de puissance ou des AMR en ajoutant l'argument d'une meilleure utilisation des minerais nucléaires avec des cycles de régénération du combustible par rapport aux technologies utilisées actuellement. Ces start-ups se situent aux quatre coins du monde, par exemple citons Terrapower, Exodys (anciennement Elysium), Terrestrial Energy aux États-Unis/Canada ; Thorizon aux Pays-Bas ; Seaborg au Danemark ; Moltex en Angleterre ; NAAREA en France.

2.4.4.a Réacteurs régénérateurs

La majorité des concepts AMR à sels fondus sont des réacteurs pour la régénération du combustible et donc la production d'électricité en tant que telle. Les sels fluorures ayant été longuement étudiés, ils sont répandus comme choix de solvant dans ces concepts. La régénération du combustible en cycle $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ permet soit de produire suffisamment de combustible pour garder la criticité (isogénérateur), soit de produire plus de combustible, ce qui permet de produire une charge fissile nécessaire au démarrage d'un second réacteur (surrégénérateur). Par exemple, Copenhagen Atomic envisage un réacteur à spectre thermique (modération à l'eau lourde) et à sels fluorures Pu+Th (génération progressive d' ^{233}U) de 100 MW_{th} pour la production de chaleur [96]. On peut également noter le concept de Terrapower, Molten Chloride Fast Reactor (MCFR) avec un sel solvant chlorure, spectre rapide et le fonctionnement en cycle $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ à 30 MW_{th} ou en mode sous-générateur (uranium enrichi) [97].

2.4.4.b Réacteurs sous-générateurs et incinérateurs

Par réacteur sous-générateur, il est entendu ici le concept conventionnel de réacteur où un fissile est consommé (comme l' ^{235}U ou le plutonium en REP). L'IMSR400 de Terrestrial Energy utilise de l'uranium enrichi dans un sel fluorure en spectre thermique et produit 400 MW_{th}. Le cœur du réacteur est scellé pendant toute sa vie, sans retraitement, et changeable tous les sept ans, à l'instar d'une pile [71].

À ce jour, il semble que les concepts orientés vers la consommation d'actinides mineurs soient très peu développés. Le Molten Salt Thermal Wasteburner (MSTW) de Seaborg [270 MW_{th}, sels fluorures en spectre thermique, modéré graphite] consomme l'uranium et le plutonium des combustibles usés, ici considérés comme des déchets, *waste*. L'incorporation de thorium semble réduire la production de transuraniens durant le fonctionnement [95]. On peut citer le Stable Salt Reactor - Wasteburner (SSR-W) de Moltex, 1.25 GW_{th}, spectre rapide et sels chlorures, qui ambitionne d'utiliser le plutonium et l'américium des combustibles usés CANDU avec de l'uranium pour alimenter le réacteur [98]. Enfin, la start-up française NAAREA souhaite déployer des micro-réacteurs (de puissance de quelques dizaines de mégawatts) régénérateurs thorium en utilisant les matières non valorisées actuellement [99].

Synthèse de quelques concepts de RSF Le tableau 2.1 résume les points clefs des concepts présentés dans cette partie.

TABLEAU 2.1 – Caractéristiques principales de concepts notables de RSF

Nom	Entreprise / institut	Puissance	Spectre neutronique	Combustible	Type
ARAMIS	CEA (France)	300 MW _{th}	rapide	sel chlorure Pu + Am	incinérateur
AHTH	Oak Ridge (É.-U.)	2.4 GW _{th}	thermique (graphite)	(graphite + uranium) (type TRISO); caloporteur à sel fondu	sous-générateur
Heavy Water-moderated	Copenhagen Atomics (Danemark)	100 MW _{th}	thermique (eau lourde)	sel fluorure Pu + Th	régénérateur (Th/U)
IMSBR	Inde	850 MW _e	épithermique/rapide	sel fluorure Th+U	régénérateur (Th/U)
IMSR400	Terrestrial Energy (É.-U.)	400 MW _{th}	thermique (modéré au graphite)	sel fluorure U enrichi	sous-générateur
MCFR	Terrapower (É.-U.)	30 MW _{th}	rapide	sel chlorure U + Pu	régénérateur (U/Pu) ou sous-générateur (U)
MOSART	Institut Kurchatov (Russie)	2.4 GW _{th}	rapide	sel fluorure TRU	incinérateur ou régénérateur
MSFR	CNRS (France)	3 GW _{th}	rapide	sel fluorure U + Th	régénérateur (Th/U)
MSTW	Seaborg (Danemark)	270 MW _{th}	thermique (graphite)	sel fluorure Pu + U	sous-générateur
SSR-W	Moltex (R. U.)	1.25 GW _{th}	rapide	sel chlorure Pu + Am + U	incinérateur / sous-générateur
TMSR-LF	Chine	395 MW _{th}	thermique (graphite)	sel fluorure U+Th	régénérateur (Th/U)

2.5 Conclusion

Les réacteurs à sels fondus ne sont pas un concept nouveau. Dès les années 1950, seulement quelques années après les premières piles atomiques, démontrant la possibilité de contrôler une réaction en chaîne nucléaire, les sels fondus apparurent comme une possibilité pour l'armée américaine de concevoir un réacteur aéronautique. Les essais de l'ARE et du MSRE sont à ce jour les seules expérimentations sur les sels fondus en réacteurs effectués. Le concept a séduit de nombreux pays, qui se mirent à effectuer leurs propres recherches, mais celles-ci restèrent de faible ampleur en regard des déploiements importants de réacteurs graphite gaz ou à eau pressurisée et des difficultés rencontrées (retraitement, corrosion, etc.).

En France, la volonté politique d'adopter une meilleure gestion des matières radioactives, avec des recherches sur la séparation et la transmutation, remet au premier plan le concept de RSF. Les réévaluations du MSRE avec des outils plus modernes a montré des faiblesses dans le concept, donnant lieu à des versions améliorées. Atout fort pour la fermeture du cycle du combustible, par la régénération de la matière fissile, le MSFR français est devenu l'un des concepts officiellement étudiés pour la prochaine génération de réacteur.

Longtemps resté un concept académique dans les études menées au cours des 20 dernières années, des entreprises se sont emparées du concept de RSF pour les proposer en version AMR. Ainsi, le panorama des concepts de réacteurs à sels fondus a beaucoup changé, par les entreprises et les pays qui s'y intéressent de nouveau. Existente donc des concepts à sels fluorures ou chlorures ; régénérateur de fissile ou incinérateur d'uranium ou de "déchets". L'urgence climatique et l'avantage de l'énergie nucléaire pour la réduction des émissions de gaz à effet de serre ont remis en avant la production d'électricité nucléaire et la fermeture du cycle du combustible pour un nucléaire plus durable.

3

Définition et méthodes de caractérisation d'un réacteur convertisseur à sels fondus

Ce chapitre présente l'adaptation du concept de référence du réacteur à sels fondus à spectre rapide (type MSFR) pour une application incinérateur. Pour ce faire, le sel solvant doit être choisi en conséquence et la caractérisation du cœur doit être refaite. Les codes et scripts utilisés à cet effet sont détaillés. Le choix d'un sel chlorure implique de nombreuses incertitudes sur les paramètres physico-chimiques du sel combustible et doivent être prises en compte. Ainsi, les méthodes de caractérisation de nombreux paramètres dimensionnant le cœur sont présentées. Différentes définitions de l'efficacité d'incinération ont été établies dans ce travail de thèse dans l'objectif de concevoir et d'optimiser un « bon » convertisseur.

Sommaire

3.1	Objectifs de l'étude	53
3.2	Définition d'un convertisseur	53
3.2.1	Sel solvant	53
3.2.2	Combustible	54
3.2.3	Choix d'un sel solvant	54
3.3	Codes de simulation pour les RSF	60
3.3.1	Codes de transport neutronique	60
3.3.2	Criticité au démarrage : OCtAV	61
3.3.3	Évolution temporelle : code d'évolution de matériaux REM	63
3.3.4	Vieillir une composition : ECI	65
3.3.5	Estimation du nombre de colis vitrifiés produits : CALCIFER	65
3.3.6	Code système d'optimisation multicritères : SONGe	67
3.3.7	Simuler un parc de réacteurs : ISF	72

3.4	Méthodes de caractérisation neutroniques	74
3.4.1	Sensibilités de la corrélation volume avec la teneur en actinides	74
3.4.2	Efficacité de conversion	76
3.4.3	Production d'éléments délétères	77
3.4.4	Contre-réactions de température	79
3.4.5	Irradiation des matériaux	80
3.5	Conclusions du chapitre	82

3.1 Objectifs de l'étude

L'objectif d'un convertisseur tel que défini dans ce travail de thèse est de transformer les Transuraniens produits dans les REP en produits de fission de manière à recycler le plutonium de diverses qualités et faire disparaître la plus grande quantité possible d'actinides mineurs (neptunium, américium, curium), envoyés à l'entreposage en vue d'être vitrifiés lors du traitement des combustibles usés. Ce sont donc des déchets à ce jour en France (section 1.3.1). Le stockage des actinides mineurs entraîne une production importante de CSD-V et donc un volume d'objets à stocker considérable ($0.408 \text{ m}^3/\text{CSD-V}$ et $0.194 \text{ m}^3/\text{CSD-C}$ [100]). Il s'agit donc ici d'une part de pérenniser l'électronucléaire en valorisant davantage de substances radioactives ainsi qu'en réduisant l'impact environnemental de l'industrie électronucléaire et, d'autre part améliorer l'acceptabilité sociétale du nucléaire.

La réussite de cet objectif passe par la définition d'un réacteur réduisant significativement le nombre de colis produits dans le parc étudié (ici un parc de la taille du parc actuel français, comme le détaille le chapitre 7) ainsi que la conception d'un réacteur ne posant pas de problème ou de verrou neutroniques (cadre de cette thèse), technologiques ou techniques trop conséquents, c'est-à-dire dont la démonstration par un prototype serait prochainement possible.

Afin d'atteindre cet objectif, il est d'abord nécessaire de définir le cadre du réacteur, c'est-à-dire un réacteur incinérateur à spectre rapide. Il faut déterminer la composition du sel combustible avec le choix du sel solvant et du combustible incorporé. Des discussions sur les différents choix de solvants possibles sont réalisées en section 3.2. Les différents codes utilisés dans cette thèse pour réaliser les études de conception et d'optimisation sont ensuite détaillés en section 3.3. Ces codes permettent notamment de caractériser neutroniquement les configurations proposées. Les différents points d'intérêt, dont l'efficacité d'incinération, qui seront au cœur des études des chapitres ultérieurs sont présentés en section 3.4.

3.2 Définition d'un convertisseur

Il est d'abord nécessaire de définir le cadre de l'étude, spécifique aux réacteurs convertisseurs adaptés aux RSF. Est indifféremment appelé dans ce travail de thèse convertisseur ou incinérateur un réacteur qui vise à transformer les actinides (plutonium et actinides mineurs) en produits de fission. Le sel solvant et le combustible sont fondamentaux dans le fonctionnement du réacteur, comme explicités pour le MSFR en 2.3.1.b. Le choix du solvant est lié à différentes contraintes physiques et chimiques.

3.2.1 Sel solvant

Les solvants permettent l'incorporation d'actinides fertiles et fissiles. Deux familles de solvants sont utilisables : fluorures ou chlorures. Les sels fluorures de type LiF ont été très étudiés notamment avec le MSRE ainsi que les concepts étudiés qui ont suivi, et sont privilégiés pour le cycle $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ pour son énergie moyenne de neutrons favorisant

les captures sur le thorium – améliorant le taux de régénération – et limitant les dégâts aux matériaux (Déplacement Par Atome (dpa), poches d'hélium...) grâce à un spectre quasi rapide comme montré par la figure 3.1 [76]. Pour le cycle $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ et l'application d'incinérateur, des solvants chlorures de type $\text{NaCl}/\text{MgCl}_2$ sont privilégiés au vu de la grande solubilité possible des plutonium et actinides mineurs et de leur spectre rapide qui permet de mieux faire fissionner les noyaux non fissiles (section 1.2.2). Il est à noter que ces sels ont été peu étudiés pour des utilisations en réacteur et beaucoup d'incertitudes sur les caractéristiques physico-chimiques existent à ce jour (voir l'annexe A).

3.2.2 Combustible

Dans ce travail de thèse, aucun élément n'est ajouté pour la régénération des noyaux fissiles puisque l'objectif du réacteur à concevoir est de consommer les éléments transuraniens et non d'en produire. Par combustible, il est entendu uniquement les transuraniens (plutonium et actinides mineurs), éléments fissionnant aux très hautes énergies de neutron avec un spectre rapide en sel chlorure. La figure 3.2 montre le spectre des sections efficaces de fission et de capture du ^{240}Pu , isotope produit en REP. Les captures sont prédominantes sur les fissions jusqu'à environ 400 keV où ces dernières deviennent progressivement majoritaires.

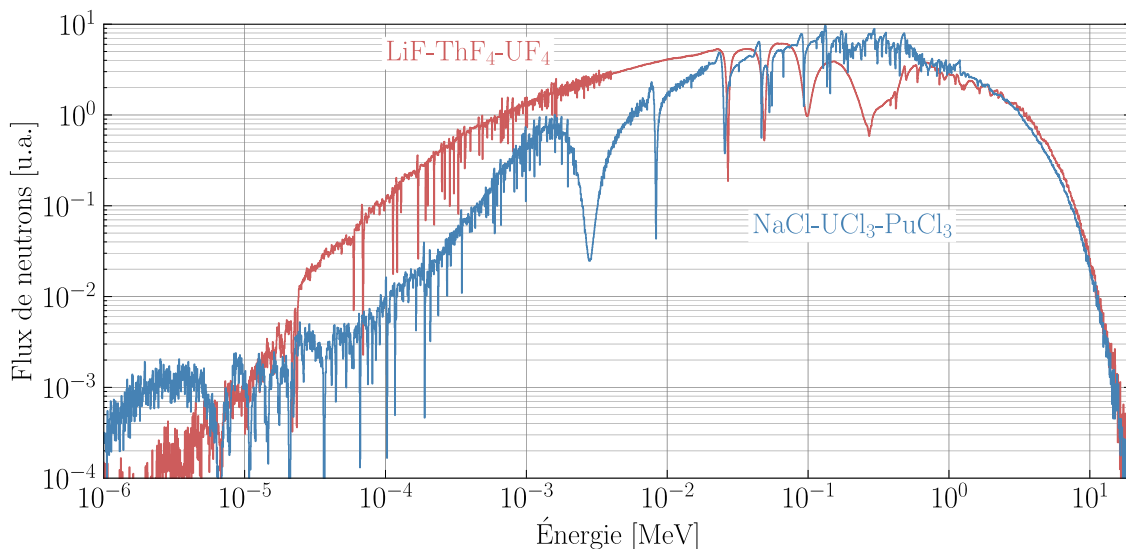


FIGURE 3.1 – Spectres neutroniques de sels fluorure ($\text{LiF-ThF}_4\text{-UF}_4$, $\bar{E}=345$ keV) et chlorure ($\text{NaCl-UCl}_3\text{-PuCl}_3$, $\bar{E}=418$ keV, [87])

3.2.3 Choix d'un sel solvant

L'utilisation de sels fondus permet de la souplesse sur la teneur en combustible dans le sel solvant. Pour une application d'incinérateur et comme déjà explicité ci-dessus, un sel chlorure est privilégié pour son spectre plus rapide qu'un sel fluorure afin d'éviter trop de création d'actinides mineurs qui sont des déchets à ce jour et sont source de radiotoxicité importante (chapitre 1). La figure 3.3 représente l'évolution de la température de fusion du mélange NaCl-PuCl_3 selon la teneur de plutonium. Le point de fusion le plus bas situé vers 38% molaire de PuCl_3 correspond au point eutectique du sel. Dans le cadre

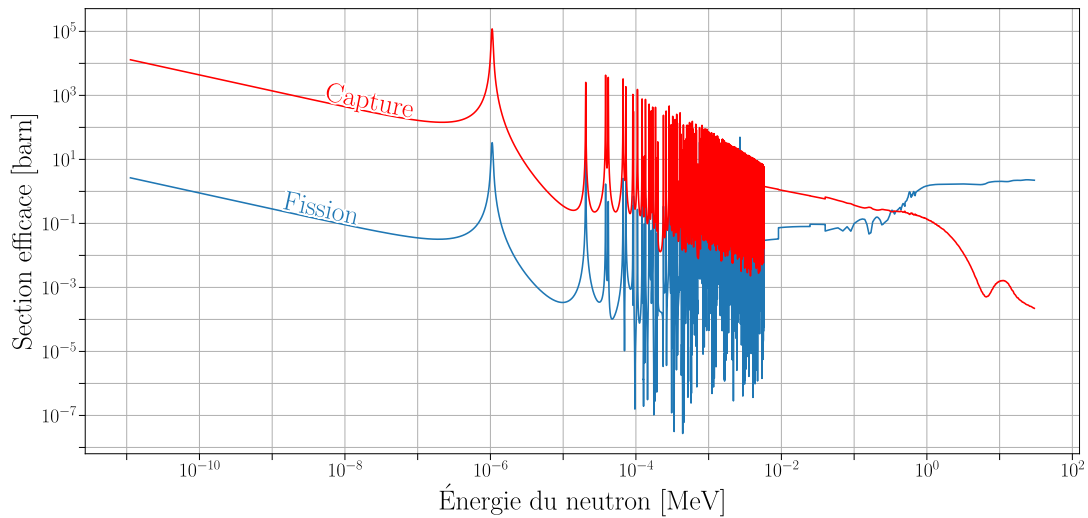


FIGURE 3.2 – Sections efficaces de **capture** et **fission** du ^{240}Pu . Croisement des sections efficaces vers 400 keV (base de données JEFF 3.3)

d'un réacteur nucléaire électrogène, il est intéressant que le sel combustible soit à haute température puisque le rendement de Carnot dépend de la différence de température entre la source chaude (ici, sel combustible) et la source froide (ici, sel intermédiaire). Cependant, pour que les matériaux de structure résistent, la température du sel fondu doit être limitée. On souhaite donc se placer au point eutectique du mélange, à environ 38% de plutonium dans le sel. Celui-ci va se concentrer en actinides avec le temps lors de l'irradiation afin de compenser les captures des produits de fission. Une marge à la ligne de solidification (*solidus*) est donc nécessaire pour éviter la formation de deux phases (liquide + solide), ce qui implique d'augmenter un peu la température de fonctionnement afin d'avoir une marge suffisante à la précipitation sélective.

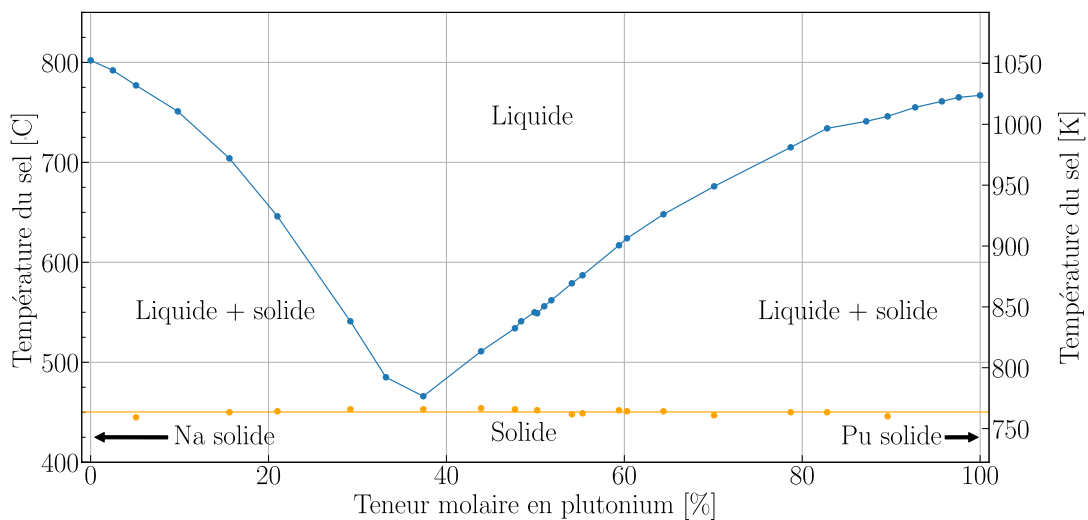


FIGURE 3.3 – Diagramme de phase du sel NaCl-PuCl_3 [101]

Au point eutectique, ne correspond qu'un seul volume de cœur permettant la criticité neutronique (à vecteur isotopique de plutonium donné) : 80 l pour un plutonium ex-UOX (tableau 3.1, 99% ^{37}Cl , JEFF 3.3). Avec une puissance spécifique en cœur de $300 \text{ MW}_{\text{th}}/\text{m}^3$ (proche de la puissance spécifique du MSFR de référence de $333 \text{ MW}_{\text{th}}/\text{m}^3$), cela correspond à une puissance de $23.7 \text{ megaW}_{\text{th}}$, soit 9.5 kg de plutonium fissionné par an pour 256 kg mobilisés initialement. Si l'on veut augmenter la taille du cœur – et donc fissionner plus de matière – il faut diminuer la teneur en plutonium, ce qui nécessite d'augmenter la température du sel pour garder une seule phase liquide (1000 K pour 20% de Pu dans le sel). L'ajout d'un troisième élément dans le sel – un second solvant – permet de choisir le point eutectique pour différentes compositions et donc différents volumes de cœur tout en gardant une température de fonctionnement basse. La figure 3.4 présente le diagramme ternaire du sel $\text{NaCl-MgCl}_2\text{-PuCl}_3$ avec la ligne eutectique en rouge. Les compositions de sel le long de cette ligne ont des températures de fusion basses, et en cas de sur refroidissement, le précipité a une composition proche du sel. On cherche donc idéalement à suivre cette ligne au démarrage et en fonctionnement.

Pour le second solvant, il existe différents candidats : Mg, Sr, Cs, Ca et Ba. Différents critères sont à considérer pour le choisir, comme la facilité du retraitement pyrochimique ou la capture de neutrons sur cet élément (et donc l'impact sur le volume critique).

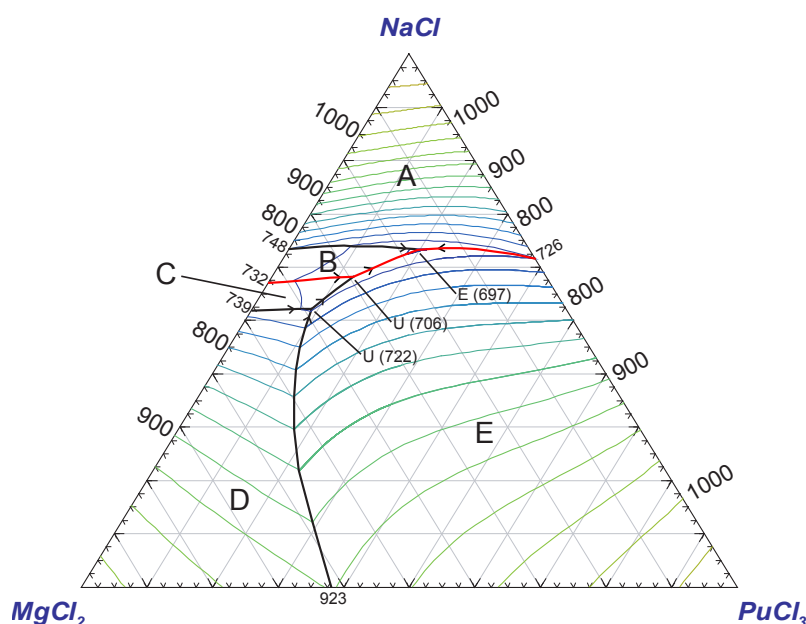


FIGURE 3.4 – Diagramme ternaire du sel combustible $\text{NaCl-MgCl}_2\text{-PuCl}_3$ [102]

Le critère principal utilisé ici est l'impact sur le volume critique du réacteur afin de minimiser la matière à mobiliser et limiter au maximum les captures sur le solvant. Une comparaison du volume critique des sels, dont la composition est située sur l'eutectique de la figure 3.4, a été réalisée afin de quantifier l'importance du choix du second solvant. Les trois compositions retenues, $32.5\text{PuCl}_3\text{-}62.8\text{NaCl}\text{-}4.7\text{XCl}_{1,2}$, $11.5\text{PuCl}_3\text{-}58.2\text{NaCl}\text{-}30.3\text{XCl}_{1,2}$ et $4\text{PuCl}_3\text{-}57.5\text{NaCl}\text{-}38.5\text{XCl}_{1,2}$ avec X étant [Mg, Sr, Cs, Ca ou Ba], 99% de ^{37}Cl et pour un plutonium ex-UOX (tableau 3.1). Comme les caractéristiques du solvant binaire NaCl-MgCl_2 sont les mieux connues parmi les solvants étudiés ici, l'hypothèse est faite d'utiliser la masse volumique du NaCl-MgCl_2 et le diagramme ternaire présenté en figure 3.4 pour l'ensemble des solvants étudiés. La masse volumique, calculée selon la

méthode des volumes ioniques pour le sel $NaCl-MgCl_2-PuCl_3$ expliquée en Annexe A, sera donc identique, quel que soit le second solvant considéré. Ainsi, seules les sections efficaces de capture et diffusion dépendent du noyau utilisé.

TABLEAU 3.1 – Vecteur isotopique molaire de plutonium ex-UOX. Irradiation à $50 \text{ GW}_{\text{th}} \cdot \text{j}/\text{t}$, 5 ans de refroidissement

Isotope	ex-UOX ^a
^{238}Pu	3.101
^{239}Pu	52.149
^{240}Pu	25.20
^{241}Pu	11.80
^{242}Pu	7.76

^a Calculs Code d'Évolution Simplifié Appliqué au Retraitement (CESAR) [103], issus de [104]

Le volume critique, volume de la zone active du cœur nécessaire pour atteindre la criticité neutronique, est calculé grâce à un code d'optimisation de la configuration initiale OCtAV développé dans le cadre de cette thèse et présenté en section 3.3.2. Comme décrit en section 3.3.2, OCtAV réalise un encadrement de la réactivité par une méthode de dichotomie en modifiant certaines caractéristiques de la configuration, puis effectue une régression polynomiale d'ordre 2 à partir de cinq calculs plus précis ($\approx 30 \text{ pcm}$) dans l'intervalle pour minimiser l'erreur statistique sur la régression (1 pour mille en relatif). Le principe de fonctionnement est détaillé en section 3.3.2. L'impact neutronique du sel solvant est montré en figure 3.5.

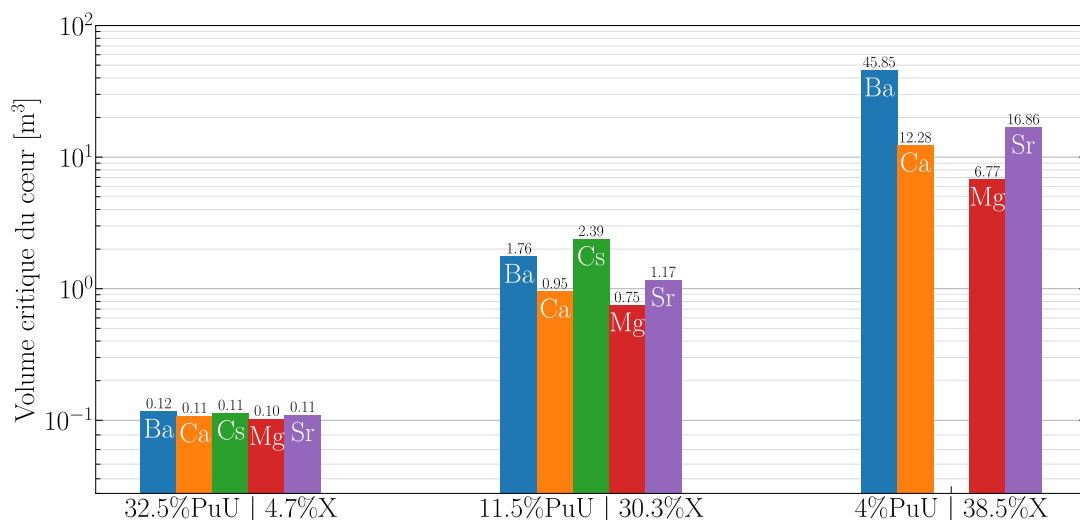


FIGURE 3.5 – Volume critique de cœur pour trois teneurs en plutonium ex-UOX selon le sel solvant utilisé (le volume exact est indiqué au-dessus de chaque barre).

Les différences entre les volumes critiques sont d'autant plus conséquentes que les proportions du second solvant augmentent, car les captures et diffusions sur le solvant sont plus importantes. On observe même l'impossibilité d'obtenir la criticité pour le solvant avec du césium et 4% de plutonium ex-UOX¹. En figure 3.6, les spectres neutroniques du sel à 11.5% de plutonium montrent peu de différences entre les solvants. L'observation des taux de réaction sur les actinides cependant permet de mieux discriminer les solvants, où l'on cherche à maximiser les taux de fission sur les taux de capture.

Le rapport fission sur absorption² τ_f/τ_a sur les actinides permet également de caractériser la capacité du réacteur à éviter la production trop importante de noyaux plus lourds et sera détaillé en section 3.4.2.

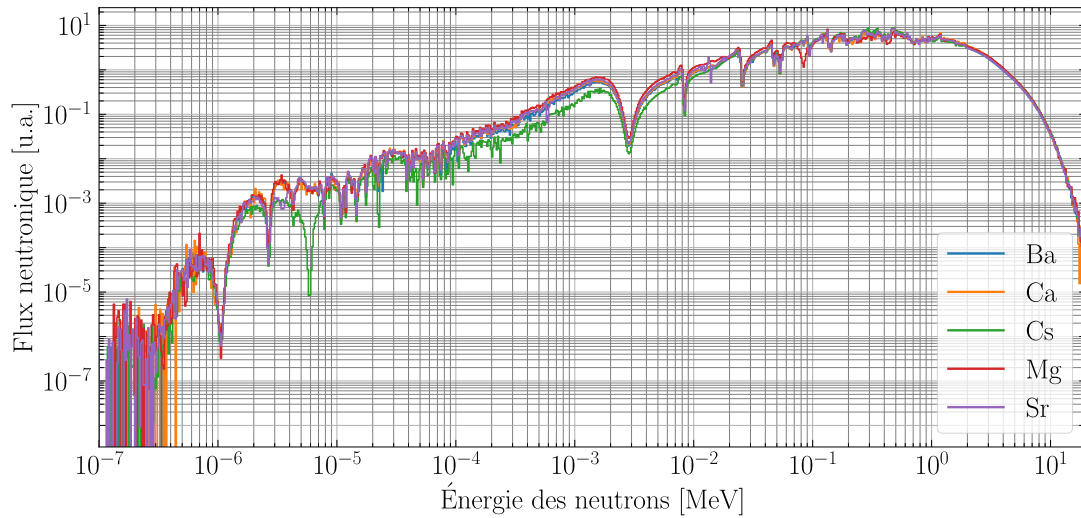


FIGURE 3.6 – Spectres neutroniques du sel combustible 11.5PuCl₃-58.2NaCl-30.3XCl_{1,2} avec X ∈ [Mg, Sr, Cs, Ca ou Ba] pour un plutonium ex-UOX

La figure 3.7 montre que le magnésium dans le solvant implique un peu plus de captures sur le plutonium que le césium ou le baryum, et ce, lorsque la teneur en ce second solvant augmente. Cependant, la figure 3.8 donne une raison de la différence de volume critique entre les différents solvants. Le taux de capture sur ces derniers varie grandement, ce qui consomme des neutrons et impose une masse de plutonium plus importante au démarrage pour obtenir une production suffisante de neutrons.

1. Le volume critique du cœur dépasse 10^6 m^3 , volume maximum utilisé pour le calcul.
2. absorption = capture + fission

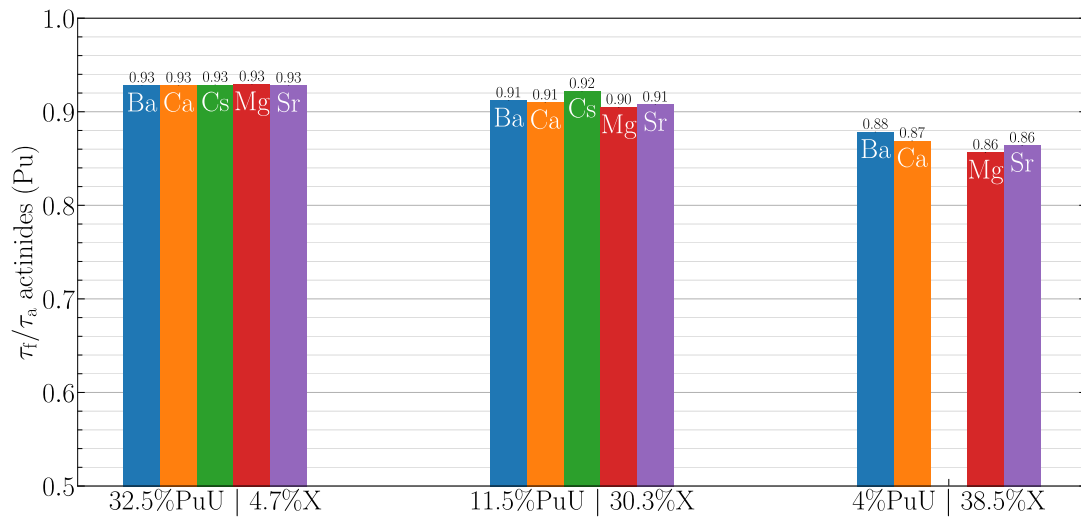


FIGURE 3.7 – Proportion de fission du combustible selon le second solvant choisi [Mg, Sr, Cs, Ca ou Ba] pour un plutonium ex-UOX

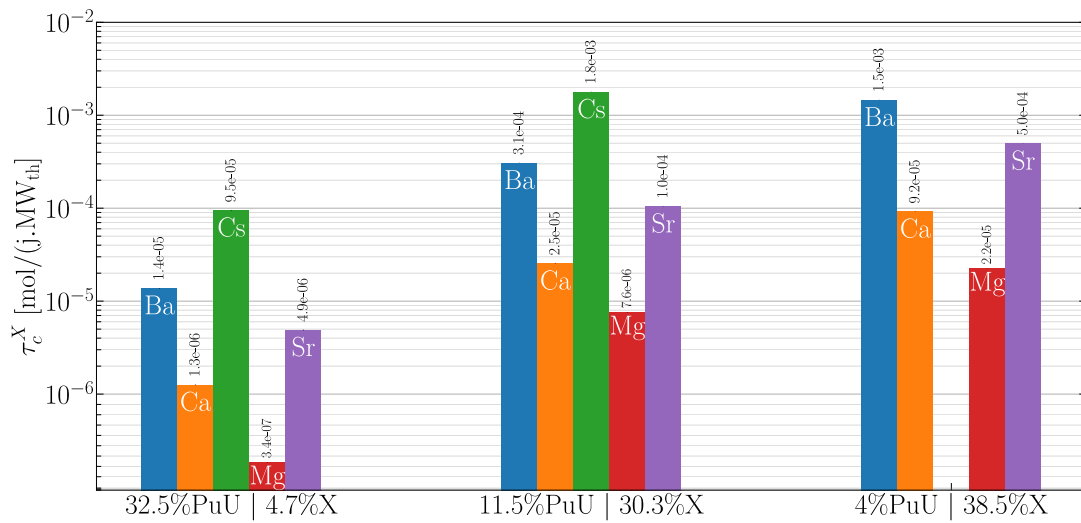


FIGURE 3.8 – Taux de capture du second solvant [Mg, Sr, Cs, Ca ou Ba] pour un plutonium ex-UOX. Normalisation par la puissance thermique

TABLEAU 3.2 – Synthèse des caractéristiques des solvants étudiés

Solvant	Compacité de la zone critique	Fission des actinides	Capture sur le solvant	Retraitement	Production de radioisotopes	Données physico-chimiques
Ba	-	+	-	?	+-	-
Ca	+-	+	+-	+-?	-	-
Cs	-	+	-	?	-	-
Mg	+	+-	+-	+-?	+	+
Sr	+-	+-	+-	?	+	-

Le tableau 3.2 récapitule les avantages et inconvénients de chaque solvant ajoutable dans le sel combustible. Ainsi, d'un point de vue neutronique, il semble plus intéressant de choisir un sel $MgCl_2$ ou $SrCl_2$ pour minimiser l'inventaire initial et la production de radioisotopes à partir du solvant. La disponibilité de données sur le sel binaire $NaCl-MgCl_2$ a conduit à le privilégier comme solvant. Il est à noter que la question du retraitement reste encore une grande inconnue, car peu d'expériences avec des sels chlorures ont été réalisées dans ce cadre.

3.3 Codes de simulation pour les RSF

Des outils de simulation adaptés aux RSF sont parfois nécessaires de par leurs spécificités (combustible liquide circulant, extractions et alimentations en ligne...). Les calculs neutroniques de cette thèse sont effectués avec des codes utilisant des méthodes stochastiques de résolution de l'équation de Boltzmann (équation 1.2 et section 3.3.1). Le code OCtAV détermine la configuration initiale du circuit combustible pour atteindre la criticité neutronique (section 3.3.2). Le code d'évolution de matériaux REM (section 3.3.3) permet l'évolution temporelle du réacteur en fonctionnement nominal et le code SONGE sert à l'optimisation du circuit combustible et des échangeurs combustible/intermédiaire (section 3.3.6). Le calcul de la production de colis de déchets vitrifiés (CSD-V), ainsi que leur radiotoxicité, est estimé par le script CALCIFER (section 3.3.5). ISF est un code de scénario permettant de simuler un parc électronucléaire répondant à une demande d'électricité (section 3.3.7).

3.3.1 Codes de transport neutronique

Les codes de transport neutronique, comme MCNP [16] ou Serpent [17], simulent l'histoire d'un groupe de neutrons pour estimer les différents paramètres que l'on retrouve dans l'équation de Boltzmann (équation 1.2). Ces codes ont leurs différences dans le format des fichiers d'entrées, la gestion des sections efficaces (MCNP a besoin d'une conversion des fichiers par NJOY), les sorties générées, etc. Le principe de calcul reste cependant

proche. La figure 3.9 illustre un exemple d’histoire de neutron avec suivi des photons créés, tiré de la documentation de MCNP 5 [16]. Un neutron pénètre un matériau fissile. Les réactions qu’il va subir sont aléatoires (selon les sections efficaces de chacune). Celui-ci va être diffusé à un endroit aléatoire, selon un angle aléatoire et produire un photon qui n’est pas suivi immédiatement (évènement 1). Le neutron induit ensuite une fission en (2) : deux neutrons et un photon sont produits. Un premier neutron va être absorbé en (3), le second sort du matériau, il est alors perdu. Le photon produit va quant à lui être diffusé (5) jusqu’à sortir du matériau (7). Le photon produit en (2) et en attente est maintenant suivi. Celui-ci est absorbé. Lors de nos calculs de réactivité par MCNP, seuls les neutrons sont suivis.

Historique des évènements

1. Diffusion du neutron, production de photon
2. Fission, production de photon
3. Capture neutronique
4. Fuite neutronique
5. Diffusion de photon
6. Fuite de photon
7. Capture de photon

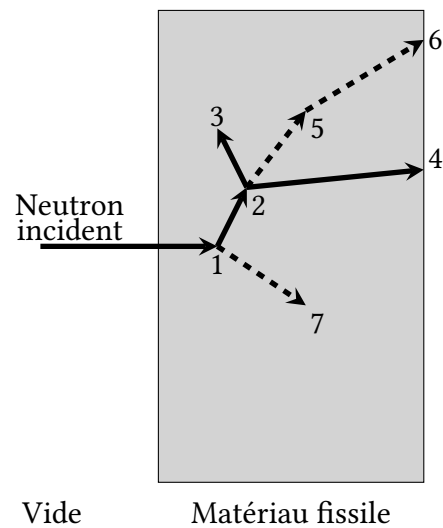


FIGURE 3.9 – Exemple d’une histoire d’un neutron suivi par MCNP, d’après [16]

Un nombre de cycles actifs et inactifs est donné à MCNP ainsi qu’un nombre de neutrons par cycle à créer. Le nombre de cycles inactifs permet de distribuer spatialement les neutrons, créant ainsi une source plus réaliste avant que ne débute le calcul des grandeurs d’intérêt telles que le k_{eff} ou les taux de réaction. Une fois le nombre de cycles inactifs passé, MCNP enregistre l’historique des neutrons pendant les cycles actifs. Un nombre de neutrons suffisant est nécessaire pour couvrir l’ensemble du volume du cœur, il est parfois nécessaire d’augmenter le nombre de cycles et/ou de particules. En effet, le calcul du k_{eff} peut ne pas converger si MCNP considère que les données de chaque cycle ne sont pas distribuées selon une loi normale. La convergence de la distribution de la source est donnée par l’entropie de Shannon. Les deux convergences sont nécessaires pour que le calcul du coefficient de multiplication effectif soit correct. Pour éviter que cela ne soit pas le cas, on ajuste le nombre de cycles actifs, inactifs et le nombre de particules.

3.3.2 Criticité au démarrage : OCTAV

3.3.2.a But et principe de fonctionnement

Comme brièvement présenté en section 3.2.3, Optimisation de la Criticité Actinides Volume (OCTAV) est un code d’optimisation neutronique développé au cours de ce travail de thèse en langage Python, qui détermine le « point de départ » du réacteur en respectant la criticité neutronique et les différentes contraintes définies par l’utilisateur. OCTAV

a pour vocation d'être flexible sur les types de réacteurs à optimiser (sous-générateur ou régénérateur ; sels fluorures ou chlorures). Il est actuellement couplé avec MCNP et REM, mais des développements sont en cours pour pouvoir y intégrer d'autres codes de neutronique.

À partir d'une configuration de départ non optimisée, OCTAV cherche la configuration permettant d'encadrer la réactivité cible par dichotomie avec la borne inférieure entre $[k_{eff}^{obj} - 0.05; k_{eff}^{obj} - 3\sigma_{monteCarlo}]$ et la borne supérieure dans $[k_{eff}^{obj} + 3\sigma_{monteCarlo}; k_{eff}^{obj} + 0.05]$. Le double critère de borne permet

1. de pouvoir rester dans un intervalle de réactivité proche de la criticité, où l'hypothèse est faite que la réactivité varie presque linéairement.
2. de tenir compte de l'incertitude du calcul Monte-Carlo et de s'assurer que les bornes de l'encadrement seront bien de part et d'autre de la réactivité cible. La réactivité cible vaut $k_{eff} - \beta_{eff}$, ce dernier évalué à 170 pcm dans le MSFR de référence.

Une fois l'encadrement déterminé, cinq calculs équirépartis dans l'intervalle sont effectués avec une précision plus importante, afin de minimiser l'incertitude statistique. Une régression polynomiale d'ordre 2 est faite sur les résultats afin de déterminer avec précision le paramètre à optimiser. Les fichiers de simulations sont ensuite mis à jour pour tenir compte du calcul et permettre le calcul de l'évolution par REM.

3.3.2.b Flexibilité du code

OCTAV est un code qui se veut flexible dans les configurations à optimiser. Ainsi, deux grandes familles d'optimisation peuvent être réalisées :

- Optimisation de volume : la composition du sel est déterminée, le paramètre à optimiser est le volume de la zone critique du cœur.
- Optimisation de composition : la géométrie est fixe, la composition du sel est modifiée pour atteindre la criticité.

Dans les optimisations de composition, il est possible de calculer le rapport de la teneur fertile sur la teneur fissile tout en respectant une teneur d'actinides globale, tout comme établir la teneur en actinides le long de l'eutectique d'un sel ternaire. Dans ce dernier cas, des corrélations de l'évolution des teneurs des différents éléments du sel combustible, propre à chaque sel ternaire, sont nécessaires en amont, de même que des corrélations pour le calcul de la masse volumique associée.

3.3.2.c Perspectives

La méthode d'encadrement utilisée par OCTAV est coûteuse en temps (quelques heures) et en calculs si le point de départ est très éloigné de la configuration critique. Les développements futurs sur le code prendront en compte l'intégration de nouveaux codes Monte-Carlo, afin de s'affranchir de sections efficaces manquantes (section 3.3.3), et une méthode de résolution de la configuration critique plus rapide, telle qu'une descente de gradient.

3.3.3 Évolution temporelle : code d'évolution de matériaux REM

3.3.3.a Principe de fonctionnement

Le code Réaliser une Évolution avec MCNP (REM) est un code d'évolution, développé au sein du LPSC, et s'appuyant sur le module du même nom qui gère un ensemble de modules de l'environnement DALI, développé par Daniel Heuer dans un langage propre appelé GCC [105]. Il réalise une intégration des équations de Bateman (équation 3.1) à l'aide d'une méthode Runge-Kutta à pas adaptatifs, via un module d'intégration, et ce de manière adaptée aux spécificités d'un RSF (alimentation et retraitement en continu durant le fonctionnement du réacteur). Les extractions de matières ainsi que les transvasements d'une zone à une autre (retraitement) sont modélisés par des fonctions de transfert continues.

$$\frac{dN_i}{dt} = \sum_j (\langle \sigma_{j \rightarrow i} \phi \rangle + \lambda_{j \rightarrow i} + \lambda_i^{\text{réinjection}}) \cdot N_j - (\langle \sigma_{i \rightarrow j} \phi \rangle + \lambda_{i \rightarrow j} + \lambda_i^{\text{extraction}}) \cdot N_i + A_i \quad (3.1)$$

avec $\sigma_{i \rightarrow j}$ le produit de la section efficace de l'élément i par le rapport d'embranchement $i \rightarrow j$, $\lambda_{j \rightarrow i}$ le produit de la constante de désintégration de l'élément i par le rapport d'embranchement de j vers i , $\lambda_i^{\text{réinjection}}$ la constante d'apparition de l'élément i suite au retraitement, $\lambda_i^{\text{extraction}}$ la constante de disparition de l'élément i par retraitement, A_i la concentration de l'élément i introduite par alimentation.

Régulièrement, le module d'intégration rend la main à Réaliser une Évolution avec MCNP (REM) pour s'assurer que les critères de contrôle (réactivité, proportion de noyaux lourds, volume ionique...) définis par l'utilisateur sont respectés. Quelle que soit la simulation, la puissance thermique fait partie des paramètres de contrôle. Le code utilise les alimentations et les retraitements pour satisfaire au mieux les contraintes définies. REM contrôle également que la composition des matériaux n'a pas trop changé en calculant un χ^2 entre la composition évoluée avec les taux de réactions de l'intégration précédente et les taux de réactions de l'intégration actuelle. Si cela est le cas, REM lance un calcul avec un code Monte-Carlo, comme MCNP, pour remettre à jour la matrice des taux de réactions et le calcul du flux par résolution de l'équation de Boltzmann (équation 1.2). La figure 3.10 illustre le fonctionnement du code.

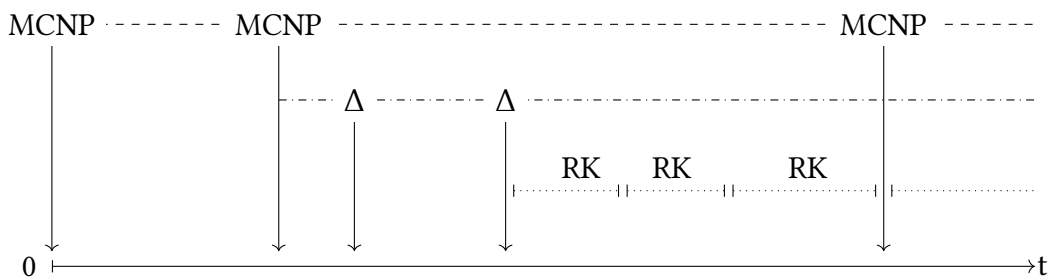


FIGURE 3.10 – Schéma de fonctionnement du calcul de l'évolution d'un réacteur par REM, d'après [106]

Avec RK pour l'utilisation de la méthode de Runge-Kutta, Δ pour les ajustements effectués par REM avec les alimentations et les retraitements, $MCNP$ pour l'utilisation du code de calcul neutronique stochastique permettant de recalculer les taux de réaction et le flux neutronique.

Le code ERE est une interface de l'environnement DALI développée par Xavier Doligez pendant sa thèse [106]. Cette interface est utilisée pour décrire la géométrie du cœur, les unités de retraitement chimique, les alimentations ainsi que les contrôles d'évolution. Ces informations rentrées par l'utilisateur sont ensuite fournies à REM et MCNP, code actuellement couplé. Au vu des limitations sur l'utilisation de sections efficaces avec MCNP (voir section 3.4.1.e), des développements sont en cours pour coupler d'autres codes de transport.

Une fois la simulation réalisée, un module de relecture de REM permet l'extraction des données souhaitées par l'utilisateur : réactivité, volume de sel, composition des réflecteurs, sections efficaces, flux de matières extraites...

3.3.3.b Configuration utilisée

Les calculs neutroniques et d'évolution utilisent la géométrie présentée en figure 3.11. Les matériaux utilisés, ainsi que les épaisseurs, seront précisés à chaque chapitre. L'ensemble des simulations présentées ont les paramètres communs décrits dans le tableau 3.3. REM ne permet que l'évolution en continu des matériaux, ce qui est également valable pour les alimentations et les extractions. Ainsi, la protection est remplacée en continu, ce qui n'est pas réalisable dans un vrai réacteur. Sauf indication contraire, l'ensemble des simulations d'évolution sont réalisées avec une puissance spécifique thermique identique en cœur de $150 \text{ MW}_{\text{th}}/\text{m}^3$. La puissance dudit réacteur dépend de sa puissance volumique en cœur, limitée par la capacité du sel à échanger la chaleur avec le circuit intermédiaire. La puissance volumique en cœur du MSFR est de $333 \text{ MW}_{\text{th}}/\text{m}^3$ avec un sel fluorure. Les sels chlorures utilisés dans nos études ont un $\rho.Cp$ plus faible d'environ 2 à 3 fois par rapport au sel combustible du MSFR de référence (estimé à 800 K, d'après [14]), limitant de fait les échanges thermiques. On estime donc qu'une puissance volumique de $150 \text{ MW}_{\text{th}}/\text{m}^3$ pourrait être atteignable afin de réaliser les premiers calculs d'évolution avec REM, avant d'affiner cette valeur en section 4.5 avec le code SONGe.

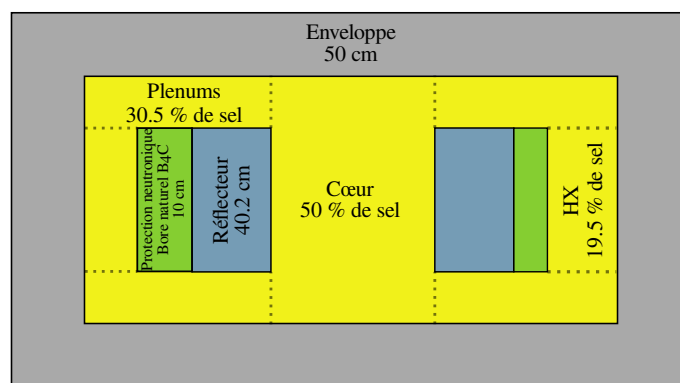


FIGURE 3.11 – Schéma du circuit combustible avec les matériaux et caractéristiques géométriques principales

TABLEAU 3.3 – Paramètres de configuration de REM communs aux simulations

Type	Matériau	Éléments	Quantification
Extraction	Sel combustible	Tous les Z sauf Na, Cl, Mg; U + TRU : selon les simulations	Extraction en 18.3 ans
	Sel combustible	Éléments gazeux et insolubles	Extraction en 30 s
	Protection	Tous les Z sauf B et C	Extraction en 3 ans
Alimentation	Sel combustible	TRU	Variable pour maintenir la réactivité
	Protection	Bore naturel	Variable pour conserver 4 bores pour 1 carbone
Puissance spécifique	Sel combustible en zone critique		150 MW _{th} /m ³

3.3.4 Vieillir une composition : ECI

Le module Évolution d'une Composition Isotopique (ECI) fait partie de l'environnement DALI et résout les équations de Bateman hors flux neutronique de chaque isotope de la composition pour la faire vieillir en utilisant la base de données JEFF 3.0 (développé en thèse par Mariya Brovchenko [107]). Ainsi, il est possible d'accéder à l'évolution temporelle de la composition, radiotoxicité ou la puissance résiduelle. Ce module sera utilisé dans ce travail pour le calcul du nombre de CSD-V produits et de radiotoxicité par le biais du script CALCIFER.

3.3.5 Estimation du nombre de colis vitrifiés produits : CALCIFER

Le script Python CALculer les ColIs et Faire l'Évaluation de leur Radiotoxicité (CALCIFER) a été développé au cours de ce travail de thèse afin d'estimer la production de CSD-V produits à partir des flux de retraitement du sel combustible. Les critères limitants pour la production des colis de 410 kg sont les suivants [108] :

- la puissance thermique $P_{th} < 3kW$ [109]
- la dose alpha cumulée sur 1E5 années $\alpha < 2.5E19$ désintégrations/g_{verre} [109]
- la teneur massique en Produits de Fission et Actinides (PFA) $< 18.5\%$ [109]
- la teneur en platinoïdes (Ru, Rh, Pd, Re, Os, Ir, Pt) $< 3\%$ [34]

Le critère limitant est celui qui nécessite la plus grande production de colis et déterminera le nombre produit à l'aide de l'équation 3.2 [109].

$$N_c = \text{seuil} \left(\frac{X_c}{L_c} \right) + 1 \quad (3.2)$$

avec N_c le nombre de colis nécessaires pour le respect du critère, X_c le critère calculé dans la composition en sortie du réacteur et L_c la valeur limite du critère. Pour déterminer X_c , CALCIFER utilise les fichiers obtenus par relecture des simulations avec REM et

le module ECI qui permet de faire évoluer des compositions et d'extraire la puissance thermique et la production d' ^4He , ce qui permet de déduire la dose alpha cumulée. Le script opère de la manière décrite par la figure 3.12. Les compositions extraites du calcul effectué par REM ne sont pas directement traitées. En effet, certains éléments, qui ont été extraits du sel combustible, ne seront pas envoyés à la vitrification. Une nouvelle séparation est donc nécessaire. Le tableau 3.4 indique les efficacités de la séparation précolisage selon les éléments à enlever [109]. On suppose ici que les actinides dans les effluents sont tous vitrifiés.

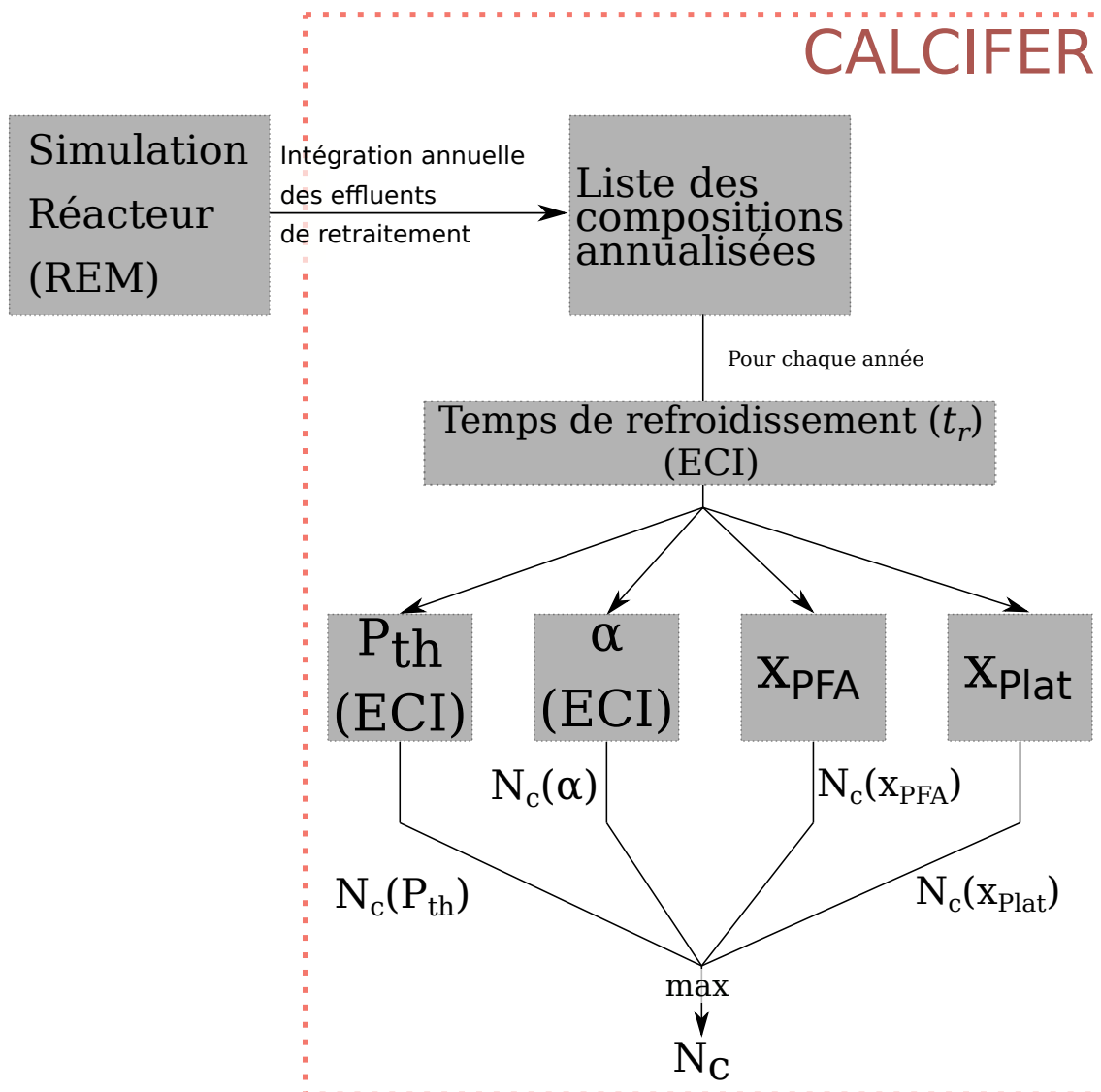


FIGURE 3.12 – Principe de calcul du nombre de CSD-V produits

TABLEAU 3.4 – Efficacité de séparation pré-colisage

Éléments	Efficacité [%]
F, Cl, Br, I, At, Ts	99
He, Ne, Ar, Kr, Xe, Rn	100
Autres	0

CALCIFER calcule également la radiotoxicité des colis produits au fur et à mesure de leur production et jusqu'à 1 million d'années après leur production. Il utilise également le module ECI comme décrit par la figure 3.13.

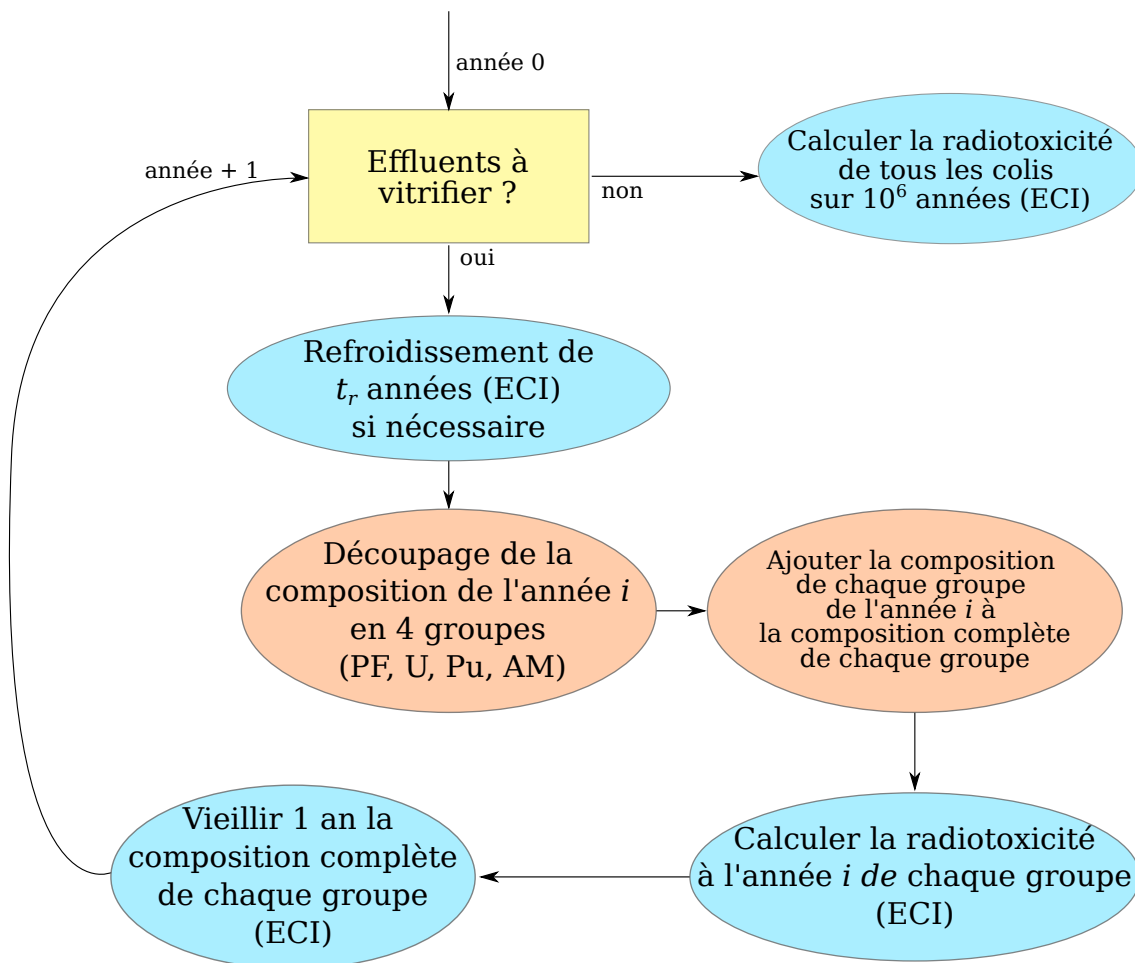


FIGURE 3.13 – Principe de calcul de la radiotoxicité des CSD-V

3.3.6 Code système d'optimisation multicritères : SONGe

3.3.6.a Principe de fonctionnement

Le réacteur doit pouvoir extraire la chaleur produite par réactions nucléaires, dont les fissions, du circuit combustible vers le circuit intermédiaire. La circulation du sel doit donc se faire de manière optimale. Pour cela, la géométrie de la tuyauterie, la taille et le type de l'échangeur, etc. doivent être optimisés en ce sens. L'utilisation d'un code d'optimisation

multicritères, utilisant des corrélations thermohydrauliques et neutroniques, permet d'estimer un optimum dans le dimensionnement du circuit combustible d'un réacteur à sels fondus. Le code Système d'Optimisation Numérique par Algorithme Génétique (SONGe) est notre moteur de référence développé en Java pour l'optimisation, qui est ici utilisé pour l'optimisation du circuit combustible, et utilise un algorithme génétique pour minimiser une liste de contraintes fournies par l'utilisateur en utilisant des peuples, explorant chacun une voie d'optimisation. Le code dispose d'une liste de paramètres et de variables permettant de minimiser le coût sur chaque contrainte, représenté par une fonction exponentielle de l'écart à la contrainte. Des peuples explorent des voies différentes (configurations des circuits combustible et intermédiaire) et sont en compétition. Le coût global des contraintes permet de déterminer si l'optimisation est en bonne voie ou stagne. Il est en effet possible que les valeurs prises par les variables et contraintes se situent dans des minima locaux. Si cette stagnation est très loin du coût minimum obtenu par le meilleur peuple, le peuple concerné est réinitialisé pour réexplorer une nouvelle voie d'optimisation. L'optimisation s'arrête quand l'utilisateur détermine que le minimum local atteint est proche du minimum global.

3.3.6.b Géométrie développée pour la thermohydraulique

Chaque système à optimiser doit être décrit par des paramètres et des méthodes ensuite utilisées par SONGe. Il s'agit donc d'adapter notamment les méthodes de calcul des propriétés physicochimiques des sels et la géométrie du circuit combustible au concept incinérateur. *A contrario* des études neutroniques, la géométrie utilisée ici est plus complexe. En effet, la thermohydraulique est beaucoup plus sensible aux dimensions et formes des matériaux et cavités que la neutronique. Les volumes de combustible étant plus faibles que le MSFR de référence (18 m^3 total contre 2 m^3 pour un sel à 11.5% de plutonium), une géométrie a été développée spécifiquement pour les petits réacteurs, avec utilisation d'un échangeur à plaques corruguées. Des contraintes sur les débits dans les tuyaux ou sur le volume de la pompe ont notamment été fixées. Ainsi, la géométrie modélisée est montrée en figure 3.14 et est détaillée en annexe B. On considère la géométrie valable pour de grands volumes de cœur, ce qui risque d'entraîner des taille et puissance de pompe importantes. Les paramètres physicochimiques sont évalués pour chaque sel. Le tableau 3.5 présente l'estimation de ces caractéristiques à 800 K.

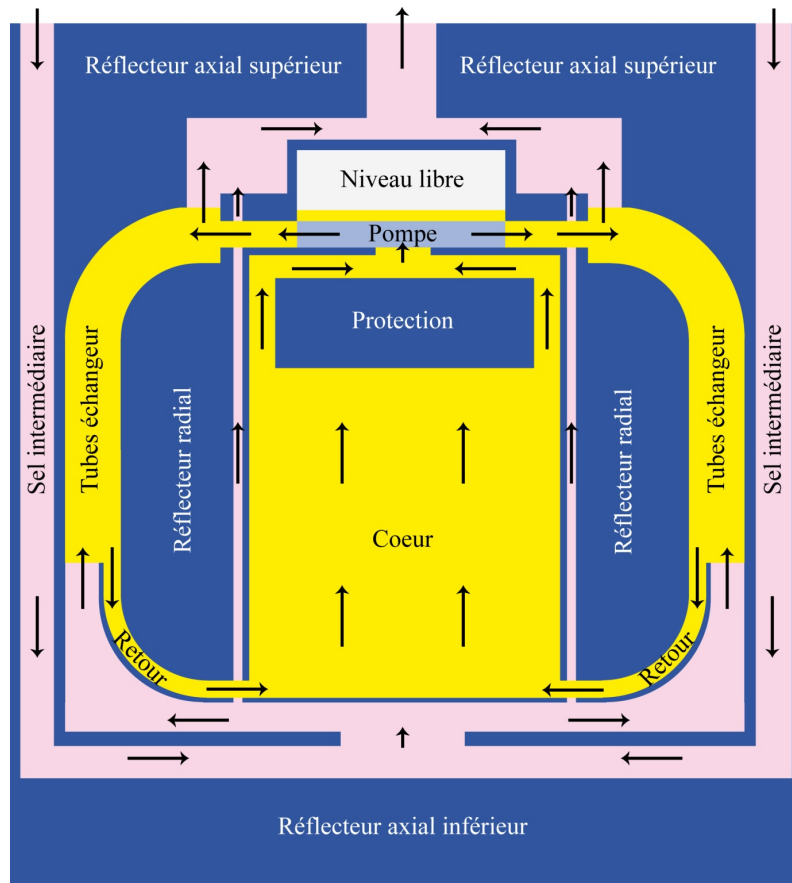


FIGURE 3.14 – Schéma de la géométrie thermo-hydraulique utilisée dans SONGe pour l'optimisation multicritères (pas à l'échelle car toutes les dimensions peuvent changer)

TABLEAU 3.5 – Paramètres physico-chimiques estimés à 800 K pour les optimisations SONGe pour trois configurations, repérées ici par leur teneur de plutonium dans le sel combustible

Matériau	Type	Unité	Config. 38.5% Pu	Config. 11.5% Pu	Config. 4% Pu
Sel combustible	Masse volumique	kg/m ³	2978	2166	1864
	Viscosité dynamique	mPa · s	12.9	0.98	1.34
	Capacité calorifique	J/(kg · K)	579	821	954
	Conductivité thermique	W/(m · K)	0.534	0.373	0.345

Suite à la page suivante

TABLEAU 3.5 – Paramètres physico-chimiques estimés à 800 K pour les optimisations SONGe pour trois configurations, repérées ici par leur teneur de plutonium dans le sel combustible (Suite)

Matériau	Type	Unité	Config. 38.5% Pu	Config. 11.5% Pu	Config. 4% Pu
Sel intermédiaire	Masse volumique	kg/m ³	1605		
	Viscosité dynamique	mPa · s	1.04		
	Capacité calorifique	J/(kg · K)	1244		
	Conductivité thermique	W/(m · K)	0.615		
Réflecteur	Masse volumique	kg/m ³	8800		
	Capacité calorifique	J/(kg · K)	500		
	Conductivité thermique	W/(m · K)	21.9		

3.3.6.c Contraintes et variables d'optimisation

Comme expliqué précédemment, l'optimisation nécessite une définition des variables et des contraintes, afin d'estimer le coût du chemin emprunté par un peuple et donc si l'optimisation est intéressante à garder ou non. Le tableau 3.6 présente l'essentiel des variables utilisées pour les optimisations. Le fluide chaud correspond au sel combustible et le sel froid, au sel intermédiaire. Les encadrements de variables sont choisis de manière à ce que l'optimisation puisse être faite sans bloquer sur les bornes, donc sans considération de cohérence physique.

Les contraintes sont détaillées dans le tableau 3.7. Les valeurs choisies sont parfois arbitraires, car tout comme pour les propriétés des sels, il existe peu de connaissances sur les contraintes thermohydrauliques liées aux sels fondus. Le déséquilibre de fraction de sel en cœur $x_{\text{optimisation}}/x_{\text{consigne}}$ contraint la fraction de sel en cœur/hors cœur à respecter un ratio 50%/50%. Les contraintes sur les vitesses maximales ont été estimées en considérant que la vitesse de circulation est d'autant plus faible que la densité du fluide considéré est importante. Cette hypothèse vient des vitesses de circulation de l'eau en REP (10 m/s, 0.725 kg/m³ [110]) et du plomb dans les boucles à plomb fondu (2 m/s, 10 kg/m³ [49]). Les contraintes sur les températures des sels en entrée et sortie d'échangeur prennent en compte une marge de 30 K à la solidification. L'utilisation de l'acier 316H pour l'échangeur semble être possible jusqu'à 500°C [111].

Les méthodes de détermination des variables et des contraintes d'optimisation sont détaillées en annexe B.

TABLEAU 3.6 – Variables d’optimisation

Description	Unité	Plage
Débit total de sel intermédiaire dans le circuit intermédiaire	kg/s	selon les simulations
Débit total de sel combustible dans le cœur	kg/s	selon les simulations
Température d’entrée du cœur	K	[750 , 900]
Température de sortie du cœur	K	[850 , 950]
Vitesse maximum du sel combustible dans la zone critique	m/s	[2 , 10]
Température d’entrée du sel intermédiaire dans l’échangeur	K	[600 , 700]
Pas des corrugations de l’échangeur	mm	[3 , 10]
Épaisseur de séparation entre les sels dans l’échangeur intermédiaire	mm	[0.5 , 2]
Échauffement du sel intermédiaire dans l’échangeur	K	[30 , 100]
Refroidissement du sel combustible dans l’échangeur	K	[50 , 100]
Longueur droite des tubes échangeurs	m	[0 , 1]
Longueur des pales de la pompe	m	[0.1 , 1]

TABLEAU 3.7 – Contraintes d’optimisation

Description	Unité	Type	Valeur	Tolérance
Fraction de puissance électrique produite affectée aux pompes du circuit combustible	%	Max	1	1
Déséquilibre de puissance du cœur	MW _{th}	Min et max	0	1
Déséquilibre de température du cœur	K	Min et max	0	±0.01
Déséquilibre de fraction de sel en cœur entre l’objectif et la valeur calculée	/	Min	1	0.2
Hauteur des corrugations de l’échangeur intermédiaire	mm	Min	2	0.1
Épaisseur de séparation entre les sels dans l’échangeur intermédiaire	mm	Min	1	-0.1
Nombre de Reynolds minimum pour le sel combustible	/	Min	500	50

Suite à la page suivante

TABLEAU 3.7 – Contraintes d'optimisation (Suite)

Description	Unité	Type	Valeur	Tolérance
Nombre de Reynolds minimum pour le sel intermédiaire	/	Min	500	50
Vitesse du sel intermédiaire dans l'échangeur	m/s	Max	9	1
Vitesse maximum dans les tuyaux du circuit combustible	m/s	Max	8 8.5 9	1
Température de plaque en entrée de l'échangeur (circuit combustible) [limiter le stress thermique]	K	Max	873	1
Température de plaque en sortie de l'échangeur (circuit combustible) [marge à la solidification]	K	Min	750	1
Température de plaque en entrée de l'échangeur (circuit intermédiaire) [marge à la solidification]	K	Min	619	1
Écart de température maximum dans les plaques de l'échangeur [limiter le gradient thermique]	K	Max	70	1
Profondeur totale de l'échangeur	m	Max	0.5 0.5 1.5	0.05
Longueur des pales de la pompe	m	Max	0.5	0.01

3.3.7 Simuler un parc de réacteurs : ISF

3.3.7.a Principe de fonctionnement

Le code Innovative Scenarios for the Future (ISF) est conçu pour effectuer des simulations simplifiées de scénarios de déploiement de réacteurs en répondant à une contrainte de demande d'électricité et en pouvant inclure des RSF [112]. Il peut démarrer toute sorte de réacteurs pour peu que l'utilisateur dispose des inventaires d'entrée et de sortie ainsi que de la puissance et une durée de fonctionnement. Une liste de réacteurs est donnée à ISF avec un ordre de priorité dans le déploiement et des contraintes sur le nombre maximum par an ou la première année de démarrage. À chaque pas de temps, Le code effectue l'inventaire des matières disponibles pour le démarrage de chaque type de réacteur par ordre de priorité (en prévoyant ce qu'il faut pour toute la durée de fonctionnement) et si tout est réuni pour le démarrage, un premier groupe est démarré. Les démarrages s'enchainent jusqu'à atteindre la demande électrique spécifiée. La figure 3.15 synthétise le fonctionnement du démarrage des réacteurs du parc tout au long de la simulation.

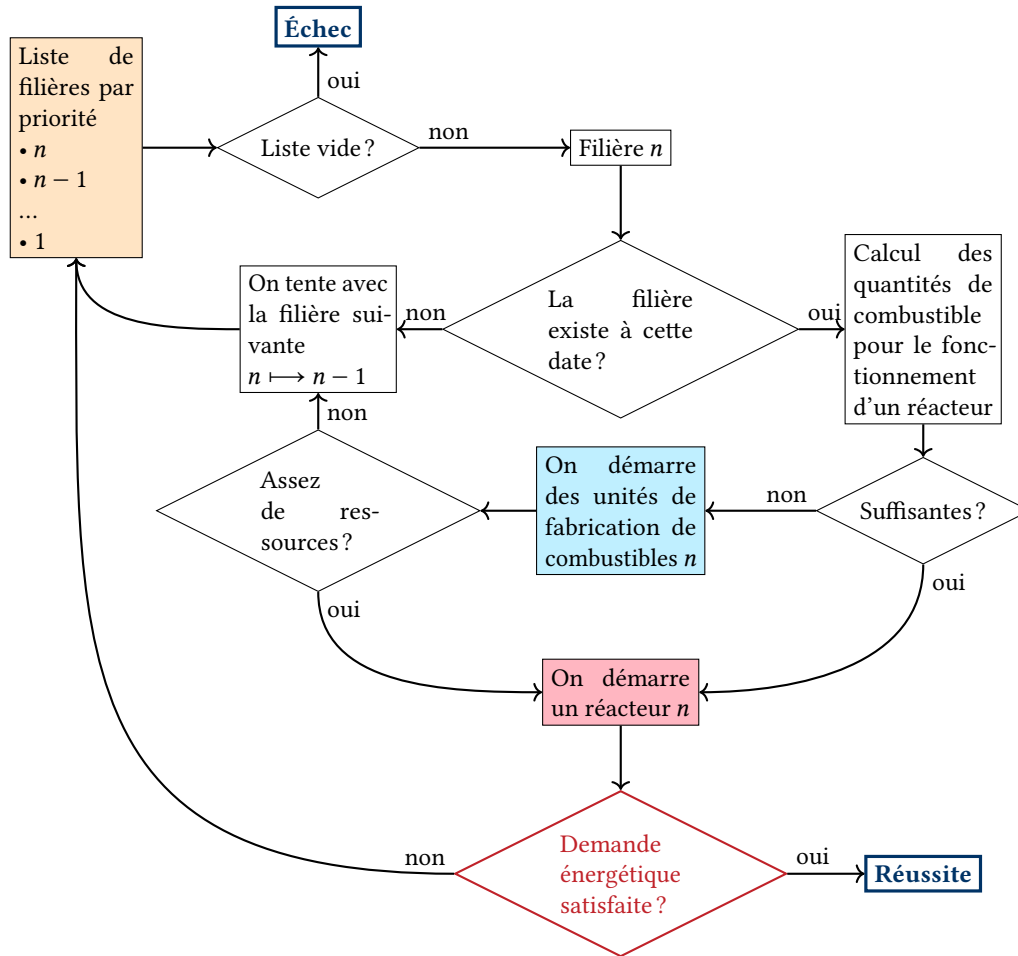


FIGURE 3.15 – Schéma de principe du code ISF avec l'algorithme d'allumage des réacteurs à chaque pas de temps afin de satisfaire la demande énergétique [113]

L'intégration simple des RSF dans ISF donne aisément une estimation des capacités de déploiement de réacteurs surrégénérateurs ou brûleurs dans un parc de réacteurs à eau.

3.3.7.b Limites

Volontairement peu complexe, le code peut s'utiliser avec les sorties de REM pour les données des RSF et simule un parc français sur 500 ans en quelques secondes. Le code possède néanmoins des limites liées à sa simplicité d'utilisation. En effet, les types de réacteurs sont figés dans la description qu'en a faite l'utilisateur. Par exemple, l'enrichissement de l'UOX ou la teneur du plutonium dans le MOX ne sont pas ajustables au cours du temps, il faut décrire autant de réacteurs qu'il y a de particularités propres à chacun. De même que seul un objectif de production d'électricité est donné, alors qu'un équilibre des matières pourrait également être envisagé pour l'intégration de réacteurs incinérateurs. Malgré ses limites, ISF a l'avantage d'être utilisable avec des réacteurs à sels fondus. Les codes plus complexes comme COSI (CEA) [114], CLASS (CNRS) [115] ou TIRELIRE-STRATEGIE (EDF) [116] sont conçus pour simuler des parcs avec une grande précision sur les matières entrantes et sortants, incluent parfois le transport des matières, etc. Des développements spécifiques seront à faire sur ces codes, car ils nécessitent de

nombreuses données d'entrées et de sorties pour pouvoir intégrer des RSF dans les scénarios, notamment pour créer les modèles de création et d'évolution de combustible permettant à ces outils d'être dynamiques.

3.4 Méthodes de caractérisation neutroniques

Les méthodes de caractérisation sont présentées dans cette section et sont appliquées dans les chapitres suivants. Elles portent sur le volume critique et la teneur en actinides (section 3.4.1), l'efficacité d'incinération des transuraniens (section 3.4.2), la production d'éléments gênants (section 3.4.3), les coefficients de contre-réaction (section 3.4.4) et les dégâts d'irradiation (section 3.4.5).

3.4.1 Sensibilités de la corrélation volume avec la teneur en actinides

Comme indiqué précédemment, à chaque composition de sel combustible correspond un unique volume critique de cœur. Ceci est vrai pour une configuration donnée (matériaux, géométrie, vecteur isotopique du combustible) en imposant le placement sur l'eutectique. Ainsi, le volume critique dépend finalement tout autant de ce qui se situe autour du cœur que de la composition du sel combustible. Ainsi, des sensibilités sur le volume critique ont été réalisées pour avoir un aperçu de ce qui impacte fortement ou non le design du circuit combustible. La géométrie pour le calcul neutronique est donc fixée selon la figure 3.11 et le code Optimisation de la Criticité Actinides Volume (OCtAV) détermine le volume de la zone critique (section 3.3.2).

3.4.1.a Évolution du volume critique selon l'enrichissement du chlore et la teneur du sel combustible en plutonium

La géométrie de référence présentée en figure 3.11 avec un réflecteur radial lourd en acier 316H est utilisée pour établir une corrélation entre les volumes critiques et la teneur en actinides dans le sel. Le calcul des volumes critiques dépend du solvant comme explicité en section 3.2.1. Outre le solvant, le chlore lui-même a un impact. En effet, le chlore naturel (76% ^{35}Cl - 24% ^{37}Cl) capture et diffuse beaucoup les neutrons à cause de l'isotope 35 dans la zone épithermique/rapide. Différents enrichissements en ^{37}Cl seront considérés en section 4.2.1.

Le calcul du volume critique le long de la ligne eutectique sera réalisé avec OCtAV pour différents vecteurs isotopiques d'actinides. En effet, comme explicité en section 1.3.2.c, les crayons de combustible REP doivent contenir davantage d' ^{235}U pour compenser la perte en qualité fissile du plutonium recyclé. On s'attend donc à un impact sur le volume critique du cœur en fonction de la qualité du combustible introduit, plutonium ou mélange d'actinides mineurs. Les chapitres 4 et 5 s'intéressent uniquement à un combustible plutonium et le chapitre 6 analyse des vecteurs plutonium + actinides mineurs.

3.4.1.b Impact du matériau du réflecteur radial

Différents matériaux de réflecteurs sont envisageables : des aciers (Hastelloy N, 316H), céramiques (Al_2O_3 , MgO, SiC) ou graphite. Le choix de l'Hastelloy N vient de son développement et de son utilisation dans le MSRE, alliage résistant à la corrosion avec des sels fondus fluorures malgré quelques faiblesses en présence de certains produits de fission [70]. L'alliage NiCrW, utilisé dans le MSFR de référence et développé pour résister aux hautes températures [117], n'a pas été retenu à cause de la teneur importante en tungstène, qui capture beaucoup les neutrons par réaction (n,γ) , transformant de manière importante le réflecteur radial (voir annexe C). Les aciers permettent de réfléchir les neutrons sans trop les ralentir contrairement au graphite. L'étude d'un réacteur à réflecteur radial en graphite a été envisagée pour la limitation du volume critique (environ la moitié d'un cœur à réflecteur acier) et donc une compacité plus importante, mais le risque est d'enrichir l'inventaire en actinides mineurs. Les céramiques peuvent être vues comme un compromis entre graphite et aciers, ayant l'avantage de résister aux hautes températures ($>1000^\circ\text{C}$). L'impact du matériau de réflecteur sur le volume critique est analysé en section 4.2.3.

3.4.1.c Effet de la part hors cœur

Le MSFR de référence contenant 50% de sel combustible dans le cœur, le convertisseur de TRU s'oriente également sur une répartition 50% en cœur et 50% hors cœur. Cependant, il est envisageable de déséquilibrer la fraction de sel en cœur, avec par exemple plus de sel en cœur pour limiter la masse de sel qui n'est pas irradiée ou moins de sel en cœur pour échanger plus de chaleur avec l'intermédiaire. Le calcul du volume critique pour une part en cœur de 33%, 50% et 66% est effectué dans la section 4.2.4 afin d'estimer l'impact neutronique du changement de répartition des volumes de sel combustible.

3.4.1.d Sensibilité à la masse volumique

Comme indiqué dans l'annexe A, de grandes incertitudes existent sur la connaissance des paramètres physico-chimiques. Bien que le calcul de la densité par les volumes ioniques soit une méthode éprouvée, les données expérimentales utilisées ne sont pas récentes et ne concernent que le mélange NaCl-MgCl_2 et non le sel ternaire. Ainsi, la masse volumique utilisée dans les calculs de volumes critiques n'est pas tabulée. Pour connaître l'impact sur le dimensionnement du réacteur, l'impact d'une erreur systématique de 10% sur la densité du sel combustible est étudié en section 4.2.5.

3.4.1.e Impact de la base de données sur le calcul du volume critique

Le calcul du volume critique s'effectue à l'aide d'un code de calcul neutronique utilisant une liste de sections efficaces pour tous les noyaux présents dans la géométrie. Le choix de la base de données repose sur la compatibilité des outils utilisés ou la réévaluation de certains éléments qui sont potentiellement impactants. Ainsi, au vu des dernières avancées en matière d'évaluation et les compatibilités avec les outils utilisés, le choix se porte sur la librairie JEFF 3.3 pour les calculs de cette thèse. Toutes les sections efficaces ne sont cependant pas disponibles pour tous les noyaux. En effet, le code OCTAV est actuellement couplé à MCNP, qui utilise les sections efficaces lues et interpolées en température par NJOY 2016. Ainsi, NJOY n'arrive pas à lire certains noyaux ou bien

n'est pas compatible avec le nouveau format des fichiers de sections efficaces, comme ENDF\ B-VIII. L'utilisation de la base de données JEFF 3.3 est en réalité un mélange de sections efficaces (JEFF 3.3/3.2.1/3.1) dont la majorité vient de JEFF 3.3, aussi nommée base principale (BDD_p).

L'impact du choix de la BDD_p (JEFF 3.3, JEFF 3.1.1 et ENDF\B-VI) sur le volume critique sera déterminé sur des combustibles plutonium en section 4.2.6.

3.4.2 Efficacité de conversion

L'efficacité de conversion est une notion au centre du design d'un réacteur brûleur de TRU. Elle reflète en effet sa capacité à faire disparaître les actinides au profit d'éléments plus facilement gérables (durée de vie et décroissances β/γ), comme des produits de fission dont les durées de vie sont de l'ordre de la dizaine aux milliers d'années. Malheureusement, une seule définition de l'efficacité de conversion η n'est pas simple à donner. Il est possible d'en formuler plusieurs :

- Mobilisation de matière :

$$\eta(t) = \frac{\int_0^t m_{\text{fissionnée}}}{m_{\text{initiale}} + \int_0^t m_{\text{alimentée}}} \quad (3.3)$$

Un convertisseur efficace selon l'équation 3.3 est un réacteur qui permet de consommer par fissions de la matière ($\int_0^t m_{\text{fissionnée}}$) sans nécessiter d'en mobiliser trop en début de vie (m_{initiale}) ni au cours du fonctionnement à cause d'une suralimentation compensant les fissions mais aussi les captures $\int_0^t m_{\text{alimentée}}$. Le critère de mobilisation sert à déterminer les configurations où le réacteur sert autant de stockage que d'incinérateur, ce qui n'est pas intéressant.

- Proportion de fissions :

$$\eta = \frac{\tau_f}{\tau_a} = \frac{\tau_f}{\tau_c + \tau_f} \quad (3.4)$$

Un incinérateur efficace consomme plus de matière qu'il n'en produit (tout l'inverse d'un réacteur surgénérateur). Pour cela, il faut que les actinides fissionnent (τ_f) beaucoup plus qu'ils ne capturent (τ_c), comme présenté en section 1.2.2 et illustré par l'équation 3.4.

- Consommation de transuraniens :

$$\text{bilan}(t) = \text{création} - \text{disparition}^{\text{fission/capture/décroissance}} - \text{disparition}^{\text{extraction}}$$

$$\begin{aligned} \text{disparition}^{\text{neutronique/décroissance}} &= m_{\text{cœur}}(t) + \int_0^t \text{extraction}(t) \\ &\quad - m_{\text{init}} - \int_0^t \text{alimentation}(t) \end{aligned} \quad (3.5)$$

Le bilan matière en cœur des isotopes – ou éléments – peut être effectué au cours du temps grâce à l'équation bilan 3.5. Il donne à un instant t la consommation ou production d'un élément dans le réacteur depuis le démarrage, et permet donc de déterminer si la conversion est efficace. Un bilan positif impliquera une création de matière sur l'ensemble du système, là où un bilan négatif indiquera une consommation nette.

- Évolution du vecteur isotopique. Une autre manière d'évaluer la qualité de l'incinération est de comparer l'évolution temporelle des vecteurs isotopiques et des proportions massiques des différents éléments et isotopes.
- Un critère sur l'augmentation ou la diminution du nombre de colis CSD-V produit, ainsi que la radiotoxicité associée, peut également être un critère d'efficacité de l'incinération, l'objectif initial étant de réduire les inventaires en matières finales. Le code CALCIFER, présenté en section 3.3.5, sera utilisé pour qualifier les effluents du retraitement des sels combustibles.

Il est possible de regarder également le changement de la composition du sel combustible en regardant les limites du retraitement. En effet, peut-être existe-t-il des concentrations en certains éléments ou isotopes qui gênent le retraitement (chaleur résiduelle, irradiation des appareils, potentiels d'oxydoréduction...) et qui devraient donc être limités.

On s'intéressera à comparer les différentes définitions de l'efficacité pour estimer les similarités ou différences afin de conclure sur un possible critère global.

3.4.3 Production d'éléments délétères

À l'instar du fluorure de lithium dans le MSFR de référence, les sels chlorures vont également produire un radioélément principal à partir du solvant : le ^{36}Cl ($T_{1/2} = 3\text{E}5$ années). La figure 3.16 présente les sections efficaces microscopiques de production du ^{36}Cl à partir du ^{35}Cl et du ^{37}Cl . On constate que la principale source de production de ^{36}Cl est la réaction (n, γ) sur le ^{35}Cl , 76% du chlore naturel. Au-delà de 10 MeV, la production par $(n, 2n)$ devient largement prédominante. Une étude sur l'enrichissement du chlore afin de limiter le ^{35}Cl est présentée en section 4.2.1.

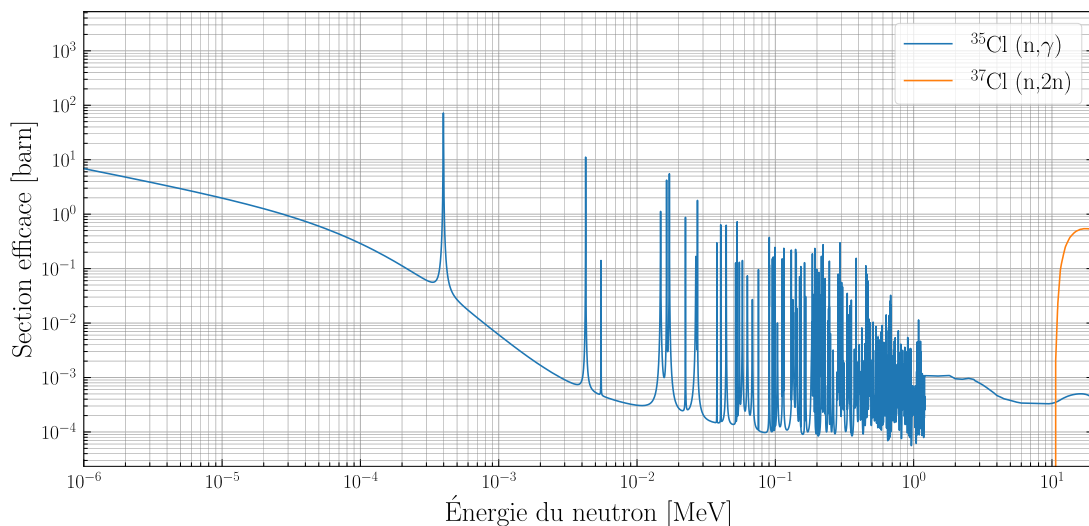


FIGURE 3.16 – Sections efficaces microscopiques de production du ^{36}Cl à partir des isotopes naturels du chlore (^{35}Cl et ^{37}Cl) [JEFF 3.3]

Ce radioisotope est problématique en raison de son stockage difficile sur de longues durées hors du sel (déchets post fonctionnement), car il est volatil et mobile. Un calcul de radiotoxicité est réalisé dans chaque chapitre afin de quantifier l'impact d'un relâchement complet du ^{36}Cl produit. Les données du tableau 3.8 associées à l'équation 3.6 indiquent la méthode utilisée en sections 4.4.5, 5.4.6 et 6.4.5.

$$R(t) = F_d \cdot \lambda_{rad} \cdot N(t) \quad (3.6)$$

avec $R(t)$ la radiotoxicité en sievert à l'instant t , F_d le facteur de dose, λ_{rad} la constante de désintégration radioactive et $N(t)$ la quantité d'atomes libérée.

TABLEAU 3.8 – Données de calcul de radiotoxicité du ^{36}Cl

	M [g/mol]	Mode de désintégration principal	E_{max} [MeV]	$T_{1/2}^{rad}$ [années]	λ_{rad} [1/s]	F_d [Sv/Bq]
^{36}Cl	35.5	β^-	0.7	3.01E5	7.30E-14	9E-10

La production de soufre pose également question pour la corrosion des matériaux de structure. Il est suspecté de l'augmenter. Les modes de production varient selon les isotopes du chlore présents, principale source de soufre dans les réacteurs rapides à sels fondus chlorures. La figure 3.17 présente les sections efficaces microscopiques de production des trois principaux isotopes du soufre. On note que la majorité de la production se fait à haute énergie (> MeV) hormis la réaction (n,p) sur le ^{36}Cl . Sous réserve que cet isotope soit peu produit, cette réaction devrait ne pas être prédominante. Ainsi, les configurations à spectre neutronique rapide devraient voir une production de soufre plus importante (sections 4.4.5, 5.4.6 et 6.4.5).

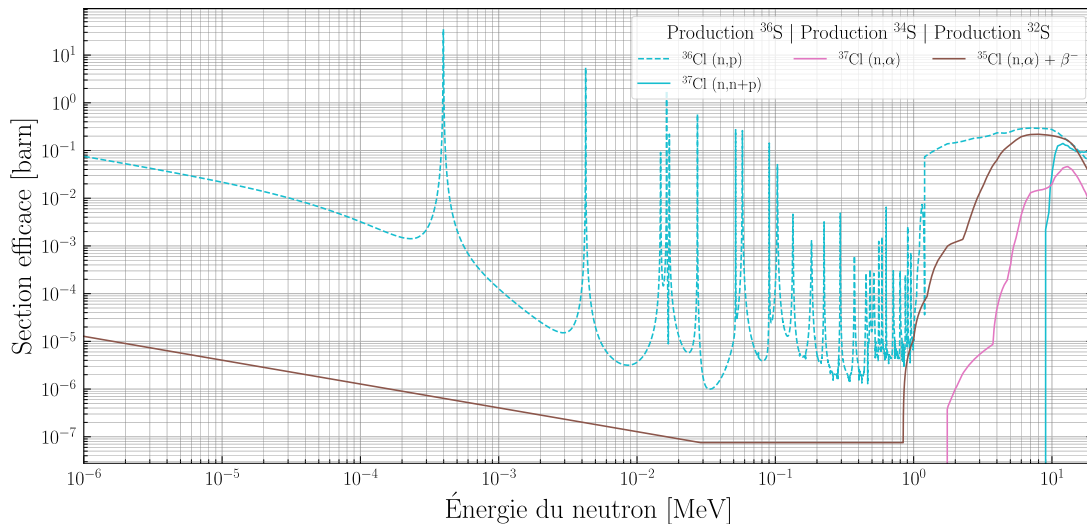


FIGURE 3.17 – Sections efficaces microscopiques de production de trois isotopes du soufre à partir des isotopes ^{35}Cl , ^{36}Cl et ^{37}Cl [JEFF 3.3]

Ainsi, il serait préférable de limiter au maximum la production de ces deux éléments (^{36}Cl et S), c'est-à-dire limiter les captures sur le solvant. Leur quantité sera donc surveillée pour comparer les différentes configurations entre elles, mais aucun plafond n'est actuellement déterminé.

3.4.4 Contre-réactions de température

Les contre-réactions de température sont des mécanismes de régulation intrinsèque de la puissance du cœur. Pour assurer une stabilité sans aide extérieure, des coefficients de contre-réaction (CCR) négatifs sont nécessaires.

3.4.4.a Effet Doppler

Avec le changement local de température, les sections efficaces de capture et de fission vues par les neutrons vont évoluer. Si la température augmente, les résonances (capture, fission etc.) vont s'élargir du point de vue du neutron, résultant en une meilleure efficacité des absorptions (figure 3.18). En revanche, la diminution de la température du sel combustible induit une diminution des réactions. Ainsi, un neutron aura une probabilité plus importante d'être capturé à plus haute température (par rapport à la fission) qu'à la température de fonctionnement nominal, et vice-versa. Cet effet aura donc pour conséquence de diminuer le flux de neutrons et donc de baisser la puissance produite et donc la température du combustible. Cet effet est quasi immédiat puisqu'il dépend de la vitesse des neutrons. Pour caractériser l'effet Doppler, la variation de réactivité est estimée lorsque la température du combustible est modifiée, mais que la densité reste identique à la densité nominale.

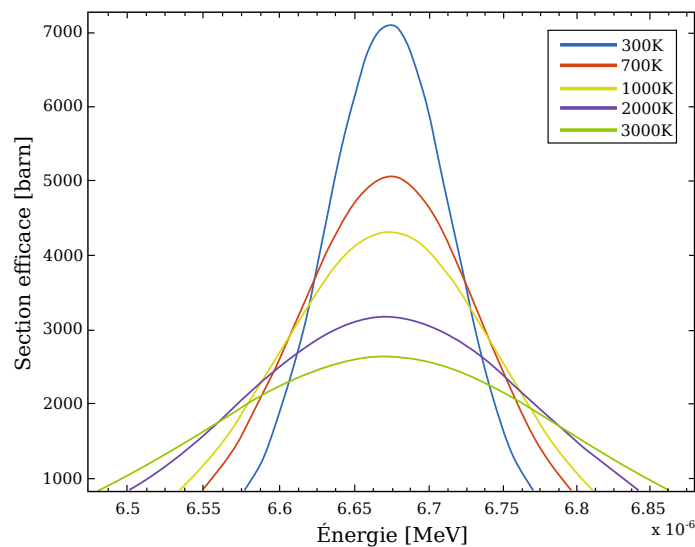


FIGURE 3.18 – Élargissement Doppler de la résonance de capture neutronique de ^{238}U à 6.67 eV, d'après [118]

3.4.4.b Effet de densité

Est appelée effet de densité, la variation locale de la densité suite à l'augmentation ou la diminution de la température. Une dilatation du sel va diminuer les sections efficaces macroscopiques d'absorption et permettre plus de fuites de neutrons, donc diminuer le flux neutronique dans la zone critique. Une stabilisation de la puissance sera alors observée. L'effet de densité agira après l'effet Doppler puisque le temps caractéristique de dilatation dépend de la vitesse du son dans le milieu (environ 1500 m/s donc de l'ordre de la milliseconde pour un cœur de 2 m^3) [119]. Pour caractériser l'effet de densité, la variation de réactivité est estimée lorsque la densité varie avec la température du

combustible, mais que les sections efficaces du sel correspondent à la température de fonctionnement nominal. Au vu des incertitudes existant sur l'évaluation de la masse volumique du sel ternaire considéré, la dilatabilité d'un sel donné est supposée identique au cours de l'irradiation, quelle que soit la température du sel. Elle est donc réestimée en fonction de la composition du sel au cours du temps.

3.4.4.c Méthode d'estimation et hypothèses sur le résultat

Le calcul des coefficients de contre-réaction se déroule de la façon suivante :

- À un instant t du fonctionnement, extraction de la composition du sel combustible et de sa densité.
- Calcul de la réactivité du sel à différentes températures autour de la température nominale de fonctionnement [600, 700, 800, 1000, 1200, 1500, 1800] K et selon l'effet étudié (Doppler ou densité) avec *l'ensemble des matériaux de structure considérés neufs et à température de fonctionnement nominale*.
- Régression polynomiale d'ordre 3 (équation 3.8) ou logarithmique (équation 3.7) selon l'effet pour l'estimation de l'évolution du coefficient de contre-réaction avec incertitude statistique

$$f_{\text{Doppler}}(T) = b + a \cdot \ln(T/800) \quad (3.7)$$

$$f_{\text{Densité}}(T) = a \cdot T^3 + b \cdot T^2 + c \cdot T + d \quad (3.8)$$

La section 4.4.7.a s'attachera à vérifier ce schéma de calcul.

Dans le cas de l'utilisation de sels chlorures, l'énergie moyenne des neutrons est très élevée et les neutrons sont peu capturés. Ainsi, il est attendu que l'effet Doppler soit faible. Lors du fonctionnement nominal du réacteur, l'effet de densité devrait pouvoir permettre la régulation intrinsèque du cœur, mais les cas particuliers de remplissage ou de transitoires rapides doivent être regardés avec intérêt si l'effet Doppler est faible.

3.4.5 Irradiation des matériaux

Comme évoqué dans la section 3.2.1, un sel solvant chlorure, adapté au concept convertisseur pour son spectre rapide, va induire inévitablement des dégâts importants dans les matériaux de structure. Cela se traduit particulièrement par des Déplacement Par Atome (dpa) et des poches d'hélium et d'hydrogène qui provoquent des gonflements.

Le code REM permet le calcul des dpa dans les matériaux de structure en utilisant le code de réaction MT 444. La norme utilisée pour le calcul de dpa influe sur le résultat : NRT-dpa (modèle de Norgett, Robinson et Torrens [120]) ou ARC-dpa (athermal recombination corrected dpa [121]). Le modèle NRT-dpa prend en compte trois régimes d'énergie pour le calcul des dpa. L'équation 3.9 présente le modèle de calcul des dpa pour une énergie cinétique de la particule incidente T_d , avec E_d l'énergie de déplacement (propre à chaque matériau) de lors de la dizaine d'eV.

$$N_d(T_d) = \begin{cases} 0 & , 0 < T_d < E_d \\ 1 & , E_d < T_d < \frac{2E_d}{0.8} \\ \frac{0.8T_d}{2E_d} & , \frac{2E_d}{0.8} < T_d \end{cases} \quad (3.9)$$

Le modèle NRT, en vigueur depuis les années 1970, ne prend pas bien en compte les mécanismes de recombinaisons des paires de Frenkel en fin de cascade de collisions, suite à l'impact de particules incidentes de haute énergie. La correction apportée par le modèle ARC-dpa permet de réduire drastiquement l'estimation des lacunes et défauts induits (dpa) dans les aciers d'un facteur 2 à 3 par l'ajout d'un facteur $\xi_{\text{arc-dpa}}(T_d)$ modélisant la survie des défauts (équation 3.10) [122]. La méthode NRT-dpa ne permet pas non plus d'estimer correctement le mélange atomique résultant de la collision, où de nombreux atomes se replacent (méthode ARC-rpa, replacement per atom) [121].

$$N_d(T_d) = \begin{cases} 0 & , 0 < T_d < E_d \\ 1 & , E_d < T_d < \frac{2E_d}{0.8} \\ \frac{0.8T_d}{2E_d} \xi_{\text{arc-dpa}}(T_d) & , \frac{2E_d}{0.8} < T_d \end{cases} \quad (3.10)$$

L'estimation faite par REM du taux de dpa est effectuée à partir de la méthode originelle d'estimation des dpa (équation 3.11) avec les sections efficaces calculées par LEGACY-NJOY 2016³, ce qui correspond à une surestimation des dpa car peu de recombinaisons sont prises en compte. Il est à noter que peu de différences semblent être observables entre LEGACY-NJOY et NRT-dpa pour les dpa des cuves de REP sur le fer et le nickel à 300 K [122]. Les résultats devraient également être similaires pour des RSF, où les énergies de neutrons sont très largement supérieures à l'électron-volt. Le passage à la méthode ARC-dpa semble présager d'une diminution d'un facteur 3 à 4 des déplacements d'atomes sur le fer et le nickel, composants principaux du réflecteur radial du réacteur étudié dans ce travail. L'hypothèse est faite qu'un comportement similaire est observable à haute température (800 K). Ce modèle n'est à ce jour pas intégré dans les codes de calculs présentés mais les premières estimations réalisées sont présentées en sections 4.4.6.a et 6.6. Les résultats présentés se basent sur l'utilisation de différentes versions de NJOY (une par élément à corriger), où les sections efficaces MT444 du fer et du nickel ont été corrigées, d'après le travail de R. Vuiart [122]. Davantage de données issues de la littérature sont nécessaires pour corriger la section efficace MT444 de tous les éléments présents dans les matériaux de structure. Des développements pour intégrer ce modèle au sein des codes de calcul (REM par exemple) seront également à faire.

$$\tau_{\text{dpa}} = \frac{0.8 \cdot E_0 \cdot \sigma_e \cdot \Phi}{2 \cdot E_d} \quad (3.11)$$

avec E_0 l'énergie du neutron incident, σ_e la section efficace de déplacement calculée par NJOY, Φ le flux neutronique et E_d l'énergie de déplacement du matériau.

Bien que les neutrons soient rapides et voyagent loin, leur pénétration du réflecteur radial est faible, car leur interaction avec le matériau tend à les renvoyer vers la zone critique. Ainsi, les dépôts d'énergies, suite à ces interactions, sont localisés proches du sel. Un découpage des réflecteurs est nécessaire pour localiser les zones les plus touchées et estimer le temps de remplacement des matériaux de structure. La figure 3.19 illustre le découpage utilisé pour le calcul des dpa et des poches d'hélium. Le réflecteur radial est découpé uniformément sur la hauteur en 5 tranches (notées de 0 à 4). Le réflecteur axial est découpé en 5 couronnes (notées de α à ϵ) régulièrement espacées (équation 3.12), et en 7 tranches notées de A à G), d'épaisseur croissante (équation 3.13).

3. LEGACY-NJOY est la version standard de NJOY

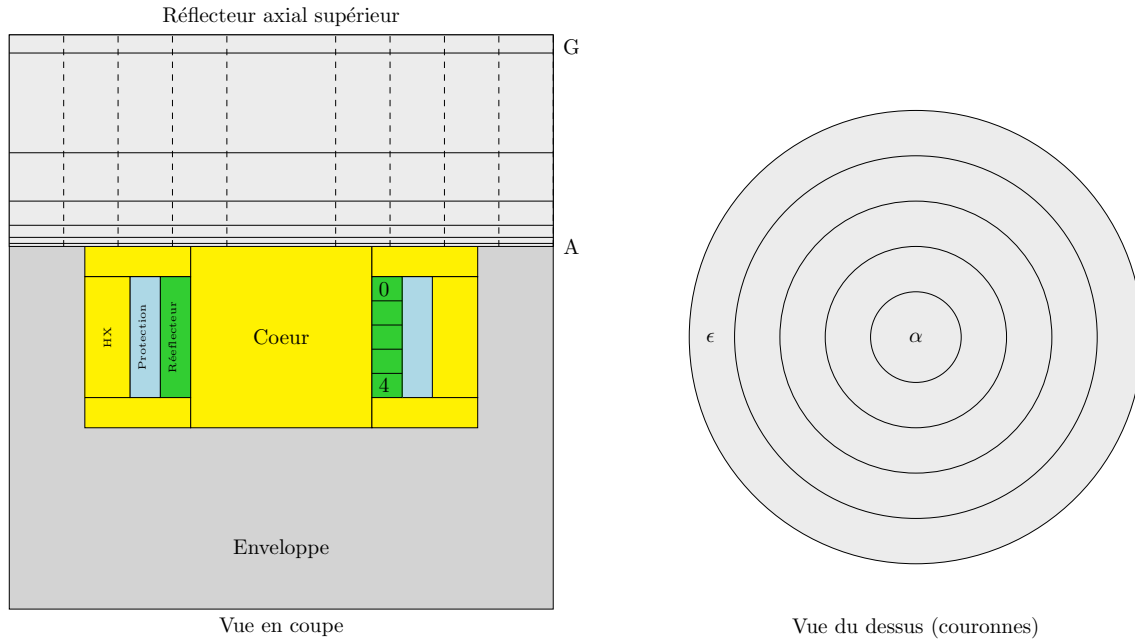


FIGURE 3.19 – Vues schématiques du réacteur avec le découpage des tranches et des couronnes des réflecteurs

$$\Delta r_{\text{couronnes}} = \frac{\text{rayon réacteur}}{\text{nombre de couronnes}} \quad (3.12)$$

$$e_n = e_0 \cdot 2^n \quad (3.13)$$

avec e_0 l'épaisseur/rayon de la première tranche du réflecteur axial. On considère une première tranche de 5 mm de haut proche du cœur, puis l'épaisseur de chacune d'entre elles est doublée par rapport à la précédente.

Les productions d'hélium et d'hydrogène sont accessibles directement par la relecture des fichiers de simulation dans les mêmes zones que celles utilisées pour l'estimation des dpa. Leur localisation exacte ne sera pas accessible, mais il sera néanmoins possible de quantifier la production volumique dans les réflecteurs en atomic parts per million (appm).

3.5 Conclusions du chapitre

Le choix du sel solvant est crucial dans un réacteur à sels fondus. Il va, d'une part, déterminer en grande partie la neutronique du système et, d'autre part, avoir un rôle physico-chimique primordial (corrosion, retraitement, viscosité, etc.). Les éléments du solvant comme ceux du réflecteur vont, en effet, influencer sur l'énergie des neutrons, en diffusant ou en capturant, et contribuer à faciliter, ou non, les interactions des neutrons avec le combustible (actinides). Ainsi, le combustible capturera et fissionnera plus ou moins facilement selon que les neutrons ont une énergie basse ou élevée. Cela impacte

par exemple le volume de la zone critique, et par conséquent, la masse d'actinides à mobiliser. Des neutrons à hautes énergies auront du mal à interagir avec les actinides et les fissions seront peu nombreuses, ce qui nécessite une masse critique (masse de combustible nécessaire au démarrage de la réaction en chaîne) plus importante et fera augmenter le volume de la zone critique, mais diminuera les probabilités de captures et donc de créations d'actinides mineurs. Le choix d'un sel chlorure pour une application incinérateur d'un réacteur à sels fondus est à la fois motivé par le spectre plus rapide que les sels fluorures et par les teneurs incorporées en plutonium et transuraniens plus grandes qui peuvent être obtenues.

Parmi les solvants considérés, l'utilisation d'un solvant binaire permet d'allier faible température de fusion et flexibilité sur les teneurs incorporables des transuraniens dans le sel via la ligne eutectique. Le choix du second solvant s'est effectué parmi cinq éléments naturellement présents : baryum, calcium, césium, magnésium et strontium. Parmi eux, certains capturent beaucoup les neutrons (production de radioisotopes et nécessité d'avoir beaucoup de combustible) comme le baryum ou le césium ; le calcium a un effet plus faible sur le volume de la zone critique, mais produit aisément du ^{41}Ca , élément radioactif à vie longue. Le magnésium et le strontium sont plutôt équivalents neutroniquement, ce dernier pouvant diluer la radioactivité induite par le strontium issu des fissions (et radioactif), mais le manque de données physico-chimiques sur le chlorure de strontium fait pencher la balance vers le magnésium.

De nombreuses hypothèses ont été faites sur le mélange ternaire $\text{NaCl-MgCl}_2\text{-PuCl}_3$ concernant les propriétés physico-chimiques, par manque de données disponibles, et le dimensionnement d'un réacteur incinérateur nécessite d'étudier plusieurs paramètres impactants (matériaux de réflecteur, proportion de sel en cœur, bases de données utilisées pour les calculs neutroniques...). Des études de sensibilités neutronique et thermohydraulique sont donc nécessaires pour orienter la conception du réacteur et ont été définies.

Ladite conception visant à incinérer les transuraniens, des définitions d'une efficacité d'incinération ont été proposées et seront utilisées pour éventuellement déterminer celle qui semble la plus adéquate. Certaines s'intéressent aux flux de matière de manière générale (mobilisation de combustible, production de flux de déchets et production de colis) ; la proportion de fission regarde en revanche la capacité des actinides à fissionner plutôt qu'à capturer dans le sel ; et le bilan de matière combine flux, mobilisation et disparition des actinides.

Les codes qui sont utilisés permettent de couvrir un grand nombre d'aspects du design et de conception d'un réacteur. OCTAV détermine le point de fonctionnement initial du réacteur, puis la neutronique évoluant au cours de l'irradiation, REM simule l'évolution du réacteur en fonctionnement nominal. L'optimisation thermohydraulique, associée à une corrélation neutronique pour le calcul du volume de la zone critique du circuit combustible avec SONGE complète le design en ajoutant les capacités d'extraction de chaleur. Le script CALCIFER et le module ISF s'intéressent à l'aval du réacteur et son intégration dans un parc. L'ensemble de ces résultats et définitions aidant le design est appliqué dans le chapitre 4 et les chapitres ultérieurs à l'aide des codes présentés.

4

Caractérisation d'un réacteur convertisseur de plutonium à sels fondus

Ce chapitre présente les caractéristiques types d'un RSF convertisseur alimenté en plutonium, défini grâce aux méthodes de caractérisation neutroniques présentées dans le chapitre 3. Différentes caractérisations de sensibilités au démarrage sont réalisées afin de mettre en évidence les paramètres influents sur la neutronique. La caractérisation au cours de l'évolution des changements dans les vecteurs isotopiques ainsi que de l'efficacité d'incinération complètent les connaissances sur l'aptitude des réacteurs à sels fondus à incinérer le plutonium. Le dimensionnement du circuit combustible grâce au code SONGe est également présenté en fin de chapitre pour confirmer l'hypothèse de puissance spécifique en cœur formulée. La possibilité de l'augmenter est également considérée.

Sommaire

4.1	Isotopie du combustible utilisé	87
4.2	Sensibilités du volume critique du cœur	87
4.2.1	Évolution du volume critique selon l'enrichissement du chlore	88
4.2.2	Sensibilité à la qualité isotopique du vecteur de plutonium .	90
4.2.3	Effet du matériau du réflecteur radial	92
4.2.4	Effet de la part hors cœur	95
4.2.5	Sensibilité à la masse volumique	96
4.2.6	Impact de la base de données sur le calcul du volume critique	97
4.2.7	Impact de la variation de volume sur la réactivité	99
4.2.8	Conclusions sur les sensibilités sur le volume critique	100
4.3	Cas enveloppe du volume critique	101
4.4	Études neutroniques du réacteur en fonctionnement	102

4.4.1	Paramètres d'étude sur l'influence de la composition initiale sur l'évolution du réacteur	102
4.4.2	Évolution temporelle du réacteur	104
4.4.3	Efficacité de conversion	117
4.4.4	Effluents de retraitement envoyés à la vitrification	125
4.4.5	Production de chlore et de soufre	127
4.4.6	Dégâts d'irradiation	132
4.4.7	Contre-réactions de température	139
4.4.8	Perte de réactivité en réacteur	149
4.4.9	Production de colis CSD-V et radiotoxicité associée	150
4.5	Capacités d'extraction de chaleur par optimisation multicritères du circuit combustible avec le code SONGE	155
4.5.1	Paramètres physico-chimiques des sels	155
4.5.2	Validation de l'hypothèse de la puissance spécifique de 150 $MW_{th}.m^{-3}$	156
4.5.3	Augmentation de la puissance spécifique et coût d'optimisation	160
4.5.4	Conclusions d'optimisation	161
4.6	Conclusions du chapitre	162
4.6.1	Sensibilités	162
4.6.2	Évolution temporelle des matières	162
4.6.3	Efficacités de conversion	163
4.6.4	Contre-réactions de température	163
4.6.5	Dégâts d'irradiation	164
4.6.6	Production de colis de verre de déchets et radiotoxicité	164
4.6.7	Évacuation de la puissance thermique	164

4.1 Isotopie du combustible utilisé

Selon le besoin, les plutoniums ex-UOX, ex-MOX ou ex-MIX, dans le cadre d'un multirecyclage en REP, peuvent être envisagées pour le chargement et l'alimentation du réacteur. Ces plutoniums voient leur qualité se dégrader avec chaque irradiation. Cela se traduit par la diminution de la proportion de noyaux fissiles au profit des isotopes capturant fortement à faibles et moyennes énergies (voir figure 3.2). Afin d'étudier et de pouvoir concevoir un réacteur flexible sur son combustible d'alimentation (à l'instar du MSFR de référence), différents vecteurs isotopiques de plutonium sont utilisés dans ce chapitre. Le tableau 4.1 rappelle les vecteurs isotopiques présentés en section 3.2.3 avec la proportion de noyaux fissiles de chaque vecteur, image de la qualité du combustible. Plus cette teneur en noyaux fissiles est élevée, plus le combustible fissionne facilement et sera considéré de bonne qualité.

TABLEAU 4.1 – Vecteurs isotopiques molaires du plutonium utilisé pour l'inventaire initial et l'alimentation dans REM. Irradiation à $50 \text{ GW}_{\text{th}} \cdot \text{j/t}$, 5 ans de refroidissement

Isotope	ex-UOX ^a	ex-MOX ^a	ex-MIX ^b
²³⁸ Pu	3.10	4.21	5.71
²³⁹ Pu	52.14	38.17	32.39
²⁴⁰ Pu	25.20	32.44	31.29
²⁴¹ Pu	11.80	12.47	13.77
²⁴² Pu	7.76	12.71	16.84
% fissile	63.94	50.64	46.16

^a Calculs CESAR [103], issus de [104]

^b Calculs SMURE [123], issus de [104]

4.2 Sensibilités du volume critique du cœur

Cette section se focalise sur l'impact de différents paramètres sur le dimensionnement du circuit combustible du point de vue de la neutronique. La section 4.2.1 présente l'impact de l'utilisation d'un solvant enrichi ou non en ³⁷Cl sur le volume critique. Le vecteur isotopique et sa qualité influent également sur la masse critique nécessaire au démarrage (section 4.2.2). Le choix du matériau de réflecteur radial est un élément déterminant dans le spectre neutronique du réacteur (section 4.2.3). La part de sel hors cœur peut également amener une sensibilité sur le dimensionnement du circuit combustible (section 4.2.4). En section 4.2.5, les incertitudes des connaissances sur la masse volumique sont soulignées et l'impact sur le volume critique est quantifié. Différentes bases de données, dont sont issues les sections efficaces, sont utilisées par les équipes de recherche. L'impact du choix

de la base de données est présenté en section 4.2.6. Enfin, la section 4.2.7 s'intéresse au cas de la variation de réactivité induite par la construction de la zone critique et de son volume réel.

La géométrie de calcul neutronique est identique à la figure 3.11. Les matériaux seront précisés à chaque section.

4.2.1 Évolution du volume critique selon l'enrichissement du chlore

Pour ce calcul de sensibilité, on considérera de l'acier 316H pour le réflecteur radial et l'enveloppe. La figure 4.1 présente le calcul du volume critique pour différentes teneurs et qualités de plutonium (tableau 4.1) et illustre l'effet de la présence du ^{35}Cl dans le solvant. L'enrichissement en ^{37}Cl permet de gagner grandement sur le volume critique, surtout lorsque l'on considère de faibles teneurs en plutonium et donc de grands volumes de zone critique. En effet, le nombre d'atomes de chlore par atome de plutonium augmente avec la baisse de la teneur en actinides et ceci, combiné à une plus grande teneur en magnésium, favorise les diffusions (pertes d'énergie sur le solvant) et les captures sur le ^{35}Cl . Limiter cet isotope dans le solvant conduit donc à limiter les pertes de neutrons et réduire le volume minimum nécessaire à la criticité. L'effet des différents enrichissements très élevés en ^{37}Cl est faible sur le volume.

L'impact observé sur la proportion de fission, introduite en section 3.4.2, est très faible, comme illustré par la figure 4.2. Pour rappel, la proportion de fission est un indicateur proposé pour évaluer la capacité du réacteur à faire fissionner les actinides, afin de les transformer en produits de fission, au lieu de créer par capture radiative des actinides plus lourds et gênants tels que les actinides mineurs (demi-vie importante, radiotoxicité, etc.).

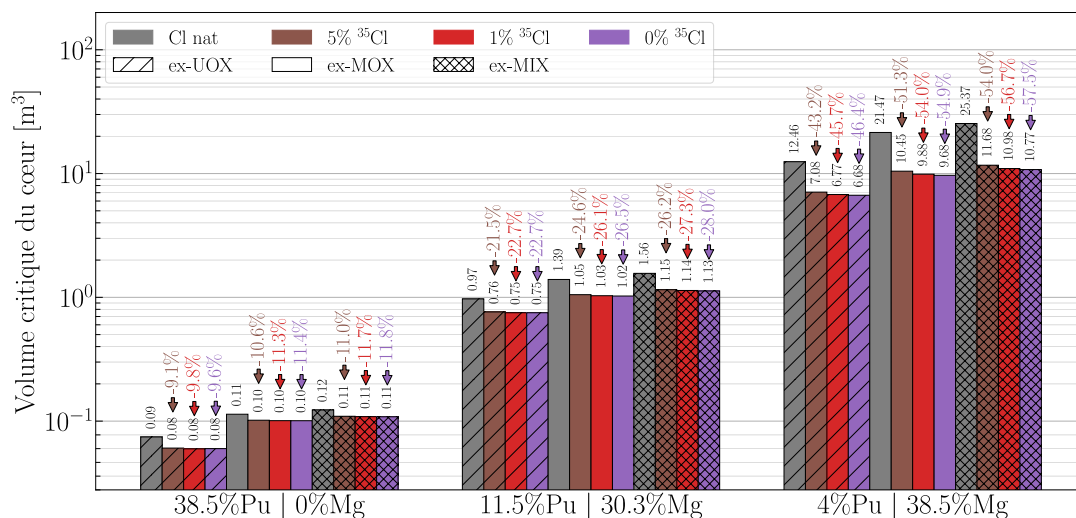


FIGURE 4.1 – Effet de l'enrichissement du chlore en ^{37}Cl sur le volume critique du cœur pour neuf configurations de sel combustible (le volume exact est indiqué au-dessus de chaque barre, avec la différence relative entre les cas *chlore naturel* et *chlore enrichi* à 95% / 99% / 100% en ^{37}Cl).

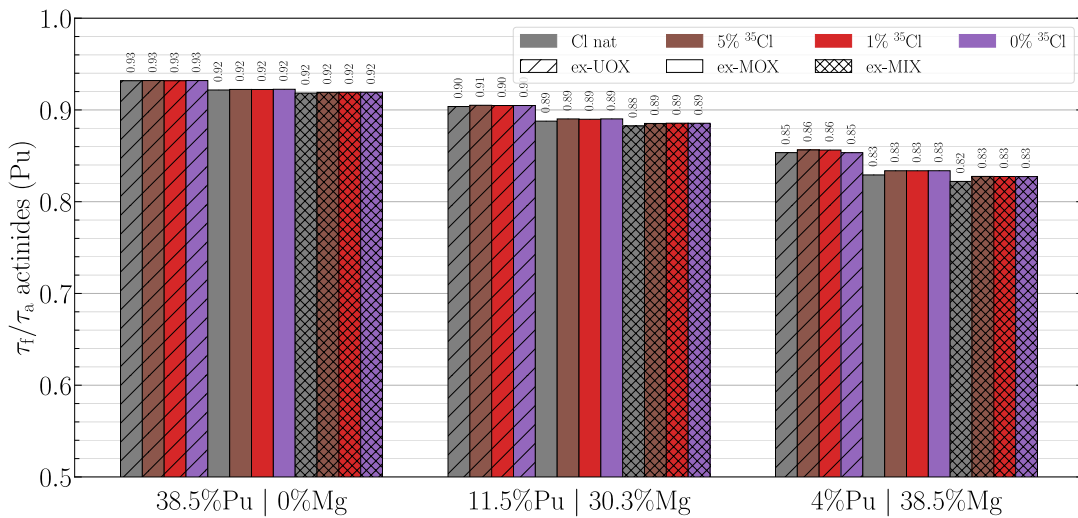


FIGURE 4.2 – Effet de l’enrichissement du chlore en ^{37}Cl sur la proportion de fission pour neuf configurations de sel combustible

Par ailleurs, il est nécessaire de prévenir la création de ^{36}Cl (voir section 3.4.3). La figure 4.3 indique le taux de capture, réaction (n, γ), au démarrage normalisé par la puissance thermique sur le ^{35}Cl , principal producteur de ^{36}Cl . De grandes différences sont visibles entre les trois enrichissements de chlore (pas de ^{35}Cl dans un chlore enrichi à 100% en ^{37}Cl) et amènent au choix d’un enrichissement en ^{37}Cl pour le solvant du sel fondu. Un chlore composé uniquement de ^{37}Cl est irréaliste et l’on estime qu’une teneur de 99% de ^{37}Cl est industriellement atteignable et à des coûts raisonnables. Nous considérerons donc cette composition du chlore dans nos études ultérieures. Plus de détails sur les quantités produites au cours de l’irradiation sont donnés en section 4.4.5.

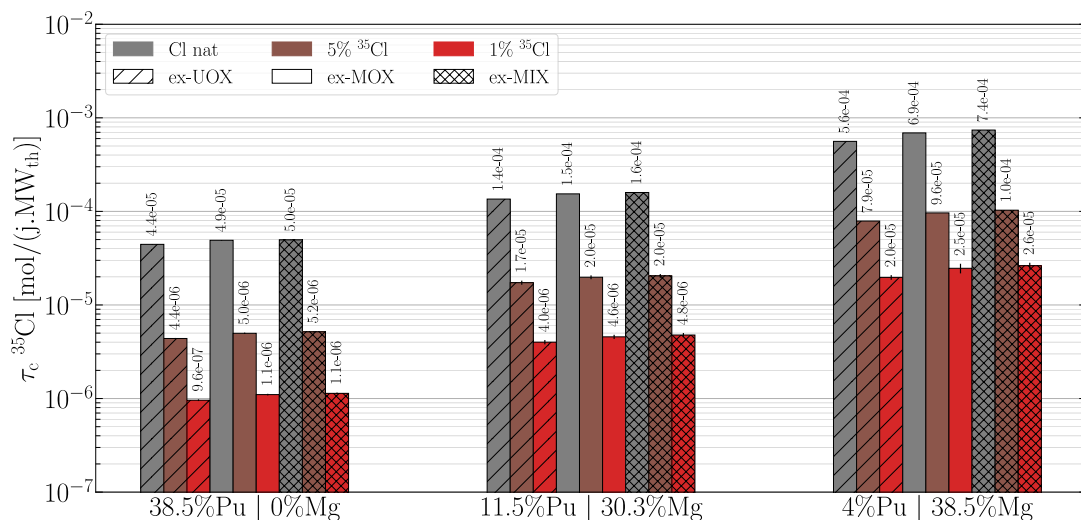


FIGURE 4.3 – Effet de l’enrichissement du chlore en ^{37}Cl sur le taux de capture au démarrage du ^{35}Cl par réaction (n, γ) pour neuf configurations de sel combustible

4.2.2 Sensibilité à la qualité isotopique du vecteur de plutonium

L'évolution du volume critique en fonction de la teneur en plutonium le long de la ligne eutectique est présentée en figure 4.4. Ce cas est considéré comme cas de référence avec l'utilisation d'acier 316H pour les matériaux des réflecteurs (axial et radial). On constate qu'une forte proportion de plutonium (et donc une faible teneur en magnésium) implique un petit volume critique, et vice-versa.

La qualité du vecteur isotopique de plutonium (teneur en noyaux fissiles) influe sur le volume critique. Lorsque le plutonium est de moins bonne qualité, suite à une ou plusieurs irradiations (ex-MOX ou ex-MIX), le volume nécessaire pour maintenir la réaction en chaîne est plus grand pour atteindre la masse critique.

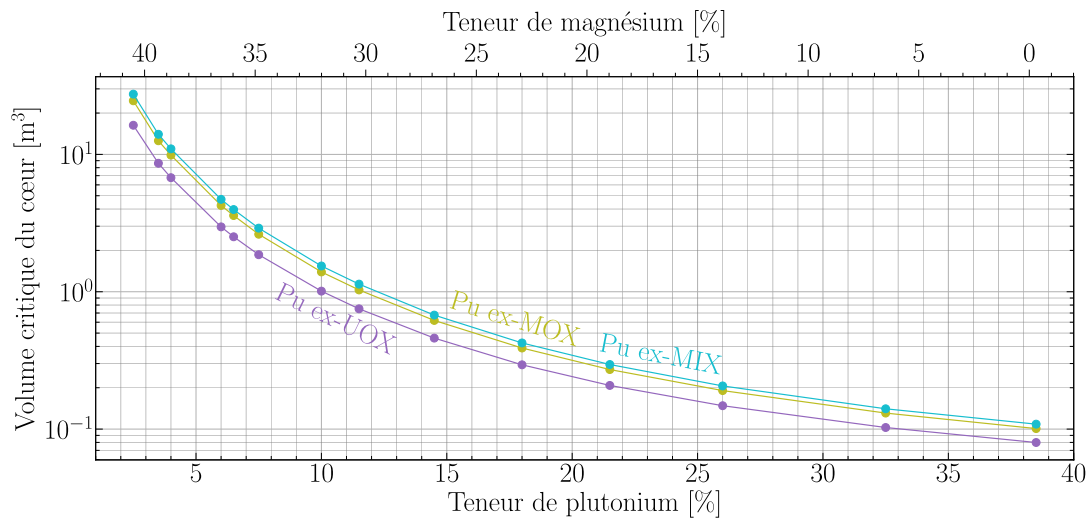


FIGURE 4.4 – Volume critique du cœur pour des teneurs en plutonium variant de 38.5% à 2.5%, trois vecteurs isotopiques [UOX, MOX, MIX] et un solvant $NaCl-MgCl_2$ pour un chlore enrichi à 99% en ^{37}Cl

L'augmentation progressive de la teneur en magnésium implique une dilution des noyaux de plutonium, obligeant les neutrons à parcourir de plus grandes distances avant de rencontrer de pouvoir induire une fission, ce qui fait ralentir les neutrons à cause des diffusions successives. La figure 4.5 présente le spectre neutronique pour trois teneurs de plutonium ex-UOX et montre que l'énergie moyenne des neutrons diminue franchement lorsque la teneur en magnésium augmente (tableau 4.2).

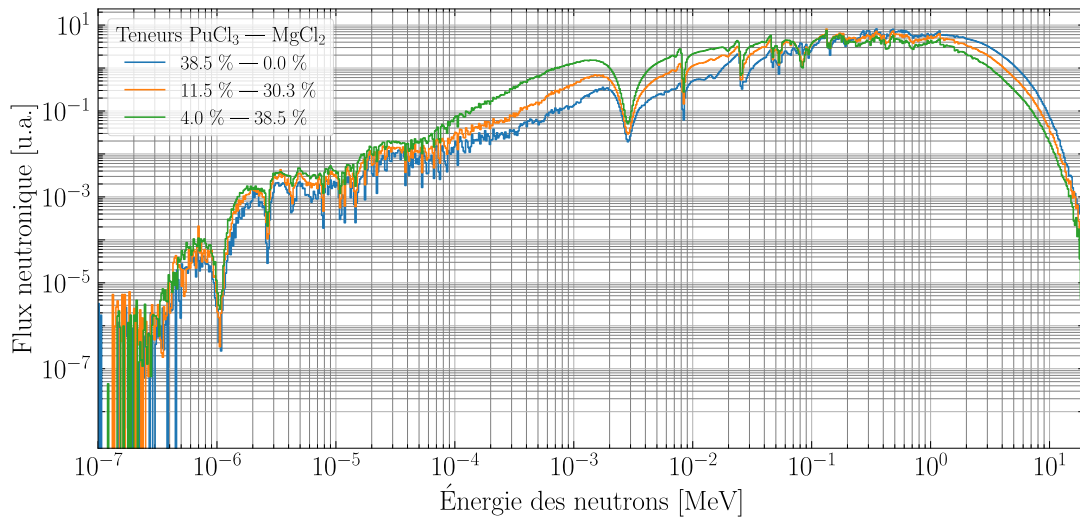
TABLEAU 4.2 – Énergies moyennes des neutrons du sel combustible et des neutrons induisant la fission selon la teneur en plutonium ex-UOX

Sel combustible	\bar{E} [keV]	E_{fission}^- [keV]
$38.5PuCl_3 - 61.5NaCl$	903	960
$11.5PuCl_3 - 58.2NaCl - 30.3MgCl_2$	647	676

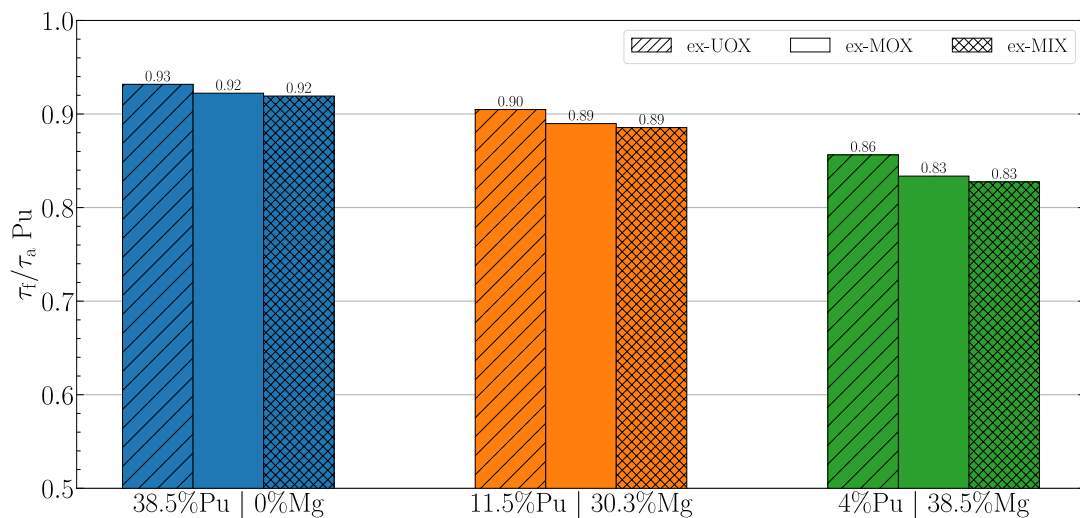
Suite à la page suivante

TABLEAU 4.2 – Énergies moyennes des neutrons du sel combustible et des neutrons induisant la fission selon la teneur en plutonium ex-UOX (Suite)

Sel combustible	\bar{E} [keV]	E_{fission} [keV]
$4\text{PuCl}_3 - 57.5\text{NaCl} - 38.5\text{MgCl}_2$	437	248

**FIGURE 4.5** – Spectre neutronique d'un sel ternaire $\text{NaCl-MgCl}_2\text{-Pu}_{\text{UOX}}\text{Cl}_3$ pour trois teneurs de plutonium [38.5%, 11.3% et 4%]

La diminution de l'énergie moyenne des neutrons dans la zone critique, associée à un rapport taux de fission / absorption également en diminution (figure 4.6) lorsque la teneur en magnésium augmente indique une moins bonne capacité d'incinération pour les grands volumes de cœur.

**FIGURE 4.6** – Proportion de fission selon la teneur en plutonium et le vecteur isotopique utilisé

4.2.3 Effet du matériau du réflecteur radial

Le tableau 4.3 présente les caractéristiques des réflecteurs utilisés pour cette étude de sensibilité. Seul le matériau du réflecteur radial est modifié. L'enveloppe (ou réflecteur axial) reste en acier 316H. L'impact du matériau de réflecteur radial sur le volume critique est montré en figure 4.7.

TABLEAU 4.3 – Caractéristiques des matériaux de réflecteur (graphite, céramiques et aciers). Les compositions des matériaux tiennent compte de l'abondance naturelle des isotopes de chaque élément constituant. Compositions en pourcent molaire

Matériau	Densité à 800 K	Élément	
Graphite naturel	2.1	^{12}C	98.93
		^{13}C	1.07
MgO	3.53	Mg	50
		O	50
Al_2O_3	3.95	Al	40
		O	60
SiC	3.16	Si	50
		C	50
316H[111]	8	C	0.46
		Si	1.48
		P	0.08
		Si	0.05
		Cr	18.11
		Mn	0.10
		Fe	66.94
		Ni	11.33
Mo	1.44		

Suite à la page suivante

TABLEAU 4.3 – Caractéristiques des matériaux de réflecteur (graphite, céramiques et aciers). Les compositions des matériaux tiennent compte de l'abondance naturelle des isotopes de chaque élément constituant. Compositions en pourcent molaire (Suite)

Matériau	Densité à 800 K	Élément	
		Élément	Valeur
Hastelloy N (Heat 5055 du MSRE) [124]	8.86	B	8.45E-4
		C	1.13E-2
		Al	2.53E-2
		Si	2.68E-1
		P	2.91E-3
		S	4.02E-3
		Ti	1.50E-2
		V	1.68E-1
		Cr	6.40
		Mn	5.94E-1
		Fe	3.29
		Co	9.23E-2
		Ni	6.47E1
		Cu	9.95E-3
		Mo	2.43E1
W	8.63E-2		

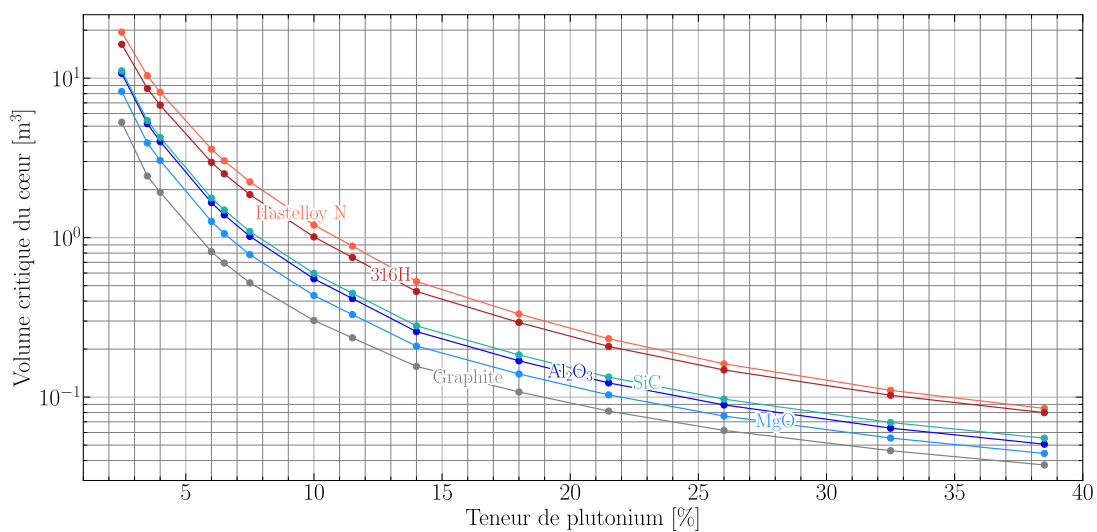


FIGURE 4.7 – Évolution du volume critique selon le matériau du réflecteur radial (aciers en rouge, céramiques en bleu et graphite en gris) pour un vecteur plutonium ex-UOX

D'après cette figure, le choix d'un réflecteur graphite, voire céramique, est à privilégier si l'on souhaite compacter autant que possible le réacteur et donc diminuer la matière fissile à mobiliser. Cependant, pour obtenir un cœur plus compact, cela signifie que les sections efficaces de fissions sont plus importantes et donc, souvent, que les neutrons sont moins énergétiques, ce qui risque d'également favoriser les captures et donc la production d'éléments plus lourds, c'est-à-dire des AM, car le rapport fission sur capture est moins favorable en spectres épithermique et thermique. Pour vérifier cela, on trace les spectres de la population neutronique en figure 4.8.

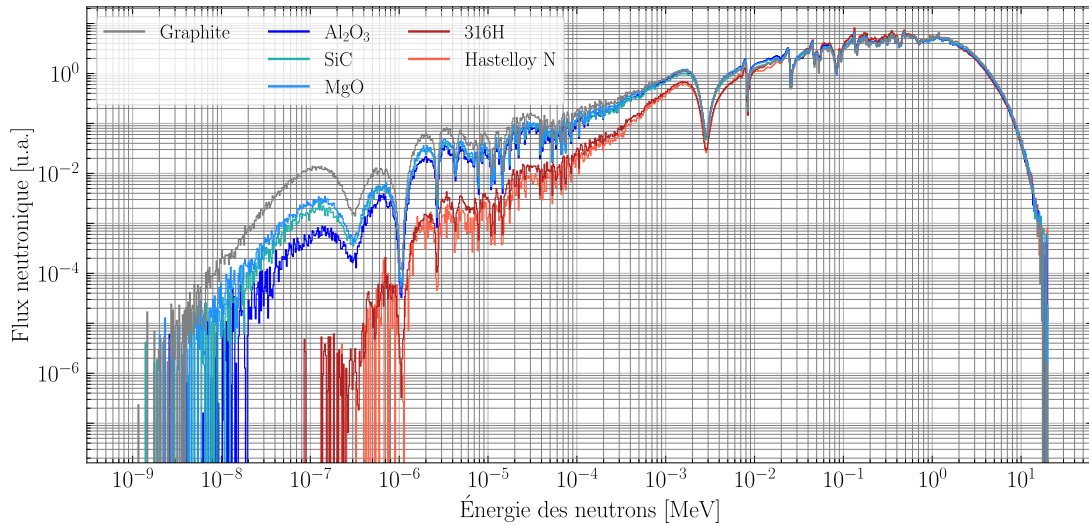


FIGURE 4.8 – Spectre neutronique du sel combustible $11.5\text{PuCl}_3 - 58.2\text{NaCl} - 30.3\text{MgCl}_2$ en fonction du matériau du réflecteur radial pour un vecteur plutonium ex-UOX

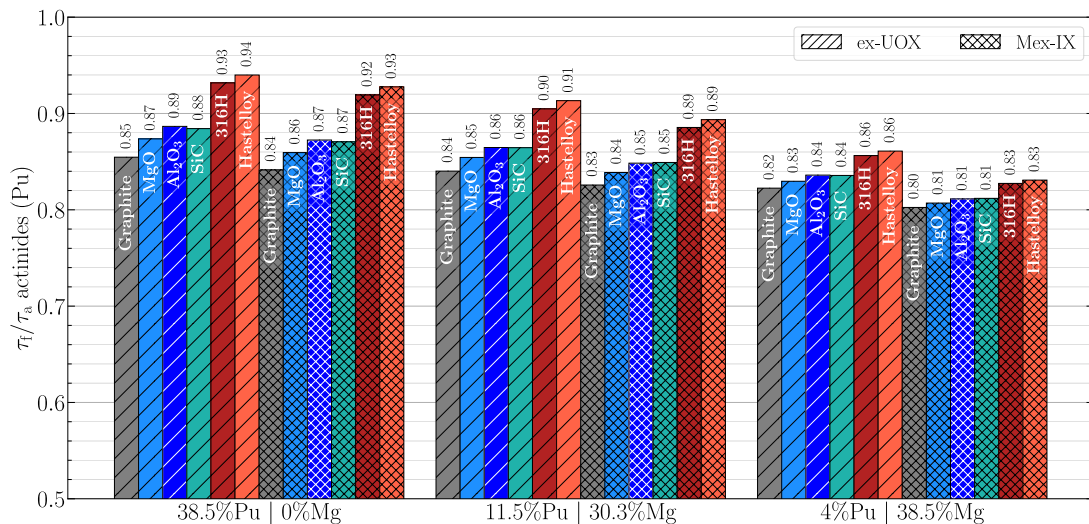


FIGURE 4.9 – Proportion de fission du combustible pour trois teneurs de plutonium ex-UOX et ex-MIX en fonction du matériau du réflecteur radial

On observe, comme attendu, que les réflecteurs graphite et céramiques (en gris et bleus) ralentissent les neutrons de manière presque équivalente, *a contrario* des aciers (en rouges), qui gardent le spectre quasi rapide. La figure 4.9 confirme l'effet des réflecteurs graphite et céramiques sur les performances diminuées de fission du combustible surtout pour les fortes et moyennes teneurs en plutonium. Pour de faibles teneurs, donc de grands volumes de zone critique, le réflecteur se situe loin du centre de la zone critique et l'effet de modération est moins important sur l'ensemble de la population neutronique. On note que, pour tous les matériaux de réflecteurs et teneurs de plutonium, l'isotopie du combustible implique une dégradation de la proportion de fission lorsque la qualité diminue. Ainsi, pour éviter le ralentissement des neutrons, et donc la potentielle production de noyaux plus lourds, le réacteur étudié aura un réflecteur en acier. Le choix se porte sur l'acier 316H qui permet un cœur légèrement plus compact que l' Hastelloy N, avec des caractéristiques d'incinération sur le plutonium similaire.

4.2.4 Effet de la part hors cœur

La répartition du sel combustible dans le circuit combustible impacte peu le volume critique, comme observé en figure 4.10, avec des variations de l'ordre de 3 à 7% entre les volumes critiques à 33% et 66% de sel en cœur. Cela s'explique par un bon isolement de la zone critique des plénums et échangeurs, qui ne contribuent pas dans cette configuration à la criticité neutronique. En effet, le sel à l'extérieur peut participer à la production de neutrons si suffisamment d'entre eux y parviennent et reviennent dans la zone centrale. Alors, avec une proportion moindre de sel dans la zone critique (plus de sel à l'extérieur), un volume plus petit de celle-ci est suffisant pour obtenir la criticité neutronique.

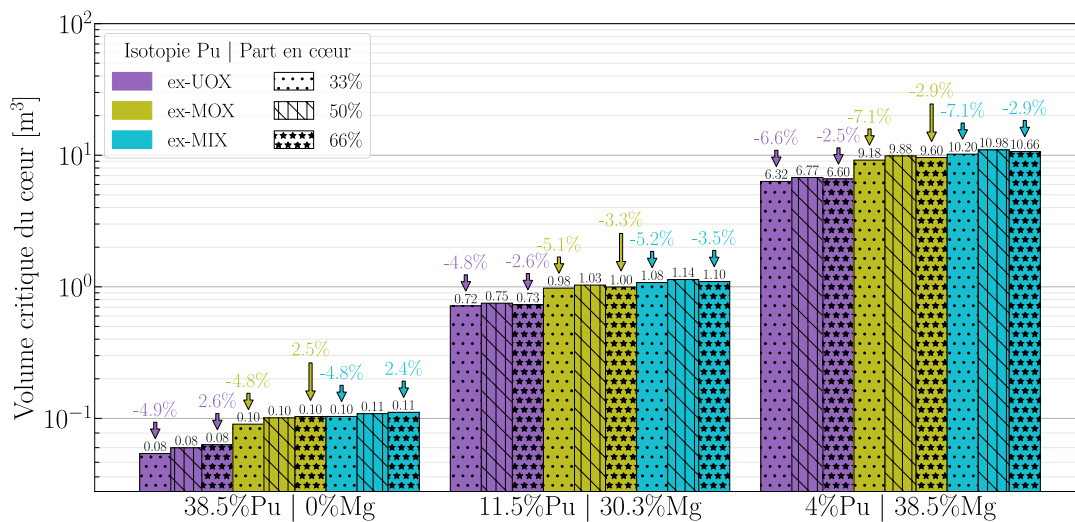


FIGURE 4.10 – Évolution du volume critique selon la fraction de sel en cœur pour trois teneurs en plutonium (38.5%, 11.5% et 4%) et trois vecteurs isotopiques de plutonium (ex-UOX, ex-MOX et ex-MIX) pour un réflecteur radial en acier 316H. Le volume exact de sel en cœur est indiqué au-dessus de chaque barre.

La configuration présentée en figure 3.11 permet une bonne indépendance de la zone critique du reste du circuit combustible, signifiant que les seuls impacts importants de la fraction de sel en cœur / hors cœur sera sur les volumes de sel et matières à mobiliser,

la capacité à échanger la chaleur avec le circuit intermédiaire et la fraction de neutrons retardés, qui dépend du temps de recirculation. La section 4.5 s'intéresse à l'optimisation du circuit combustible d'un point de vue thermohydraulique.

4.2.5 Sensibilité à la masse volumique

Comme introduit en section 3.4.1.d, on considère ici une incertitude systématique de -10% sur la masse volumique, en faisant l'hypothèse que l'impact est similaire pour une erreur de +10%. La figure 4.11 compare les volumes critiques pour trois teneurs de plutonium (38.5%, 11.5% et 4%) et trois vecteurs isotopiques de plutonium (ex-UOX, ex-MOX et ex-MIX) pour la densité de référence – calculée avec les volumes ioniques – et une erreur de 10% sur celle-ci.

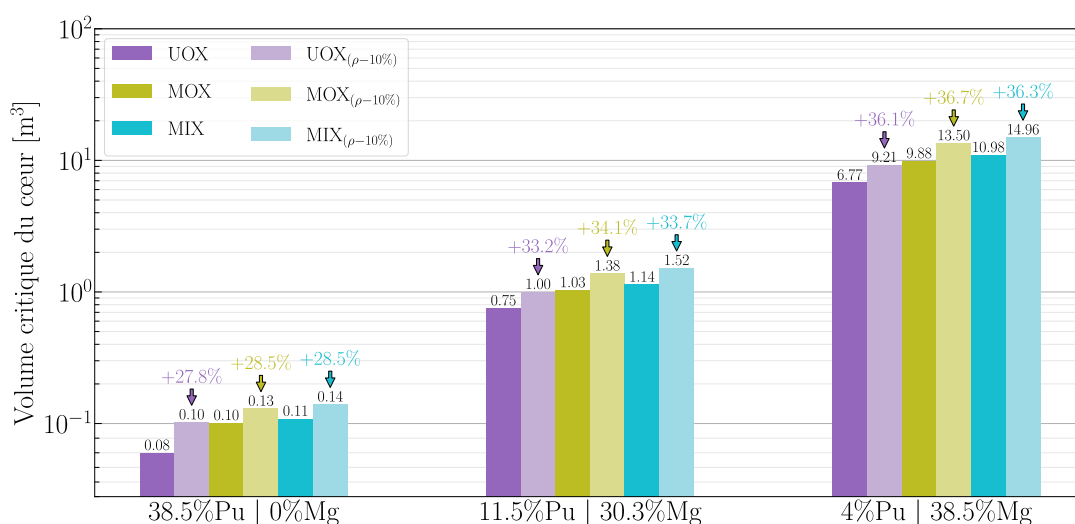


FIGURE 4.11 – Variation du volume critique pour une incertitude de 10% sur la densité du sel combustible dans le cas de trois teneurs en plutonium (38.5%, 11.5% et 4%) et trois vecteurs isotopiques de plutonium (ex-UOX, ex-MOX et ex-MIX). Le volume exact de sel en cœur est indiqué au-dessus des barres, avec la différence relative entre les cas *densité de référence* et *densité diminuée de 10%*.

On constate globalement une variation d'environ +30% sur le volume pour une diminution de 10% sur la masse volumique du sel combustible. Le vecteur isotopique n'influe que très peu sur cette variation sur le volume cependant, plus le sel est dilué en combustible, plus la variation de volume augmente (de 28 à 36%). Le tableau 4.4 présente les écarts sur la masse critique de plutonium nécessaire avec une incertitude de 10% sur la masse volumique. La variation de masse (entre 15 et 20%, car diminution de la masse volumique de 10% et augmentation du volume de 30% environ) est plus faible que pour la variation de volume, mais reste conséquente.

La masse volumique possède donc un fort pouvoir impactant sur le design, ce qui peut conduire à sur-/sous-estimer les quantités de matériaux à utiliser, puissance effective produite, irradiation des matériaux... Cette propriété du sel doit donc être mesurée afin d'affiner les futures études de tels réacteurs.

TABLEAU 4.4 – Effet de l’incertitude de la masse volumique sur la masse critique de plutonium au démarrage [kg]

Teneur en plutonium	ex-UOX			ex-MOX			ex-MIX		
	m	m _{0,9ρ}	Δm	m	m _{0,9ρ}	Δm	m	m _{0,9ρ}	Δm
38.5%	847	1016	20.0%	322	373	15.8%	347	401	15.6%
11.5%	854	993	16.3%	1163	1404	20.7%	1283	1544	20.3%
4%	2794	3423	22.5%	4082	5021	23.0%	4537	5567	22.7%

4.2.6 Impact de la base de données sur le calcul du volume critique

Afin de quantifier la sensibilité de ce calcul d’optimisation neutronique géométrique selon les bases de données utilisées (dont le choix dépend des diverses équipes étudiant le sujet), sont ici comparés les volumes critiques obtenus avec OCTAV pour différentes compositions de sel avec un plutonium ex-MOX et un acier 316H pour le réflecteur radial. Le tableau 4.5 liste la base de données des sections efficaces utilisées pour calculer les volumes critiques de la figure 4.12 avec quatre bases principales : JEFF 3.3, JEFF 3.1, ENDF\B-VI et ENDF\B-VII.1. Certaines sections efficaces n’étant pas disponibles dans la base de données choisie, des mélanges de bases apparaissent et certaines sections efficaces sont utilisées dans plusieurs calculs avec une base de données principale (BDD_p) différente.

TABLEAU 4.5 – Détails des bases de données utilisées pour les calculs de volume critique. En vert, les sections efficaces communes aux calculs JEFF 3.3, JEFF 3.1 et ENDF\B-VI. En rose, les sections efficaces communes aux calculs JEFF 3.3 et JEFF 3.1.

Isotope (Z A I)			BDD _p ^a				Isotope (Z A I)			BDD _p ^b			
			JEFF 3.3	JEFF 3.1	ENDF\B-VI	ENDF\B-VII.1				JEFF 3.3	JEFF 3.1	ENDF\B-VI	ENDF\B-VII.1
5	11	0	J3.3 ^b	J3.1 ^b	E6 ^b	E7.1 ^b	26	56	0	J3.3	J3.3	E6	E7.1
6	0	0	J3.3	J3.3	E6	E7.1	26	57	0	J3.3	J3.3	E6	E7.1
11	23	0	J3.3	J3.1	E6	E7.1	26	58	0	J3.3	J3.3	E6	E7.1
12	24	0	J3.2.1 ^b	J3.2.1	J3.2.1	E7.1	28	58	0	J3.2.1	J3.1	E6	E7.1
12	25	0	J3.2.1	J3.2.1	J3.2.1	E7.1	28	60	0	J3.3	J3.1	E6	E7.1
12	26	0	J3.2.1	J3.2.1	J3.2.1	E7.1	28	61	0	J3.3	J3.3	E6	E7.1
14	28	0	J3.3	J3.1	J3.2.1	E7.1	28	62	0	J3.3	J3.3	E6	E7.1
14	29	0	J3.3	J3.1	J3.2.1	E7.1	28	64	0	J3.3	J3.3	E6	E7.1
14	30	0	J3.3	J3.1	J3.2.1	E7.1	42	92	0	J3.3	J3.1	J3.2.1	E7.1
15	31	0	J3.3	J3.1	E6	E7.1	42	94	0	J3.3	J3.3	E6	E7.1

TABLEAU 4.5 – Détails des bases de données utilisées pour les calculs de volume critique. En vert, les sections efficaces communes aux calculs JEFF 3.3, JEFF 3.1 et ENDF\B-VI. En rose, les sections efficaces communes aux calculs JEFF 3.3 et JEFF 3.1. (Suite)

Isotope (Z A I)			BDD _p ^a				Isotope (Z A I)			BDD _p ^b			
			JEFF 3.3	JEFF 3.1	ENDF\B-VI	ENDF\B-VII.1				JEFF 3.3	JEFF 3.1	ENDF\B-VI	ENDF\B-VII.1
16	32	0	J3.3	J3.1	E6	E7.1	42	95	0	J3.3	J3.3	E6	E7.1
16	33	0	J3.3	J3.1	J3.2.1	E7.1	42	96	0	J3.3	J3.1	E6	E7.1
16	34	0	J3.3	J3.1	J3.2.1	E7.1	42	97	0	J3.3	J3.3	E6	E7.1
17	35	0	J3.3	J3.3	J3.3	E7.1	42	98	0	J3.3	J3.3	J3.3	E7.1
17	37	0	J3.3	J3.3	J3.2.1	E7.1	42	100	0	J3.3	J3.3	J3.3	E7.1
24	50	0	J3.1	J3.1	E6	E7.1	94	238	0	J3.3	J3.1	E6	E7.1
24	52	0	J3.2.1	J3.2.1	E6	E7.1	94	239	0	J3.3	J3.1	E6	E7.1
24	53	0	J3.3	J3.1	E6	E7.1	94	240	0	J3.3	J3.1	E6	E7.1
24	54	0	J3.1	J3.1	E6	E7.1	94	241	0	J3.3	J3.1	E6	E7.1
25	55	0	J3.3	J3.3	E6	E7.1	94	242	0	J3.3	J3.1	E6	E7.1
26	54	0	J3.3	J3.3	E6	E7.1							

La figure 4.12 montre une légère sensibilité aux bases de données principales utilisées, avec un volume plus faible pour JEFF 3.1, ENDF\B-VI et ENDF\B-VII.1. Cette sensibilité est d'autant plus importante que la teneur en plutonium diminue et que le spectre devient moins rapide. L'effet est bien plus important pour JEFF 3.1 que pour ENDF\B-VI et ENDF\B-VII.1 alors que près de la moitié des sections efficaces utilisées sont communes aux calculs JEFF 3.3 et JEFF 3.1 (tableau 4.5). Les différences observées avec cette dernière doivent provenir de la réévaluation des sections efficaces du plutonium notamment. Parmi les bases de données disponibles, peu d'effets sont observables sur le calcul du volume critique selon la base de données des sections efficaces choisie.

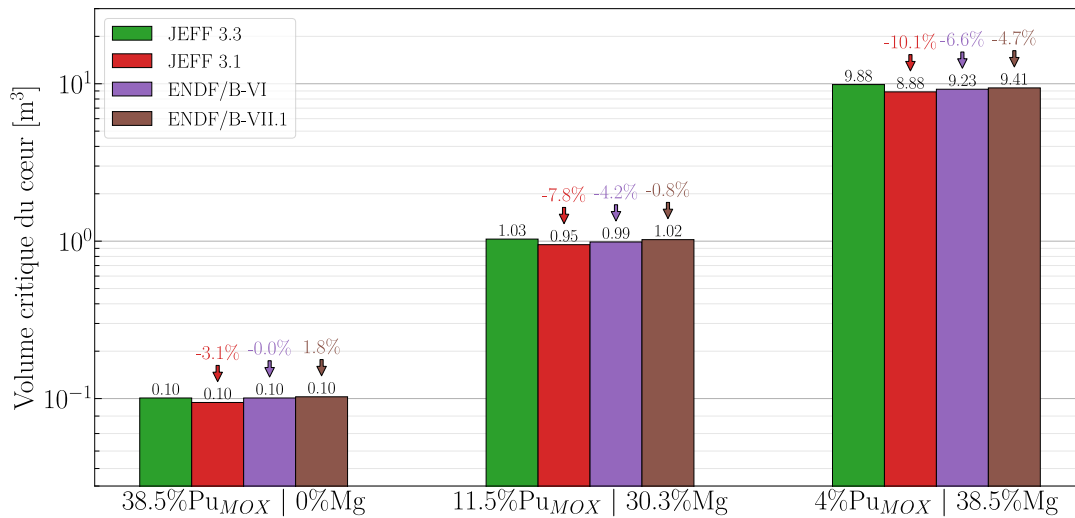


FIGURE 4.12 – Comparaison du volume critique du cœur pour trois compositions de sels combustibles utilisant le plutonium ex-MOX

4.2.7 Impact de la variation de volume sur la réactivité

Le volume de la zone critique du réacteur sera légèrement différent une fois construit. On souhaite donc savoir quelle variation de réactivité est induit par une erreur sur le volume de la zone critique et du circuit combustible. On suppose ici que l'ensemble du circuit combustible est 10% plus grand. La figure 4.13 présente la variation de réactivité résultante. Celle-ci est de l'ordre de 2000 pcm pour l'ensemble des configurations, soit 200 pcm/%, mais les petits volumes sont plus impactés que les grands, puisqu'à volume ajouté identique, la masse de plutonium supplémentaire, elle, est plus importante pour un petit réacteur que pour un grand. À teneur de plutonium identique, l'utilisation d'un vecteur plus dégradé implique une surréactivité plus faible puisque le plutonium ajouté consomme plus les neutrons et mitige la masse supplémentaire.

Dans tous les cas, le réacteur ne sera pas surcritique au démarrage mais simplement critique. Si elles sont négatives, les contre-réactions assurent la stabilité de la réaction en chaîne et ramènent le réacteur à la stabilité. Ainsi, en cas de volume de zone critique trop important, la surréactivité induira une augmentation de la température le temps de consommer cette réactivité (section 4.4.8), et vice-versa. L'amplitude de la variation de la température dépend de l'intensité des coefficients de contre-réaction (section 4.4.7). Par exemple, pour un CCR global de l'ordre de 10 pcm/K, une réactivité de 2000 pcm implique une augmentation de la température de criticité¹ du sel combustible de 100 K. Cette augmentation de température doit être limitée afin de protéger les matériaux de structure.

1. température moyenne

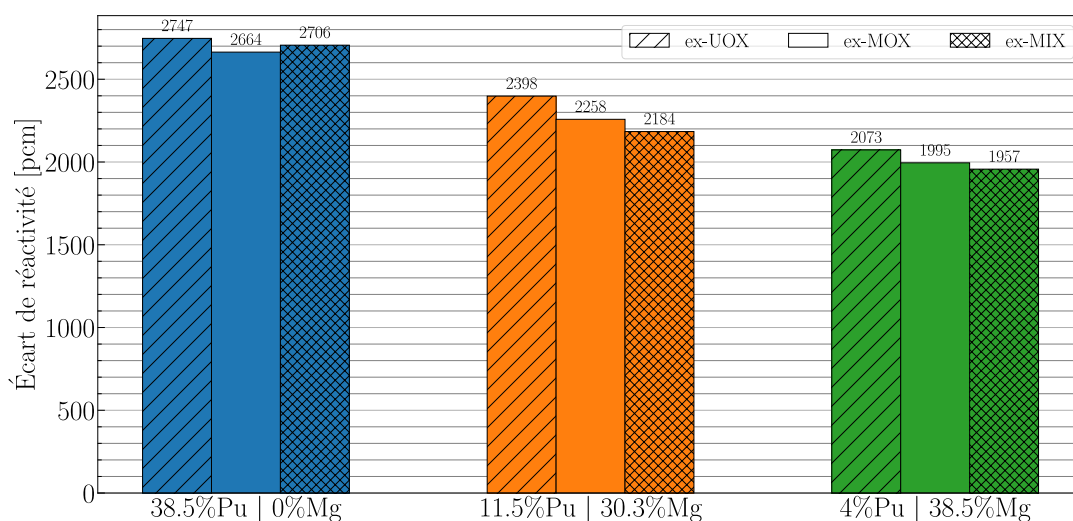


FIGURE 4.13 – Variation de réactivité pour une augmentation de 10% du volume critique estimé par OCTAV

4.2.8 Conclusions sur les sensibilités sur le volume critique

Cette partie a mis en évidence la nécessité d'enrichir le chlore du solvant en ^{37}Cl afin de limiter le volume et la masse critique de démarrage. Le ^{35}Cl produit du ^{36}Cl par capture radiative qui est très volatile et radiotoxique. Un enrichissement à 99% ^{37}Cl est désormais considéré pour limiter la production de ce radioisotope.

Le matériau du réflecteur radial permet de renvoyer les neutrons vers la zone critique et donc de limiter le volume critique. Les trois familles étudiées (aciers, graphite et céramiques) ne sont pas équivalentes, car les céramiques et le graphite permettent d'obtenir un cœur plus compact à composition de sel identique que les aciers (facteur 1.5 à 2.5), mais ralentissent fortement les neutrons pour cela, risquant d'augmenter les captures et donc la production de noyaux lourds. Le choix est fait ici de s'orienter sur un réflecteur acier.

Le volume de la zone critique dépend fortement de la teneur du combustible dans le sel. Plus celle-ci diminue et plus le volume du cœur augmente. Avec la diminution de la teneur en plutonium, l'augmentation de la teneur en magnésium implique un ralentissement du spectre qui peut impacter l'inventaire des actinides au cours de l'irradiation.

Par ailleurs, la part de sel en cœur impacte peu le volume critique sous réserve que le réflecteur radial et la protection neutronique soient suffisamment épais pour décorréler le cœur des plénums et échangeurs. Dans ce cas, la part hors cœur n'a aucun impact sur la neutronique de la zone critique. De manière similaire, le choix de la base de données (entre JEFF 3.3 (2017) & 3.1 (2006), ENDF\B-VI (2010) et ENDF\B-VII.1 (2012))) influence peu le volume critique (jusqu'à 10% pour une faible teneur en plutonium). L'utilisation de JEFF 3.3 comme base principale tend à faire considérer un volume plus important qu'avec les autres bases.

Enfin, les incertitudes des propriétés physico-chimiques, comme la masse volumique, imposent de considérer la sensibilité du design auxdits paramètres. Avec la géométrie choisie, le volume de la zone critique est très sensible aux incertitudes sur la masse volumique, puisqu'une variation de 10% entraîne un changement de 30% en moyenne.

Une évaluation de ce paramètre expérimentalement est donc nécessaire. Une variation du volume critique implique un changement de la température du sel dépendant des CCR de température. L'erreur du volume de la zone critique doit être maîtrisée lors de la construction du réacteur pour éviter que le point de fonctionnement du réacteur ne soit trop éloigné de celui prévu et n'induisse de la fatigue thermique aux matériaux de structure.

4.3 Cas enveloppe du volume critique

Dans le cadre de l'utilisation du réacteur incinérateur avec un combustible plutonium, il est utile de s'intéresser à la possibilité de changer le combustible en cours de fonctionnement. Pour cela, le tracé du cas enveloppe (cas le plus favorable et le plus défavorable) permet de déterminer les marges de manoeuvres pour le fonctionnement. La figure 4.14 illustre très bien la possibilité de changer de vecteur isotopique du point de vue de la criticité neutronique. En effet, le réacteur une fois en fonctionnement aura un volume de zone critique donné (par exemple 200 l) et la teneur en plutonium sera – dans une certaine mesure – ajustable. On constate donc qu'il est possible de changer la composition du sel combustible tout en maintenant la criticité neutronique pour un *sel pur*, sans la présence des produits de fission et actinides mineurs, en faisant varier la teneur en plutonium de 22 à 26.4% dans ce cas de 200 l en cœur.

L'existence d'un volume critique minimum de 109 l pour permettre toutes les qualités de plutonium est à éventuellement prendre en compte pour s'assurer de suffisamment de flexibilité en opération. Si la qualité du plutonium se dégrade (proportion de noyaux fissiles diminuant), le sel devra être plus concentré en plutonium et moins en magnésium pour conserver la criticité. On observe que la qualité du vecteur isotopique influe plus pour des petits/moyens volumes que sur les grands volumes.

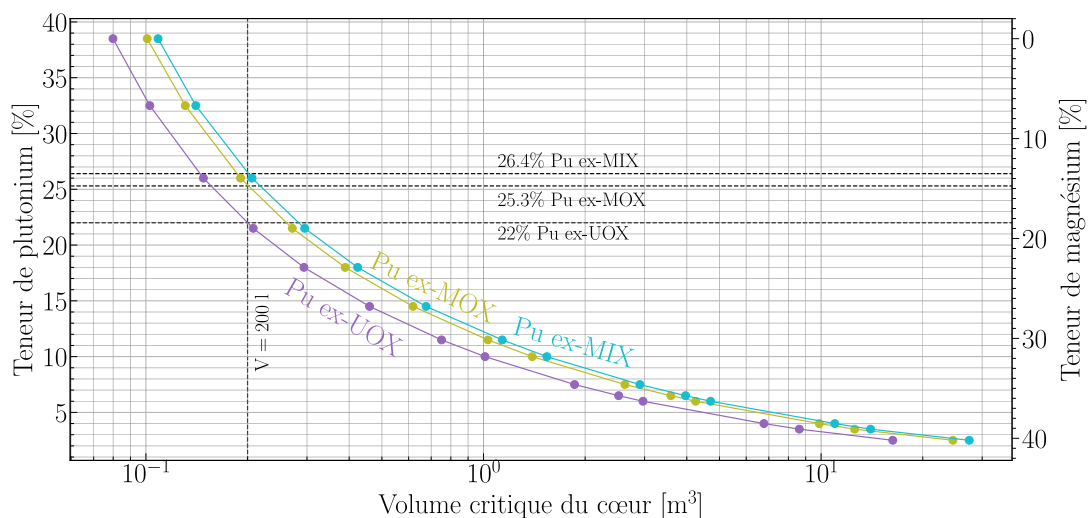


FIGURE 4.14 – Cas enveloppe des volumes critiques du cœur *au démarrage* pour différents vecteurs isotopiques et un réflecteur radial en acier 316H

4.4 Études neutroniques du réacteur en fonctionnement

Dans le chapitre 3, il a été montré que différents teneurs et isotopies de plutonium impliquent des spectres plus ou moins rapides (section 3.4.1), donnant lieu potentiellement à une dégradation de la qualité du combustible en produisant des actinides mineurs. Ainsi, l'étude de l'irradiation de neuf sels combustibles, pour inclure les différents vecteurs isotopiques issus du tableau 4.1, a été réalisée avec le code REM en utilisant les paramètres et géométrie décrits en section 4.4.1. La section 4.4.2 présente l'évolution temporelle des actinides principaux dans le sel combustible ainsi que de l'alimentation en plutonium. Une estimation des différentes efficacités de conversion est réalisée en section 4.4.3, avant de caractériser les voies de production de ^{36}Cl et de soufre en section 4.4.5, et un calcul enveloppe des dégâts d'irradiation en section 4.4.6.a. La section 4.4.7 s'intéresse à la validation du schéma de calcul et au calcul des coefficients de contre-réactions de température. La problématique du rechargement par batch est soulignée en section 4.4.8. Enfin, la production de colis de déchets vitrifiés et leur radiotoxicité sont évaluées en section 4.4.9.

4.4.1 Paramètres d'étude sur l'influence de la composition initiale sur l'évolution du réacteur

Cette section liste les paramètres de simulation utilisés pour les calculs d'évolution. Les tableaux 4.6 et 3.3 concernent les paramètres utilisés par REM pour les simulations. Les différentes configurations utilisées dans les sections ultérieures de ce chapitre sont listées en tableau 4.7 et la figure 4.15 précise les matériaux de la géométrie de calcul neutronique.

TABLEAU 4.6 – Paramètres de configuration de REM pour les simulations des sels plutonium

Type	Matériau	Éléments	Quantification
Géométrie	Sel combustible	Fraction de sel en cœur	50%
Composition	Réflecteurs	Axial et radial	Acier 316H
Irradiation	Sel + structures	Tout	100 ans (objectif : état stationnaire des compositions)
Démarrage	Sel combustible	Compositions du sel	$38.5\text{PuCl}_3 - 62.8\text{NaCl}$, $11.5\text{PuCl}_3 - 58.2\text{NaCl} - 30.3\text{MgCl}_2$ et $4\text{PuCl}_3 - 57.5\text{NaCl} - 38.5\text{MgCl}_2$
	Sel combustible	Vecteur de combustible	Pu ex-UOX / Pu ex-MOX / Pu ex-MIX
Alimentation	Sel combustible	Plutonium	Identique au vecteur de démarrage

Suite à la page suivante

4.4. Études neutroniques du réacteur en fonctionnement

TABLEAU 4.6 – Paramètres de configuration de REM pour les simulations des sels plutonium (Suite)

Type	Matériau	Éléments	Quantification
Puissance spécifique	Sel combustible en zone critique		150 MW _{th} /m ³
Extraction	Sel combustible	Tous les Z sauf Na, Cl, Mg, TRU	Extraction en 18.3 ans

TABLEAU 4.7 – Volumes et puissance thermique des neuf configurations étudiées en évolution

Teneur	Vecteur	Volume du cœur [m ³]	Rayon du réacteur [cm]	Puissance thermique [MW]
38.5%	UOX	0.08	23.3	12
	MOX	0.10	25.2	15
	MIX	0.11	25.9	16
11.5%	UOX	0.75	49.3	112
	MOX	1.03	54.7	155
	MIX	1.13	56.5	170
4%	UOX	6.76	102.5	1014
	MOX	9.89	116.3	1480
	MIX	10.97	120.4	1648

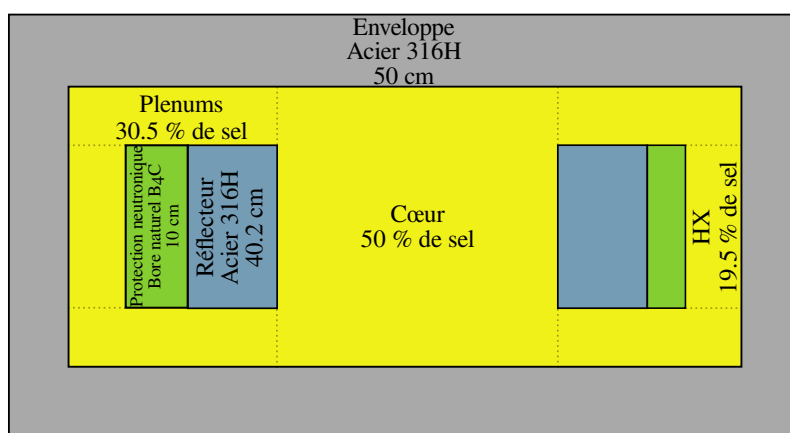


FIGURE 4.15 – Géométrie pour les calculs neutroniques d'évolution avec des structures en acier 316H

4.4.2 Évolution temporelle du réacteur

Grâce au code REM, l'évolution des matériaux sous contraintes avec une alimentation en plutonium et un retraitement du combustible peut être évaluée. On détaillera dans cette section l'évolution des différents noyaux d'intérêt (Pu, Np, Am, et Cm) dans le sel combustible. Leur composition isotopique sera également montrée, puisque tous les isotopes n'ont pas la même durée de vie ou impact lors du retraitement. Enfin, les alimentations en plutonium des différentes configurations seront comparées.

4.4.2.a Évolution globale des matières en coeur

La figure 4.16 présente l'évolution de la masse des principaux transuraniens dans le sel combustible. Le plutonium est prédominant et continue d'augmenter, car il est présent dès le démarrage et est alimenté tout au long du fonctionnement pour compenser l'apparition des AM et PF. Ces derniers imposent une teneur en actinides plus grande pour compenser la perte de réactivité induite. Les neptunium, américium et curium sont créés par captures et décroissances successives et sont inévitables. On note également une très forte production d'uranium, due à la décroissance du ^{238}Pu en ^{234}U par émission α . Malgré sa période de 87.7 ans, le ^{238}Pu est suffisamment présent pour que la production d'uranium soit notable. On observe que l'état stationnaire n'est pas atteint au cours des 100 ans de fonctionnement pour les noyaux plus lourds que le plutonium ($Z=94$).

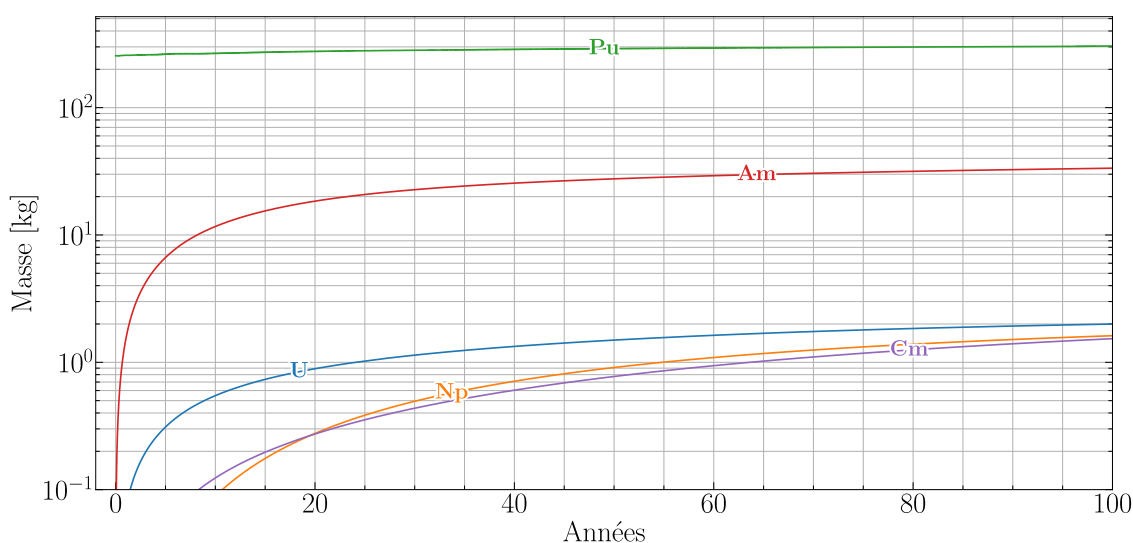


FIGURE 4.16 – Évolution massique du plutonium et des principaux transuraniens pour le cas $38.5\text{Pu}_{\text{UOX}}\text{Cl}_3\text{-}61.5\text{NaCl}$

De manière à comparer l'évolution de différentes compositions initiales (différentes masses critiques), on représente la répartition des actinides en proportion molaire selon le vecteur d'alimentation dans les figures 4.17, 4.18 et 4.19. Comme expliqué précédemment, au démarrage du réacteur, seul le plutonium est présent. Progressivement, les captures et décroissances vont créer les AM et l'uranium (pour les actinides principaux), qui vont représenter progressivement une plus grande part des U+TRU jusqu'à 18% molaire. L'évolution du plutonium est très similaire pour les trois compositions étudiées ici.

Pour l'uranium, le neptunium et l'américium, une production plus importante est observée pour une forte teneur en plutonium (petit volume de cœur) qu'une faible teneur (grand volume). En effet, le premier est principalement produit à partir de la décroissance de l' ^{238}Pu qui capture moins dans les réacteurs compacts, laissant la possibilité de décroître (section 4.4.3.b). Le second provient de la décroissance de l' ^{241}Am . Cependant, la proportion de curium est en tendance inverse : celle-ci est plus largement favorisée pour un grand cœur que pour un petit (facteur 10 environ). Cette évolution sera expliquée en section 4.4.3.b avec l'estimation des proportions de fission.

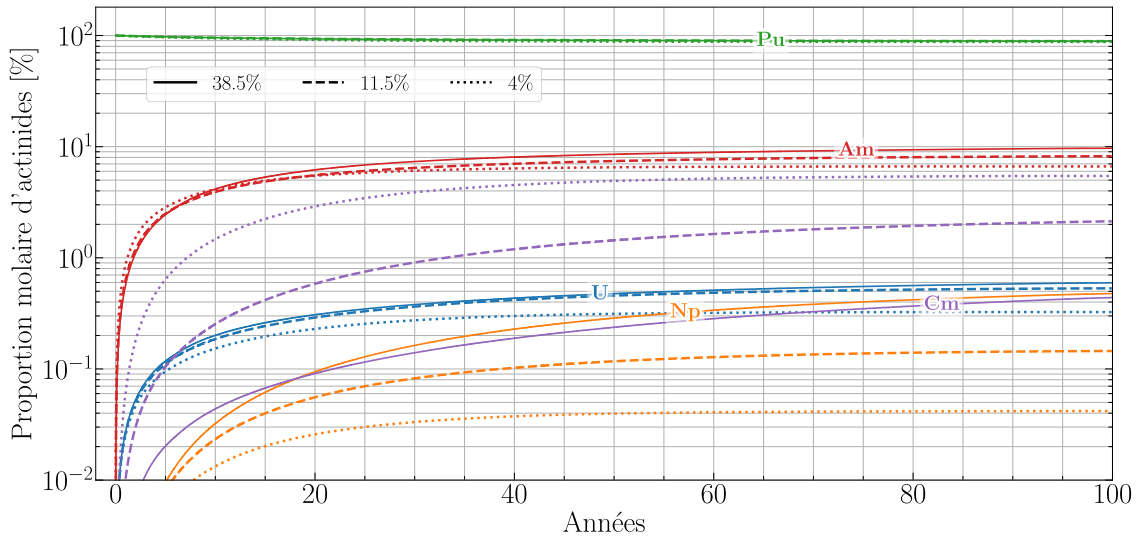


FIGURE 4.17 – Évolution de la proportion molaire du plutonium et des principaux transuraniens selon la composition du sel (4%, 11.5% et 38.5%) pour un plutonium ex-UOX

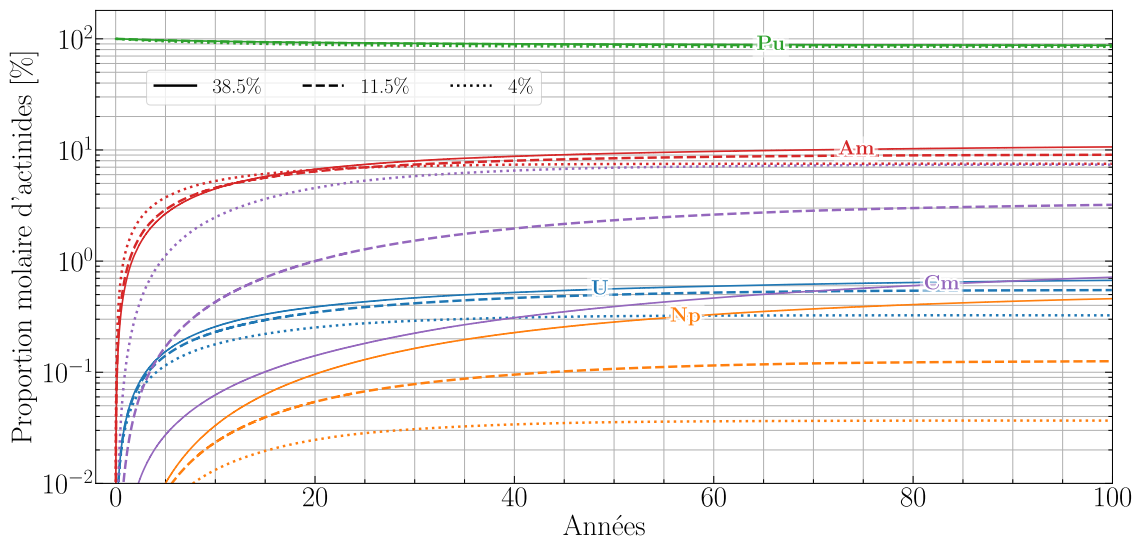


FIGURE 4.18 – Évolution de la proportion molaire du plutonium et des principaux transuraniens selon la composition du sel (4%, 11.5% et 38.5%) pour un plutonium ex-MOX

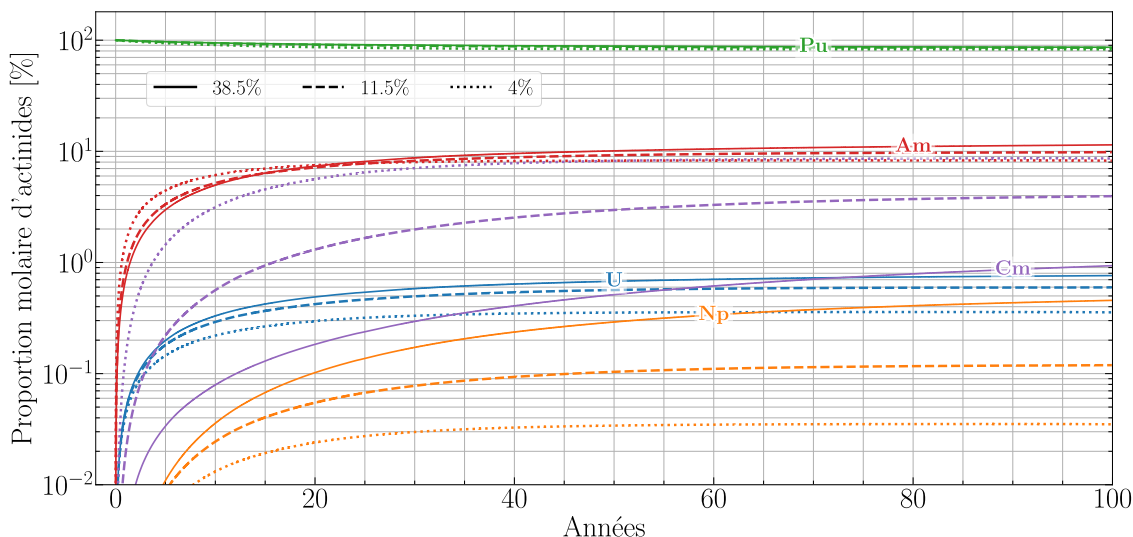


FIGURE 4.19 – Évolution de la proportion molaire du plutonium et des principaux transuraniens selon la composition du sel (4%, 11.5% et 38.5%) pour un plutonium ex-MIX

Comme déjà explicité, au cours de l'irradiation, l'apparition d'actinides mineurs est inévitable du fait des captures et décroissances, même si la probabilité en est réduite grâce au spectre rapide. Ces AM contribuent en partie à maintenir la réactivité du sel combustible dans la zone critique et compenser l'augmentation des produits de fission, résultat des fissions productrices de puissance (section 4.4.3.b), mais capturent beaucoup par rapport aux PF. La figure 4.20 montre la répartition des captures (n, γ) entre les produits de fission et les actinides mineurs pour les configurations alimentées en plutonium ex-MOX. Plus la teneur initiale en plutonium est élevée, moins les produits de fission capturent vis-à-vis des actinides mineurs. En revanche, lorsque la teneur en plutonium au démarrage est faible, l'impact des produits de fission devient équivalent à celui des actinides mineurs car le spectre neutronique est moins énergétique. Les captures sur les AM et les PF font baisser la réactivité dans le sel combustible.

Afin de compenser cette perte de réactivité, qui peut-être vue comme une dégradation du vecteur isotopique du combustible, les actinides (AN) vont se concentrer dans le sel combustible, à l'instar d'un vecteur dégradé de plutonium comme dans la figure 4.14. Le tableau 4.8 illustre ce phénomène avec l'évolution de la teneur en actinides au cours du fonctionnement du réacteur. Cette concentration des AN est d'autant plus importante que le vecteur isotopique d'alimentation est dégradé. L'augmentation la plus importante est constatée pour les grands volumes de cœur où la teneur d'AN est multipliée par 2 environ en 50 ans, ce qui pourrait s'expliquer à partir de la figure 4.20 avec des produits de fission qui capturent davantage comparés aux actinides mineurs. On observe que, sur le petit volume, à 38.5% initial, la limite à l'insolubilité est réduite si la température du sel combustible reste identique, puisque la teneur en actinides dépasse les 40%. Pour garder une marge à la solubilité, la température doit être augmentée, ou la teneur en magnésium doit être ajustée.

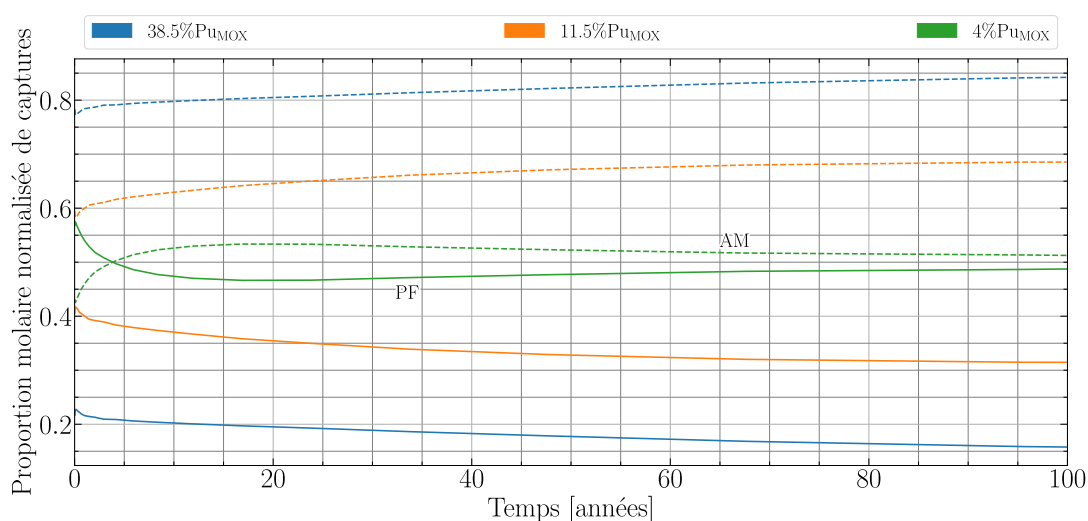


FIGURE 4.20 – Évolution de la réparation du taux de capture molaire entre les PF et les AM pour les configurations alimentées en plutonium ex-MOX

TABLEAU 4.8 – Évolution temporelle de la teneur molaire en actinides pour trois teneurs initiales de plutonium et trois vecteurs isotopiques (ex-UOX, ex-MOX et ex-MIX) avec l'évolution relative entre le démarrage et l'état stationnaire à 50 ans

Composition initiale	ex-UOX			ex-MOX			ex-MIX		
	20 ans	50 ans	Δx [%]	20 ans	50 ans	Δx [%]	20 ans	50 ans	Δx [%]
38.5PuCl ₃ -61.5NaCl	39.5	40.8	5.8	40.4	41.6	8.1	40.7	42.2	9.6
11.5PuCl ₃ -30.3MgCl ₂ -58.2NaCl	14.4	15.6	35.6	15.0	16.2	40.8	15.3	16.5	43.5
4PuCl ₃ -38.5MgCl ₂ -57.5NaCl	7.1	7.5	87.5	7.5	7.8	95	7.7	8.1	103

4.4.2.b Évolution isotopique des transuraniens et de l'uranium

Notes :

Les graphiques de cette section montrent uniquement les isotopes dont le maximum de leur proportion isotopique dépasse 1%.

Chaque figure illustre la répartition molaire des isotopes par élément.

Le neptunium est composé de ²³⁷Np à plus de 99.5% pour toutes les configurations, produit à partir de la décroissance de l'²⁴¹Am. Son isotopie n'est donc pas représentée ici.

Plutonium Les figures 4.21, 4.22 et 4.23 comparent l'évolution du vecteur isotopique de plutonium pour les configurations à 38.5%, 11.5% et 4% de plutonium initial selon le vecteur isotopique d'alimentation. Les différences entre les neuf cas étudiés consistent principalement en les proportions de ²³⁹Pu et ²⁴⁰Pu. Le ²³⁹Pu est très fortement consommé au profit du ²⁴⁰Pu pour les faibles teneurs initiales en plutonium, puisqu'il fissionne mieux

que les autres isotopes aux énergies de neutrons un peu moins rapides. L'utilisation d'isotopes dégradés (ex-MOX et ex-MIX) favorise les isotopes pairs du plutonium, non fissiles (figure 1.7).

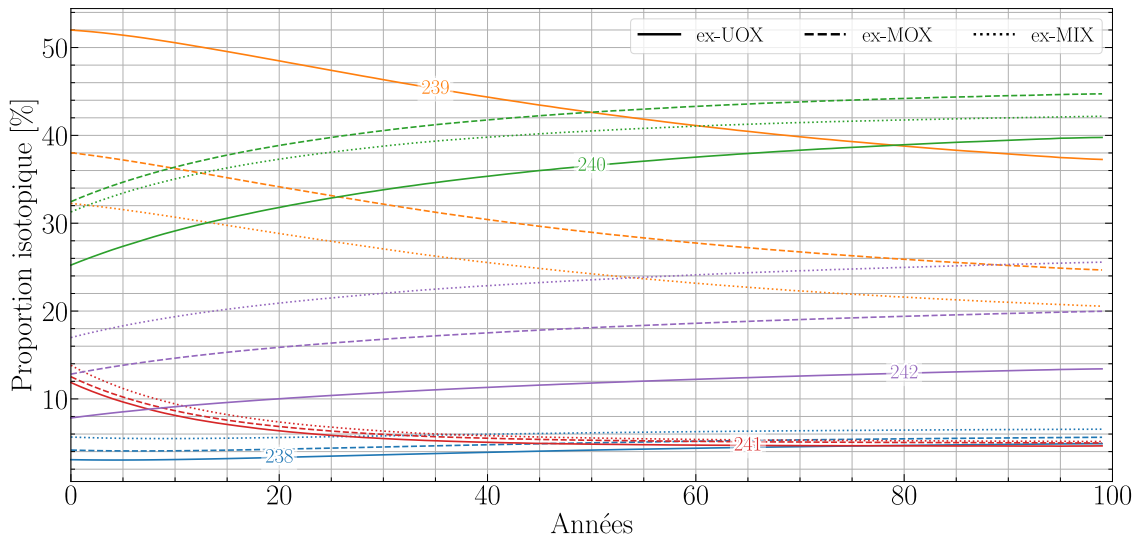


FIGURE 4.21 – Évolution temporelle du vecteur isotopique de plutonium selon le vecteur d'alimentation pour une teneur initiale en plutonium de 38.5%

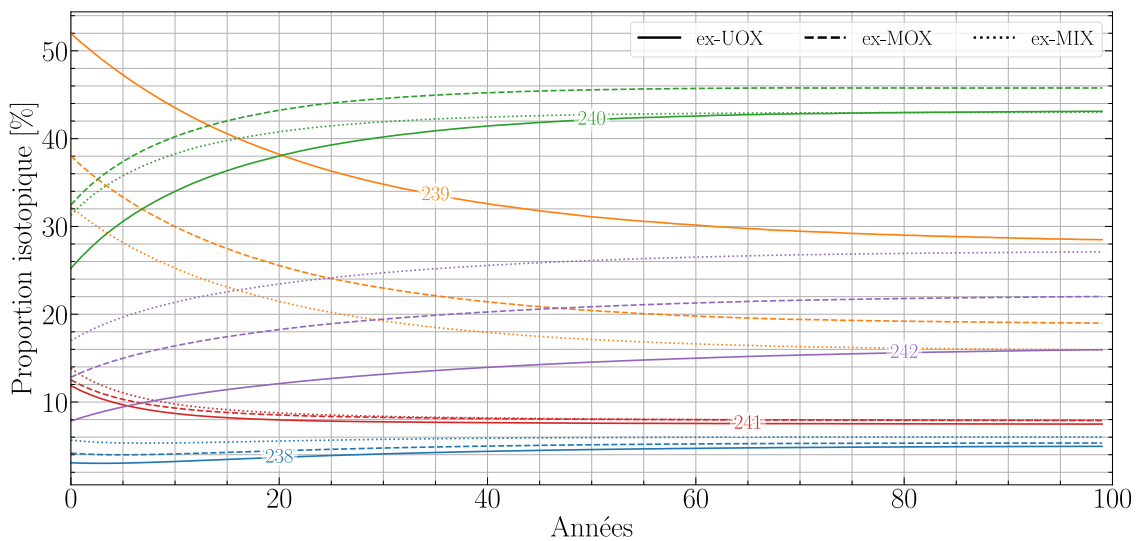


FIGURE 4.22 – Évolution temporelle du vecteur isotopique de plutonium selon le vecteur d'alimentation pour une teneur initiale en plutonium de 11.5%

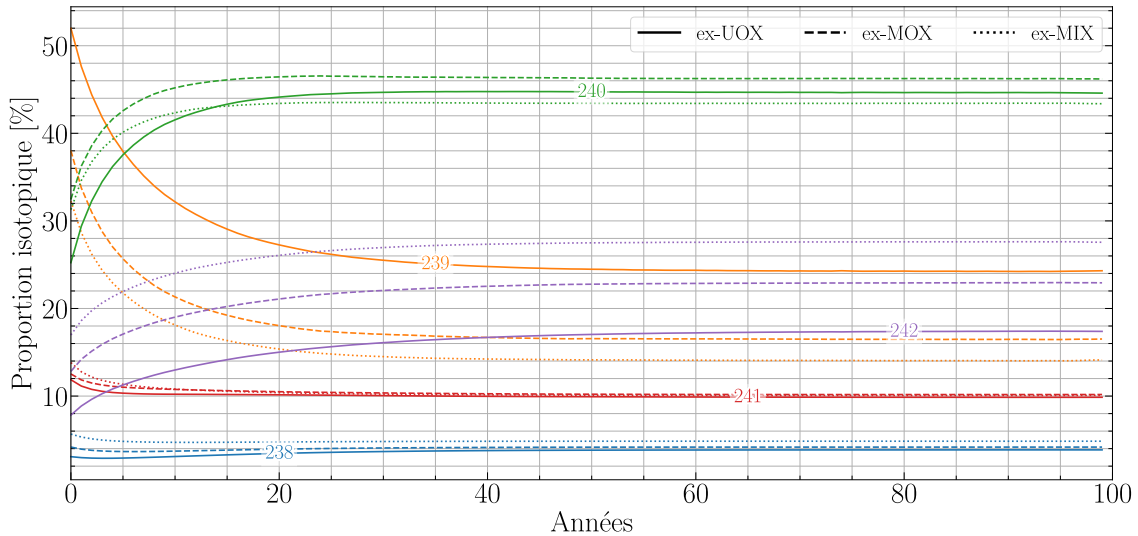


FIGURE 4.23 – Évolution temporelle du vecteur isotopique de plutonium selon le vecteur d'alimentation pour une teneur initiale en plutonium de 4%

Américium De manière similaire, on s'intéresse à la production des isotopes d'américium dans les figures 4.24, 4.25 et 4.26. On note trois isotopes principaux : ^{241}Am , ^{242m}Am et ^{243}Am . L' ^{243}Am devient largement prépondérant lorsque la teneur en plutonium initial diminue, au détriment de l' ^{241}Am . L'utilisation du vecteur ex-MIX tend à faire grimper un peu plus la proportion d' ^{243}Am . Il est à noter que les deux isotopes décroissent principalement par émission alpha, mais l' ^{243}Am a une demi-vie de 7370 ans, contre 432 ans pour l' ^{241}Am (figure 1.7). La décroissance du ^{241}Pu en ^{241}Am en 14.3 ans mène à la production par capture d'isotopes plus lourds de l'américium (section 4.4.3.b).

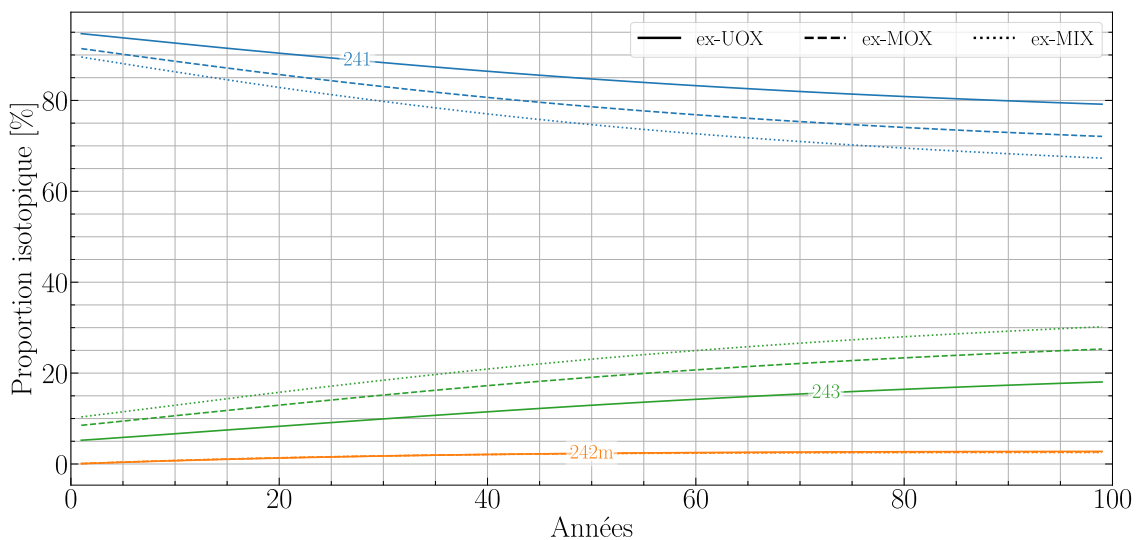


FIGURE 4.24 – Évolution temporelle du vecteur isotopique d'américium selon le vecteur d'alimentation pour une teneur initiale en plutonium de 38.5%

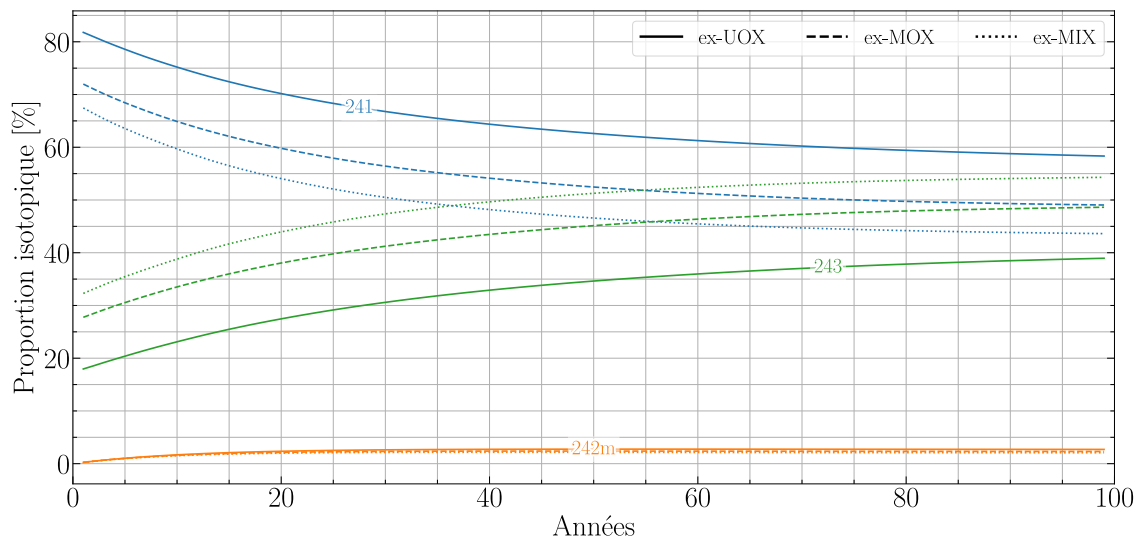


FIGURE 4.25 – Évolution temporelle du vecteur isotopique d'américium selon le vecteur d'alimentation pour une teneur initiale en plutonium de 11.5%

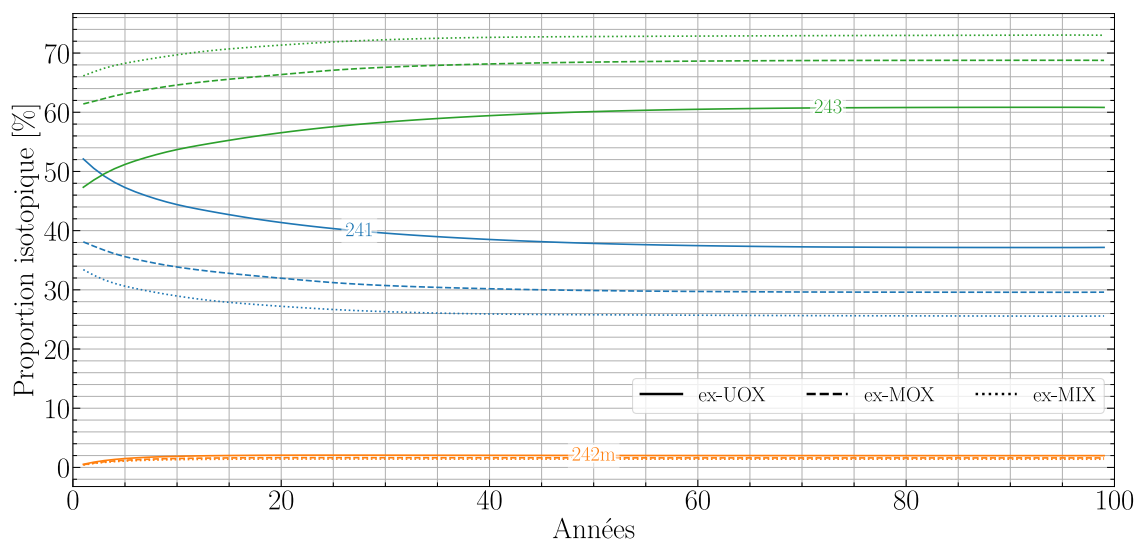


FIGURE 4.26 – Évolution temporelle du vecteur isotopique d'américium selon le vecteur d'alimentation pour une teneur initiale en plutonium de 4%

Curium La production de curium est largement dominée par le ^{244}Cm , dont la vitesse de production dépend principalement de la teneur initiale en plutonium (figure 4.27, 4.28, 4.29). Lorsque celle-ci diminue, le ^{244}Cm est produit plus rapidement, ce qui entraîne également une plus forte production de ^{245}Cm , qui a une demi-vie de 8423 ans, et de ^{246}Cm , $T_{1/2} = 4706$ ans. Les décroissances des noyaux de plutonium et les captures successives sur les noyaux d'américium et de curium conduisent à l'accroissement des quantités de curium lourd.

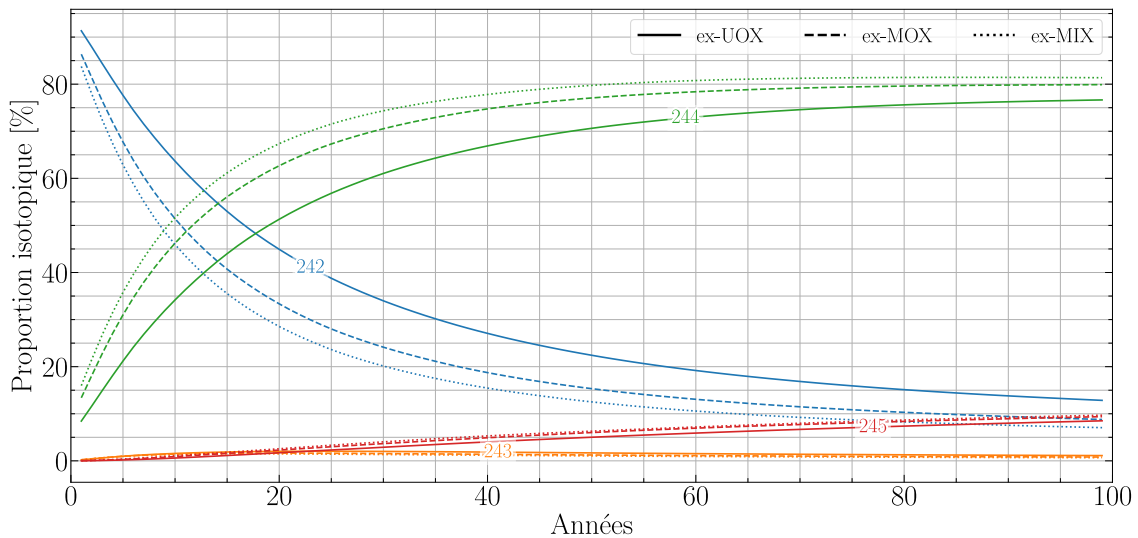


FIGURE 4.27 – Évolution temporelle du vecteur isotopique de curium selon le vecteur d'alimentation pour une teneur initiale en plutonium de 38.5%

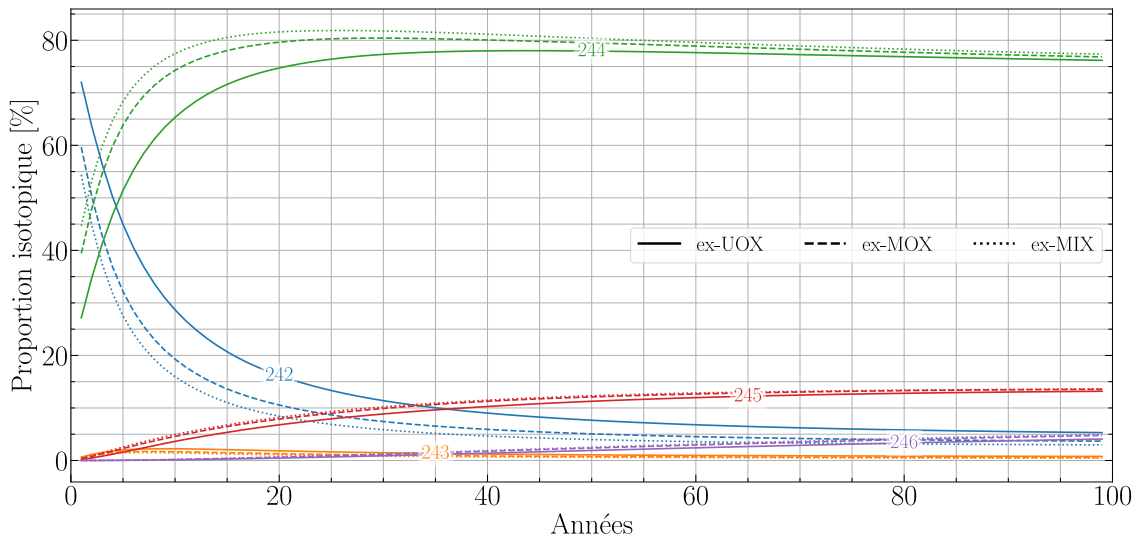


FIGURE 4.28 – Évolution temporelle du vecteur isotopique de curium selon le vecteur d'alimentation pour une teneur initiale en plutonium de 11.5%

Californium La production de californium est généralement faible dans les combustibles nucléaires. Il faut, en effet, beaucoup de captures et de décroissances pour atteindre les masses très élevées. Souvent, les noyaux finiront par fissionner avant d'y arriver.

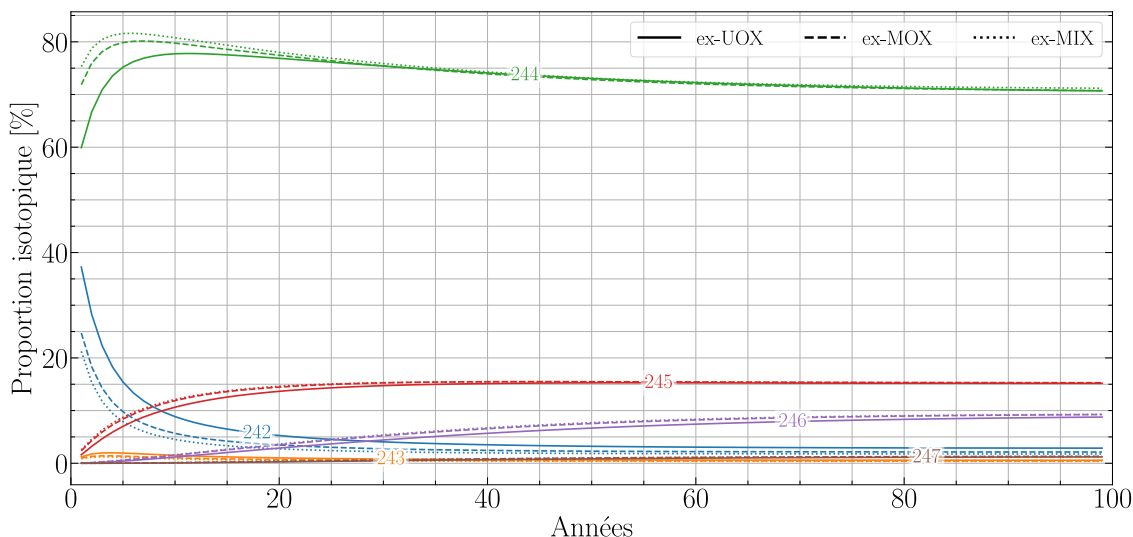


FIGURE 4.29 – Évolution temporelle du vecteur isotopique de curium selon le vecteur d'alimentation pour une teneur initiale en plutonium de 4%

Cependant, le peu de californium produit peu être problématique, si l'isotope 252 est présent. Il décroît principalement par émission d'une particule α , mais autofissionne 3% du temps. Le risque est donc à la fois radiologique et de sûreté. Les figures 4.30, 4.31 et 4.32 présente la répartition isotopique de cet élément. L'avantage du spectre rapide se constate aisément sur l'ensemble des figures, puisque la montée en A est limitée. La teneur isotopique en ^{252}Cf est inférieure au pourcent et n'est donc pas visible. On peut noter que la production de cet isotope à 50 ans est d'environ 0.1 pg pour le cas 38.5%Pu_{UOX} et 1 mg pour le 4%Pu_{MIX}. Le risque d'une source de neutrons spontanés dans le combustible est plus faible, mais encore possible, car le ^{250}Cf a une demi-vie courte de 13.08 ans et fissionne spontanément dans 8E-2% des cas. *A contrario*, le ^{249}Cf a une durée de vie moyenne (351 ans), mais autofissionne très rarement (5E-7% des désintégrations)

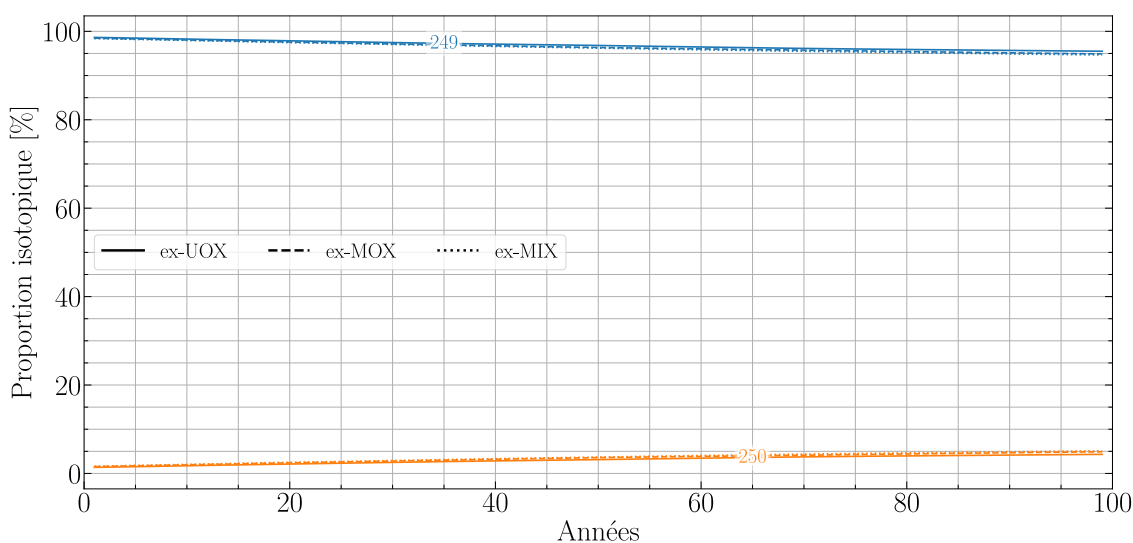


FIGURE 4.30 – Évolution temporelle du vecteur isotopique de californium selon le vecteur d'alimentation pour une teneur initiale en plutonium de 38.5%

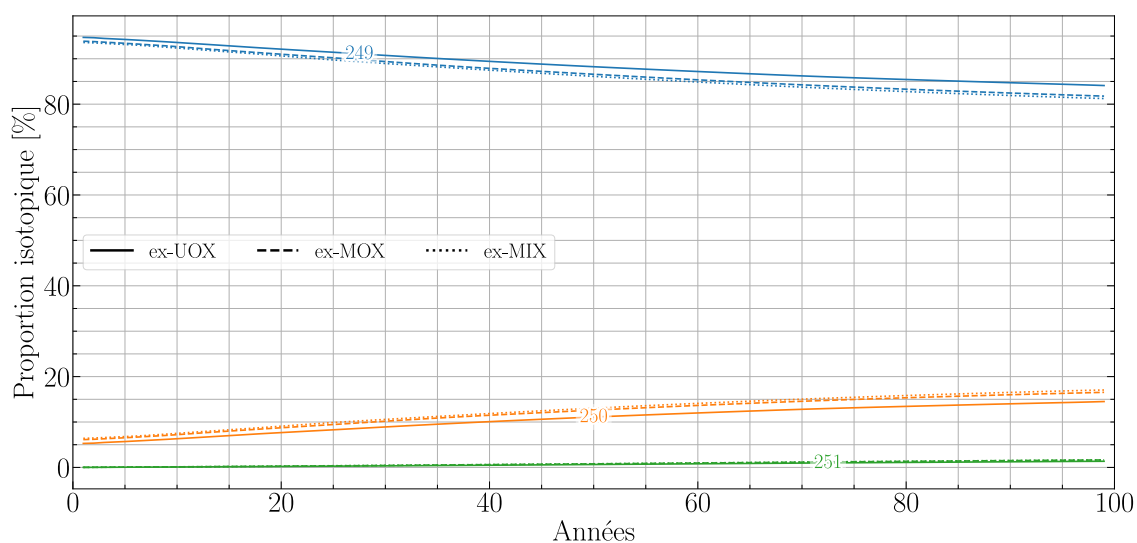


FIGURE 4.31 – Évolution temporelle du vecteur isotopique du californium selon le vecteur d'alimentation pour une teneur initiale en plutonium de 11.5%

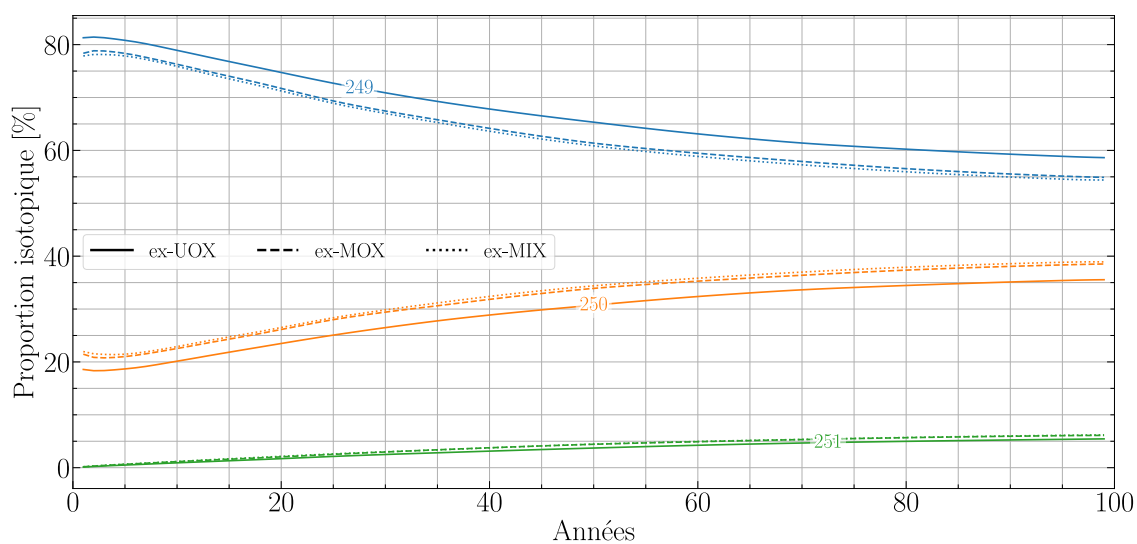


FIGURE 4.32 – Évolution temporelle du vecteur isotopique de californium selon le vecteur d'alimentation pour une teneur initiale en plutonium de 4%

Uranium La présence d'uranium est dominée par l'isotope 234 (>70%), produit par décroissance du ^{238}Pu , qui est non fissile, à durée de vie relativement courte ($2.46\text{E}5$ années) et décroissant principalement par émission de particules α . Les figures 4.33, 4.34 et 4.35 vont également dans le sens de l'augmentation en A des isotopes de l'uranium lorsque la teneur initiale de plutonium diminue. L' ^{234}U devient par captures successives de l' ^{235}U et de l' ^{236}U . Le premier est fissile, pas le second. Tous les trois décroissent par désintégration α en des temps respectivement de $2.46\text{E}5$, $7.04\text{E}8$ et $2.34\text{E}7$ ans.

Les différences d'isotopies observées à teneur identique proviennent de la teneur plus importante en ^{238}Pu dans le vecteur ex-MIX que dans le vecteur ex-UOX favorise le renouvellement en ^{234}U dans le vecteur uranium.

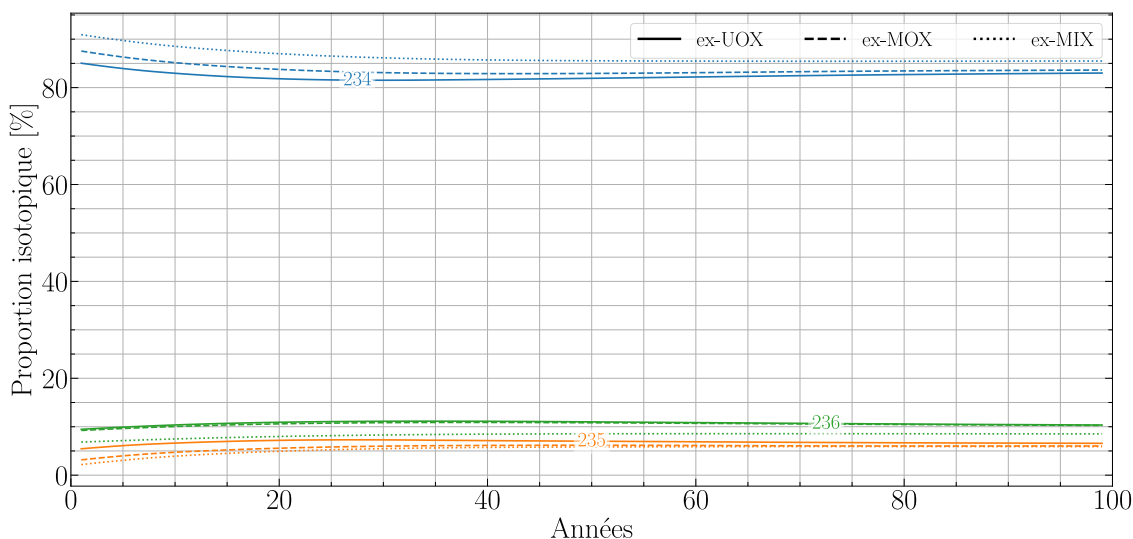


FIGURE 4.33 – Évolution temporelle du vecteur isotopique d'uranium selon le vecteur d'alimentation pour une teneur initiale en plutonium de 38.5%

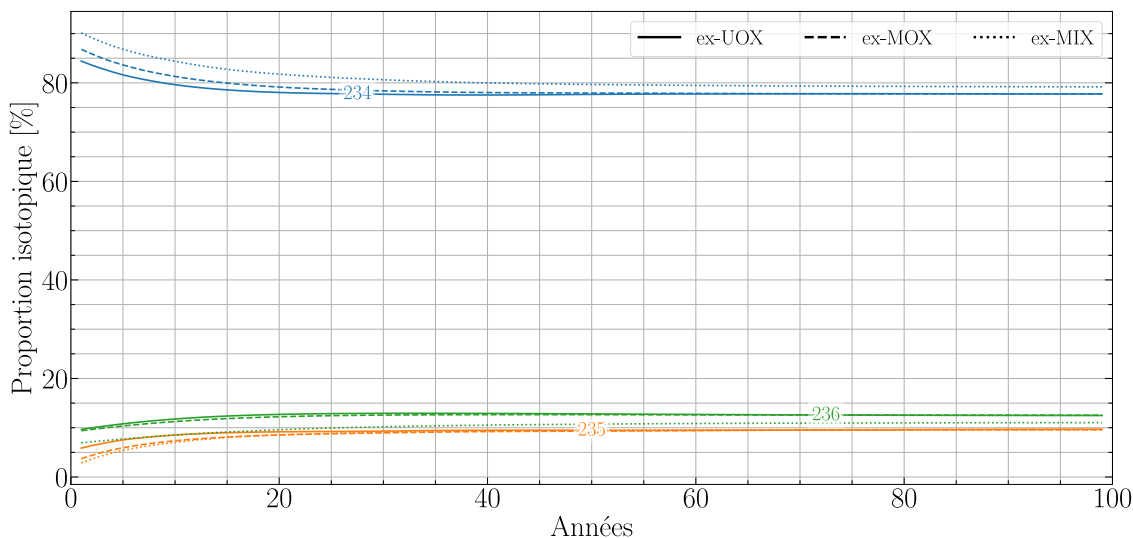


FIGURE 4.34 – Évolution temporelle du vecteur isotopique d'uranium selon le vecteur d'alimentation pour une teneur initiale en plutonium de 11.5%

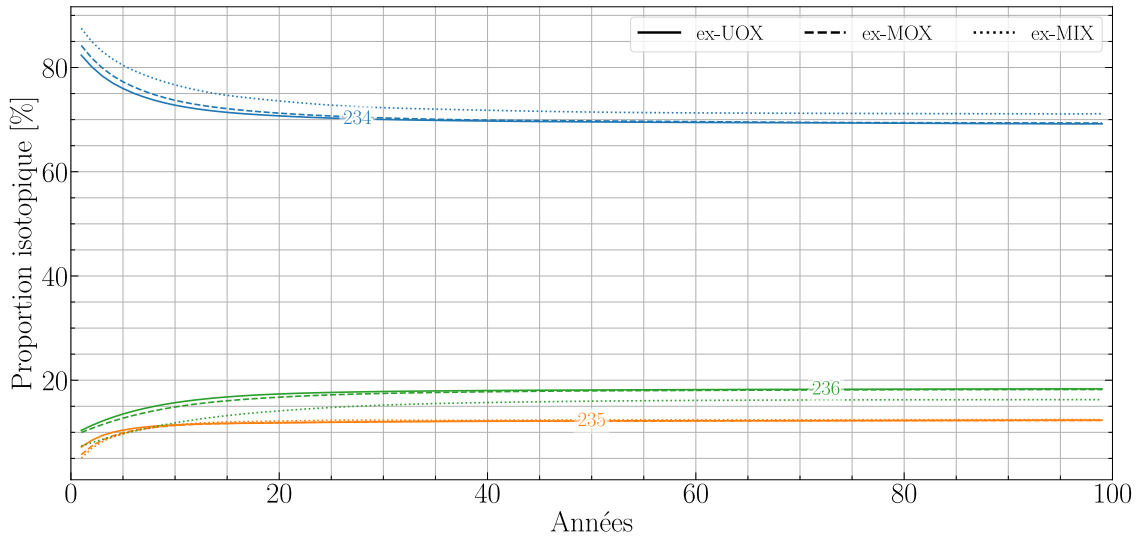


FIGURE 4.35 – Évolution temporelle du vecteur isotopique d'uranium selon le vecteur d'alimentation pour une teneur initiale en plutonium de 4%

4.4.2.c Alimentation en plutonium

Les réacteurs sont alimentés en continu pour maintenir la criticité neutronique. L'alimentation dépend des quantités de matière fissionnées ($39 \text{ kg/an}/100\text{MW}_{\text{th}}$) et de la production de noyaux neutrophages (PF, AM). Ainsi, l'alimentation est plus conséquente pendant les premières années de fonctionnement, période transitoire dans la composition du sel combustible. La figure 4.36 confirme que l'alimentation est directement liée à la puissance, puisque les faibles teneurs de plutonium impliquent de grands volumes de zones critiques et de plus grandes puissances, à puissance spécifique identique.

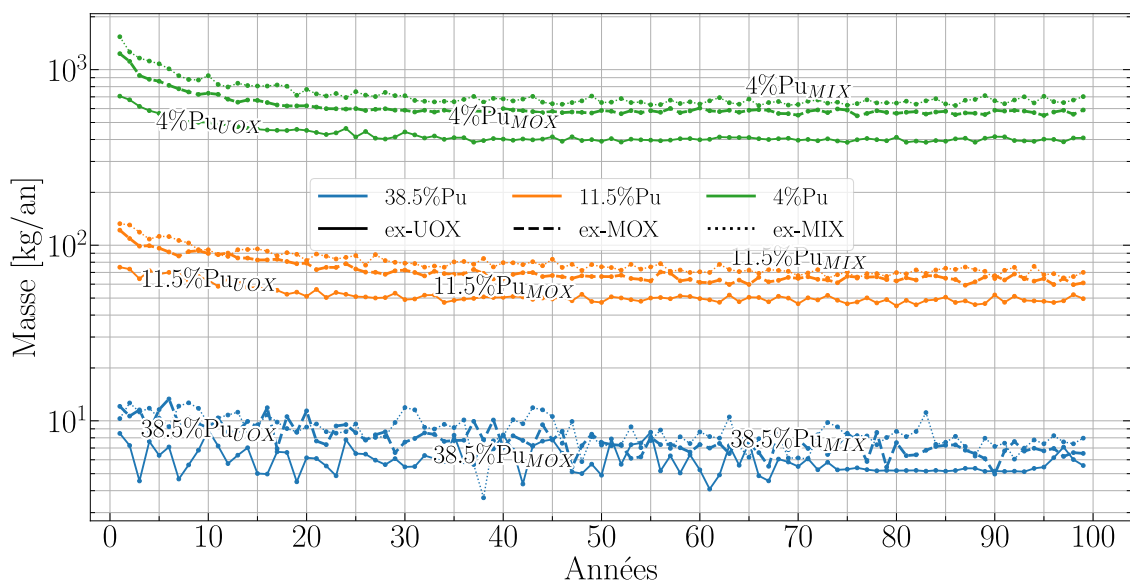


FIGURE 4.36 – Alimentation annuelle en plutonium selon la teneur en plutonium initiale et le vecteur d'alimentation

Pour mieux se représenter l'évolution de l'alimentation des différents cas, la figure 4.37 reprend la figure 4.36 en normalisant par la puissance thermique de chaque configuration de réacteur et effectue une moyenne glissante sur cinq ans (les 4 premières années ne sont donc pas représentées). La suralimentation nécessaire de la période transitoire est très visible pour l'ensemble des simulations. On constate également que, pour chaque teneur en plutonium, les vecteurs de plutonium ex-MOX et ex-MIX impliquent une alimentation un peu plus importante que la version alimentée en plutonium ex-UOX pendant les 15 premières années de fonctionnement, à cause de la qualité fissile moindre de ces vecteurs qui compense moins facilement la perte de réactivité. Ensuite, l'alimentation atteint la valeur nominale de $0.39 \text{ kg}/(\text{an} \cdot \text{MW}_{\text{th}})$ (masse fissionnée par an, section 1.4.2). Les fortes teneurs de plutonium arrivent plus lentement à la masse alimentée annuelle d'état stationnaire que les faibles teneurs, car les sections efficaces macroscopiques sont plus faibles en spectre rapide qu'en spectre thermique, ce qui rend la cinétique d'évolution plus lente.

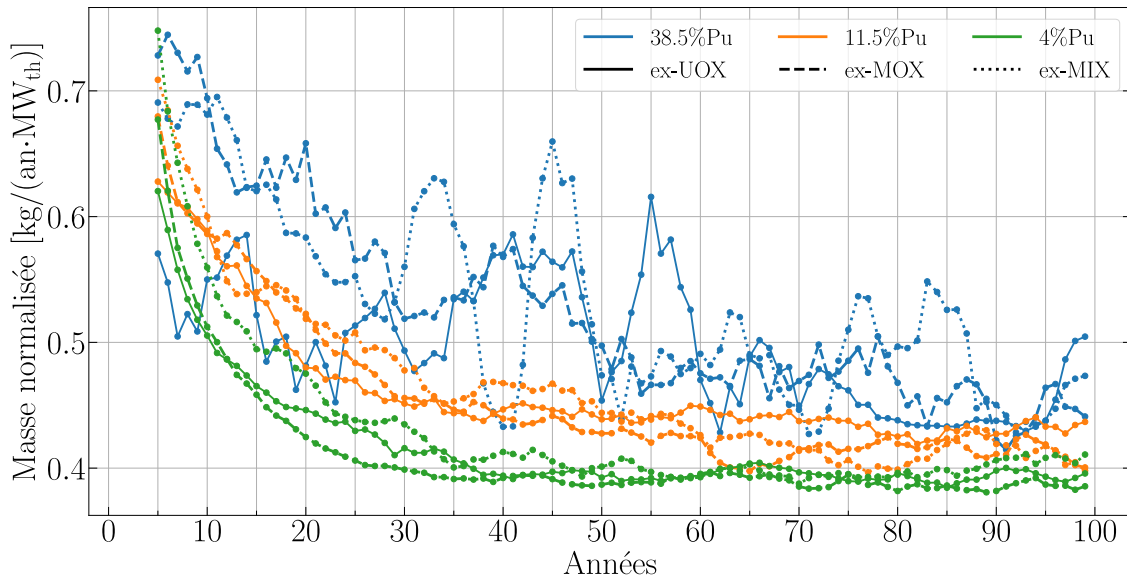


FIGURE 4.37 – Moyenne glissante sur quatre ans de l'alimentation annuelle en plutonium normalisée en puissance thermique

4.4.2.d Volume ionique de sel

Ainsi qu'introduit en annexe A, un volume ionique est calculé pour estimer la masse volumique du sel combustible. Ce volume ionique est également estimé au cours du calcul de l'évolution du réacteur, car il est un repère d'un déséquilibre entre retraitement et alimentation. En effet, l'ajout de combustible implique une augmentation de volume, qui est en principe compensée par l'extraction de sel combustible envoyé au retraitement. Le débit d'alimentation est variable selon les besoins en réactivité supplémentaire, mais le débit d'extraction est lui fixé tout au long de la simulation. Il s'agit alors d'estimer une vitesse de retraitement adaptée pour que le volume de sel combustible soit constant (tableau 3.3). L'objectif est de maintenir la variation de volume ionique la plus faible possible et de l'ordre du pourcent (écart de $+200 \text{ pcm}/\%_{\rho}$ d'après la section 4.2.7). La figure 4.38 présente les variations des volumes ioniques des neuf configurations, toutes inférieures à 2% relatif (écart de $+400 \text{ pcm}$), ce qui est considéré acceptable pour notre

étude au vu des autres incertitudes bien plus élevées (bases de données, diagramme ternaire, etc.). On note que les volumes ioniques ne se stabilisent pas, ce qui laisse supposer que la vitesse de retraitement est un peu élevée pour les configurations à 4% initiaux (diminution) et un peu faible pour les configurations à 38.5% initiaux (croissance).

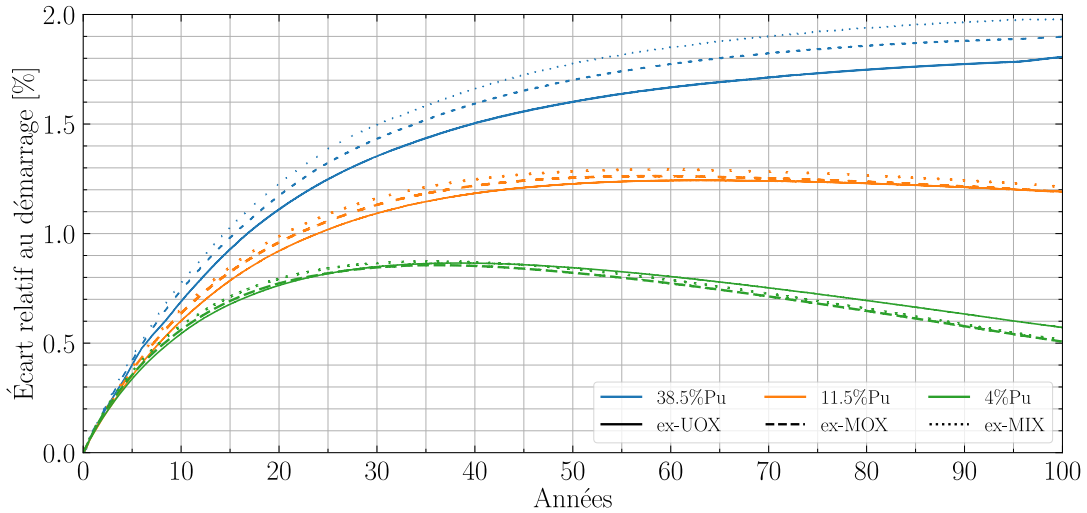


FIGURE 4.38 – Écart relatif du volume ionique au cours du temps pour les neuf configurations

4.4.3 Efficacité de conversion

L'objectif de cette partie est d'appliquer les différentes définitions de la section 3.4.2 afin d'éventuellement choisir un critère pertinent pour la caractérisation des réacteurs convertisseurs.

4.4.3.a Mobilisation de matière

La mobilisation de matière est une problématique liée au démarrage du réacteur, car c'est elle qui permet la criticité du cœur. Chaque année, l'alimentation compense les fissions, mais aussi l'empoisonnement du cœur par les PF et l'accumulation d'AM. On s'intéresse ici au démarrage d'un réacteur chargé en plutonium de diverses qualités. Les différences observées entre les vecteurs isotopiques sont liées à la nécessité de compenser la perte de réactivité à cause des captures par une alimentation d'autant plus grande que la qualité du plutonium injecté diminue (section 4.4.2). Le vecteur ex-MIX est donc légèrement en défaveur puisque la proportion de noyaux fissiles est plus faible.

Ainsi, en reprenant l'équation 3.3, $\eta(t) = \frac{\int_0^t m_{\text{fissionnée}}}{m_{\text{initiale}} + \int_0^t m_{\text{alimentée}}}$, la masse convertie par an *par des fissions* dépend de la puissance du réacteur et donc de la puissance volumique, que l'on suppose dans un premier temps identique à toutes les configurations étudiées. En appliquant l'équation 3.3 aux compositions témoin à 38.5%, 11.5% et 4% de plutonium, la figure 4.39 montre qu'un grand cœur de réacteur permet de moins mobiliser de matière qu'un petit cœur à puissance volumique identique. Avec ce critère sur l'efficacité, il vaut mieux privilégier un réacteur de grande taille.

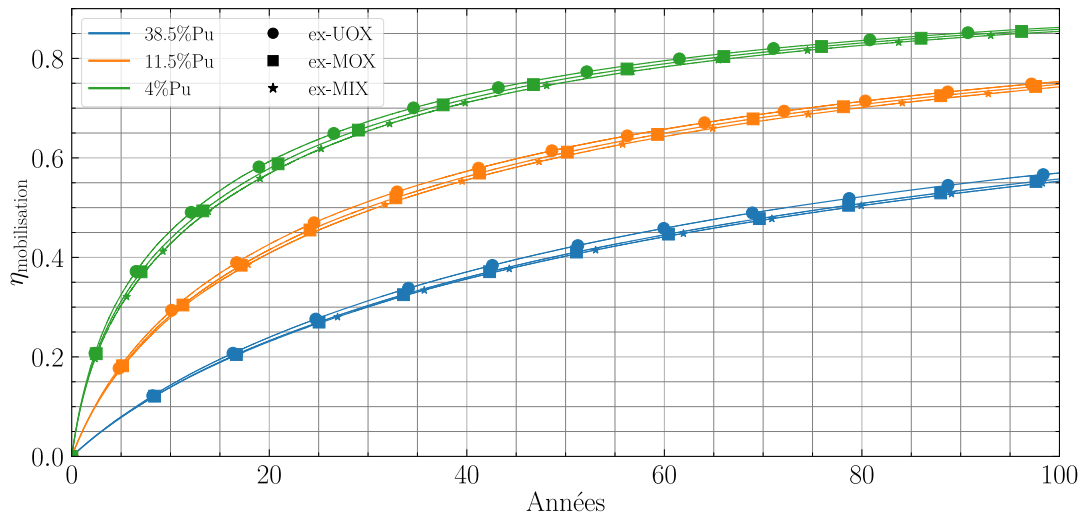


FIGURE 4.39 – Efficacité pour le critère de mobilisation de matière pour trois teneurs en plutonium ex-UOX, ex-MOX et ex-MIX

4.4.3.b Proportion de fissions

Une seconde approche est de regarder les taux de réactions (section 3.4.2), qui sont un reflet de l'énergie des neutrons. En effet, à hautes énergies (autour du MeV), les neutrons vont principalement induire des fissions sur les actinides et peu de captures. L'objectif étant de consommer des matières non réutilisées actuellement pour diminuer les inventaires, il est préférable d'éviter de les produire autant que faire se peut. Ainsi, on souhaite maximiser les fissions et diminuer les captures. On utilise donc l'équation 3.4, $\eta = \frac{\tau_f}{\tau_a} = \frac{\tau_f}{\tau_c + \tau_f}$, pour quantifier cet aspect du cœur.

La figure 4.40 montre le contraire de la figure 4.39, à savoir qu'un petit cœur (bleu) est à privilégier pour limiter les captures, notamment sur les isotopes non fissiles comme les plutoniums 240 et 242. On observe en effet un écart d'environ 30% pour les ^{240}Pu et ^{242}Pu dans la proportion de fission. La diminution de la teneur en plutonium implique une diminution des sections efficaces macroscopiques de fission sur le plutonium et les neutrons, ayant donc une probabilité plus importante de rencontrer le solvant, vont plus diffuser et ralentir, ce qui favorise les captures sur les actinides. Dans un second temps, la qualité du vecteur isotopique impacte la proportion de fission. Une qualité moindre de plutonium se traduit par une augmentation des captures à nombre de fissions identique, car le volume de la zone critique, à composition identique, est un peu plus grand, permettant à certains neutrons de diffuser suffisamment pour être capturés au lieu de fissionner. Cette diminution de la proportion de fission avec la teneur en plutonium initiale est en accord avec l'évolution des proportions isotopiques de l'américium et du curium de la section 4.4.2.b.

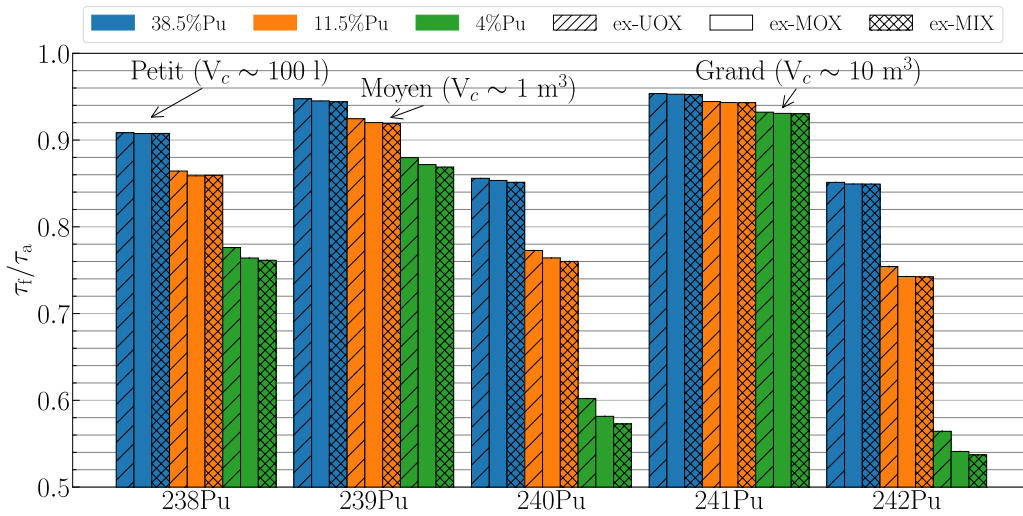


FIGURE 4.40 – Évaluation de la proportion de fission pour chaque isotope du plutonium au démarrage du réacteur selon le vecteur isotopique de plutonium et la composition du sel combustible

Au cours du fonctionnement, une amélioration de la proportion de fission s’effectue pour les moyens et grands volumes (orange et vert) comme montré par la figure 4.41 à 50 ans de fonctionnement. On observe une diminution notable d’environ 20% des écarts sur les ^{240}Pu et ^{242}Pu . Ceci peut s’expliquer par une dureté du spectre neutronique (figure 4.42) plus importante du fait de l’augmentation de la teneur en plutonium (4 → 8%, tableau 4.8) pour compenser la production de PF qui sont des poisons neutroniques, comme présenté précédemment. Le même effet se produit pour les autres configurations, mais dans une moindre mesure.

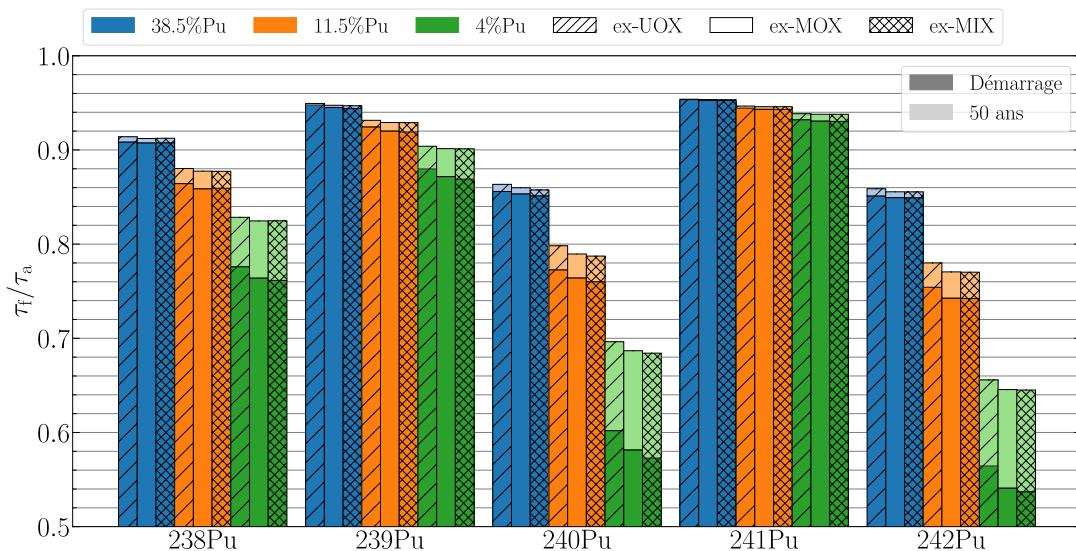


FIGURE 4.41 – Comparaison de la proportion de fission pour chaque isotope du plutonium au démarrage et à 50 ans de fonctionnement du réacteur selon le vecteur isotopique de plutonium et la composition du sel

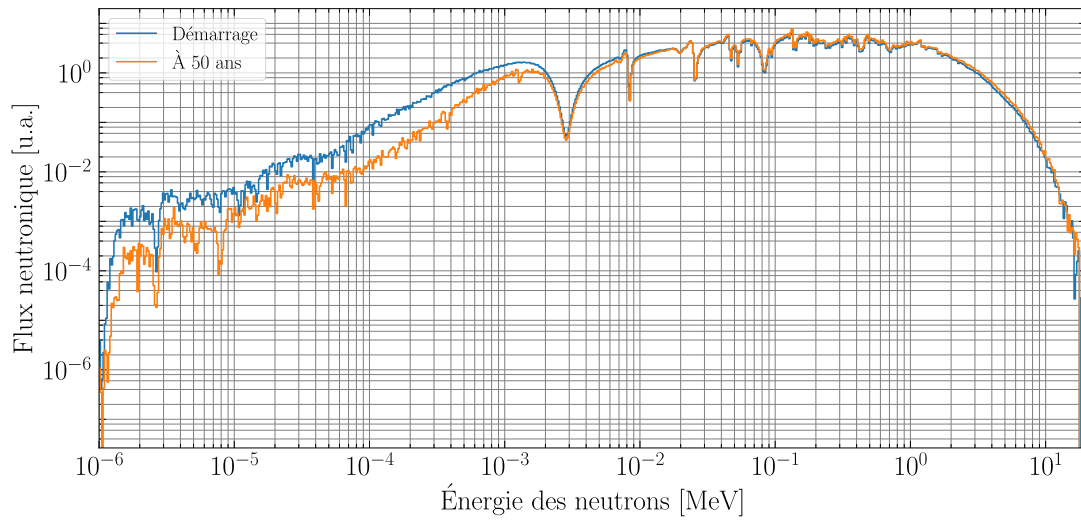


FIGURE 4.42 – Évolution du spectre neutronique en cœur entre le démarrage et 50 ans de fonctionnement du cas $4Pu_{MOX}Cl_3-38.5MgCl_2-57.5NaCl$, chlore enrichi à 99% en ^{37}Cl

Les actinides mineurs créés par captures peuvent participer au maintien de la criticité neutronique. La figure 4.43 montre que les trois isotopes du curium présentent fissionnent à plus de 65%, quelle que soit la configuration. L'américium et le neptunium sont *a contrario* plus consommateurs de neutrons, que producteurs. Les trois isotopes regardés ici ne fissionnent qu'entre 30 et 60% des cas. On retrouve avec les actinides mineurs les mêmes conclusions qu'avec le plutonium : faible teneur en plutonium initial et vecteur isotopique peu dégradé favorisent les fissions.

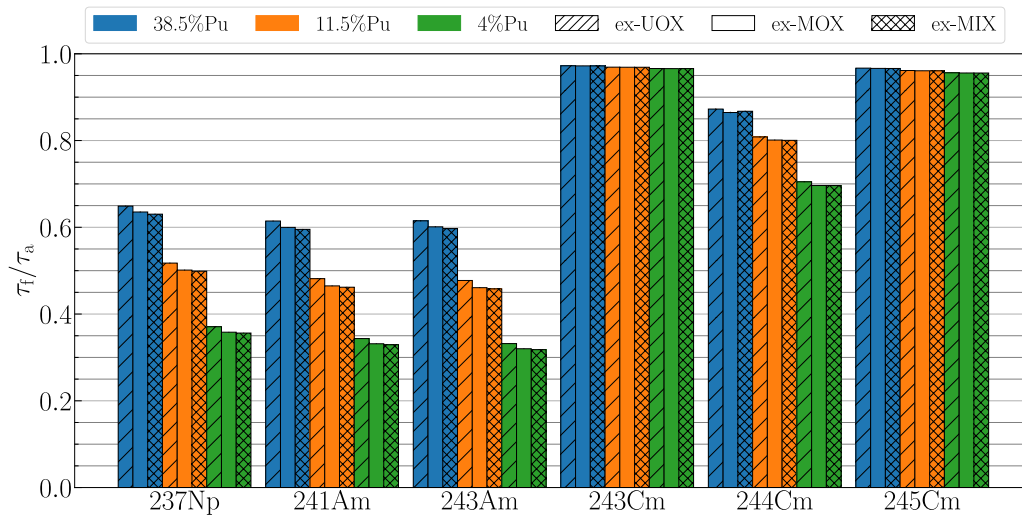


FIGURE 4.43 – Évaluation de la proportion de fission de certains actinides mineurs à 47 ans de fonctionnement du réacteur selon le vecteur isotopique de plutonium et la composition du sel

4.4.3.c Consommation de l'uranium et des transuraniens

La dernière définition de l'efficacité de conversion se focalise sur un bilan matière temporel des entrées dans le cœur (masse initiale et alimentation) et des sorties (extraction et accumulation) comme quantifié par l'équation 3.5, $\text{bilan}(t) = m_{\text{cœur}}(t) + \int_0^t \text{alimentation}(t) - m_{\text{init}} - \int_0^t \text{extraction}(t)$.

La figure 4.44 présente le bilan massique du plutonium normalisé en puissance. Celui-ci est négatif pour toutes les configurations et d'autant meilleur que le vecteur isotopique est dégradé. Une forte teneur initiale de plutonium amène également à une plus grande consommation de plutonium, mais le temps nécessaire pour consommer l'inventaire initial est très grand (≈ 47 ans pour les cas 38.5% contre 6 ans pour les cas 4%). Cependant, il faut noter que le bilan massique ne permet pas de savoir par quelle voie le plutonium a disparu : capture ou fission.

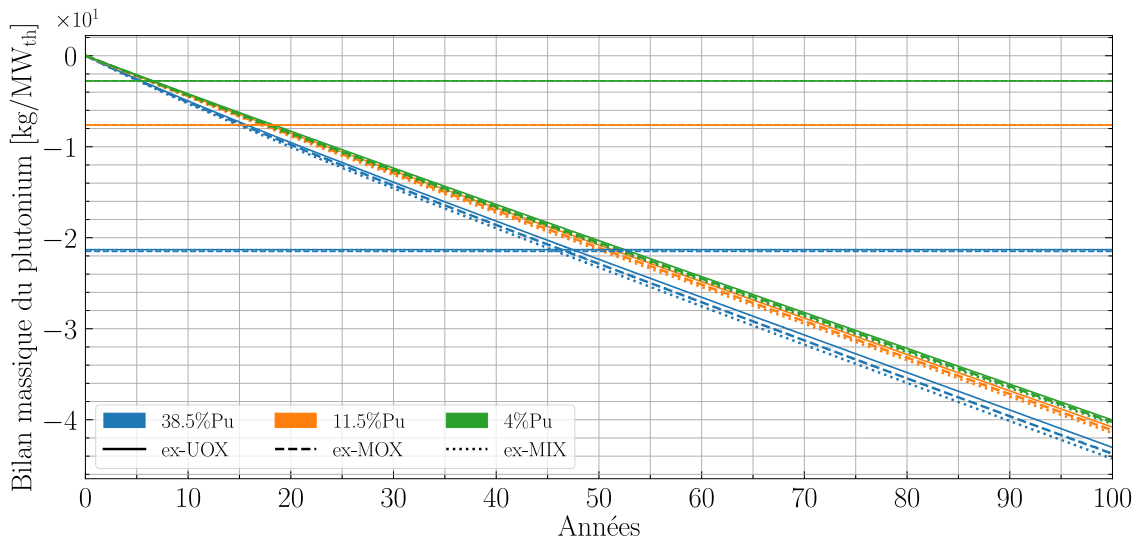


FIGURE 4.44 – Bilan massique du plutonium au sein des neuf configurations avec l'image de la masse initiale de plutonium dans le sel combustible

Il est donc nécessaire de mettre en regard l'évolution du bilan du plutonium avec les autres transuraniens. Comme ils ne font pas partie de l'alimentation, ces actinides mineurs vont être créés par captures et décroissances.

Comme déjà montré par les figures 4.17, 4.18 et 4.19, l'américium est plus produit – ou disparaît moins facilement – dans les réacteurs à forte concentration initiale de plutonium (figure 4.45). Le spectre plus rapide empêche la montée trop rapide (puis décroissance) des noyaux d'américium. La production plus importante de cet élément est également influencée par le vecteur isotopique d'alimentation, car le ^{241}Pu décroît en ^{241}Am , qui peut mener à la production de noyaux plus lourds d'américium.

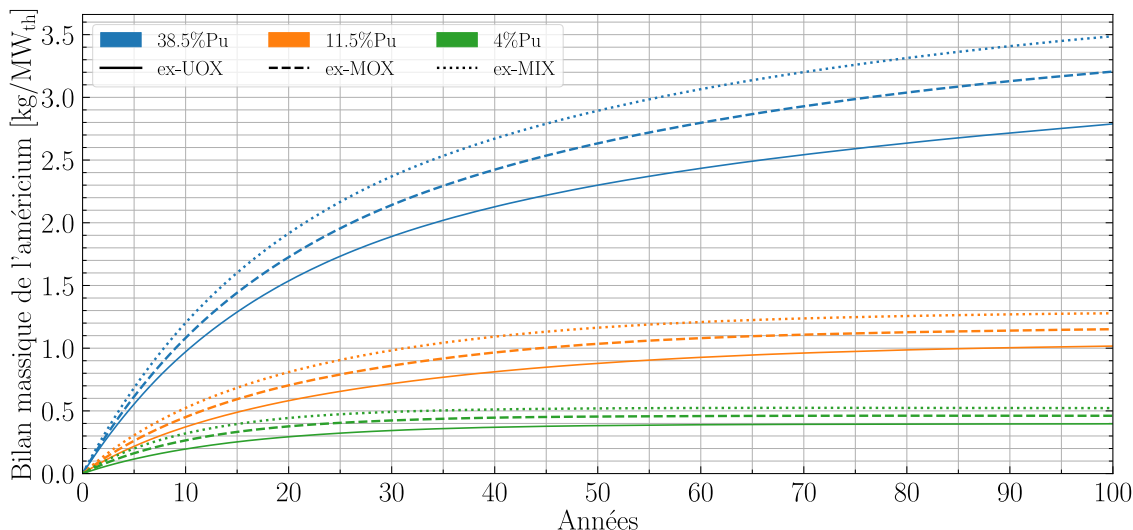


FIGURE 4.45 – Bilan massique de l'américium au sein des neuf configurations

La production de curium est, à l'inverse, l'apanage des simulations à faibles teneurs initiales, à cause des captures qui amènent progressivement à une montée en A via l'américium, au moins sur les premières dizaines d'années (figure 4.46). Sans surprise, les vecteurs dégradés amènent plus rapidement et en des quantités plus grandes à la production de curium. Les cas 11.5% et 38.5% ne voient pas de stabilisation de la quantité de curium sur les 100 ans de simulation. Les quantités produites vont s'approcher de celles des cas à 4% si le sel combustible continue d'évoluer.

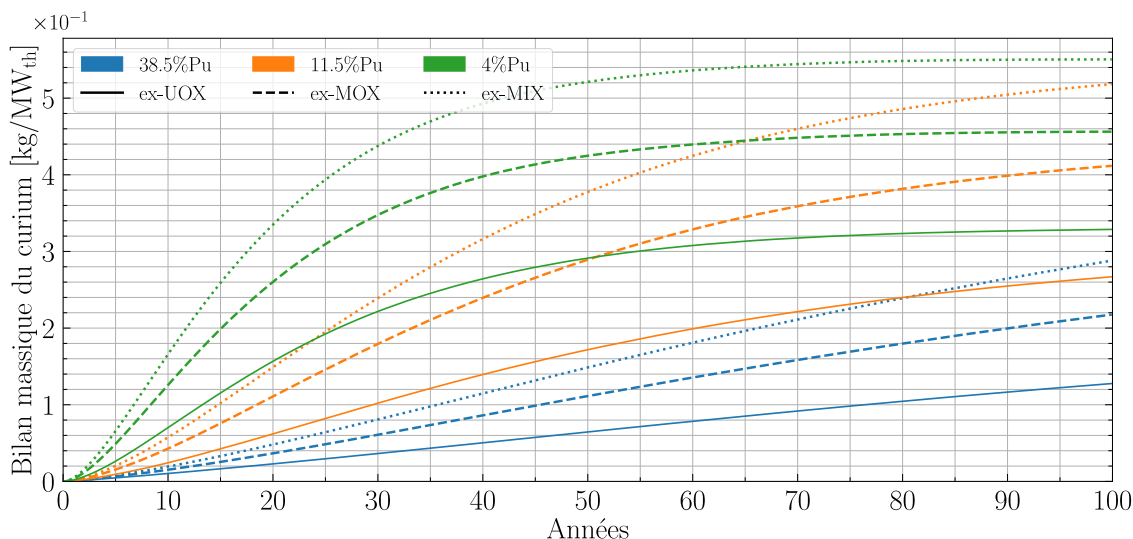


FIGURE 4.46 – Bilan massique du curium au sein des neuf configurations

La figure 4.47 présente la production du neptunium normalisée en puissance. On observe que la création de neptunium se produit essentiellement dans les petites configurations de réacteur et avec un plutonium dégradé. La voie principale de production du neptunium est la décroissance de l' ^{241}Am . Ce dernier est produit à partir de la décroissance du ^{241}Pu . Pour cela, un vecteur à plus forte teneur en cet isotope ou en ^{240}Pu , qui capture, le favorise. Il faut également peu de captures sur cet isotope peu fissile de l'américium (figure 4.43), soit un spectre dur (forte teneur en Pu).

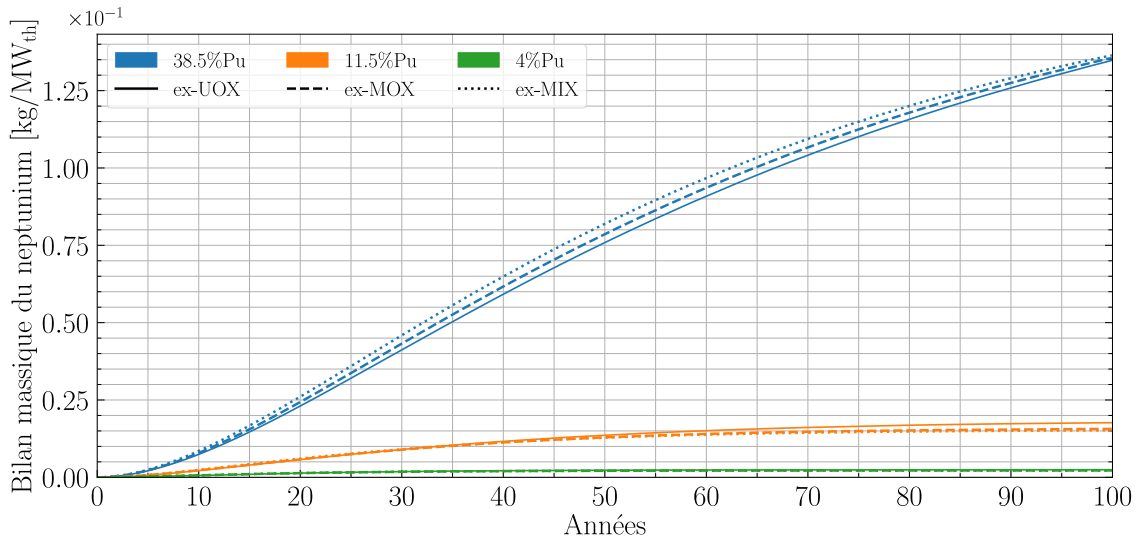


FIGURE 4.47 – Bilan massique du neptunium au sein des neuf configurations

La figure 4.48 présente la production de californium au sein des neuf configurations. Les écarts sont considérables (1E5 à 50 ans entre les 38.5% et 4%) pour les mêmes raisons que pour le curium. Il est plus aisé de produire de gros noyaux avec une faible teneur de plutonium, car l'énergie des neutrons est un peu plus faible, induisant plus de captures.

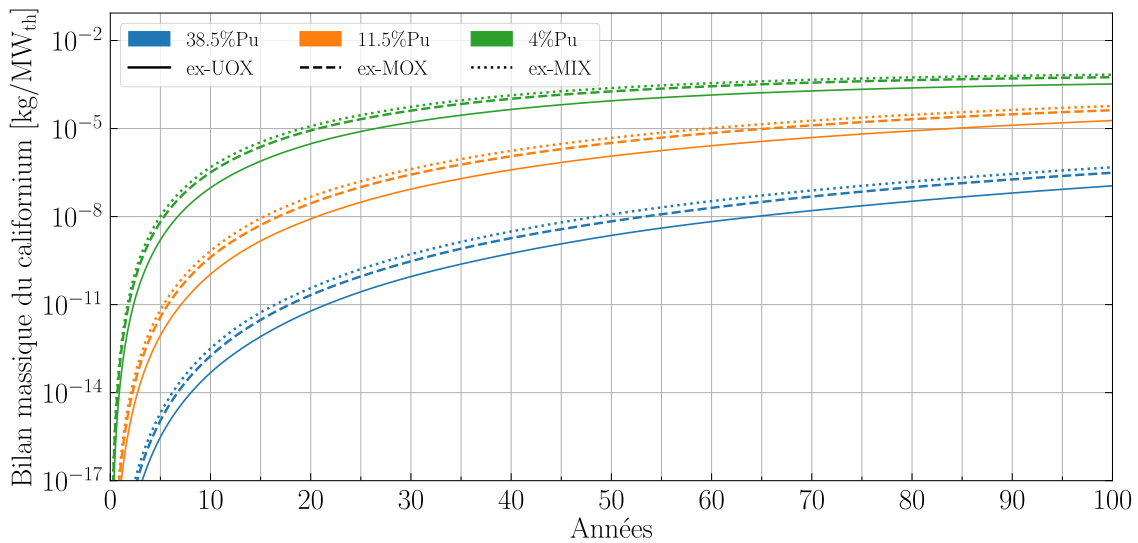


FIGURE 4.48 – Bilan massique du californium au sein des neuf configurations

Enfin, la production nette d'uranium est indiquée en figure 4.49. Les captures sur le ^{238}Pu limitent la production d' ^{234}U par décroissance. De plus, les vecteurs dégradés de plutonium (ex-MIX) contiennent plus de ^{238}Pu , menant à une production d'uranium plus importante. Cet uranium est extrait du sel combustible et envoyé à la vitrification. Une discussion sur l'impact de ce choix sera faite en section 4.4.9.

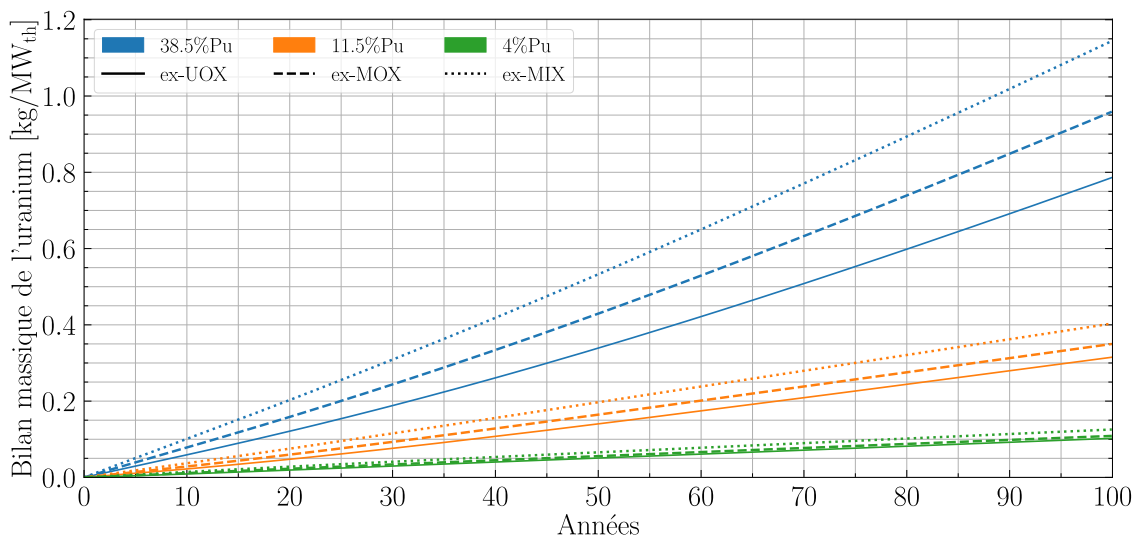


FIGURE 4.49 – Bilan massique de l'uranium au sein des neuf configurations

Bilan global de consommation et de production La figure 4.50 présente le bilan global normalisé par l'énergie produite des différentes configurations. À 100 ans de fonctionnement, le plutonium est consommé à hauteur de 46-48 kg/(TW_{th} · h) respectivement pour les configurations 4% et 11.5%, arrivées à l'état stationnaire. Les cas 38.5% consomment davantage pour permettre la compensation de la production d'actinides mineurs et de produits de fission. Cette consommation de plutonium donne en partie lieu à la création d'actinides mineurs, à hauteur de 2-4 kg/(TW_{th} · h) respectivement pour les configurations 4% et 11.5%. La production est plus importante pour les configurations 38.5% car elle est liée à la forte consommation de plutonium.

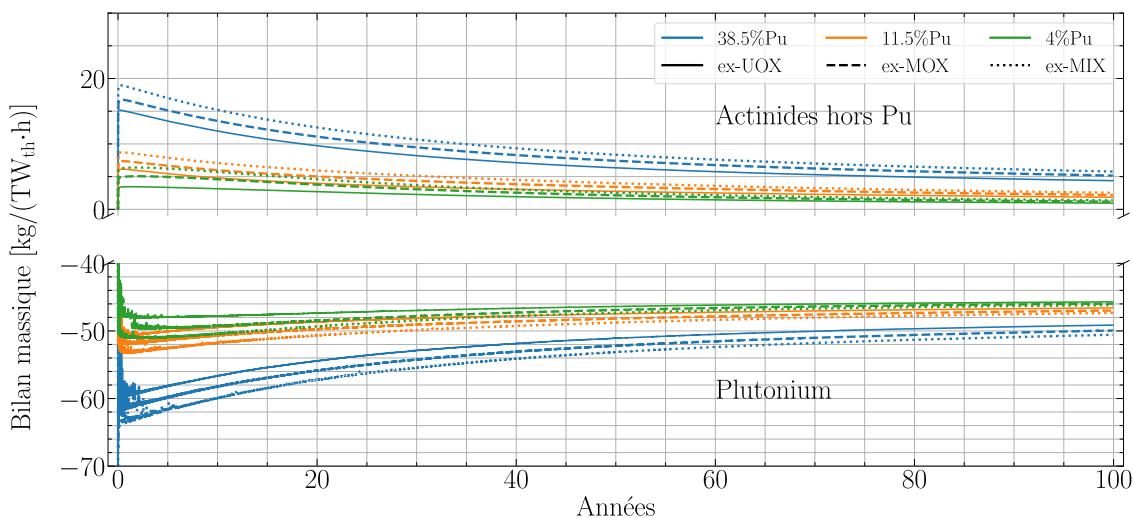


FIGURE 4.50 – Bilan massique global des actinides principaux

Pour rappel, la consommation par fission d'actinides (de masse équivalente au ²³⁹Pu) est de 44.9 kg/(TW_{th} · h) (section 1.4.2). Toute consommation supérieure correspond donc à la production d'actinides mineurs, ce qui est observé ici.

4.4.3.d Conclusion

L'application des trois définitions de l'efficacité de conversion dans cette section n'amène pas aux mêmes conclusions. En effet, la mobilisation de plutonium et le bilan de consommation montrent que les faibles teneurs de plutonium (et donc grands volumes de cœur) sont plus efficaces, par une consommation rapide de la masse initiale et une alimentation qui compense quasi uniquement les fissions. Le critère de proportion de fission montre au contraire que les réacteurs compacts (forte teneur de plutonium) fissionnent mieux le plutonium et les transuraniens. Ce dernier critère possède en réalité un biais important puisqu'il ne présente qu'une image du rapport de sections efficaces à un instant donné, normalisé à chaque isotope, que l'on sait favorable aux réacteurs à spectre rapide. Les taux de fission et de captures sont bien plus faibles pour les réacteurs à spectres très rapides à cause de la diminution importante des sections efficaces microscopiques.

En ne considérant que le critère de mobilisation de matière et le bilan des consommations ou productions, les faibles teneurs sont avantageuses pour atteindre l'état stationnaire rapidement et faire disparaître l'inventaire initial en quelques années. La production de transuraniens normalisée par la puissance montre une faible production d'uranium, d'américium et de curium, surtout pour les vecteurs peu dégradés de plutonium. La production de curium et de californium est en revanche plus grande, et ce d'autant que la qualité du plutonium diminue. Ces éléments plus lourds sont produits par captures et décroissances sur le plutonium et l'américium. Un spectre moins rapide que les configurations à 38.5% tend donc à produire davantage de noyaux très lourds. Bien que les grands réacteurs semblent avantageux par la consommation rapide de plutonium, il faut quantifier l'impact de la présence des actinides mineurs lourds lors de la production de CSD-V pour attester ou non d'un gain sur le nombre produit et leur radiotoxicité.

4.4.4 Effluents de retraitement envoyés à la vitrification

Le retraitement simulé ici suppose une séparation parfaite des TRU et leur renvoi dans le cœur de manière quasi immédiate. Avec ces hypothèses fortes, seuls les produits de fission (et les actinides plus légers que le neptunium) sont envoyés à la vitrification. Le retraitement comporte trois voies d'extraction desdits PF : PF gazeux (qui peuvent décroître en forme non gazeuse), les PF solubles dans le sel et les PF insolubles, dont le comportement en réacteur est à ce jour incertain. On suppose leur extraction et leur vitrification, mais il est possible qu'ils restent dans le circuit combustible, se déposent dans les canaux des échangeurs par exemple (risque d'obstruction) ou participent à l'abrasion des tuyauteries.

La dynamique d'extraction est différente selon les circuits de retraitement. Ainsi, les PF gazeux et insolubles sont supposés être extraits dans la minute, alors que les PF dissous dans le sel combustible sont extraits en 18.3 ans (tableau 3.3). La figure 4.51 présente les masses extraites normalisées en puissance thermique chaque année pour les différents vecteurs isotopiques de plutonium. L'évolution des courbes dépend de la modélisation du retraitement, ici fonction de transfert continue en exponentielle décroissance ($\lambda^{\text{retraitement}}$ de l'équation 3.1 \approx décroissance chimique, comme une décroissance radioactive [106]). On observe que les PF dissous dans le sel combustible représentent environ 50% des produits de fissions produits et extraits à l'état stationnaire. Par ailleurs, la production est identique, car uniquement dépendante de la puissance du réacteur, et que l'énergie des neutrons n'est pas suffisamment différente pour changer radicalement la masse (et

donc le type) de produits de fission créés (section 1.2.2). Les écarts observés certaines années sont liés à une diminution ou une augmentation de l'alimentation, qui implique une concentration, ou dilution, des produits de fission. L'extraction enlève un volume identique chaque année, ce qui induit une augmentation ou une baisse du prélèvement des PF.

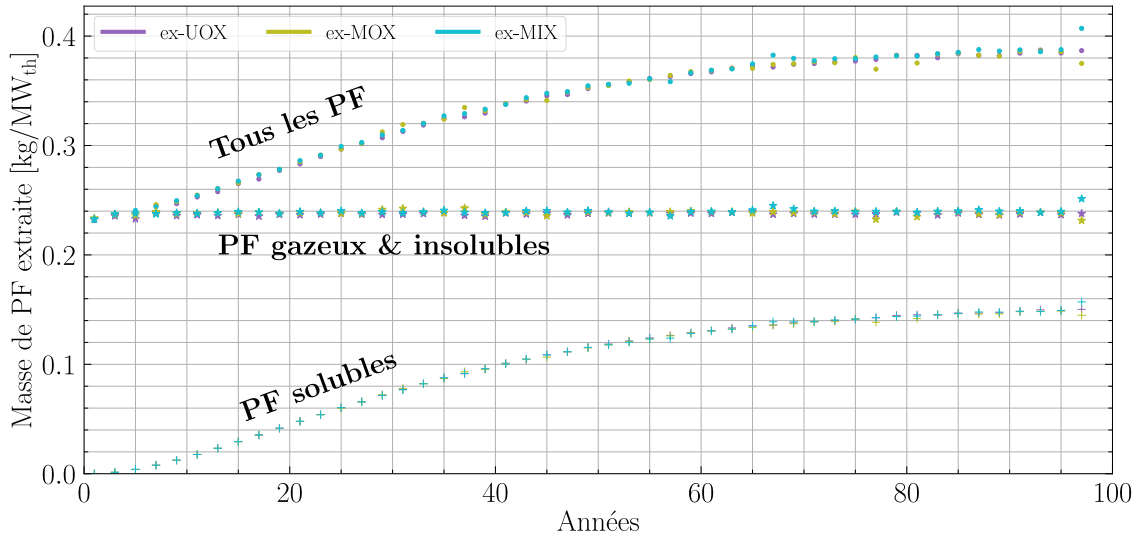


FIGURE 4.51 – Extraction annuelle normalisée des produits de fission des configurations $11.5PuCl_3-30.3MgCl_2-58.2NaCl$ selon les trois voies de retraitement

Les masses extraites de produits de fission dépendent de la puissance thermique, directement reliée à la masse fissionnée. Ainsi, pour pouvoir comparer les extractions de PF entre les neuf configurations, la figure 4.52 présente l'extraction totale normalisée par la puissance thermique. L'extraction de produits de fission est peu impactée par la teneur en plutonium ou le vecteur isotopique. Les écarts visibles entre les différentes teneurs peuvent être expliquées par une plus forte production d'uranium (isotope 234) dans les configurations fortement concentrées en plutonium. Le retraitement mis en place pour ces simulations consiste à extraire tout élément plus léger que le neptunium. L'uranium est alors extrait. La non prise en compte de l'uranium permet de corriger les écarts observés (figure 4.53). On constate que la masse des produits de fission extraits est inférieure d'environ 5 à 10 g/MW_{th} à la masse théorique fissionnée, estimée par l'équation 1.4. Une partie de la masse est transmise aux neutrons et perdue par décroissances des fragments de fission.

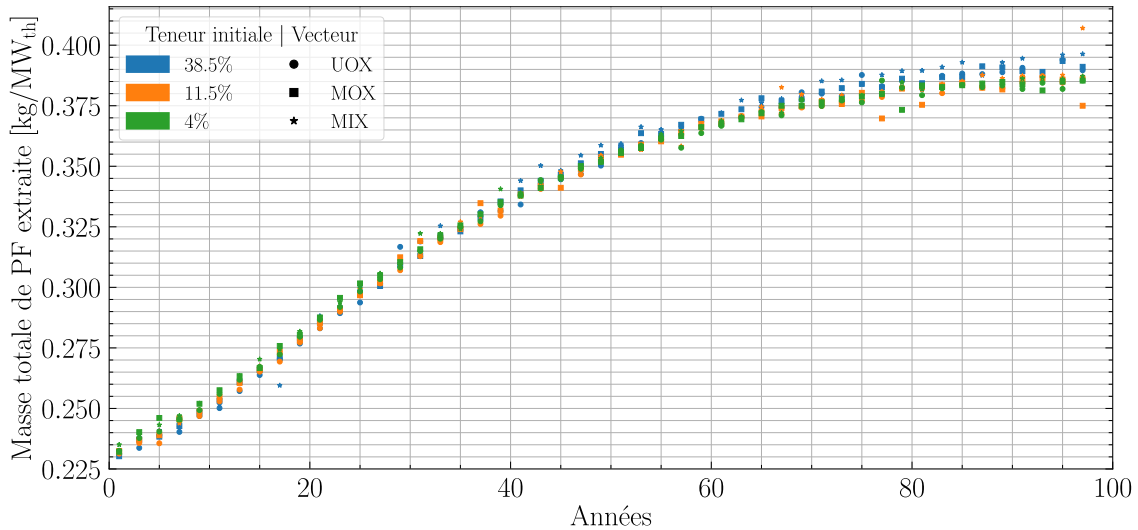


FIGURE 4.52 – Extraction annuelle totale normalisée en puissance des produits de fission des neuf configurations

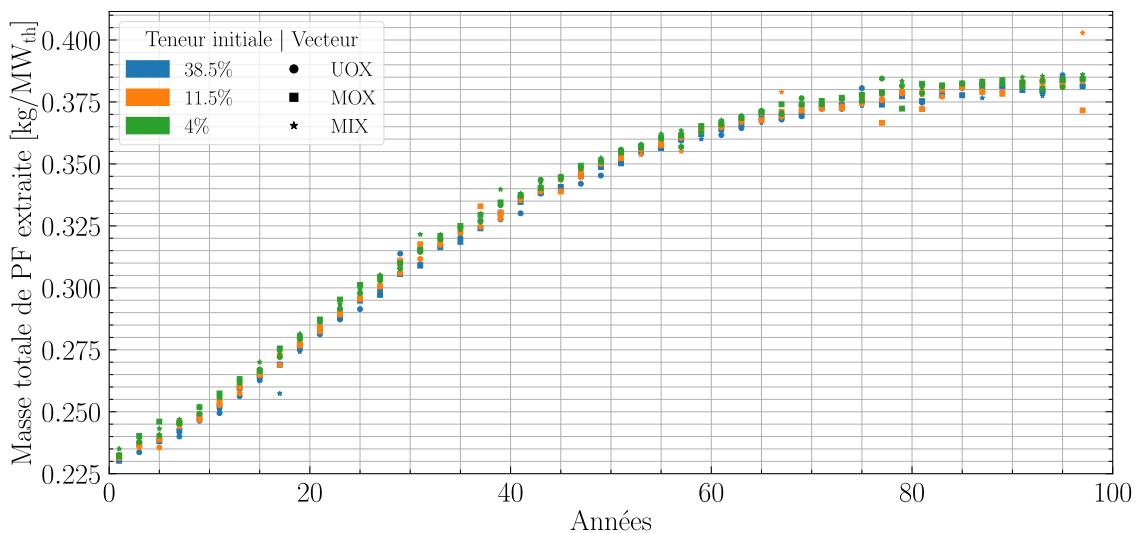


FIGURE 4.53 – Extraction annuelle totale normalisée en puissance des produits de fission des neuf configurations sans prise en compte de l'uranium

4.4.5 Production de chlore et de soufre

Comme évoqué dans la section 3.4.3, l'enrichissement en chlore est nécessaire pour limiter la production de ^{36}Cl par réaction (n, γ) sur le ^{35}Cl ainsi que limiter la taille du cœur en limitant les noyaux absorbants. Il n'est cependant pas possible de supprimer complètement le ^{35}Cl ni d'empêcher la production de ^{36}Cl , quand il est aussi produit de façon minoritaire par réaction (n,2n) sur le ^{37}Cl (réaction à seuil de 10.6 MeV). L'objectif est alors d'estimer les quantités produites dans un sel enrichi à 99% de ^{37}Cl pour évaluer la radiotoxicité éventuellement relâchée en cas de fuite et ingérée. Le calcul de la radiotoxicité est effectué à partir des données du tableau 3.8 et de l'équation 3.6 et en supposant que tout le ^{36}Cl est relâché.

La figure 4.54 présente donc la production de ^{36}Cl normalisée par la puissance du réacteur (directement proportionnelle au volume, car la puissance spécifique est supposée identique pour toutes les simulations). Comme attendu, la production de ^{36}Cl est plus importante pour les grands volumes que les cœurs compacts du fait du parcours plus important des neutrons avant de rencontrer un noyau d'actinides et d'induire une fission. À teneur initiale identique de plutonium, un vecteur de plutonium ex-MIX induisant un volume de zone critique un peu plus grand qu'un vecteur ex-UOX, les neutrons perdent un peu plus d'énergie entre deux fissions et risquent d'être plus capturés par le ^{35}Cl .

Cela se confirme avec la figure 4.55 où les voies de productions sont montrées pour les trois teneurs initiales et les vecteurs ex-UOX et ex-MIX. La production de ^{36}Cl vient de la capture du ^{35}Cl , malgré sa faible teneur dans le solvant. Le spectre neutronique plus rapide dans les configurations à forte teneur en plutonium n'implique pas une augmentation de la production par $(n,2n)$ sur le ^{37}Cl mais seulement la diminution de la réaction (n,γ) sur le ^{35}Cl (les sections efficaces de ces deux réactions sont montrées en section 3.4.3). La radiotoxicité normalisée associée au ^{36}Cl du sel combustible est multipliée par 4 entre les configurations à 38.5% et à 4% ($2 \text{ Sv}/\text{MW}_{\text{th}}$ et $8 \text{ Sv}/\text{MW}_{\text{th}}$).

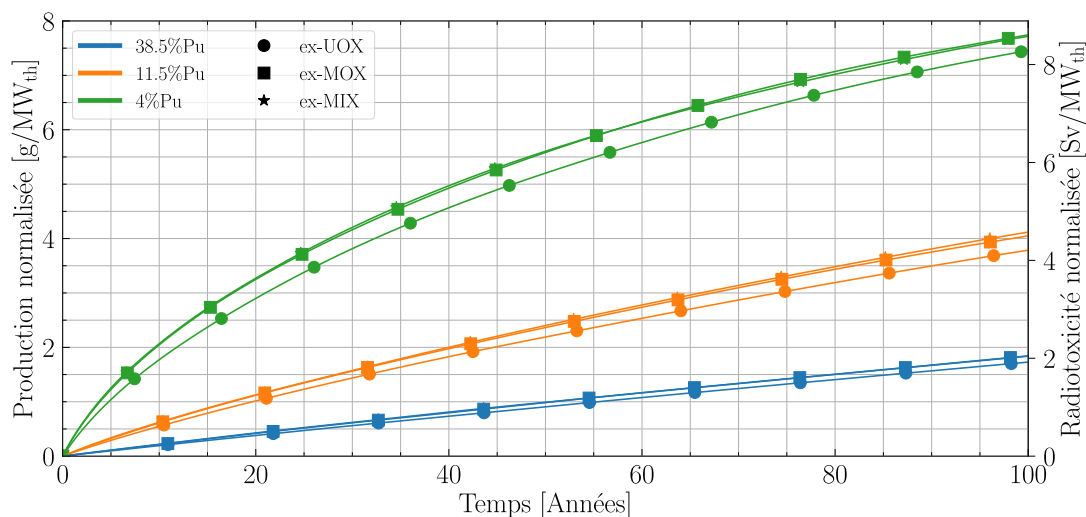


FIGURE 4.54 – Production normalisée de ^{36}Cl pour les neuf configurations présentées (trois teneurs de plutonium et trois vecteurs isotopiques)

Par ailleurs, la production de soufre est également sujette à surveillance dans le but de limiter la corrosion des matériaux de structure en acier. La figure 4.56 montre la même tendance que pour le chlore. Un spectre moins rapide implique des sections efficaces de captures sur le chlore plus grandes, menant à une production de soufre plus importante dans les grands volumes de cœurs, c'est-à-dire pour de faibles teneurs de plutonium. Il est à noter que la production totale est ici montrée, en incluant le soufre extrait. Ainsi, les quantités dans le sel combustible sont plus réduites, et dépendent de la vitesse du retraitement.

Les isotopes principalement produits du soufre sont les ^{32}S , ^{34}S et ^{36}S . La figure 4.57 présente les voies principales de production. Ainsi, les réactions (n,α) sur les ^{37}Cl et ^{35}Cl sont les principales sources de la présence du soufre dans le sel combustible au démarrage du réacteur. Avec l'augmentation de la concentration en ^{36}Cl dans le sel, c'est ce dernier qui contribuera le plus à produire le soufre. Bien que la réaction (n,α) soit à seuil, et donc

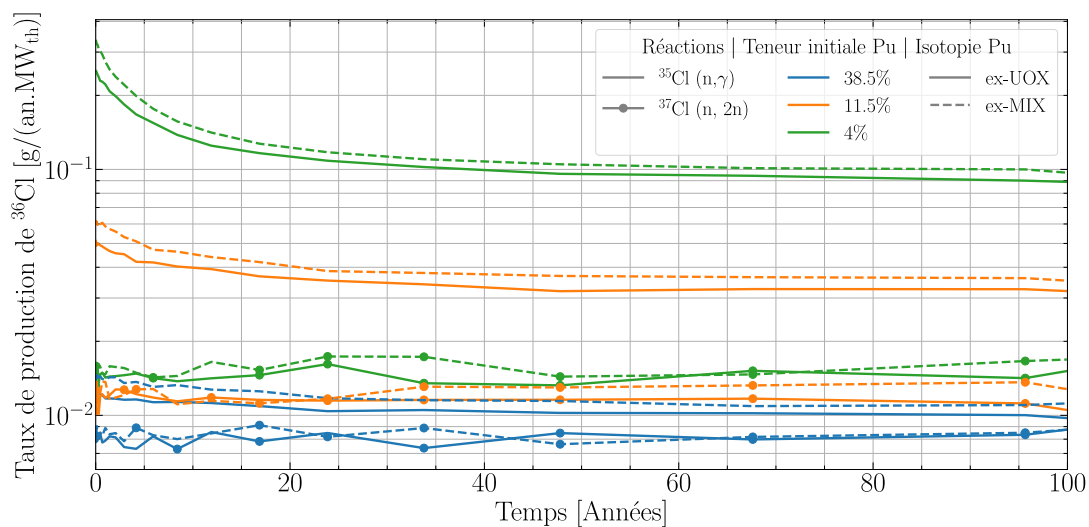


FIGURE 4.55 – Contributions à la production normalisée de ^{36}Cl pour six configurations (trois teneurs de plutonium et les deux vecteurs isotopiques ex-UOX et ex-MIX)

que les spectres rapides rapides soient nécessaires pour que cette réaction se produise, elle est plus présente dans les configurations à faible teneur initiale de plutonium que celles fortement concentrées, les neutrons rapides interagissant beaucoup moins avec leur environnement.

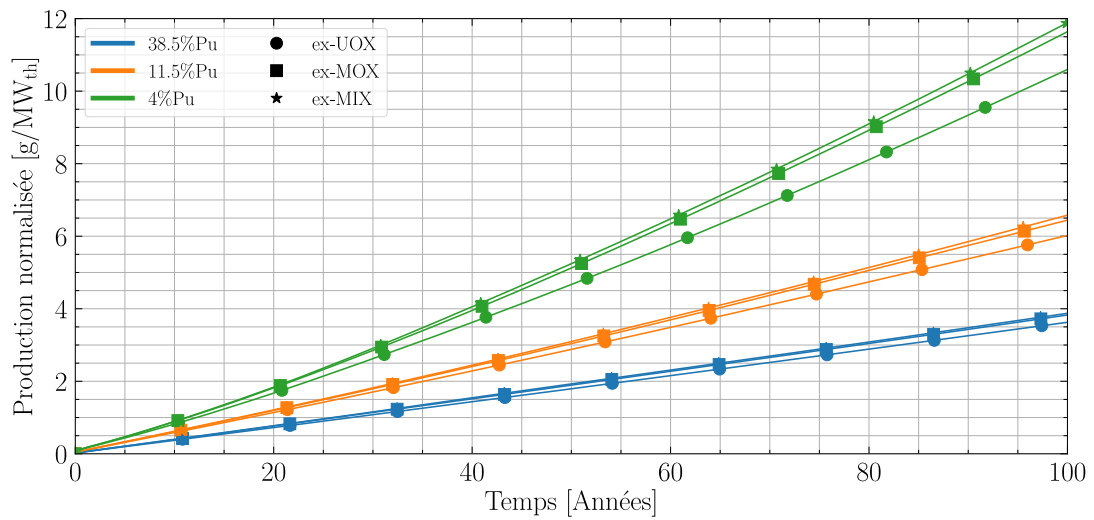


FIGURE 4.56 – Production normalisée de soufre pour les neuf configurations présentées

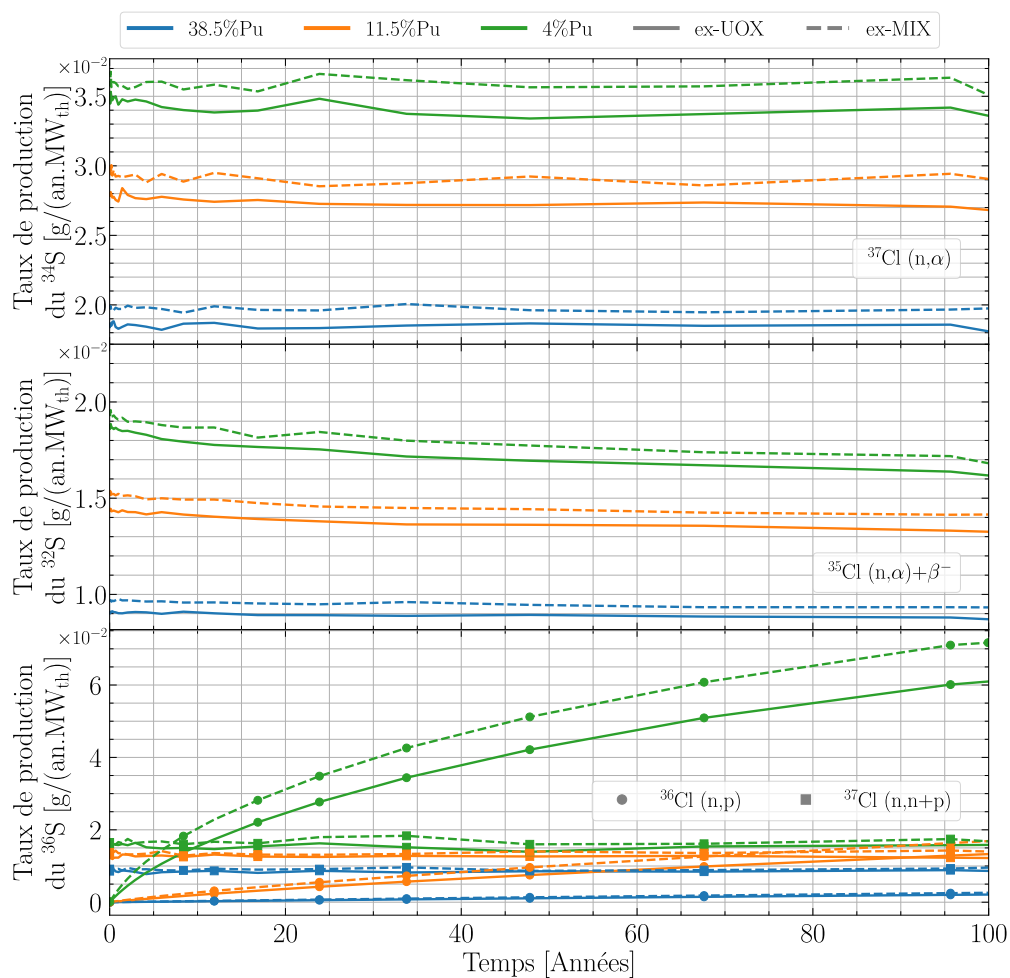


FIGURE 4.57 – Contributions à la production normalisée de soufre pour les neuf configurations présentées (trois teneurs de plutonium et vecteurs isotopiques ex-UOX et ex-MIX)

4.4.6 Dégâts d'irradiation

Le spectre neutronique du réacteur incinérateur étudié est très rapide. Les neutrons parvenant dans les matériaux de structure (ici, en acier 316H) peuvent donc transmettre une grande énergie lors d'une interaction. La dégradation des matériaux environnant la zone critique peut donc être importante, limitant de fait la durée de vie du réacteur ou plutôt celle des structures proches du cœur (flux neutronique). L'estimation des dégâts d'irradiation (dpa, hélium et hydrogène) est faite dans ces différentes zones proches du cœur, découpées selon la figure 3.19, rappelée ici.

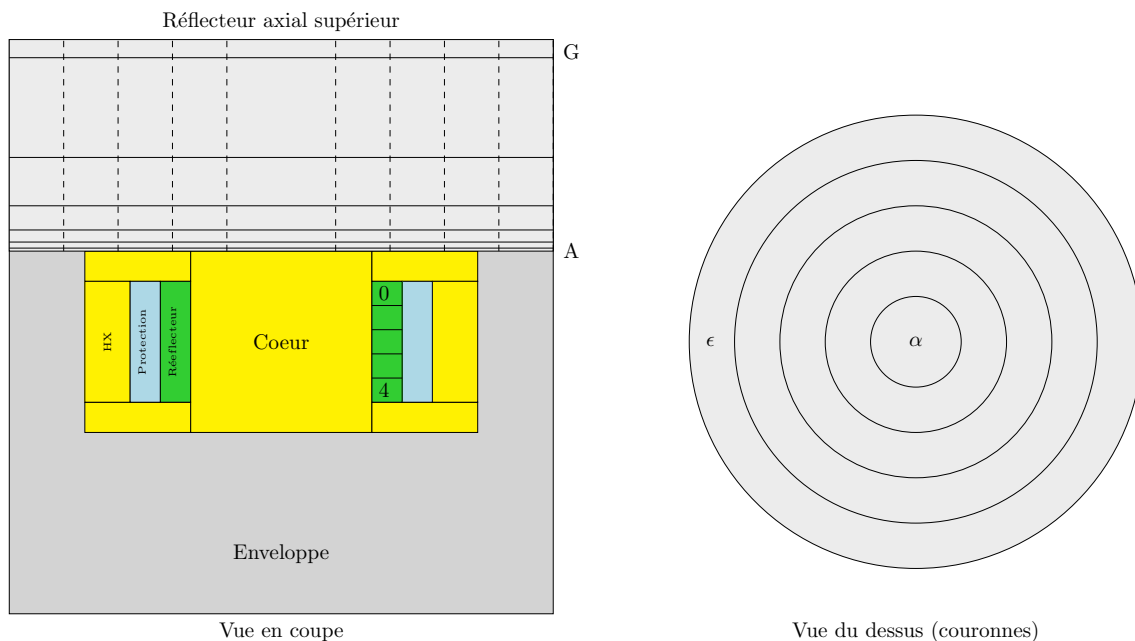


FIGURE 4.58 – Vues schématiques du réacteur avec le découpage des tranches et des couronnes des réflecteurs

4.4.6.a Lacunes créées par collisions : dpa

Caractérisation de la version 11.5% Pu_{MOX} Le réflecteur radial, découpé en tranches d'épaisseur identique, voit un pic de dpa au milieu comme illustré par la figure 4.59. Au cours du temps le taux de dpa semble diminuer pendant la phase transitoire, ce qui est une conséquence de la diminution du flux de neutrons arrivant dans le réflecteur à cause de l'opacité progressive du sel combustible.

La visualisation de la répartition spatiale des dpa (figure 4.60) confirme que les dpa sont plus importants proches de la zone critique, où le flux neutronique est produit. En particulier, la tranche A du réflecteur axial supérieur est la plus touchée, car immédiatement la plus proche. La figure 4.61 montre donc l'évolution temporelle du taux de dpa dans les couronnes de la tranche A. Très important au début, comme dans le réflecteur radial, le taux de dpa diminue et se stabilise en une vingtaine d'années.

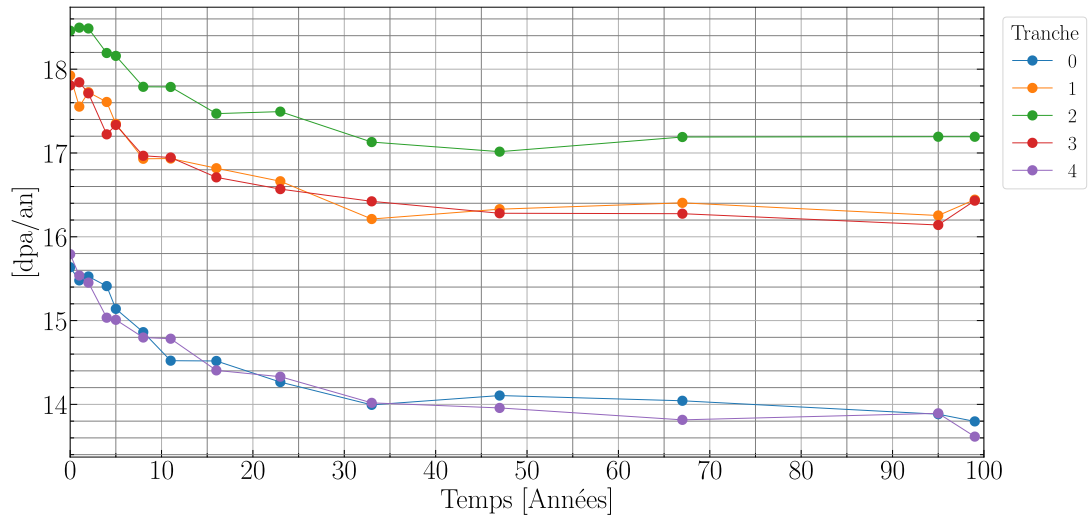


FIGURE 4.59 – Évolution du taux de dpa dans les tranches du réflecteur radial du cas 11.5%Pu_{MOX}

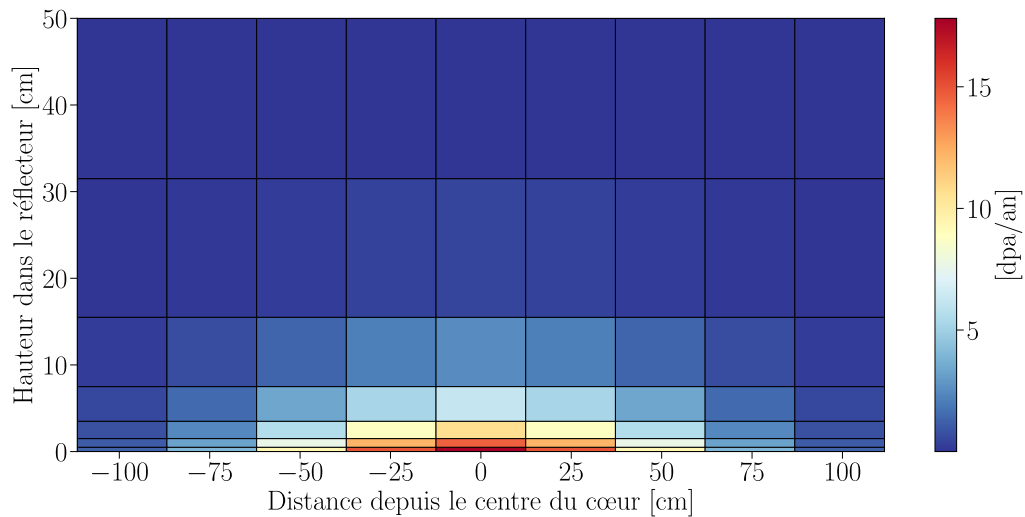


FIGURE 4.60 – Répartition du maximum de dpa dans les couronnes et tranches du réflecteur axial supérieur du cas 11.5%Pu_{MOX}

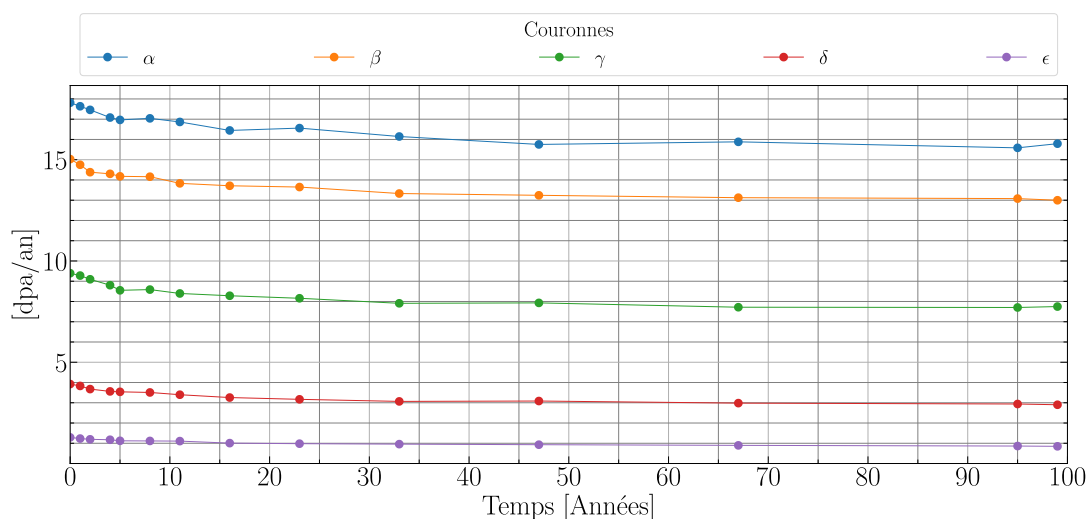


FIGURE 4.61 – Évolution des dpa dans les couronnes de la tranche A du réflecteur axial supérieur du cas 11.5%Pu_{MOX}

Correction de l'estimation des dpa La section 3.4.5 présente la méthode d'estimation des dpa utilisés classiquement dans les études de conception de réacteurs, la méthode NRT-dpa. L'ajout de facteurs de correction dans la méthode ARC-dpa pour prendre en compte les recombinaisons au sein des matériaux a pour but de mieux estimer les dpa. Le tableau 4.9 indique les facteurs de correction utilisés du nickel et du fer. L'utilisation de cette méthode est néanmoins contrainte par la disponibilité desdits facteurs de correction. En s'appuyant sur les développements effectués par R. Vuiart au cours de sa thèse de doctorat [122], ainsi que des données disponibles [121], les dpa ont été réestimés².

TABLEAU 4.9 – Constantes de correction du nickel et du fer [121]

Élément	E_d (eV)	$b_{\text{arc dpa}}$	$c_{\text{arc dpa}}$
Fe	40	-0.568 ± 0.020	0.286 ± 0.005
Ni	39	-1.01 ± 0.11	0.23 ± 0.01

Les figures 4.62 et 4.63 comparent l'estimation des dpa au démarrage par la méthode ARC-dpa et NRT-dpa pour les réflecteurs radial et axial. La correction de la section efficace MT444 du fer et du nickel permet de diminuer l'estimation du taux de dpa au démarrage d'environ 40%, sachant que ces deux éléments composent les réflecteurs à hauteur de 78% molaire. La réduction de l'estimation du taux de dpa permet de relâcher une partie des contraintes sur la conception de réacteurs rapides, avec des campagnes de changement des matériaux plus espacées dans le temps.

2. Au stade des développements au sein de l'équipe à ce jour, il est nécessaire de générer un exécutable NJOY par élément pour les corrections

Il faut néanmoins prendre ces nouvelles estimations avec précautions, puisqu'il est nécessaire de vérifier que cette méthode ne sur corrige pas et rende ainsi des valeurs trop optimistes. La vérification expérimentale sera probablement nécessaire pour consolider ce modèle.

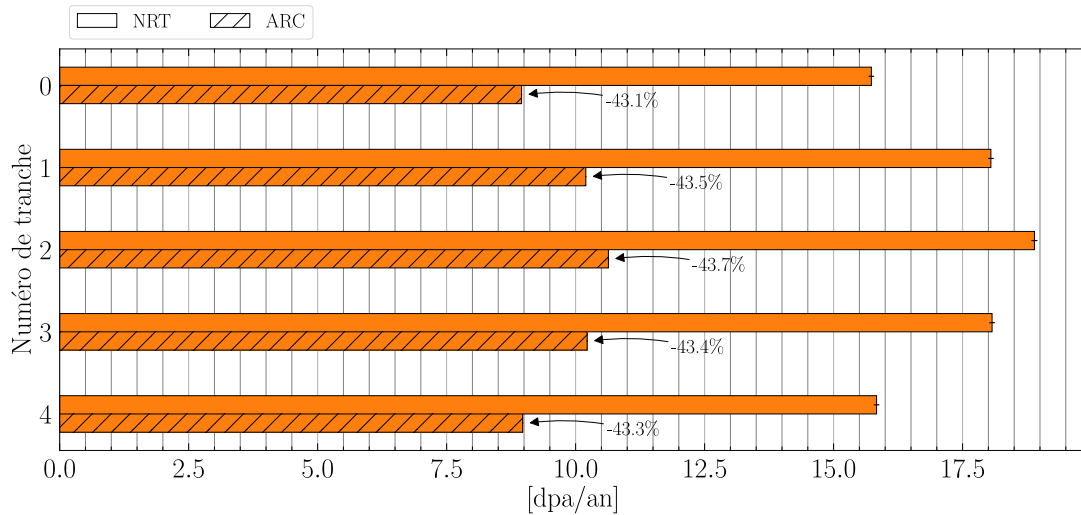


FIGURE 4.62 – Évaluation des dpa au démarrage dans le réflecteur radial de la configuration 11.5% Pu_{MOX}

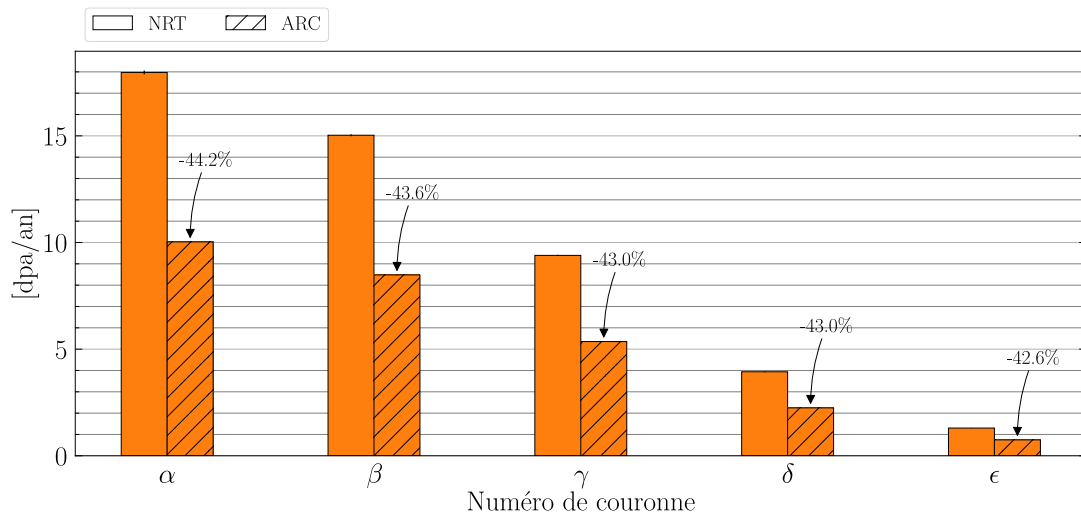


FIGURE 4.63 – Évaluation des dpa au démarrage dans la première tranche du réflecteur axial de la configuration 11.5% Pu_{MOX}

Comparaison entre les configurations La figure 4.64 compare le maximum des dpa annuels dans la première tranche du réflecteur supérieur pour les neuf configurations de ce chapitre. La taille du réacteur semble influencer grandement sur les défauts créés, surtout dans les couronnes les plus proches de la zone critique, puisque plus le réacteur est grand et plus le nombre de dpa augmente. Certes la puissance du réacteur augmente avec le volume,

mais un grand volume, c'est-à-dire une faible teneur en actinides, implique des neutrons moins énergétiques, ce qui devrait limiter les dpa. La fixation de la puissance spécifique en cœur à $150 \text{ MW}_{\text{th}} \cdot \text{m}^{-3}$ implique que la puissance est directement proportionnelle au volume de la zone critique. Or, le nombre de neutrons créés dans la zone critique dépend de la puissance (équation 4.1).

$$N_{\text{neutrons}} = \frac{P \cdot \Delta t \cdot (v - 1)}{E_{\text{fission}}} \propto P \quad (4.1)$$

avec P la puissance thermique du réacteur, N_{neutrons} le nombre de neutrons produits dans le réacteur pendant une période Δt , v le nombre de neutrons libérés par fission et E_{fission} l'énergie libérée par fission.

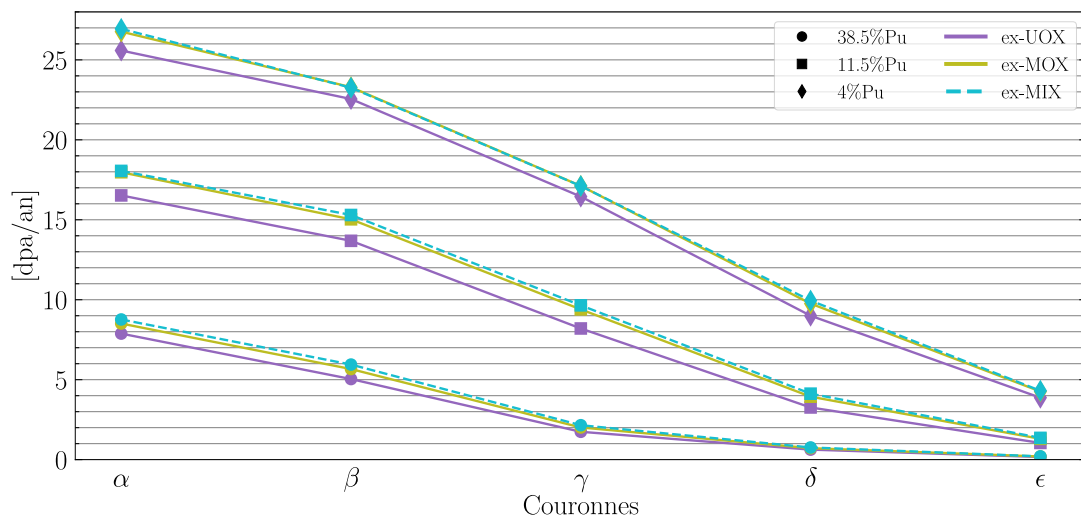


FIGURE 4.64 – Répartition des dpa selon les couronnes dans la tranche A du réflecteur supérieur selon les différentes tailles de réacteur

Les neutrons perdus du sel combustible (fuites) dépendent du nombre de neutrons en cœur. Plus il y en a, plus les fuites seront importantes. Se pose alors la question de la densité surfacique de neutrons sur la paroi des réflecteurs entourant la zone critique. Le volume augmentant plus rapidement que la surface, comme présenté par l'équation 4.2 pour le cas d'un orthocylindre ($H/R = 2$), la densité surfacique de neutrons s'exprime selon l'équation 4.3.

$$\frac{V_{\text{cyl}}}{S_{\text{cyl}}} = \frac{\pi \cdot R^2 \cdot H}{2\pi \cdot R(R + H)} = \frac{R}{3} \quad (4.2)$$

$$\frac{N_{\text{neutrons}}}{\text{unité de surface}} = \frac{N_{\text{neutrons}}}{S} \propto \frac{P}{S} \propto \frac{P_{\text{spec}} \cdot V}{S} \propto P_{\text{spec}} \cdot R \quad (4.3)$$

La densité surfacique de neutrons devrait donc augmenter linéairement avec le rayon du réacteur, donc la diminution de la teneur en plutonium et la dégradation du vecteur isotopique, ce qui devrait amener plus de dépôts d'énergie et donc plus de défauts induits. Pourtant, ce n'est pas ce que l'on observe, puisque les dpa maximaux (couronne centrale) évoluent selon une loi logarithmique (figure 4.65). Avec l'augmentation du volume (et

la diminution de la teneur en plutonium), le spectre neutronique est moins dur et les neutrons arrivant dans le réflecteur ont déjà perdu de l'énergie dans le sel. Ainsi, l'énergie déposée dans le réflecteur s'en trouve diminuée.

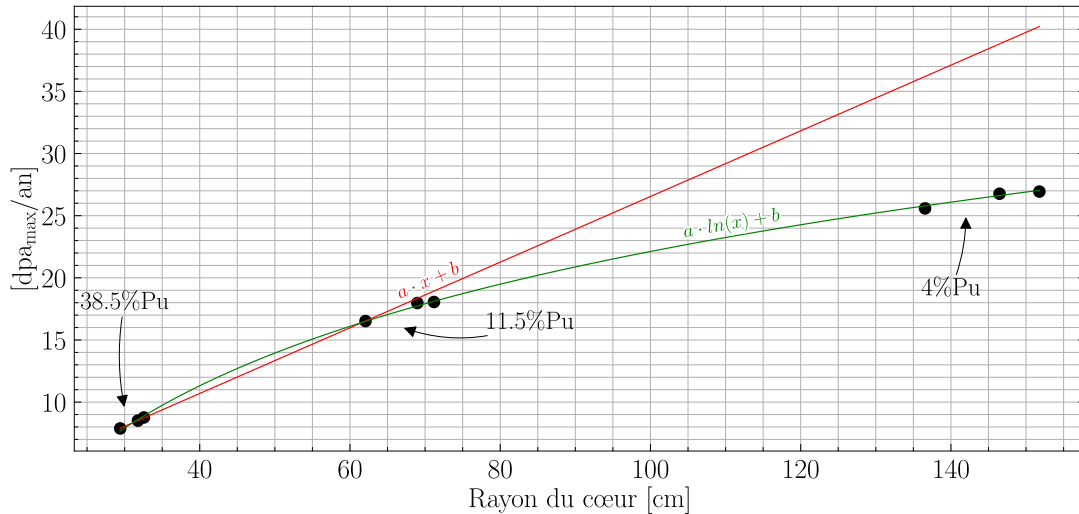
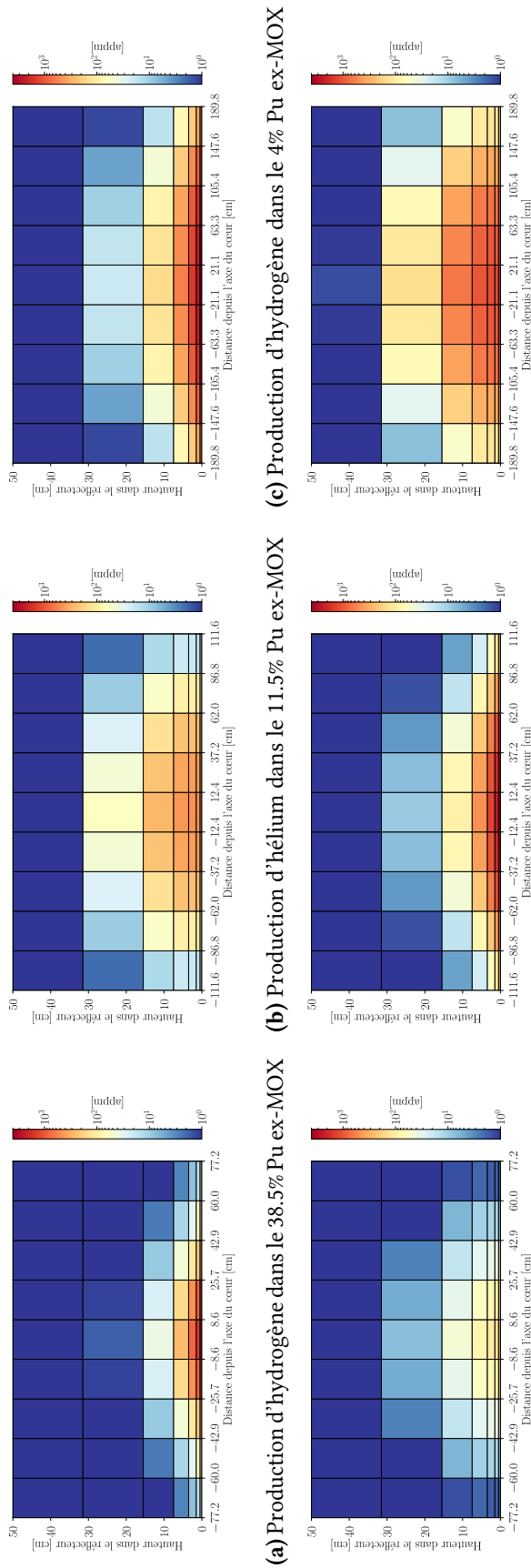


FIGURE 4.65 – Évolution du maximum de dpa dans le réflecteur supérieur selon le rayon du réacteur des différentes configurations

4.4.6.b Production d'hélium et d'hydrogène

Les dpa, lacunes et défauts induits par les collisions entre neutrons et atomes des matériaux de structure, ne sont pas les seuls effets induits sur les matériaux par l'irradiation neutronique. Les captures de neutrons peuvent également mener à la production d'hélium, produit de décroissances ou de réaction (n,α), ou d'hydrogène par réaction (n,p). Ces gaz vont progressivement se regrouper localement grâce à la température du réflecteur, qui favorise la mobilité des atomes, et former des poches, qui risquent de faire gonfler les matériaux et de les fragiliser [125]. Les aciers contenant du nickel et du fer sont particulièrement sensibles à la production d'hélium et d'hydrogène du fait des sections efficaces (n,α) du ^{58}Ni et du ^{56}Fe , et (n,p) des ^{58}Ni et du ^{54}Fe [126].

Le figure 4.66 présente la répartition spatiale des concentrations en atomic parts per million d'hélium et d'hydrogène après 50 ans de fonctionnement (état stationnaire des compositions) pour les cas 38.5%, 11.5% et 4% plutonium ex-MOX. L'hydrogène est fortement présent, contrairement à ce qui peut être attendu, et proche de la zone critique. L'énergie élevée des neutrons arrivant dans le réflecteur à cause de l'utilisation d'un sel chlorure, ainsi que le flux important pour les faibles teneurs de plutonium (voir section 4.4.6.a) implique des réactions (n,p) en grand nombre. La production d'hélium est plus faible et plus diffuse que l'hydrogène (tableau 4.10). Il est à noter que l'hydrogène est plus mobile que l'hélium, ce qui devrait entraîner la migration hors du réflecteur et réduire les concentrations estimées ici.



(a) Production d'hydrogène dans le 38.5% Pu ex-MOX (b) Production d'hélium dans le 11.5% Pu ex-MOX (c) Production d'hydrogène dans le 4% Pu ex-MOX (d) Production d'hélium dans le 38.5% Pu ex-MOX (e) Production d'hydrogène dans le 11.5% Pu ex-MOX (f) Production d'hélium dans le 4% Pu ex-MOX

FIGURE 4.66 – Inventaire après 50 ans de fonctionnement de la répartition des concentrations en hydrogène [haut] et en hélium [bas] dans le réflecteur axial supérieur pour un vecteur isotopique ex-MOX et trois teneurs en plutonium

TABLEAU 4.10 – Concentration maximale en hydrogène et hélium à 50 ans de fonctionnement pour les neuf configurations

Cas	Concentration maximale H [appm]	Concentration maximale He [appm]
38.5% Pu _{UOX}	2334	161
38.5% Pu _{MOX}	2414	167
38.5% Pu _{MIX}	2490	175
11.5% Pu _{UOX}	3502	436
11.5% Pu _{MOX}	3584	483
11.5% Pu _{MIX}	3566	515
4% Pu _{UOX}	4075	1202
4% Pu _{MOX}	4142	1300
4% Pu _{MIX}	4050	1310

4.4.6.c Conclusions

La création de défauts dans les matériaux de structure est conséquente, après quelques années de fonctionnement, proche du cœur. Les lacunes causées par des chocs neutrons-matière sont de l'ordre de 7 à 27 dpa/an au plus proche de la zone critique (valeurs probablement surestimées). Par comparaison, les gaines de combustibles de réacteur REP reçoivent 5 dpa sur 5 ans de service, celles de RNR-Na devraient supporter 150 dpa sur 4 ans [127]. Une réévaluation des dpa en intégrant le modèle ARC-dpa (section 3.4.5) sera nécessaire pour les futures études de dimensionnement.

La production de gaz (hydrogène et hélium) est très importante au bout de 50 ans de fonctionnement. La migration de l'hydrogène devrait permettre de limiter les poches et gonflements des réflecteurs. En revanche, l'hélium risque de migrer vers les joints de grains, ce qui va fragiliser les matériaux. Les concentrations maximales dépendent du matériau ainsi que des contraintes exercées sur lui. Pour comparaison, les neutrons des réacteurs de fusion devraient induire des concentrations autour de 3000 appm d'hélium dans des aciers 316 au bout de 10 ans de fonctionnement, contre 1050 à 1300 appm à 50 ans ici [126]. Des études sur l'effet de la migration des gaz produits sur les propriétés des matériaux de structure sont à prévoir.

La conception plus avancée de ces réacteurs devra intégrer des pièces remplaçables tout au long de la vie du réacteur pour que celui-ci puisse fonctionner plusieurs dizaines d'années.

4.4.7 Contre-réactions de température

Utilisées pour l'autorégulation des réacteurs, les contre-réactions de température sont essentielles pour maintenir un réacteur stable sans intervention extérieure en régime nominal. L'estimation des différentes contributions permet d'identifier les situations limites où des précautions particulières doivent être prises, comme le remplissage où la

dilatation du sel ne permettra pas une fuite efficace des neutrons. Ici, nous nous intéressons à l'impact du changement de densité et à l'effet Doppler, les deux phénomènes liés aux variations de température dans le sel combustible pour un réacteur à sels fondus.

4.4.7.a Validation du schéma de calcul

La section 3.4.4 a présenté la théorie de l'estimation des coefficients de contre-réactions par effet Doppler et de densité. Afin de limiter les incertitudes sur l'estimation de ces coefficients, l'erreur statistique doit être limitée et cela se traduit par un nombre de cycles et un temps de calcul par température importants. On souhaite donc comparer l'estimation d'un CCR Doppler et de densité pour une configuration 11.5% Pu_{MOX} au démarrage selon des temps de calcul et un nombre de points différents.

La figure 4.67 présente le calcul de la réactivité à différentes températures pour l'estimation du CCR Doppler. Les points bleus correspondent à deux points de calcul [800, 1800 K] à 10 pcm chacun, les points roses à quatre points très éloignés de la température de fonctionnement nominale [600, 800, 1200, 1800 K] à 3 pcm chacun, et les points verts sont uniquement les points roses à 800 K et 1800 K. Les trois régressions reproduisent bien l'évolution de la réactivité par une fonction logarithmique (équation 3.7). L'erreur statistique de l'ajustement des points bleus contient les ajustements verts et roses. Les régressions sur les calculs à 3 pcm (vert et rose) sont dans l'incertitude de l'autre malgré l'omission de deux points de calculs.

La figure 4.68 utilise les ajustements dérivés pour estimer l'évolution du CCR Doppler. On observe que l'incertitude statistique de 10 pcm de précision (bleu) sur chaque calcul induit une incertitude sur l'estimation du CCR Doppler de l'ordre de 8% à 800 K. L'utilisation de 4 points [600, 800, 1200, 1800 K] (rose), ou même de 2 points [800, 1800 K] (vert), à 3 pcm près résulte en un meilleur ajustement, tous deux contenus dans l'ajustement bleu. On peut ainsi valider le schéma de calcul de l'estimation du coefficient de contre-réaction Doppler avec le calcul à 10 pcm près de 2 points, à 800 K et 1800 K, pour limiter le temps de calcul. Lorsque la composition du sel sera peu complexe, le temps de calcul sera plus court à précision identique. On pourra alors chercher à diminuer l'erreur statistique.

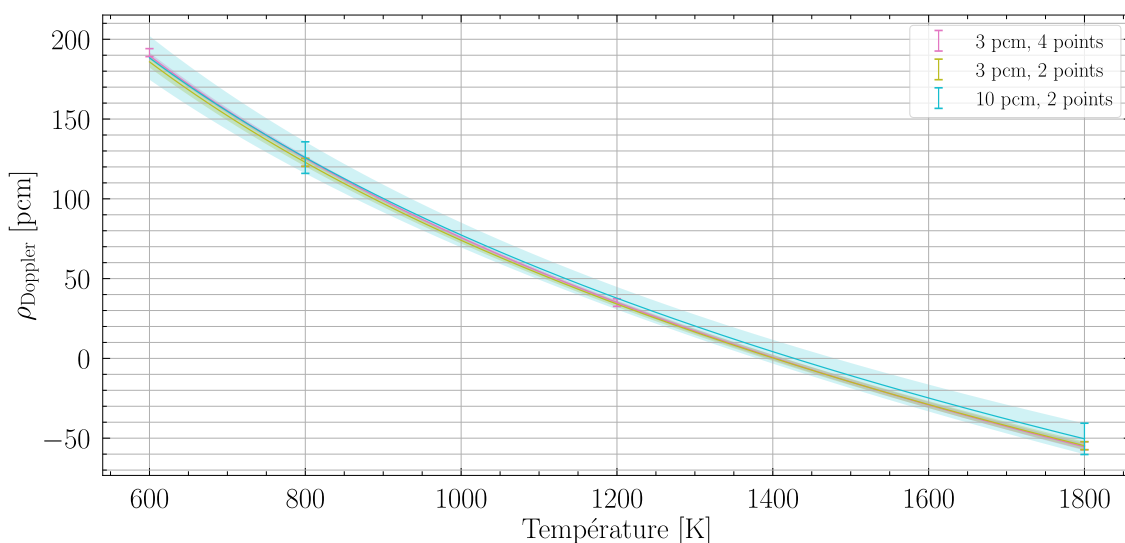


FIGURE 4.67 – Évolution de la réactivité par effet Doppler selon la température du combustible pour différentes précisions de calcul pour le cas 11.5% Pu_{MOX} [JEFF 3.3]

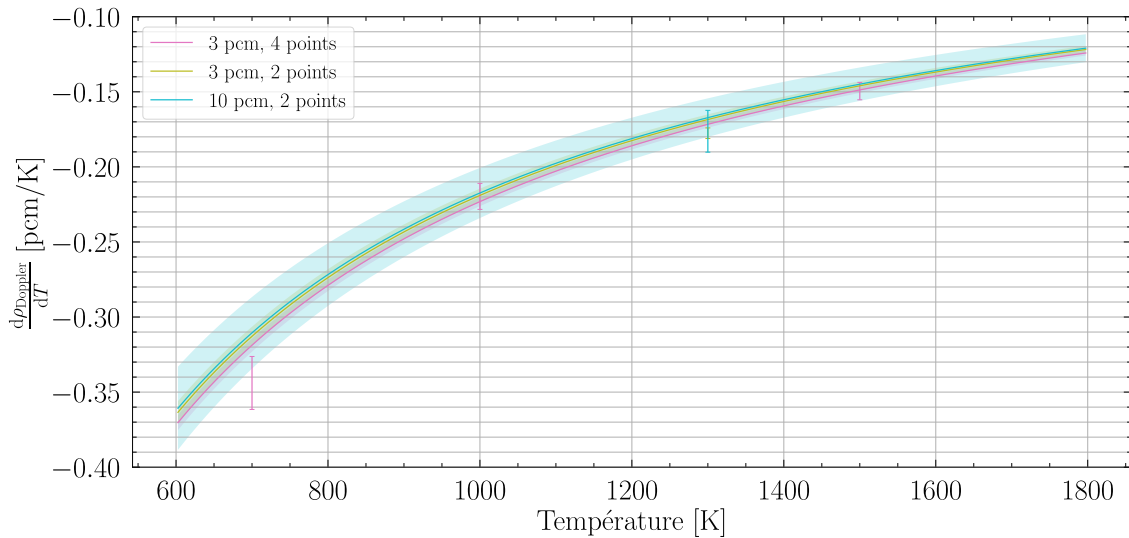


FIGURE 4.68 – Comparaison des régressions logarithmiques pour l’estimation du CCR Doppler selon la précision et le nombre de températures considérées pour le cas 11.5% Pu_{MOX} [JEFF 3.3]

La figure 4.69 présente le calcul de la réactivité à différentes températures pour l’estimation du CCR densité. Une seule série de calculs est présentée ici, à 10 pcm près. Les variations de réactivité sont tellement conséquentes qu’il n’est pas utile de comparer différentes précisions de calculs. Les cinq points [700, 800, 1000, 1200, 1500 K] sont très bien reproduits par une fonction polynomiale d’ordre 3 (équation 3.8).

La figure 4.70 présente la dérivée de l’ajustement d’ordre 3. L’incertitude de l’ajustement est très faible, ce qui amène à valider le schéma de calcul de CCR densité avec le calcul de cinq points à 10 pcm près.

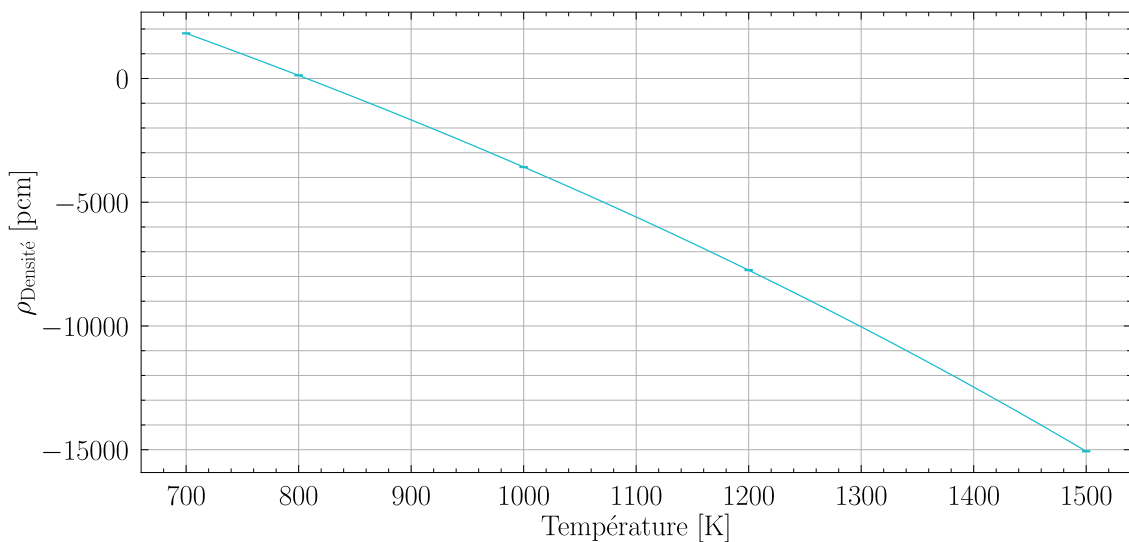


FIGURE 4.69 – Évolution de la réactivité par effet de densité selon la température du combustible pour différentes précisions de calcul pour le cas 11.5% Pu_{MOX} [JEFF 3.3]

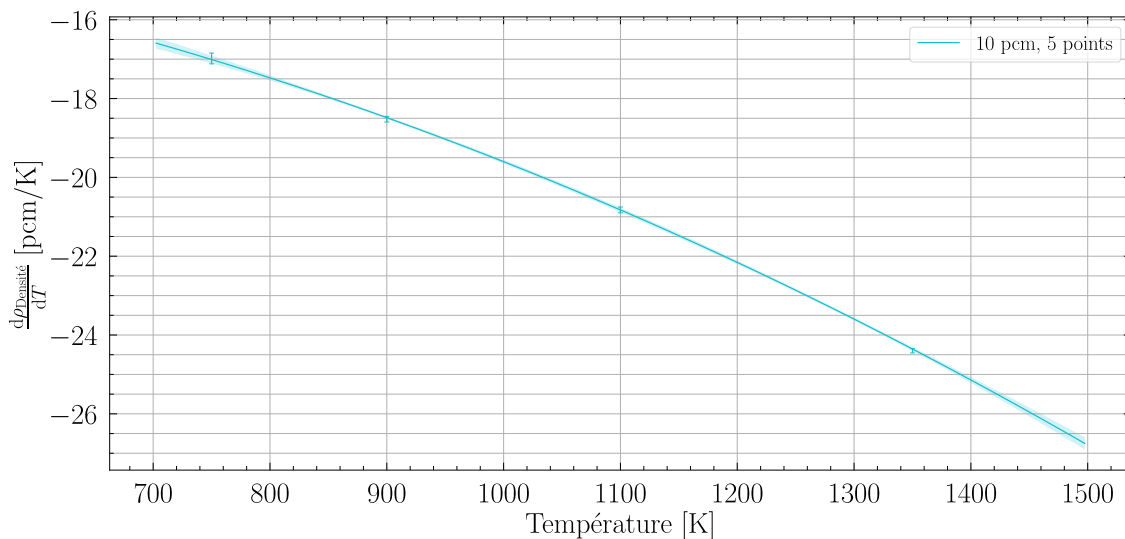


FIGURE 4.70 – Comparaison des régressions polynomiales d'ordre 3 sur la réactivité pour l'estimation du CCR densité selon la précision et le nombre de températures considérées pour le cas 11.5% Pu_{MOX} [JEFF 3.3]

4.4.7.b Effet Doppler

Comme explicité en section 3.4.4, l'effet Doppler est un effet sur les sections efficaces vues par les neutrons. L'estimation avec JEFF 3.3 de la contre-réaction Doppler au démarrage pour les six configurations présentées dans ce chapitre résulte en la figure 4.71. L'effet Doppler est très faible [-0.6,-0.16] pcm/K à 800 K, mais s'améliore un peu lorsque la teneur en plutonium diminue (neutrons moins énergiques) et que le vecteur isotopique est dégradé. Afin d'identifier les noyaux les plus contributeurs à l'effet Doppler, la température de chaque isotope est individuellement modifiée, sauf pour les éléments du solvant, considérés ensemble. La figure 4.72 détaille l'apport de chaque élément du sel. La plupart des composants du sel ont un effet presque nul, excepté le ²⁴⁰Pu (-0.2 pcm/K à 800 K) et ²³⁹Pu (0.06 pcm/K) pour un CCR Doppler estimé à -0.3 pcm/K à 800 K. Les configurations contenant une teneur de ²⁴⁰Pu plus grande ont donc une contre-réaction Doppler plus importante. Il est à noter qu'aucune incertitude sur les bases de données n'a été prise en compte, ce qui pourrait tout à fait induire un effet Doppler encore plus faible qu'estimé ici.

Le spectre neutronique moins rapide dans un réacteur de 10 m³ que dans un de 70 l permet aux isotopes du plutonium de capturer un peu plus les neutrons ce qui augmente l'effet Doppler. À composition de sel identique, les vecteurs isotopiques ex-MOX ou ex-MIX sont plus favorables de par leur teneur en plutonium 240 plus importante.

L'irradiation implique l'apparition de noyaux neutrophages, ce qui pourrait aider à augmenter la contribution Doppler. La figure 4.73 montre que c'est tout l'inverse qui se produit. Pour toutes les configurations, la part de la contre-réaction Doppler diminue avec le temps malgré la présence des PF. Le spectre neutronique du sel combustible se durcit avec l'accroissement de la teneur en transuraniens, ce qui limite les captures même sur le combustible.

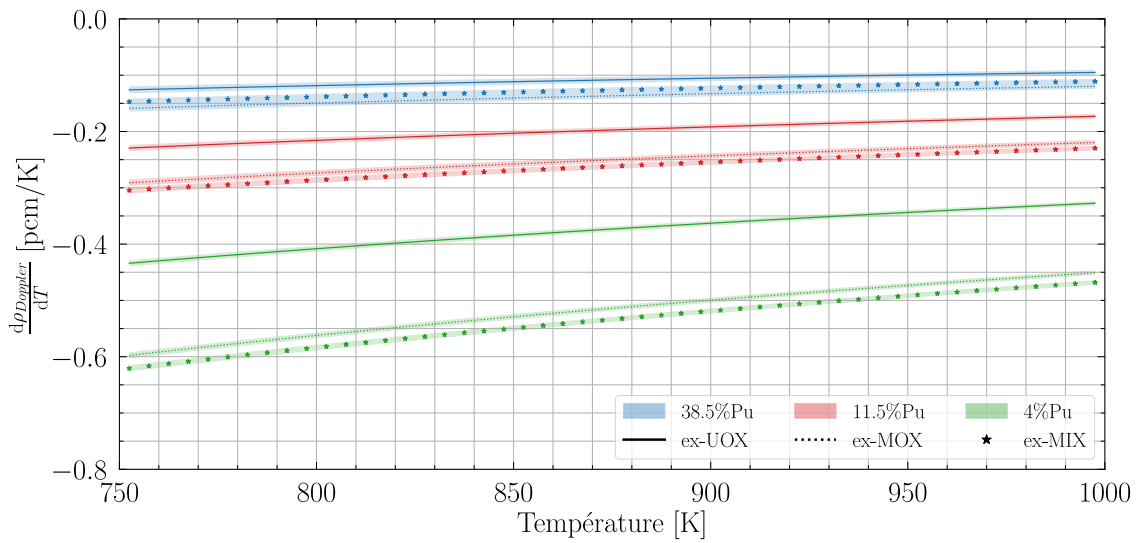


FIGURE 4.71 – Évolution de la réactivité par effet Doppler au démarrage [JEFF 3.3]

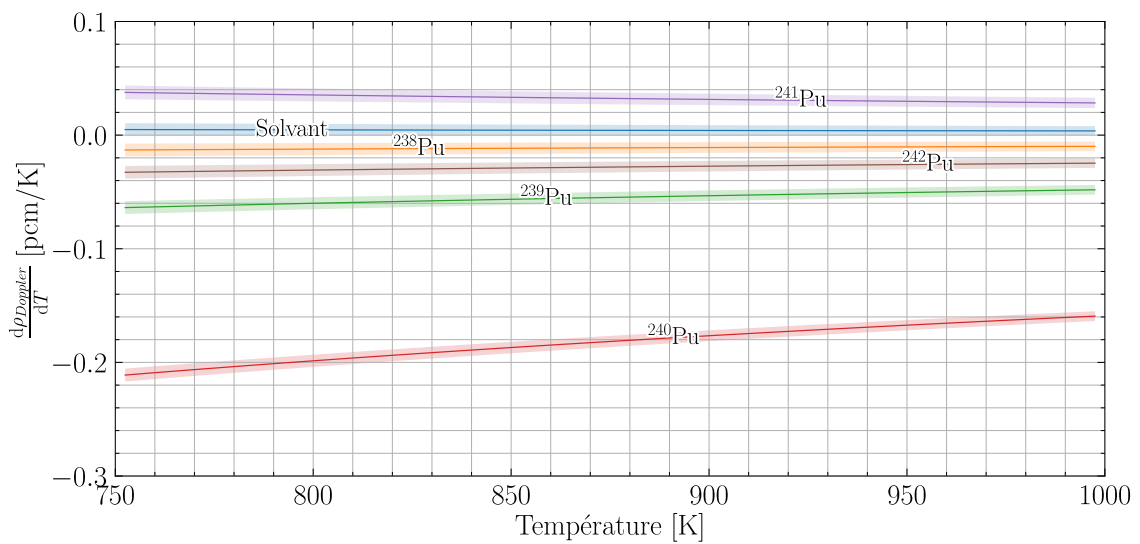


FIGURE 4.72 – Contribution des isotopes à l'effet Doppler à l'état initial pour le cas 11.5% plutonium ex-MOX [JEFF 3.3]

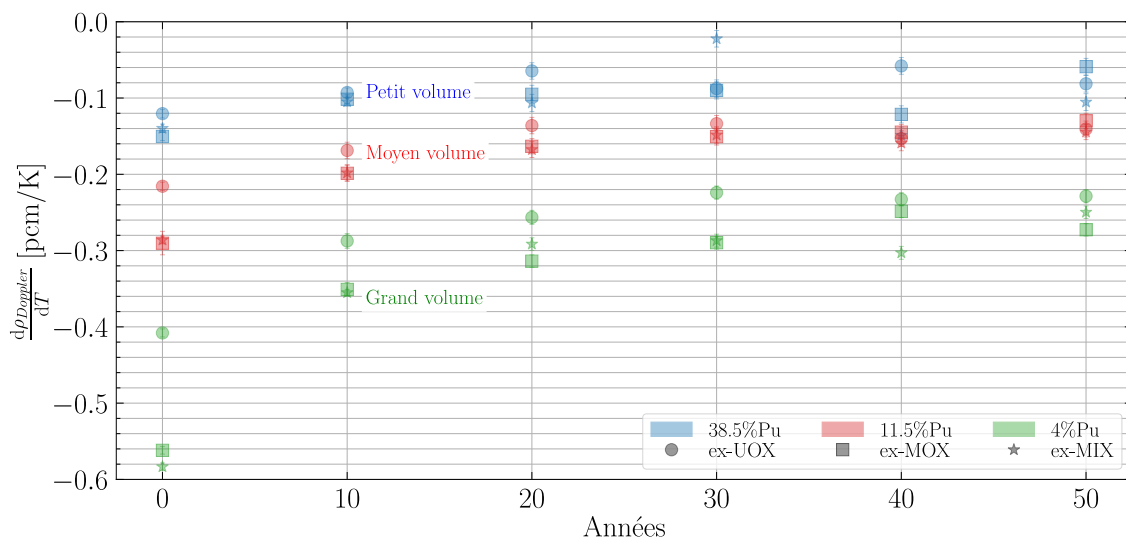


FIGURE 4.73 – Évolution temporelle des coefficients de contre-réaction Doppler estimés à 800 K [JEFF 3.3]

4.4.7.c Effet de densité

L'un des avantages du RSF est d'avoir un combustible liquide qui peut se dilater en cas de surchauffe, et vice-versa. La dilatation hors de la zone critique, vers le vase d'expansion, diminue la quantité de noyaux fissiles que peuvent rencontrer les neutrons mais également implique une baisse de la densité du sel qui devient plus transparent. Ces deux effets combinés permettent la fuite des neutrons, d'où une baisse de la réactivité. Cet effet est très fort à l'état initial pour les configurations de réacteur incinérateur étudiées ici ($[-18.2, -16.2]$ pcm/K), comme présenté par la figure 4.74. L'effet de densité vient de la capacité du sel combustible liquide à se dilater et s'échapper dans le vase d'expansion, et également de la géométrie. Comme indiqué en section 3.4.4 et en annexe A où les méthodes de détermination de ladite masse volumique sont explicitées, le manque de données expérimentales impose de faire des hypothèses sur la masse volumique et sa variation avec la température. Ainsi, pour une composition donnée à un instant t (tableau 4.11), la dilatabilité β [$\text{kg}/(\text{m}^3 \cdot \text{K})$] est supposée constante de 700 K à 1000 K. La compacité du cœur permet un fort effet de densité de par la dilatabilité plus importante (forte teneur en plutonium) et la géométrie compacte, qui favorise la fuite des neutrons en cas d'expansion du sel (Laplacien géométrique).

TABLEAU 4.11 – Dilatabilité initiale pour les trois teneurs de plutonium

	38.5%	11.5%	4%
Dilatabilité [$\times E-4$ $\text{kg}/(\text{m}^3 \cdot \text{K})$]	-8.08	-5.88	-5.06

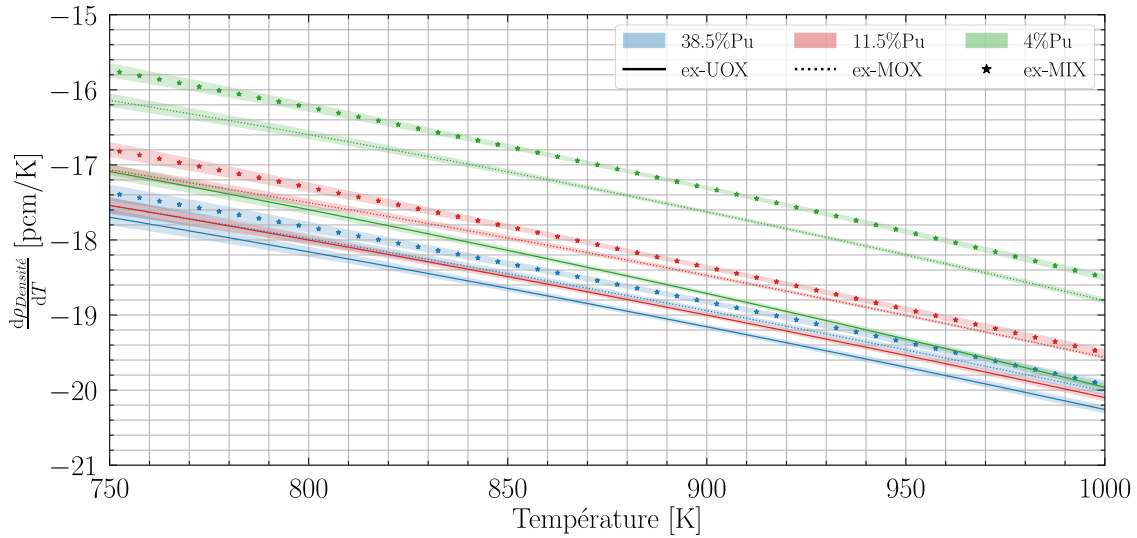


FIGURE 4.74 – Évolution de la réactivité par effet de densité au démarrage [JEFF 3.3]

La figure 4.75 présente l'évolution du coefficient de contre-réaction de densité au cours du temps. Celui-ci tend à diminuer en valeur absolue, à cause de l'évolution de la composition du sel. D'une part, l'apparition de produits de fission et autres noyaux non présents au démarrage rend la fuite des neutrons plus difficile, d'autre part, les sels se concentrent en actinides, ce qui augmente la masse volumique, et la dilatabilité en valeur absolue. Ainsi, la dilatabilité augmente (en valeur absolue) pour toutes les configurations, surtout pour les faibles teneurs en plutonium (doublement de la teneur en plutonium, voir tableau 4.8), où la dilatabilité dépend de la teneur en magnésium et en actinides, comme illustré par la figure 4.76. La variation est calculée selon l'équation 4.4.

$$\Delta = \frac{d_t - d_0}{d_0} \quad (4.4)$$

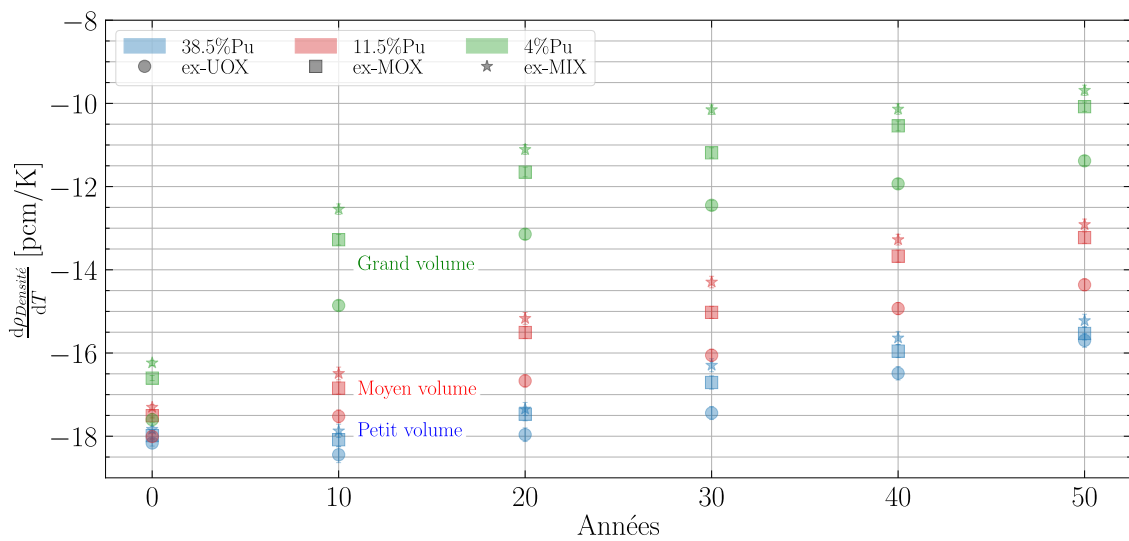


FIGURE 4.75 – Évolution des coefficients de contre-réaction de densité [JEFF 3.3]

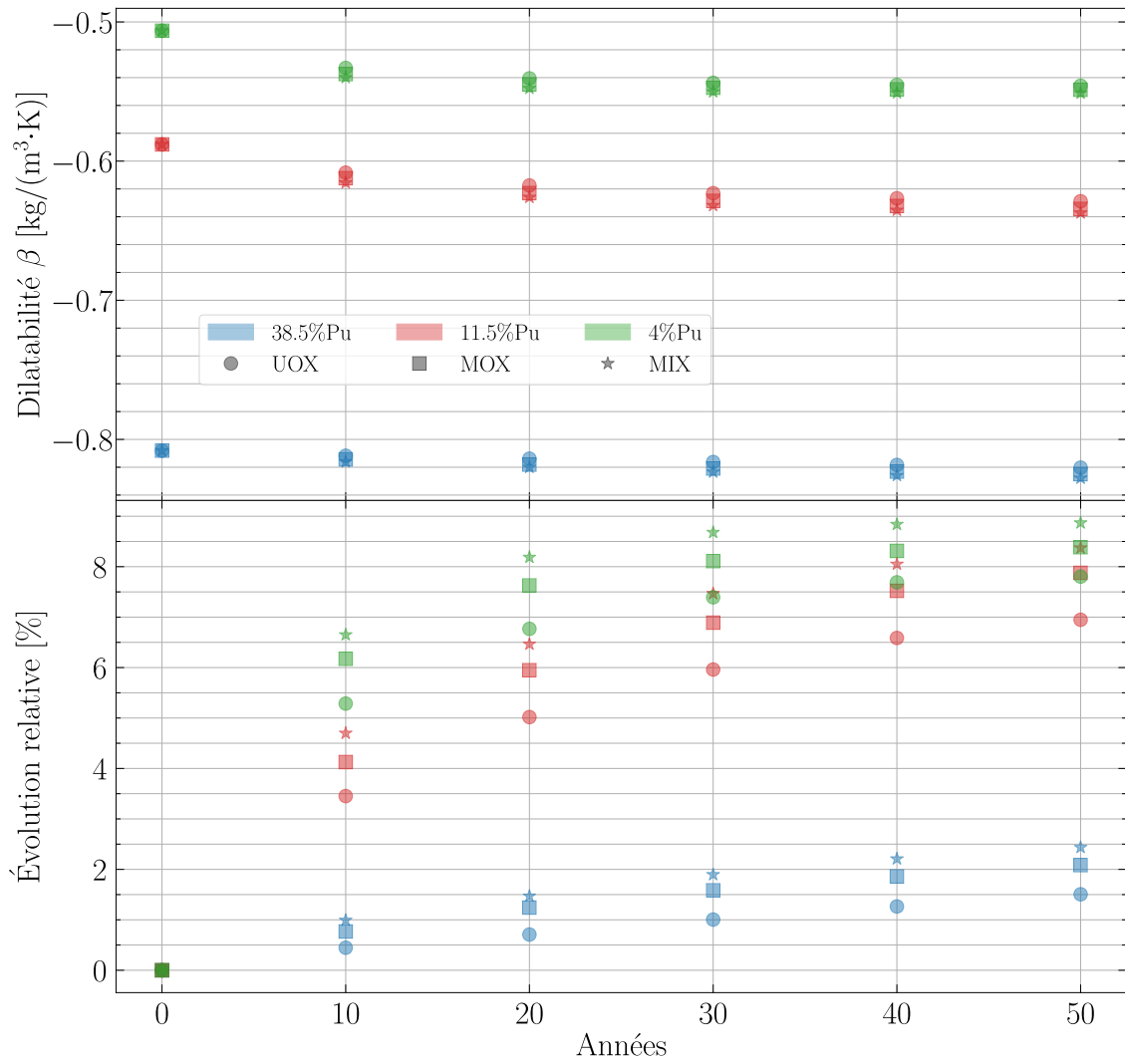


FIGURE 4.76 – Évolution temporelle de la dilatabilité

L'estimation des coefficients de contre-réaction en [pcm/K] intègre l'évolution de la dilatabilité. Cependant, l'estimation de la masse volumique et de la dilatabilité reposent sur des hypothèses fortes. Afin de s'affranchir de certaines de ces hypothèses, on choisit de calculer les CCR en normalisant par la dilatabilité. La figure 4.77 montre alors que les compositions évoluent et amènent à un coefficient de contre-réaction similaire à l'état stationnaire. On constate que l'estimation de la masse volumique sera le facteur principal déterminant l'intensité de cette contre-réaction.

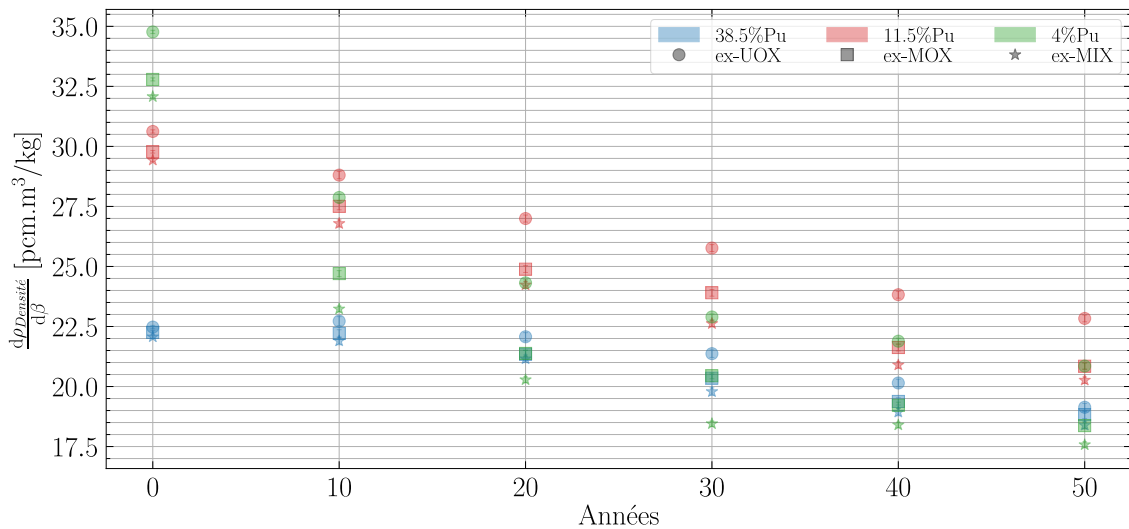


FIGURE 4.77 – Évolution des coefficients de contre-réaction de densité normalisés selon la dilatabilité [JEFF 3.3]

4.4.7.d Comparaison des bases de données JEFF 3.3 et ENDF\B-VIII

Comme pour le calcul du volume critique en section 3.4.1.e, le choix de la base de données utilisée peut induire des variations importantes dans les grandeurs calculées. Ici, on s'intéresse à comparer les effets Doppler et de densité au démarrage avec JEFF 3.3 et ENDF\B-VIII. L'utilisation directe ici d'un autre code Monte-Carlo comme Serpent permet d'éviter les mélanges de sections efficaces dans REM (section 3.3.3).

Les figures 4.78 et 4.79 comparent l'évolution des contre-réactions Doppler et densité du cas 11.5% Pu_{MOX} estimées avec JEFF 3.3 et ENDF\B-VIII. On n'observe, pour la contribution Doppler, aucune différence en tenant compte de l'incertitude du calcul. L'effet de densité est, en revanche, plus fort via ENDF\B-VIII de 1% relatif.

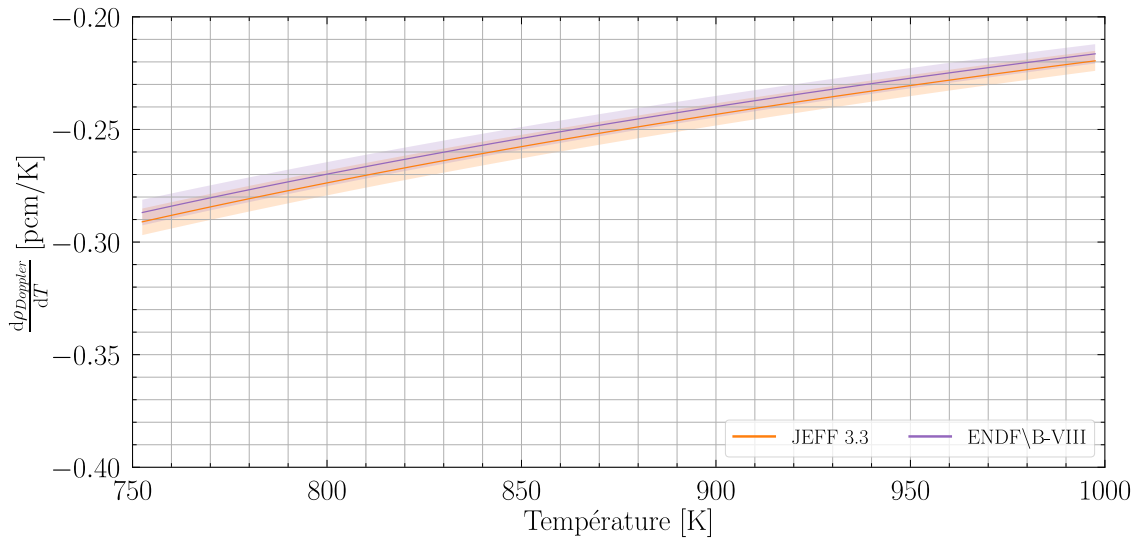


FIGURE 4.78 – Évaluation des coefficients de contre-réaction Doppler pour le cas 11.5% Pu_{MOX} [JEFF 3.3 | ENDF\B-VIII]

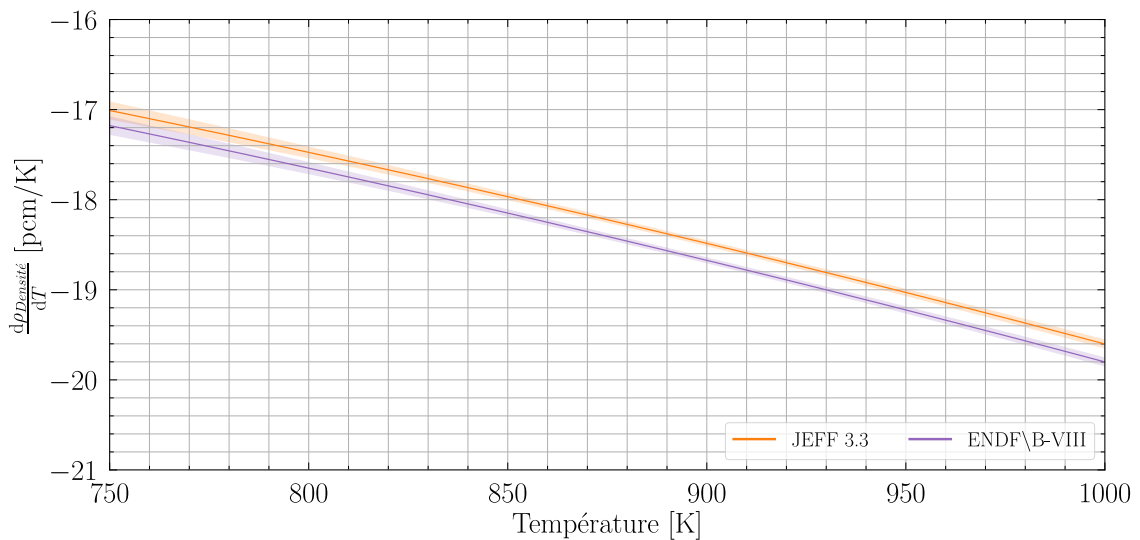


FIGURE 4.79 – Évaluation des coefficients de contre-réaction de densité pour le cas 11.5% Pu_{MOX} [JEFF 3.3 | ENDF\B-VIII]

4.4.7.e Conclusions et perspectives sur les contre-réactions de température

Les contre-réactions de température étant négatives, la stabilité intrinsèque du cœur est assurée, point capital pour la sûreté. On note que l'effet principal est la contre-réaction de densité, de l'ordre de -17 pcm/K au démarrage, avec un impact de la teneur en plutonium. Une concentration importante en plutonium implique une dilatabilité du sel combustible plus grande, et donc une augmentation de la transparence aux neutrons avec la température. De plus, cette forte teneur est associée à une zone critique compacte, favorisant les fuites de neutrons. L'utilisation de vecteur de moins bonne qualité fissile dégrade le CCR de densité, puisque les neutrons interagissent davantage avec le sel et s'échappent moins.

L'effet Doppler est quant à lui beaucoup plus faible, environ -0.3 pcm/K, et meilleur pour des configurations à faible teneur en plutonium, puisque les neutrons perdent un peu plus d'énergie dans le sel et peuvent ainsi interagir avec les résonances de capture. Les vecteurs dégradés de plutonium améliorent le coefficient de contre-réaction Doppler, puisque les isotopes principalement contributeurs sont les ^{240}Pu , ^{239}Pu et ^{242}Pu .

Au cours du temps, les deux effets s'atténuent (mais restent négatifs dans l'ensemble) à cause de l'enrichissement en plutonium dans le sel combustible, afin de compenser l'apparition des PF et AM, et de ces mêmes PF et AM dans le sel. Le spectre un peu plus rapide limite les captures dans les résonances (diminution du CCR Doppler) et les neutrons fuient plus difficilement de par la dilatabilité plus faible du sel et par la transparence aux neutrons diminuée à cause des PF et AM (diminution du CCR de densité). Ces effets sont d'autant plus importants que la teneur initiale en plutonium est faible (teneur en plutonium multipliée par 2 à 50 ans pour un 4% initial : tableau 4.8). De plus, l'évolution du CCR de densité sera plus impactée par l'utilisation d'un vecteur dégradé d'alimentation (type ex-MIX), et le CCR Doppler par l'utilisation d'un vecteur moins dégradé (type ex-UOX).

Une comparaison à l'instant initial entre les bases de données JEFF 3.3 et ENDF/B-VIII montre un très bon accord sur le calcul. L'effet de la base de données est faible. Cependant, de grandes incertitudes peuvent exister sur certains isotopes ou à certaines énergies et certains points doivent retenir l'attention. Le CCR de densité ne devrait pas être trop grandement impacté, mais l'estimation du CCR Doppler pourrait l'être.

Le faible effet Doppler ne devrait pas être un handicap en fonctionnement normal, mais l'étude de cas particuliers comme le remplissage ou la vidange devra être effectuée. En effet, l'effet de densité risque d'être négligeable, car le sel combustible ne pourra pas se dilater hors de la zone critique dans ces conditions [128]. De même, le fort effet de densité pourrait éventuellement occasionner des oscillations de puissance dans le cœur. Des études de transitoires et de comportement dynamique sont nécessaires pour évaluer ces aspects.

4.4.8 Perte de réactivité en réacteur

Le code REM simule l'irradiation d'un réacteur en gérant les alimentations et les extractions. Ces flux sont uniquement modélisés par des fonctions continues et non discrètes, mode qui serait plus proche d'un rechargement réel par *batch*. Afin d'estimer le temps maximum entre deux rechargements de combustible, on estime ici la perte de réactivité journalière au démarrage du réacteur de trois configurations de réacteur en l'absence d'alimentation. La figure 4.80 présente l'évolution de la réactivité calculée et

interpolée linéairement pour les simulations 38.5, 11.5 et 4% Pu_{MOX}. La chute de réactivité absolue est d'autant plus importante que la puissance est importante (hypothèse de puissance spécifique identique, voir tableau 4.6).

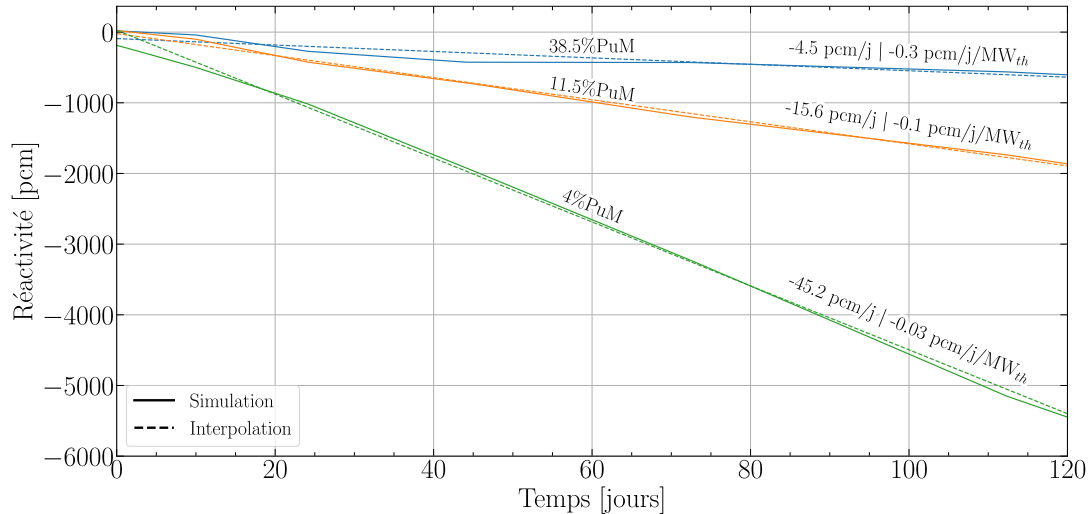


FIGURE 4.80 – Perte de réactivité en cœur pour les configurations alimentées en plutonium ex-MOX

Contrairement à ce que REM simule (température et puissance thermique du sel combustible constantes), un vrai réacteur voit la température de son sel combustible évoluer. En effet, le réacteur restera critique, car les contre-réactions de température jouent sur le gain ou perte de réactivité en fonction de la température (section 4.4.7). Par exemple, une baisse de réactivité de -4.5 pcm/j (38.5% Pu_{MOX}) à une température nominale de 800 K (CCR = -18.2 pcm/K) entraînera une baisse de la température de 1 K tous les quatre jours (ou toutes les neuf heures pour le cas 4% Pu_{MOX}). La marge de température à la solidification de 30 K dans les optimisations SONGe (section 4.5) peut s'amenuiser entre 11 et 120 jours pour les cas extrêmes regardés ici, ce qui indique une fréquence minimale de rechargement du combustible. Par ailleurs, les matériaux de structure peuvent également voir leur température diminuer, ce qui peut induire une fatigue thermique au fur et à mesure des rechargements de combustible. Il faut tout de même noter que la température des matériaux et celle du sel ne sont pas identiques, le sel combustible étant un mauvais conducteur thermique et les structures étant refroidies.

4.4.9 Production de colis CSD-V et radiotoxicité associée

La production de colis de déchets (CSD-V ou CSD-C) est inhérente à la production d'électricité par voie électronucléaire. L'objectif est donc de diminuer leur quantité autant que faire se peut afin de diminuer l'impact géologique. Cependant, la quantité de colis n'est pas le seul critère, car les matières contenues dans la matrice de verre ont un impact biologique différent selon que l'on considère des produits de fission, des actinides majeurs ou mineurs. La radiotoxicité finale des colis, notion introduite en section 3.4.3, est également importante à prendre en compte pour limiter le temps de stockage et les rejets en cas de brèches dans les barrières de confinement [104]. Le code CALCIFER,

présenté en section 3.3.5 estime le nombre de colis vitrifiés produits selon les critères limitants (section 3.3.5) ainsi que la radiotoxicité totale pour un réacteur fonctionnant 100 ans.

4.4.9.a Refroidissement avant colisage

Le combustible irradié en REP nécessite plusieurs années (3 à 5 ans) de refroidissement avant que la puissance thermique soit suffisamment basse pour que le retraitement puisse s'effectuer. La figure 4.81 présente l'évolution du nombre de colis vitrifiés produit en 100 ans de fonctionnement du RSF incinérateur alimenté en plutonium produit en REP, selon le temps de refroidissement des effluents de retraitement du sel combustible. La puissance thermique prédomine pendant 4 ans avant que la teneur en platinoïdes ne devienne le facteur limitant. On considèrera à présent un temps de refroidissement de 5 ans avant mise en colis afin de minimiser le nombre produit.

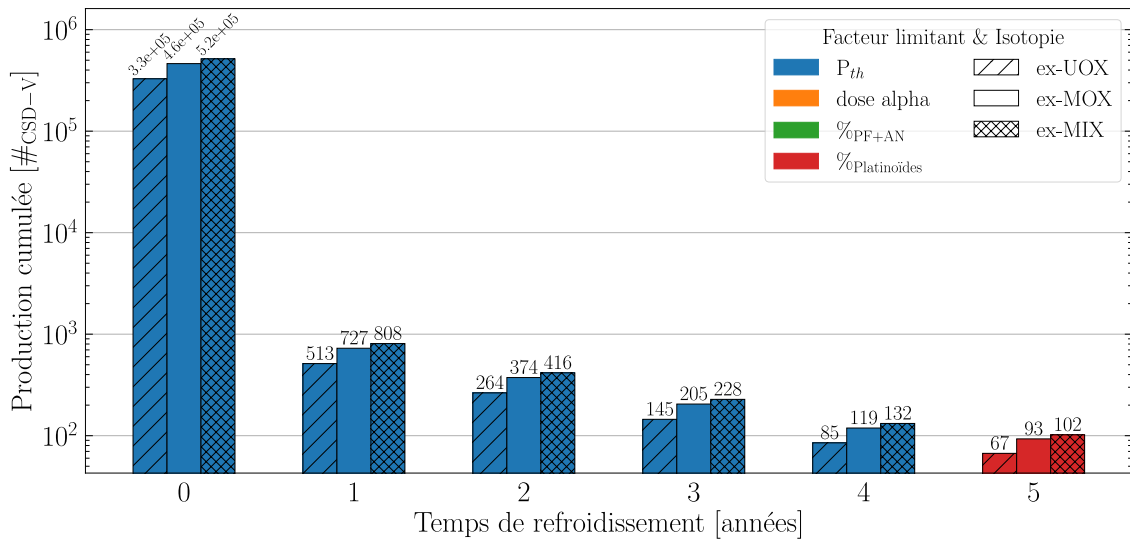


FIGURE 4.81 – Évolution de la production de colis totale sur 100 ans et critère limitant selon le temps de refroidissement des matières envoyées aux déchets pour une teneur initiale de 11.5%Pu

4.4.9.b Impact des voies de retraitement sur la production de colis

On s'intéresse ici à évaluer l'impact des trois voies de retraitement sur la production de colis après un temps de refroidissement de 5 ans. La figure 4.82 montre ainsi que le choix d'extraire les produits de fission insolubles impacte grandement la production totale de colis de déchets vitrifiés pour 100 ans de fonctionnement. Comme indiqué dans la section 4.4.4, le comportement des insolubles est incertain et ils pourraient se déposer en partie sur les parois. Ainsi, la voie de gestion de ces matières n'est pas définie (CSD-V, CSD-C, etc.) et de plus amples réflexions seront à mener. En effet, le nombre de colis est multiplié par un facteur d'environ 4 entre l'extraction des PF (et actinides légers) dissous dans le sel combustible et l'extraction totale, alors que la masse totale extraite à l'état stationnaire n'est que multipliée par deux entre les deux voies d'extraction. Il est à noter que le nombre de colis « Tous PF » n'est pas la somme de la production des colis par les trois voies de retraitement puisque le facteur limitant global reste la teneur en platinoïdes même en sommant les extractions des trois voies de retraitement. Bien que

défavorable à l'étude, nous considérerons l'ensemble des PF extraits du sel combustible par la suite, car les platinoïdes font partie des PF envoyés au colisage. Il faudra néanmoins étudier d'autres voies de gestion des platinoïdes potentiellement plus adaptées au vu des quantités produites ($\approx 20\%$ des PF à l'état stationnaire).

À la fermeture du réacteur, ici après 100 ans de fonctionnement, se pose la question du devenir du sel combustible. Deux options sont alors possibles. Il peut être directement vitrifié, ou bien à son tour incinéré en combinant les sels de différents réacteurs arrivant en fin de carrière. La figure 4.82 montre que la vitrification directe implique une production de colis très largement supérieure aux colis de produits de fission fabriqués en 100 ans de fonctionnement. L'incinération du cœur serait donc à envisager. En revanche, le critère limitant est cette fois la dose α provenant du plutonium et des actinides mineurs.

Dans les deux cas, on observe une réduction du nombre de colis produits considérable (85% à 92%) par rapport à une vitrification du plutonium alimenté du réacteur pendant les 100 ans de fonctionnement³.

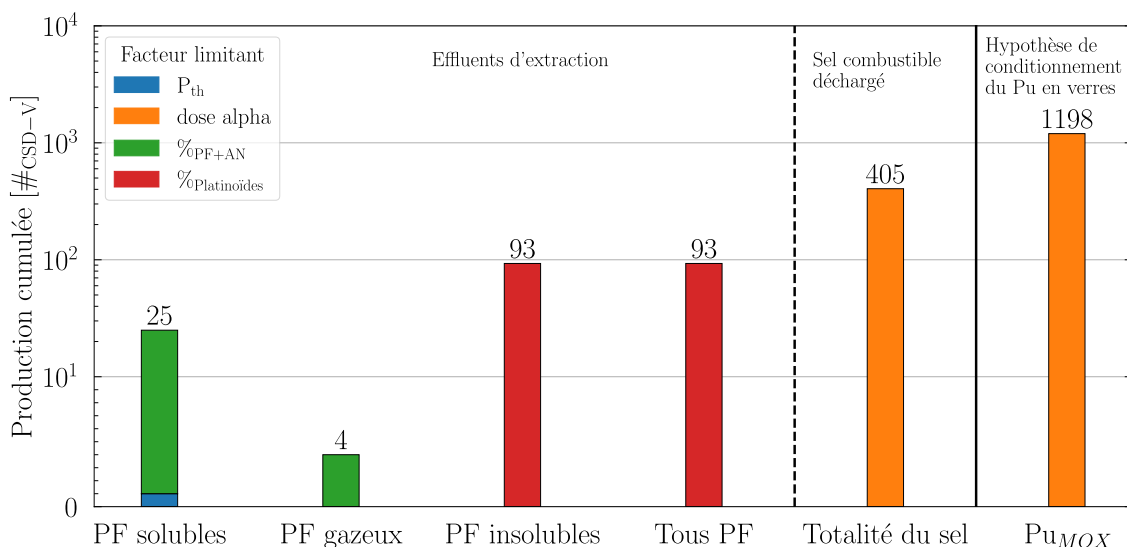


FIGURE 4.82 – Nombre de CSD-V fabriqués selon la voie de retraitement des produits de fission en incluant un temps de refroidissement de 5 ans pour le fonctionnement d'un réacteur du cas 11.5% Pu_{MOX} pendant 100 ans et pour la masse de plutonium alimentée en 100 ans

4.4.9.c Production de CSD-V

Avec un temps de refroidissement de 5 ans appliqué à toutes les compositions d'effluents *totaux* sortant du réacteur, la figure 4.83 indique la production de colis totale normalisée par la masse totale de plutonium alimentée pour les neuf configurations étudiées. Presque aucune différence n'est visible entre les neuf configurations pour la vitrification des effluents en cours de fonctionnement, avec une production d'environ 14 CSD-V/t_{Pu}. En revanche, le choix de vitrifier le sel combustible déchargé après 100 ans de fonctionnement, au lieu de l'utiliser pour démarrer un nouveau réacteur, implique l'apport en grand nombre de contributeurs à la dose alpha dans les colis (motif o). En

3. On cherche ici à estimer l'impact de la consommation en RSF du plutonium en termes de réduction du nombre de CSD-V. On fait donc l'hypothèse qu'il pourrait être conditionné dans une matrice de verre dans ce but de comparaison. Il est important de rappeler que le plutonium n'est actuellement pas vitrifié.

normalisant par la masse totale alimentée, les configurations à grands volumes de cœur sont très largement favorisées. Par ailleurs, peu d'impact est observé sur la production finale de colis en fonction du vecteur isotopique d'alimentation.

Dans l'ensemble des 9 cas sans vitrification du cœur, le gain de l'introduction d'un RSF incinérateur sur la production de CSD-V est de l'ordre de 90% par rapport à un conditionnement du plutonium en verres. Si l'on inclut la vitrification du cœur, le gain se réduit à 20% pour les configurations à 38.5% Pu, 55% pour les configurations à 11.5% Pu, 70% pour les configurations à 4%. Ici, l'hypothèse est faite que l'entièreté du sel combustible (solvant inclus) est vitrifié. Une séparation des constituants et des voies adaptées à chaque déchet sera nécessaire, en plus de la réutilisation d'au moins une partie des actinides.

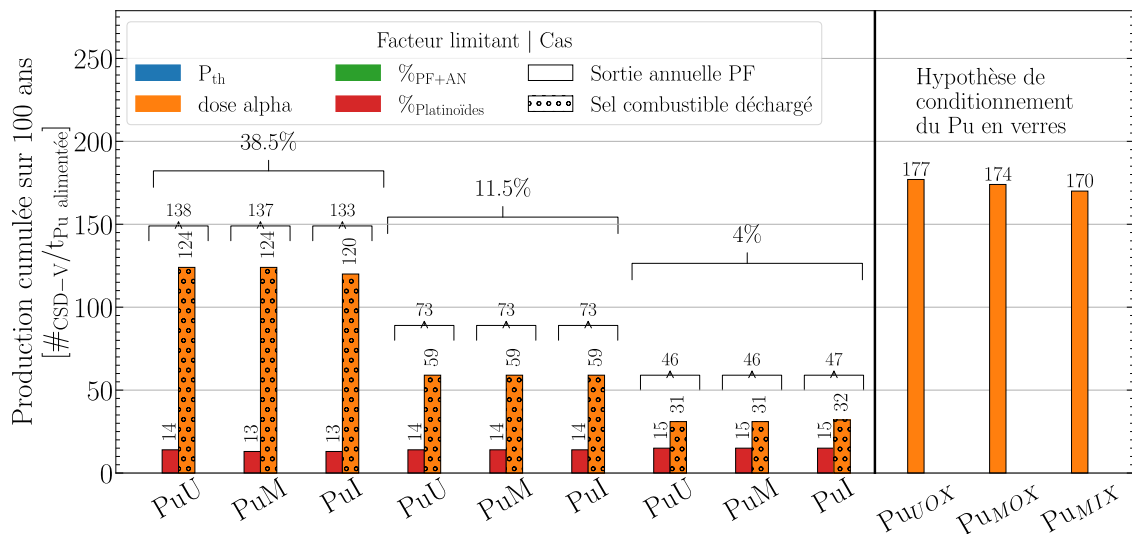


FIGURE 4.83 – Production totale de CSD-V normalisée en masse alimentée avec et sans vitrification du sel combustible déchargé pour les neuf configurations étudiées, ainsi que du plutonium alimenté, en incluant un temps de refroidissement de 5 ans

4.4.9.d Radiotoxicité des CSD-V

À partir des colis produits avec les compositions totales refroidies 5 ans, la figure 4.84 montre pour le cas 11.5% Pu_{MOX} les contributions à la radiotoxicité des colis pour le cas où le sel combustible est le sel de démarrage d'un nouveau réacteur (traits pleins) et celui où le sel combustible est vitrifié (traitillés). La séparation étant supposée parfaite, seuls les produits de fissions et les actinides plus légers que le neptunium sont envoyés au colisage. La présence de plutonium et d'actinides mineurs provient de décroissances successives des actinides extraits (actinium à l'uranium). Les PF sont les contributeurs quasi exclusifs à la radiotoxicité dans les deux cas, jusqu'à environ 300 ans après la production du dernier colis du réacteur. La vitrification du cœur amène des transuraniens, qui vont maintenir la radiotoxicité à haut niveau pendant près de 10⁵ années, avant de retrouver le niveau du cas où le sel combustible n'a pas été vitrifié. Dans les deux cas, avec hypothèse de retraitement parfait, la radiotoxicité est réduite par rapport à la vitrification directe du vecteur d'alimentation Pu_{MOX}. La remontée de la radiotoxicité provient de l'²³⁴U produit dans le réacteur et extrait, qui décroît en trois radioisotopes principaux dans les

verres (^{226}Ra , ^{210}Po et ^{210}Pb) via la chaîne de décroissance de l' ^{238}U . Le choix d'extraire l'uranium du sel combustible semble donc discutable au vu de l'apport important de radiotoxicité.

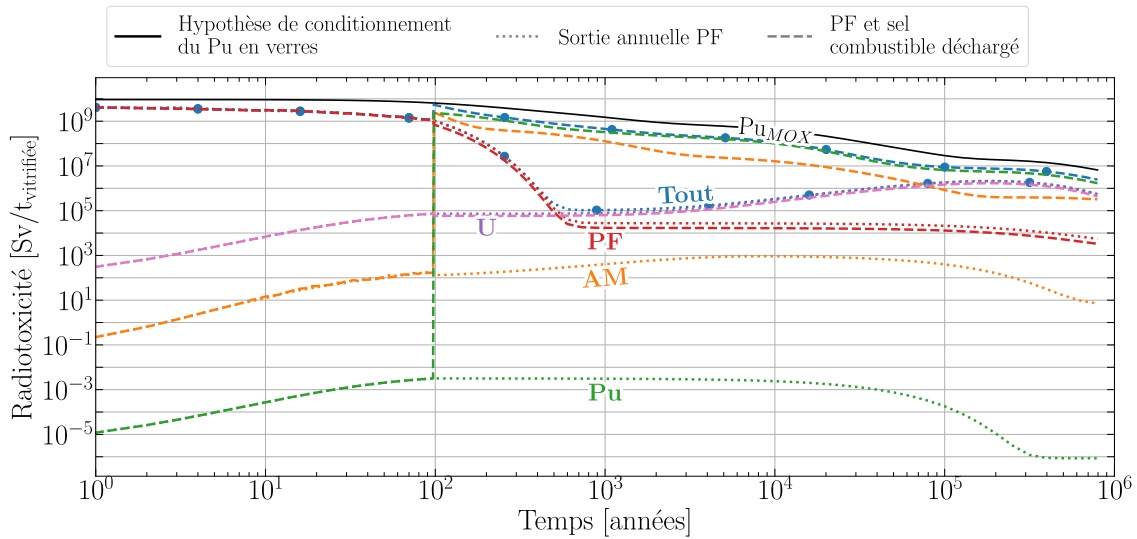


FIGURE 4.84 – Évolution de la radiotoxicité des CSD-V produits et ses contributions pour un réacteur démarré et alimenté en Pu_{MOX} avec 11.5% de plutonium initialement dans le sel combustible en incluant un temps de refroidissement de 5 ans.

La figure 4.85 compare la radiotoxicité entre les configurations (vitrification ou non du sel combustible déchargé) avec les vecteurs d'alimentation plutonium s'ils étaient envoyés à la vitrification pour conditionnement final. Toutes les configurations amènent à une radiotoxicité similaire en cas de vitrification des PF uniquement, puisque le retraitement est supposé parfait. La vitrification directe du sel combustible, cas extrême, fait grimper la radiotoxicité presque au niveau des vecteurs plutonium pour une courte durée. La décroissance de la radiotoxicité est plus rapide pour les faibles teneurs initiales de plutonium, au vu de la masse vitrifiée considérable, et les vecteurs moins dégradés d'alimentation, puisque la contribution après 10 000 ans reste le plutonium. L'écart aux radiotoxicités des vecteurs d'alimentation est donc considérable pour les cas où le sel combustible n'est pas vitrifié ($\times 10^4$ à 1000 ans), et tout même remarquable dans le cas avec ajout du cœur vitrifié (de $\times 2$ pour le 38.5% initial à $\times 21$ pour le 4% initial). Après 3000 ans, les différences entre les teneurs initiales de plutonium s'amenuisent.

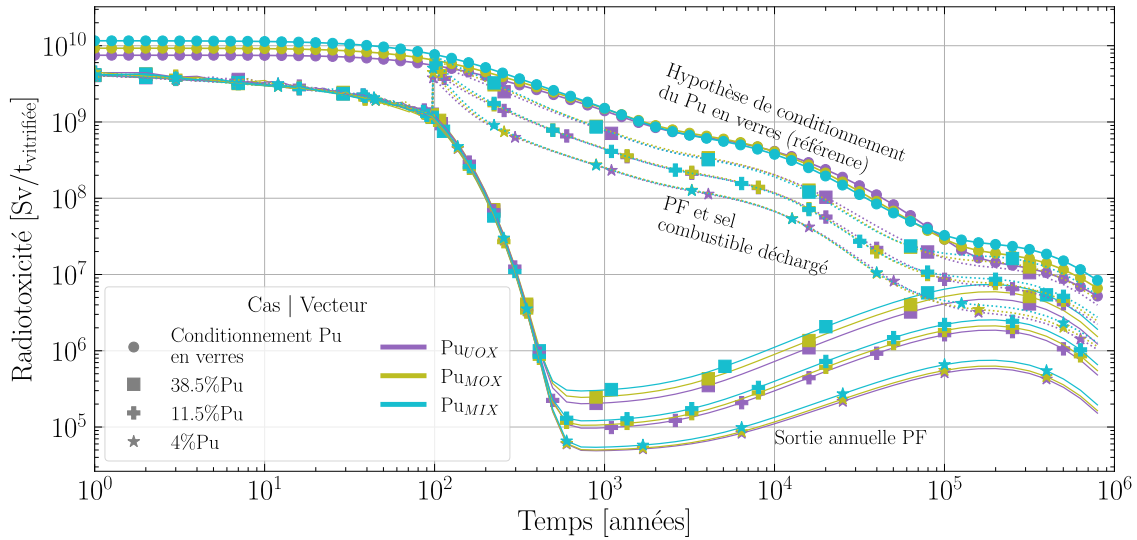


FIGURE 4.85 – Évolution de la radiotoxicité des CSD-V produits pour les neuf configurations étudiées en incluant un temps de refroidissement de 5 ans sans la vitrification du cœur

4.5 Capacités d'extraction de chaleur par optimisation multicritères du circuit combustible avec le code SONGe

4.5.1 Paramètres physico-chimiques des sels

Afin de réaliser une optimisation thermohydraulique avec SONGe, il est nécessaire d'estimer les paramètres physico-chimiques nécessaires des sels combustible et intermédiaire. Les caractéristiques du sel intermédiaire sont invariables, contrairement au sel combustible dont la composition dépend du vecteur de combustible utilisé et de l'irradiation neutronique. L'hypothèse est faite que l'isotopie et l'évolution de la composition du sel combustible ne font pas varier les caractéristiques du sel (manque de données).

La composition du sel combustible (teneur et isotopie) a en revanche un impact non négligeable sur le volume de la zone critique et donc de sel combustible. Le calcul d'une corrélation dite neutronique reliant composition, isotopie et volume de la zone critique est nécessaire pour une optimisation paramétrique. À partir des résultats de la section 4.2.2, une régression (figure 4.86) sur le volume critique en fonction du vecteur isotopique de combustible a été réalisée, permettant de déterminer le volume à partir de la teneur en plutonium selon l'équation 4.5 et les coefficients du tableau 4.12.

$$V = \frac{a}{x_{Pu}^3 + b \cdot x_{Pu}^2 + c \cdot x_{Pu} + d} + e \quad (4.5)$$

avec V le volume de la zone critique en m^3 et x_{Pu} la teneur molaire en [%] en plutonium.

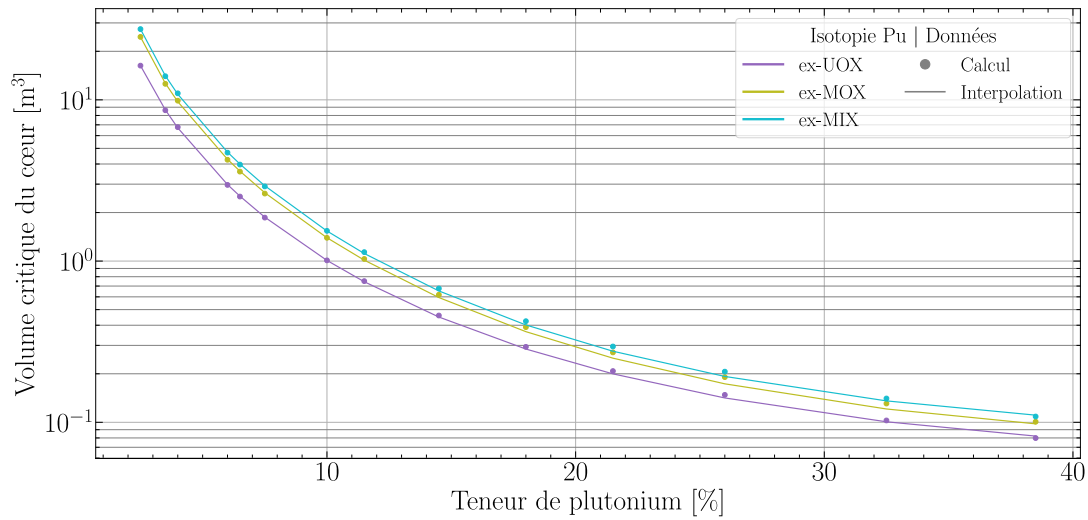


FIGURE 4.86 – Régression polynomiale d'ordre 3 sur le volume critique en fonction de la teneur en plutonium dans le sel

TABLEAU 4.12 – Coefficients de régression pour la détermination du volume de la zone critique à partir de la teneur en plutonium

Vecteur	a	b	c	d	e×10 ²
ex-UOX	2556.29	13.93	28.64	-16.95	5
ex-MOX	2533.60	5.78	35.70	-37.60	6
ex-MIX	2686.65	5.23	34.69	-36.96	7

Les interpolations ne permettent pas de retranscrire parfaitement l'évolution des volumes. Cependant, aux teneurs qui nous intéressent dans ce chapitre (38.5%, 11.5% et 4% de plutonium), l'erreur relative sur le volume est de 3% maximum. Vu que les volumes sont proches et que les optimisations s'intéressent principalement à évaluer les contraintes limitantes dans cette première évaluation des capacités d'extraction de la chaleur, on utilisera uniquement la corrélation du vecteur ex-UOX pour comparer les cas entre eux.

4.5.2 Validation de l'hypothèse de la puissance spécifique de 150 MW_{th}.m⁻³

Le tableau 4.13 présente la valeur des variables optimisées pour une puissance spécifique de 150 MW_{th}/m³. Les trois configurations peuvent délivrer la puissance spécifique qui a été choisie en section 3.3.3 avec des paramètres variables qui semblent raisonnables à ce jour (vitesse du sel combustible en cœur, pas des corrugations, etc.). Il est à noter que la température moyenne du sel combustible est supérieure à celle supposée dans les études neutroniques (environ 900 K), car elle est laissée libre dans l'optimisation. Une température de criticité imposée à 800 K demande beaucoup de sel hors cœur, des plaques d'échangeurs très fines (<1 mm).

Toutes les contraintes sont satisfaites (tableau 4.14), même la fraction de sel combustible en cœur (51% en cœur pour le cas 4%, 58% pour le 11.5% et 63% pour le 38.5%). Les réacteurs à grand volume de cœur semblent moins bien réussir à échanger la chaleur produite avec le sel intermédiaire que les moyens et petits volumes. Il faut néanmoins se souvenir que la géométrie utilisée a été développée pour des AMR, ce qui peut induire un biais important sur cette conclusion.

TABLEAU 4.13 – Variables optimisées pour une puissance spécifique en cœur de 150 MW_{th}/m³ selon la teneur initiale de plutonium dans le sel combustible

Paramètres	Unité	Plage	38.5%Pu	11.5%Pu	4%Pu
Débit total de sel intermédiaire	kg/s		166	1810	12 800
Débit total de sel combustible dans le cœur	kg/s		309	2160	14 100
Température d'entrée du cœur	K	[750,900]	858	845	818
Température de sortie du cœur	K	[850,950]	926	914	891
Vitesse maximum du sel combustible dans la zone critique	m/s	[2,10]	5.43	5.79	6.86
Température d'entrée du sel intermédiaire dans l'échangeur	K	[600, 700]	645	667	682
Pas des corrugations	mm	[3,10]	3.07	3.08	3.39
Épaisseur de séparation entre les sels	mm	[0.5,2]	1.37	1.48	1.61
Échauffement du sel intermédiaire dans l'échangeur	K	[30,100]	58.5	53.6	60.1
Refroidissement du sel combustible dans l'échangeur	K	[50,100]	68.8	68.3	72.2
Longueur droite des tubes échangeur	m	[0,1]	0.894	0.608	0.666
Longueur des pales de la pompe	m	[0.1,1]	0.433	0.436	0.438

4.5. Capacités d'extraction de chaleur par optimisation multicritères du circuit combustible avec le code SONGe

TABLEAU 4.14 – Contraintes optimisées pour une puissance spécifique en cœur de 150 MW_{th}/m³ selon la teneur initiale de plutonium dans le sel combustible

Paramètres	Unité	38.5%Pu		11.5%Pu		4%Pu	
		Valeur	Coût	Valeur	Coût	Valeur	Coût
Déséquilibre de puissance	MW	-6.39E-2	6.60E-2	-1.34E-1	1.44E-1	-2.23E-2	2.26E-2
Déséquilibre de puissance	MW	-6.39E-2	-6.19E-2	-1.34E-1	-1.26E-1	-2.23E-2	-2.21E-2
Déséquilibre de température	K	-2.52E-5	2.52E-3	1.14E-6	-1.14E-4	-6.74E-5	6.76E-3
Déséquilibre de température	K	-2.52E-5	-2.52E-3	1.14E-6	1.14E-4	-6.74E-5	-6.71E-3
Déséquilibre de fraction de sel en cœur		1.27	2.60E-1	1.17	4.31E-1	1.02	9.20E-1
Fraction de puissance électrique des pompes	%	1.86E-1	4.43E-1	1.57E-1	4.30E-1	6.99E-1	7.40E-1
Vitesse maximum dans les tuyaux du circuit combustible	m/s	5.48	8.04E-2	5.85	7.06E-2	6.93	1.26E-1
Longueur des pales de la pompe	m	4.33E-1	1.27E-3	4.36E-1	1.61E-3	4.38E-1	2.06E-3
Écart de température maximum dans les plaques de l'échangeur	K	6.36E1	1.73E-3	6.09E1	1.16E-4	6.62E1	2.17E-2
Profondeur totale de l'échangeur intermédiaire	m	5.00E-2	1.23E-4	2.57E-1	7.71E-3	1.12	4.53E-4
Épaisseur de séparation entre les sels	mm	1.37	2.40E-2	1.48	8.63E-3	1.61	2.29E-3
Nombre de Reynolds minimum pour le sel intermédiaire		3.72E3	1.16E-28	6.39E3	7.24E-52	8.20E3	1.39E-67
Nombre de Reynolds minimum pour le sel combustible		3.19E3	4.27E-24	3.62E4	6.31E-311	2.67E4	6.69E-228
Hauteur des corrugations	mm	3.07	2.20E-5	3.08	1.96E-5	3.39	9.05E-7
Vitesse du sel intermédiaire dans l'échangeur	m/s	1.34	4.73E-4	2.10	1.01E-3	2.25	1.17E-3
Coût total			6.02E-2		5.31E-2		1.32E-1

4.5.3 Augmentation de la puissance spécifique et coût d'optimisation

Une puissance spécifique plus importante en cœur donne lieu à une plus grande consommation d'actinides pour un même volume de sel. On cherche donc ici les contraintes et variables qui limitent le plus l'optimisation. La figure 4.87 montre l'évolution du coût total d'optimisation du circuit combustible du réacteur selon la puissance spécifique demandée. Les configurations à 38.5% et 11.5% de plutonium initial sont celles qui arrivent le mieux à optimiser la géométrie, les différentes variables et contraintes. L'extraction de chaleur d'un réacteur à 4% de plutonium devient rapidement coûteuse lorsque la puissance spécifique augmente. Les optimisations à 100 et 150 $\text{MW}_{\text{th}}/\text{m}^3$ montrent que le calcul n'est pas total convergé vu le coût total de la configuration à 38.5%, supérieur au coût du 11.5%. À partir de ces optimisations, il semble possible d'augmenter la puissance spécifique jusqu'à 300 $\text{MW}_{\text{th}}/\text{m}^3$ pour les configurations à faible et moyenne teneurs en plutonium, sous réserve que les différents paramètres optimisés soient acceptables. Cette augmentation de la température moyenne du sel combustible implique des volumes critiques un peu plus grands pour l'ensemble des configurations (+9% à 900 K) afin de compenser la masse volumique plus faible (-3% à 900 K).

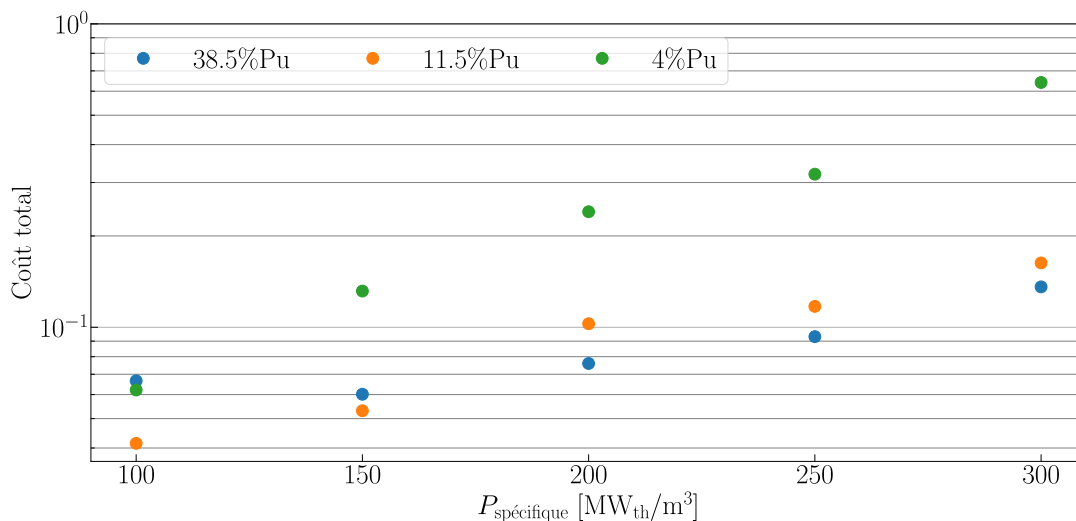


FIGURE 4.87 – Coût total d'optimisation en fonction de la puissance spécifique en cœur selon la teneur en plutonium initiale

La figure 4.88 détaille les coûts d'optimisation de chaque configuration. Ne sont montrées que les contraintes dont le coût est supérieur à 0.6, qui est le maximum atteint pour les cas à 100 $\text{MW}_{\text{th}}/\text{m}^3$. On note qu'il est de plus en plus compliqué d'extraire la puissance à fur et à mesure que la puissance spécifique augmente pour les configurations à 4% de plutonium, puisque les variables coûteuses sont de plus en plus nombreuses. La contrainte de fraction de sel en cœur à 50% ou celle de puissance des pompes (1% de la puissance produite) sont les deux contraintes principales qui coûtent. En effet, pour extraire les puissances thermiques demandées, il est nécessaire d'agrandir les échangeurs, augmenter les débits et mettre plus de sel à l'extérieur de la zone critique. Ce sel à l'extérieur demande un inventaire en actinides plus grand uniquement pour pouvoir réaliser l'échange de chaleur.

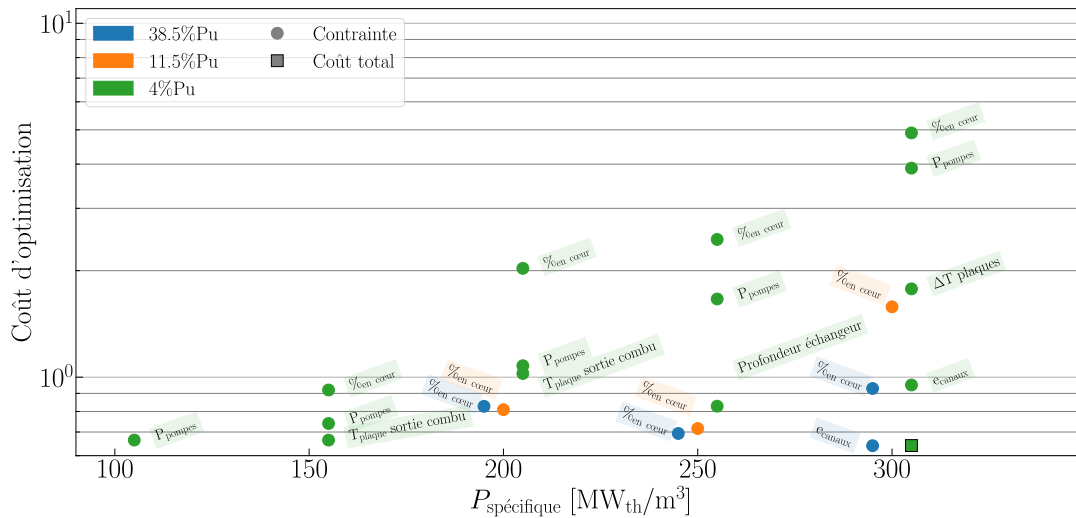


FIGURE 4.88 – Coûts des contraintes d’optimisations en fonction de la puissance spécifique en cœur selon la teneur en plutonium initiale

4.5.4 Conclusions d’optimisation

Cette section a montré que la puissance spécifique de 150 MW_{th}/m³ est atteignable pour les trois teneurs différentes initiales de plutonium avec le design proposé. On note que la température moyenne du sel combustible est supérieure à celle supposée dans les études neutroniques pour permettre des échanges thermiques suffisants et évacuer la puissance requise. La température de criticité estimée par SONGe, environ 880 K, reste raisonnable pour les matériaux de structure et aura un impact sur les sections efficaces faibles. Le volume critique sera en revanche impacté (+9% à 900 K avec une masse volumique diminuée de 3%). On conserva néanmoins la 800 K comme température de référence pour les chapitres neutroniques ultérieurs. Les futures études devront itérer entre la neutronique et la thermohydraulique pour le dimensionnement du circuit combustible.

L’augmentation de la puissance spécifique semble être possible jusqu’à 300 MW_{th}/m³ pour les petites et moyennes configurations en acceptant de progressivement mettre plus de sel hors zone critique. La configuration à 40% de plutonium arrive plus difficilement à être optimisée, puisque la puissance de la pompe devient très importante, tout comme la part de sel hors cœur. Comme mentionné précédemment, la géométrie utilisée (à une seule pompe) est destinée à un réacteur de faible volume de sel, de type SMR/AMR. Des limitations peuvent donc être observées à cause du choix d’utiliser la même géométrie.

Une autre limitation à soulever est le manque de fiabilité des valeurs paramètres physico-chimiques. D’une part, les hypothèses faites pour estimer lesdits paramètres, et d’autre part, leur évolution lorsque le sel sera irradié (mélange d’AM, PF, bulles, etc.), sont deux grandes inconnues auxquelles il faudra remédier pour réaliser les optimisations du circuit combustible avec les corrélations thermohydrauliques et neutroniques, étudier les transitoires en écoulement (avec un code du type TFM-OpenFOAM [14]), etc.

4.6 Conclusions du chapitre

4.6.1 Sensibilités

Différentes sensibilités ont été montrées dans ce chapitre. L'utilisation de sels chlorures induit la production d'un radioélément principal, le ^{36}Cl , tout comme les sels à base de fluorure de lithium mènent à la production de tritium à partir du ^6Li . L'enrichissement du chlore en ^{37}Cl permet de réduire les captures sur le ^{35}Cl , producteur de ^{36}Cl , et par suite de limiter le volume de la zone critique (et donc de la masse de plutonium à mobiliser). Les incertitudes sur l'estimation de la masse volumique d'un sel ternaire $\text{NaCl-MgCl}_2\text{-PuCl}_3$ impactent très fortement le calcul du volume critique. Une meilleure connaissance de la densité des sels chlorures est donc essentielle au design de ces réacteurs.

Le réflecteur choisi, ici de l'acier 316H, impacte énormément le spectre neutronique dans le sel combustible. L'utilisation de céramiques ou de graphite ralentit les neutrons, ce qui augmente les probabilités de fissions (et diminue le volume critique), mais aussi celles de captures et donc de production d'actinides mineurs. Le choix du réflecteur a ainsi été fait pour limiter la perte d'énergie des neutrons.

Le vecteur de plutonium choisi pour le démarrage implique d'adapter la teneur en actinides du sel combustible pour atteindre la criticité neutronique, car la teneur fissile du combustible se détériore avec chaque réutilisation du plutonium. Le calcul des teneurs enveloppe de plutonium au démarrage montre qu'il est possible de changer le vecteur isotopique de plutonium à volume de cœur constant, par la modification de la teneur en plutonium/magnésium du sel combustible.

La construction de la zone critique est également un paramètre déterminant pour le fonctionnement du réacteur. Une modification du volume occupable par le sel dans la zone critique induit un changement de réactivité, qui se traduit par une modification de la température pour maintenir la criticité neutronique. Cette variation de température dépend de l'ampleur des contre-réactions de température et se répercutera sur les matériaux de structure (risque de fragilisation).

4.6.2 Évolution temporelle des matières

L'étude de neuf configurations (trois teneurs et trois vecteurs isotopiques) montre une augmentation de la teneur en actinides dans le sel combustible pour compenser l'apparition des PF, lorsqu'un contrôle de la réactivité par alimentation en plutonium est effectué. L'apparition d'actinides mineurs en quantités notables (jusqu'à 15% molaire des actinides) est inévitable, car il n'y a pas uniquement des fissions. Cependant, la répartition des quantités et isotopes est très configuration-dépendante. Une faible teneur en plutonium initial ou un vecteur isotopique très dégradé amènent à de faibles productions d'américium et de neptunium, mais favorise la production de curium et de californium et d'isotopes à grand A .

La production de ^{36}Cl et de soufre est également plus importante pour de faibles teneurs en plutonium et des vecteurs Pu de moindre qualité.

Les réacteurs de petit volume de sel combustible nécessitent plus de temps pour arriver à l'état stationnaire du fait des sections efficaces microscopiques plus faibles à haute énergie de neutrons. Cela se traduit par un besoin accru en plutonium alimenté tout au long du fonctionnement simulé. Les plus grandes configurations arrivent à l'état stationnaire plus rapidement.

L'alimentation des réacteurs à sels fondus devra être réalisée suffisamment régulièrement pour éviter que la réactivité ne s'effondre et ne conduise à une diminution trop importante de la température à cause des contre-réactions. Les oscillations de température pourraient fatiguer les matériaux de structures prématurément.

4.6.3 Efficacités de conversion

Selon le critère de mobilisation de matière, les configurations à faibles teneurs sont plus intéressantes puisqu'elles arrivent à l'état stationnaire en composition plus rapidement et fissionnent alors exactement ce qui est alimenté. De même, la production/consommation des différents actinides normalisée par la puissance thermique tend vers le même constat, avec une disparition de la masse initiale en quelques années. La puissance développée avec les réacteurs à grand volume de zone critique (faible teneur de plutonium initial) rend la production d'actinides mineurs plus faible qu'en considérant les petits réacteurs. L'utilisation de différents vecteurs isotopiques d'alimentation impacte moins le bilan massique lorsque la teneur en plutonium diminue.

Cependant, les proportions de fission sur les actinides montrent la tendance à accumuler les actinides mineurs plutôt qu'à les faire fissionner, lorsque le volume du cœur est grand. Le rapport des taux de fission sur capture est moins favorable en spectre moins dur, menant à une production d'éléments plus lourds.

L'objectif est de limiter les captures, mais le critère de proportions de fissions ne permet que d'obtenir la photographie à un instant t de l'utilisation des neutrons. Le bilan au cours du temps des masses consommées ou produits donne un meilleur point de vue sur le réacteur. Il semble donc nécessaire d'envisager un compromis sur la teneur de plutonium dans le combustible avec d'une part, une consommation rapide de la masse initiale et une mobilisation réduite de matière dans le sel combustible, et d'autre part la limitation des captures qui mènent à une production d'actinides mineurs lourds (curium, californium). On pourra envisager une teneur avoisinant 11.5%, configuration qui semble présenter un équilibre entre les forces et faiblesses des configurations extrêmes.

4.6.4 Contre-réactions de température

L'effet principal qui permet au réacteur de fonctionner en régime nominal est la variation de densité avec l'échauffement du sel combustible (≈ -15 pcm/K). Lorsqu'il se dilate, il s'échappe en partie vers le vase d'expansion et devient plus transparent aux neutrons, une baisse de réactivité est alors observée. Cet effet est d'autant plus important que la géométrie est compacte et que le vecteur de plutonium est de bonne qualité.

L'effet Doppler, élargissement des résonances d'absorptions vues par les neutrons, est quant à lui très faible (quelques dixièmes de pcm par Kelvin). À l'opposé de l'effet de densité, c'est sur les grandes configurations à vecteur très dégradé qu'il est le plus fort. Les neutrons un peu moins rapides peuvent être capturés au lieu de simplement fissionner à plus hautes énergies. Le contributeur principal à cet effet est le ^{240}Pu pour la grande majorité et un peu le ^{239}Pu .

Les deux effets s'amenuisent avec le temps, avec l'augmentation de la teneur en actinides mineurs qui rend le spectre un peu plus rapide (moins d'effet Doppler) et plus dense (moins dilatable), mais l'ensemble reste largement négatif, assurant une stabilité intrinsèque.

Il faudra néanmoins s'assurer à l'aide d'études de transitoires que le faible effet Doppler permet d'effectuer le remplissage et la vidange du sel de façon contrôlée et que le fort coefficient de densité n'occasionne d'oscillations de puissance trop importantes.

4.6.5 Dégâts d'irradiation

Le choix d'un sel chlorure et d'un spectre rapide pour limiter les captures sur le combustible implique des collisions de neutrons à haute énergie dans les réflecteurs. Ceux-ci vont se détériorer et se fragiliser par l'apparition de lacunes par collisions neutron-atome, ainsi que des gaz (hydrogène et hélium), par réactions (n,p) et (n, α) principalement sur le nickel et le fer.

La puissance est le facteur déterminant dans la production de ces trois défauts. Ainsi, les matériaux de structure devront être remplacés plus fréquemment lorsque le réacteur sera de grand volume. Il est à noter qu'il est possible que l'hydrogène diffuse dans l'acier, voire migre hors du réflecteur.

Une réévaluation des dpa avec le modèle ARC-dpa devrait permettre de mieux estimer les dommages de collisions. Aucune valeur limite n'étant documentée pour les trois effets dans des RSF, des études expérimentales sont nécessaires en vue du dimensionnement d'un démonstrateur.

4.6.6 Production de colis de verre de déchets et radiotoxicité

La production de CSD-V est dominée par les produits de fission insolubles (les platinoides notamment) au cours du fonctionnement et par les actinides en fin de vie du réacteur lorsque le sel combustible est vitrifié. La vitrification du sel combustible apporte beaucoup de noyaux à durée de vie très longue, ce qui augmente considérablement le nombre de colis produits. Il y a néanmoins une réduction du nombre total de CSD-V produits par rapport à la vitrification directe du plutonium en sortie de REP. Cette réduction est d'autant plus importante que la puissance du réacteur sera importante.

La radiotoxicité est dominée à court terme par les produits de fission, puis par l'uranium qui est extrait au cours du fonctionnement. Le choix de ne pas réinjecter cet ^{234}U en réacteur est donc remis en cause. Dans le cas de la vitrification du sel combustible, l'apport de TRU fait remonter la radiotoxicité à un niveau équivalent à celui du plutonium, issu de REP, vitrifié depuis 100 ans, avant de diminuer en quelques dizaines d'années à un niveau plus faible.

L'extraction de l' ^{234}U ne semble pas présenter d'intérêt, voire est plutôt délétère sur le bilan de radiotoxicité. La vitrification du sel combustible en fin de fonctionnement du réacteur est à éviter, préférant plutôt l'incinération de ce sel dans un nouveau réacteur.

4.6.7 Évacuation de la puissance thermique

L'hypothèse d'un fonctionnement à $150 \text{ MW}_{\text{th}}/\text{m}^3$ a été validée avec des valeurs jugées acceptables pour les variables et contraintes considérées du circuit combustible. La possibilité d'augmenter la puissance spécifique pour des volumes de cœur jusqu'à quelques mètres cubes semble envisageable. Les grands volumes de sel sont désavantagés et semblent avoir plus de difficultés à transmettre la chaleur au circuit intermédiaire. Le design est cependant un paramètre important de l'optimisation, un grand soin devra donc être consacré à son développement.

La connaissance des paramètres physico-chimiques initiaux et en fonctionnement est essentielle pour mieux modéliser les échanges de chaleur, ainsi que les dynamiques d'écoulement pour les optimisations futures du circuit combustible ainsi que les études de transitoires en fonctionnement. Des mesures avec des compositions proches de sel seront ici aussi nécessaires.

5

Convertisseur de plutonium à géométrie modifiée pour la suppression des neutrons thermiques

Ce chapitre se propose d'étudier l'impact du choix des matériaux de structure pour limiter les captures sur les actinides et ainsi améliorer le bilan d'incinération. Une description des géométries est tout d'abord faite, avant de caractériser les différentes configurations au démarrage avec le volume critique et la proportion de fission initiale. Un focus est ensuite effectué sur les configurations extrêmes lors de l'étude de l'évolution temporelle des matières. Les vecteurs isotopiques, la production des transuraniens ainsi que l'évolution de la teneur en actinides dans le sel y sont caractérisés. L'estimation de l'efficacité selon les différentes définitions établies est présentée au cours du temps. Les contre-réactions de température, qui sont essentielles à l'autostabilisation du réacteur en fonctionnement nominal, sont réévaluées en regard du changement de la géométrie. Enfin, les différentes configurations sont comparées selon leur production de colis vitrifiés et de la radiotoxicité associée.

Sommaire

5.1	Origine de l'étude	169
5.2	Géométries développées	169
5.3	Caractéristiques neutroniques au démarrage	170
	5.3.1 Criticité au démarrage	170
	5.3.2 Proportion de fissions initiale	172
5.4	Évolution temporelle	174
	5.4.1 Paramètres de simulation	174

5.4.2	Évolution molaire des actinides	175
5.4.3	Teneur en transuraniens	178
5.4.4	Isotopie des actinides	180
5.4.5	Volume de sel combustible	183
5.4.6	Production de chlore et de soufre	184
5.5	Efficacité de fission	188
5.5.1	Mobilisation de plutonium	188
5.5.2	Évolution de la proportion de fissions	189
5.5.3	Consommation des transuraniens	190
5.6	Contre-réactions de température	194
5.6.1	Contre-réaction Doppler	194
5.6.2	Effet de densité	195
5.7	Production de colis CSD-V et radiotoxicité	197
5.7.1	Production de CSD-V	197
5.7.2	Radiotoxicité associée	198
5.8	Conclusions	200

5.1 Origine de l'étude

Pour être en accord avec l'objectif de haute consommation d'actinides tout en évitant la production d'actinides de plus en plus lourds (section 3.1), la population neutronique thermique et épithermique disponible doit être aussi faible que possible pour que les taux de réaction de capture soient réduits. Le choix du solvant et du réflecteur contribue de prime abord à obtenir un tel spectre rapide (sections 3.2.3 et 3.4.1.b). Le sel combustible pourrait contenir un élément neutrophage dans les énergies basses (≈ 10 keV) pour retirer de la circulation les neutrons qui risquent d'augmenter la production d'AM (ceci serait d'autant plus efficace que la teneur en plutonium serait faible, car les neutrons auraient le temps de perdre de l'énergie et d'être capturés avant de rencontrer des actinides). Cependant, les éléments qui ont des sections efficaces de capture élevées (bore, hafnium [129]) doivent être présents en quantité importante pour avoir un impact significatif (quelques pourcents molaires). Se posent alors les questions de la composition du sel combustible, qui sera fortement modifiée, de corrosion, de solubilité des différents éléments et propriétés physico-chimiques par exemple. L'orientation choisie ici est de capturer les neutrons hors de la zone critique en les empêchant de revenir dans le cœur pour y être capturés. Ainsi, les hypothèses sur le sel combustible (composition, diagramme ternaire, masse volumique) sont identiques dans cette étude.

5.2 Géométries développées

Afin d'éliminer les neutrons qui ont perdu suffisamment d'énergie pour facilement être capturés par le sel combustible, le choix est fait de modifier les matériaux de structure. Les sections efficaces macroscopiques de diffusion et capture sont très importantes à basses énergies (figure 1.10), ce qui implique d'utiliser des matériaux légers (nombre moyen de nucléons faible, comme présenté en section 1.2.2) pour ralentir les neutrons, qui sont alors plus facilement capturés dans les structures avant qu'ils ne retournent dans la zone critique. Le chapitre 4 a montré que le graphite et les céramiques ralentissent et capturent les neutrons. On considèrera deux versions du réflecteur modérateur radial : graphite et MgO, pour étudier une alternative au graphite qui est difficile à retraiter une fois irradié. Seule la version graphite est présentée dans ce chapitre. Une comparaison avec l'alternative en MgO est disponible en annexe D, qui montre le comportement très similaire de ces deux matériaux. La composition de ces deux matériaux est indiquée tableau 4.3.

Trois configurations sont proposées et présentées sur les figures 5.1, 5.2 et 5.3. La figure 5.1 présente une configuration où le réflecteur est supprimé au profit d'une protection seule en B_4C pour absorber les neutrons de faibles énergies. La figure 5.2 illustre une configuration où le réflecteur est en graphite ou MgO, entouré d'une paroi de B_4C . Lorsque des neutrons s'échappent radialement, ils sont modérés par le graphite (ou le MgO) puis absorbés par le B_4C , ce qui empêche des retours radiaux de neutrons thermalisés vers le cœur du réacteur. Enfin, la configuration de la figure 5.3 est identique à la configuration précédente, excepté le matériau d'enveloppe cette fois en B_4C , afin d'empêcher tout retour de neutrons peu énergétiques, qui étaient réfléchis par l'enveloppe

acier. Il est à noter que ces géométries ne sont pas optimisées ni réalistes (par exemple, 1 m de B_4C), mais elles donnent matière à évaluer l'efficacité possible de ce type de géométries.

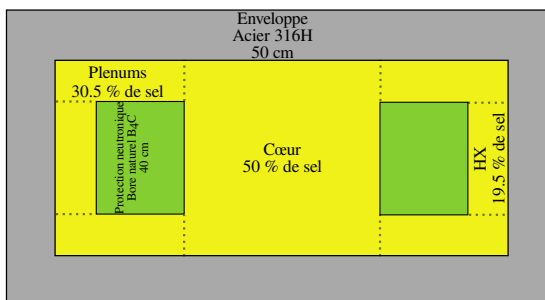


FIGURE 5.1 – Vue schématique de la géométrie de la configuration B [B_4C] : protection de 40 cm de B_4C + enveloppe de 50 cm d'acier 316H

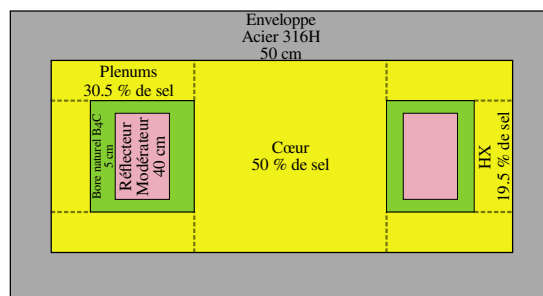


FIGURE 5.2 – Vue schématique de la géométrie de la configuration MB [Modérateur + B_4C] : réflecteur radial modérateur (graphite ou MgO) de 40 cm, entouré de 5 cm de B_4C + enveloppe de 50 cm d'acier 316H

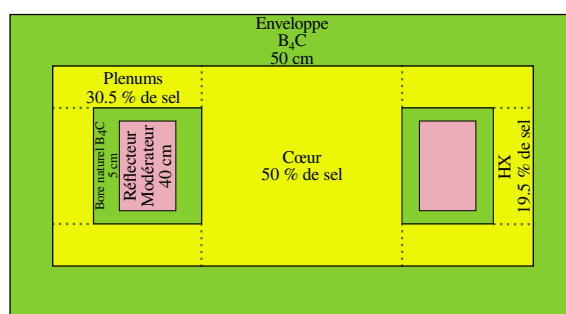


FIGURE 5.3 – Vue schématique de la géométrie de la configuration MBB [Modérateur + protection et enveloppe B_4C] : réflecteur radial modérateur (graphite ou MgO) de 40 cm, entouré de 5 cm de B_4C + enveloppe de 50 cm de B_4C

5.3 Caractéristiques neutroniques au démarrage

À l'instar de l'étude réalisée dans le chapitre 4 avec les réflecteurs aciers, on souhaite d'abord caractériser les différentes configurations en termes de volume, masse critique et proportion de fission. Dans cette partie, les configurations MB et MBB utiliseront du graphite et seront donc appelées GB et GBB.

5.3.1 Criticité au démarrage

Ces designs ayant été développés pour limiter les captures sur les actinides en capturant le maximum de neutrons de faible énergie dans les réflecteurs, les neutrons circulant dans le sel combustible sont principalement de haute énergie, induisant des sections

efficaces macroscopiques d'absorptions des actinides réduites. Le combustible capturera moins mais fissionnera moins également. Ceci induit un volume critique plus grand pour que la masse critique soit atteinte et permette le démarrage de la réaction en chaîne (figure 5.4). On observe peu de différences entre les cas B (protection B₄C) et GB (réflecteur radial en graphite, entouré de B₄C), quelles que soient la teneur de plutonium et sa qualité, leur volume est augmenté de 100% à 160%. L'ajout d'une enveloppe en B₄C (GBB) implique en revanche un effet encore plus grand avec une augmentation de 180% à 260%. On remarque que les cas à 11.5% de plutonium sont plus impactés, potentiellement à cause de leur spectre neutronique quasi rapide et du volume du cœur suffisamment réduit pour que les neutrons voient les réflecteurs et y soient capturés.

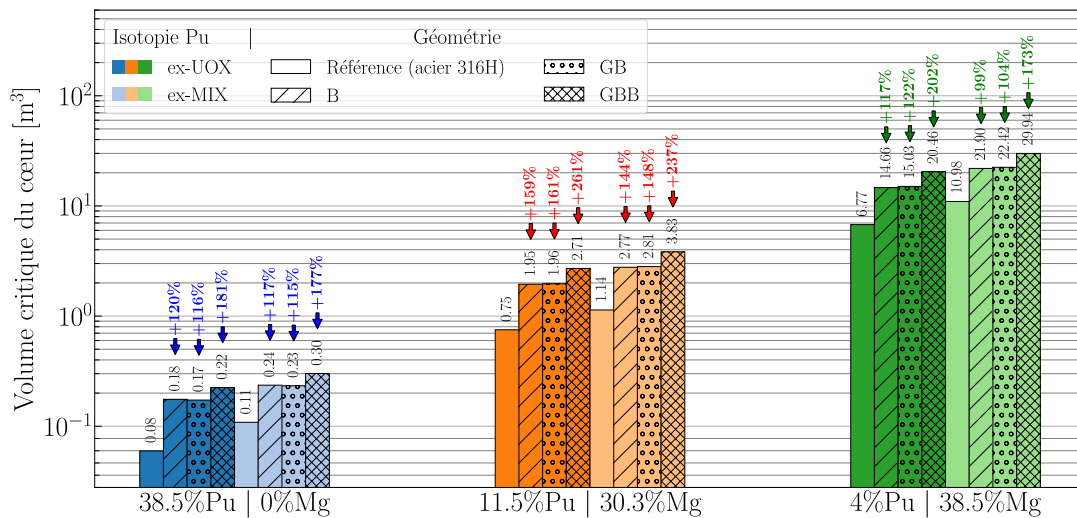


FIGURE 5.4 – Volume critique des dix-huit configurations modifiées (trois teneurs, trois géométries et deux vecteurs de plutonium) avec comparaison aux cas de référence en acier 316H [JEFF 3.3]

Le tableau 5.1 présente les masses critiques de plutonium nécessaires au démarrage résultant de l'estimation du volume critique de démarrage. Les densités sont identiques entre les différentes géométries, ce qui implique que la différence de masse critique est la même que pour le volume critique. Le démarrage de ces configurations nécessite de grandes quantités de plutonium. Ceci est attendu puisqu' une partie des neutrons est perdue dans les réflecteurs et ne participe pas au maintien de la réaction en chaîne. La figure 5.5 illustre la perte d'une partie de la population neutronique pour les configurations 38.5%Pu_{UOX} à géométries modifiées. L'ajout de graphite et de B₄C réduit nettement les populations thermique et épithermique au sein du sel combustible.

TABLEAU 5.1 – Masse critique de plutonium pour le démarrage [kg]

Teneur	Vecteur	m _{Référence}	m _B	Δm _B [%]	m _{GB}	Δm _{GB} [%]	m _{GBB}	Δm _{GBB} [%]
38.5%	UOX	255	561	120	552	116	717	181
	MIX	347	754	117	745	115	961	177

Suite à la page suivante

TABLEAU 5.1 – Masse critique de plutonium pour le démarrage [kg] (Suite)

Teneur	Vecteur	$m_{\text{Référence}}$	m_{B}	Δm_{B} [%]	m_{GB}	Δm_{GB} [%]	m_{GBB}	Δm_{GBB} [%]
11.5%	UOX	847	2196	159	2214	161	3056	261
	MIX	1283	3133	144	3178	148	4326	237
4%	UOX	2794	6053	117	6207	122	8448	202
	MIX	4537	9053	100	9267	104	12 378	173

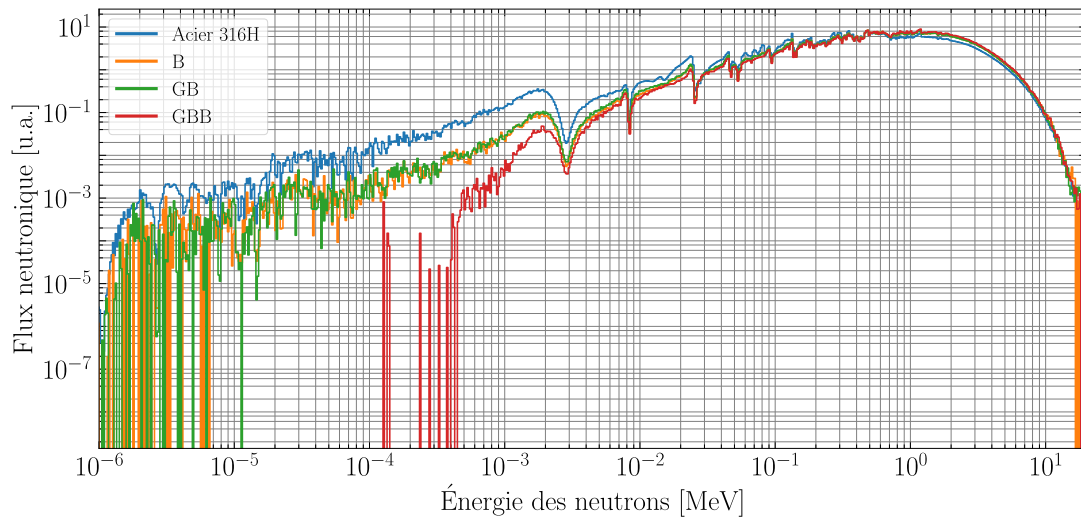


FIGURE 5.5 – Spectres neutroniques initiaux des différentes géométries modifiées pour les cas 38.5%Pu_{UOX} avec comparaison au cas de référence en acier 316H

5.3.2 Proportion de fissions initiale

Les proportions de fissions de ces configurations sont comparées dans la figure 5.6. On constate que le plutonium fissionne un peu mieux dans toutes les configurations à géométrie modifiée. Le plutonium fissionne mieux dans les configurations GBB que dans les configurations B et GB, qui sont équivalentes, tout comme pour le volume critique. Au démarrage, ces géométries modifiées permettent bien une baisse du taux de capture et donc, potentiellement, de la production d'isotopes lourds.

Le détail des capacités de fission des isotopes de plutonium est donné en figure 5.7. Les disparités sont conséquentes sur l'effet des géométries modifiées selon les isotopes. En effet, les isotopes qui en bénéficient le plus sont les isotopes non fissiles (²⁴⁰Pu et ²⁴²Pu) avec une amélioration globale d'environ 6 à 13% relatif.

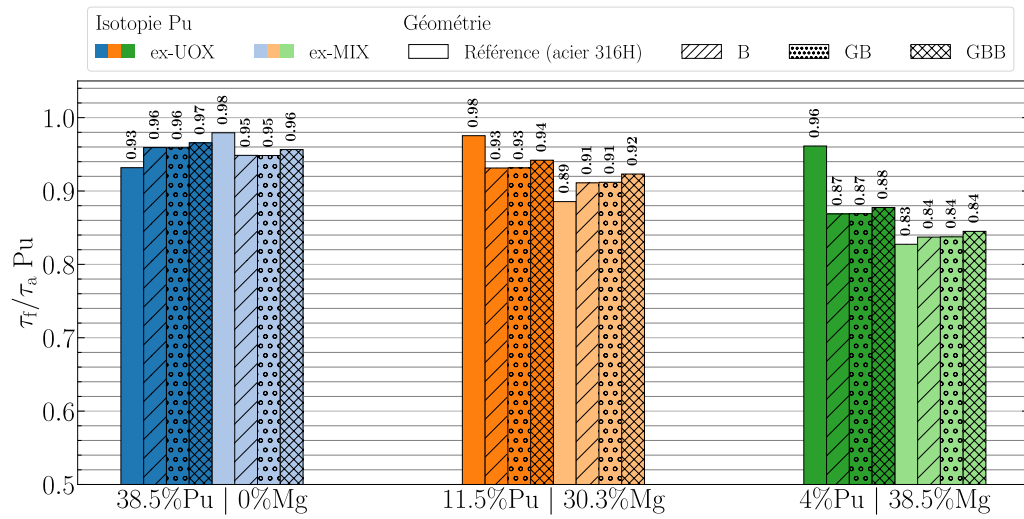


FIGURE 5.6 – Proportions de fissions du plutonium au démarrage pour les cas 38.5%, 11.5% et 4% Pu selon les trois géométries présentées en considérant les vecteurs ex-UOX et ex-MIX avec comparaison aux cas de référence

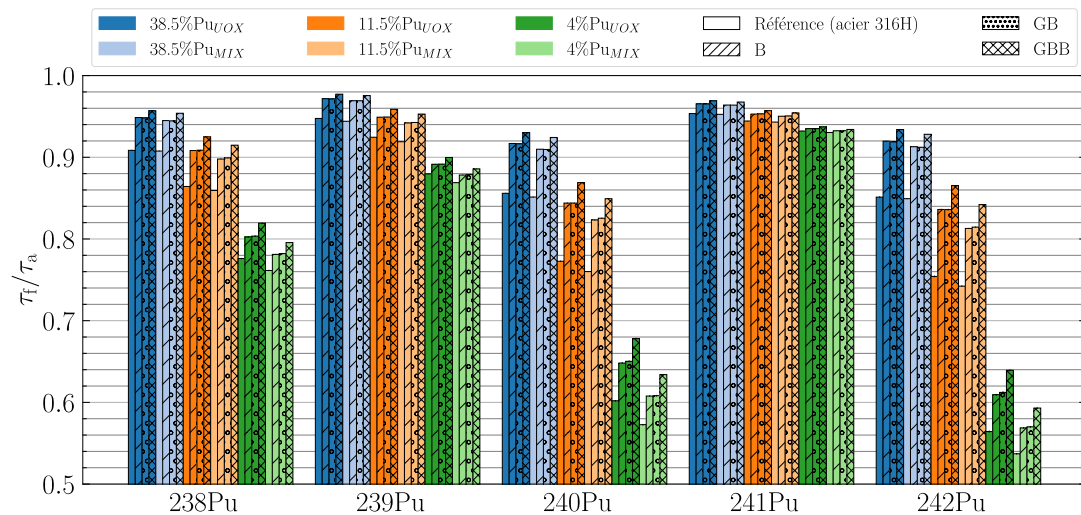


FIGURE 5.7 – Proportions de fissions des isotopes du plutonium au démarrage pour les cas 38.5%, 11.5% et 4% Pu selon les trois géométries présentées en considérant les vecteurs ex-UOX et ex-MIX avec comparaison aux cas de référence

5.4 Évolution temporelle

5.4.1 Paramètres de simulation

Le tableau 5.2 présente quelques caractéristiques des configurations choisies pour l'étude. On s'intéresse ici aux cas extrêmes, à savoir forte et faible teneurs initiales en plutonium, et vecteurs isotopiques de plutonium peu et très dégradés.

TABLEAU 5.2 – Volumes en cœur et puissance thermique des neuf configurations étudiées en évolution

Teneur initiale	Vecteur	Géométrie	Volume du cœur [m ³]	Rayon du réacteur [cm]	Puissance thermique [MW]
38.5%	ex-UOX	B	0.175	38.2	26.3
		GB	0.173	38.0	25.9
		GBB	0.225	41.5	33.6
	ex-MIX	B	0.236	42.2	35.4
		GB	0.233	42.0	35.0
		GBB	0.301	45.7	45.1
4%	ex-UOX	B	14.7	167	2200
		GB	15.0	169	2260
		GBB	20.5	187	3070
	ex-MIX	B	21.9	191	3280
		GB	22.4	193	3360
		GBB	29.9	212	4490

Quelques modifications ont été apportées pour la réalisation des simulations avec le code REM. Le temps de retraitement du sel combustible total est diminué à 11.9 ans, au lieu de 18.3 ans, pour limiter l'augmentation du volume ionique (section 5.4.5). Tous les éléments plus légers que le neptunium (hors solvant) sont extraits du sel solvant. Le retraitement du B₄C est étendu à tous les composants qui en contiennent. Les paramètres de simulation sont listés dans le tableau 5.3.

TABLEAU 5.3 – Paramètres de configuration de REM pour les études avec les géométries modifiées

Type	Matériau	Éléments	Quantification
Extraction	Sel combustible	Tous les Z sauf Na, Cl, Mg, TRU	Extraction en 11.9 ans
	Sel combustible	Éléments gazeux et insolubles	Extraction en 30 s
	Protection/ Enveloppe	Tous les Z sauf B et C	Extraction en 3 ans
Alimentation	Sel combustible	TRU	Variable pour maintenir la réactivité
	Protection/ Enveloppe	Bore naturel	Variable pour conserver 4 bores pour 1 carbone
Puissance spécifique	Sel combustible en zone critique		150 MW _{th} /m ³

5.4.2 Évolution molaire des actinides

Afin de caractériser l'évolution de la composition des actinides, les figures 5.8 et 5.9 présentent la répartition molaire des actinides dans le sel combustible pour les différentes configurations à 38.5% de plutonium initial. L'état stationnaire n'est atteint pour aucune des géométries étudiées (référence et géométries modifiées). Aucune différence n'est visible pour le plutonium et l'américium entre les différentes géométries. La présence de neptunium semble très légèrement plus importante pour la configuration GBB (graphite/B₄C + enveloppe en B₄C) et est globalement plus grande pour les trois géométries modifiées que pour le cas de référence.

C'est sur le curium que la différence se fait. En effet, le curium est moins présent en proportion dans les trois configurations modifiées, d'un facteur deux environ à 100 ans, et moindre encore dans la configuration GBB, probablement à cause de captures moins nombreuses. L'uranium est moins présent en proportion dans les géométries GB et GBB. Plusieurs explications sont possibles pour ce comportement : le ²³⁸Pu peut mieux fissionner dans les géométries où l'énergie des neutrons est plus élevée et donc disparaître avant d'avoir le temps de décroître ; d'autres éléments sont plus présents au sein du vecteur actinides (américium par exemple) et font donc diminuer la part de l'uranium. Un bilan de production réalisé en section 5.5.3 permettra d'approfondir les différences observées ici.

Les cas à 4% initiaux de plutonium sont illustrés par les figures 5.10 et 5.11. Contrairement aux cas à 38.5% de plutonium initial, l'état stationnaire est atteint vers 60 ans de fonctionnement. La production de neptunium est très faible et n'est pas visible ici, et celle de curium rejoint celle d'américium très rapidement pour les quatre géométries. Peu de différences dans la répartition des éléments au sein des actinides sont observables. L'uranium fait exception, et comme pour les cas à 38.5%, les configurations B₄C + graphite semblent limiter sa présence dans le sel combustible. La section 5.5.3 détaillera le bilan massique de production des actinides majoritaires.

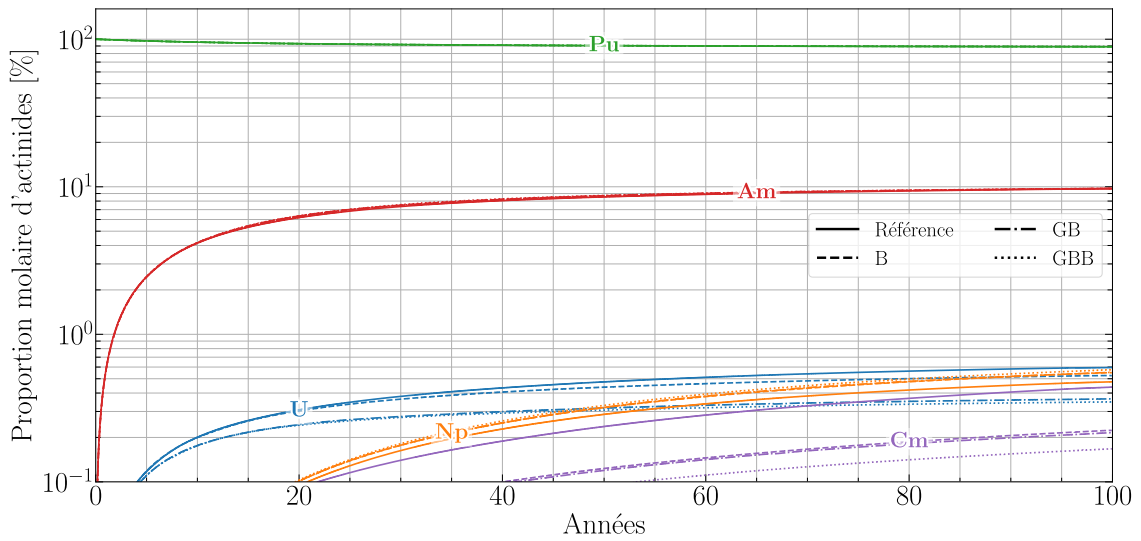


FIGURE 5.8 – Répartition molaire des actinides par éléments pour les configurations à 38.5% Pu_{UOX} avec comparaison au cas de référence

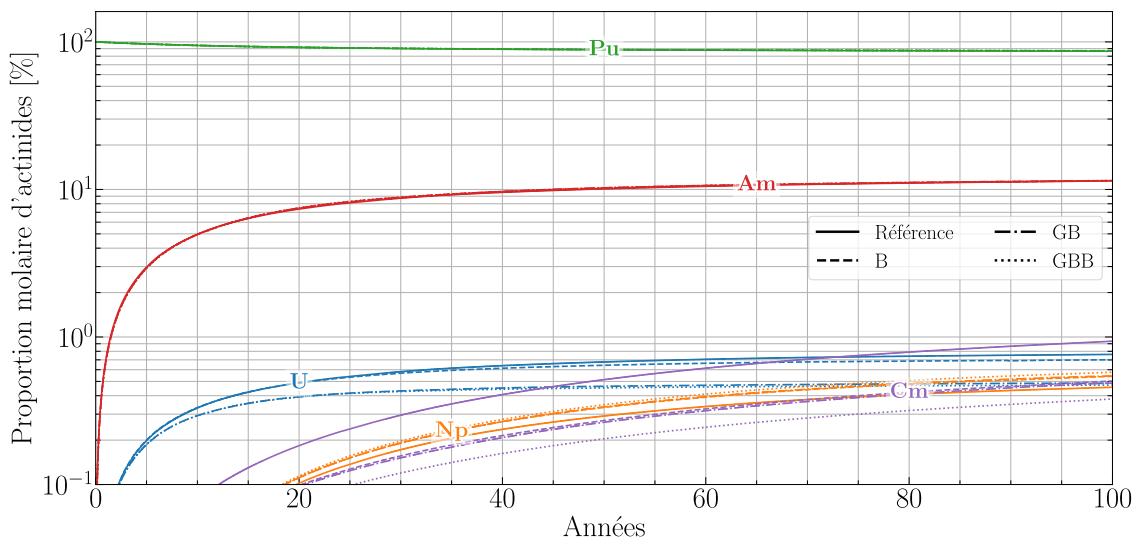


FIGURE 5.9 – Répartition molaire des actinides par éléments pour les configurations à 38.5% Pu_{MIX} avec comparaison au cas de référence

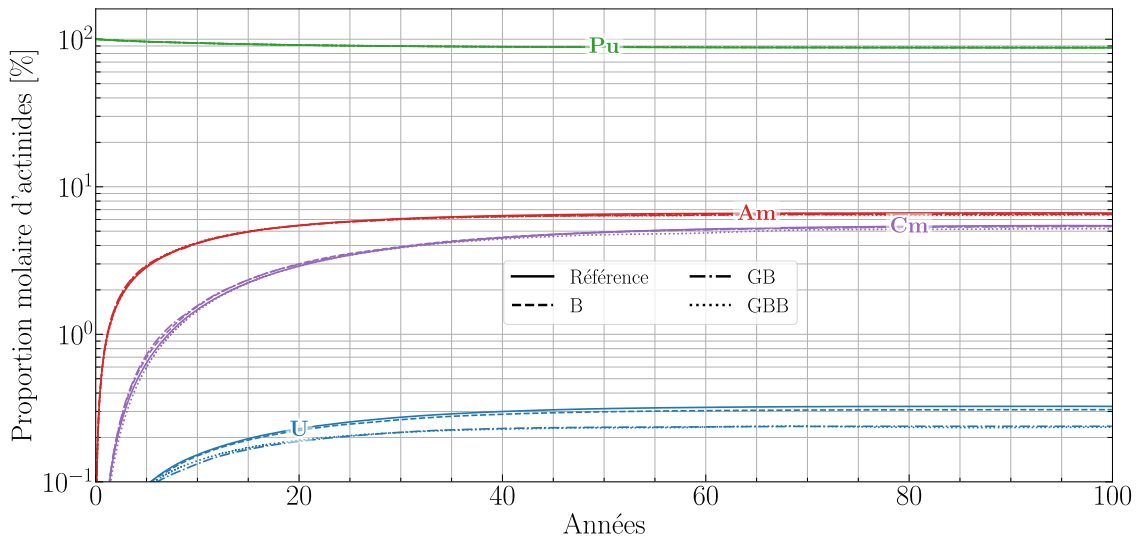


FIGURE 5.10 – Répartition molaire des actinides par éléments pour les configurations à 4% Pu_{UOX} avec comparaison au cas de référence

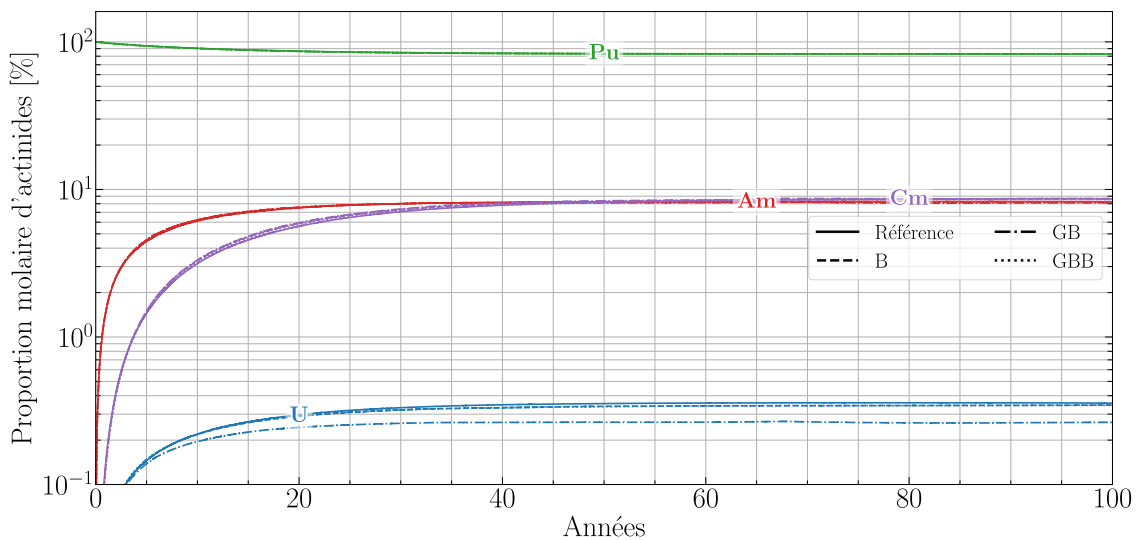


FIGURE 5.11 – Répartition molaire des actinides par éléments pour les configurations à 4% Pu_{MIX} avec comparaison au cas de référence

5.4.3 Teneur en transuraniens

Le contrôle de la réactivité demandé à REM implique que la teneur en actinides augmente avec le temps de manière à compenser l'apparition des produits de fission, fortement neutrophages. L'augmentation de cette teneur dépend du taux de capture des éléments défavorables et donc de la rapidité des neutrons. Le tableau 5.4 confirme que la variation de la teneur en actinides est d'autant plus élevée que la teneur de plutonium initiale est faible et que le vecteur d'alimentation est dégradé. Cette constatation avait déjà été réalisée en section 4.4.2.

Par ailleurs, pour les compositions à 4% initial de plutonium, l'évolution de la teneur en actinides s'atténue avec l'utilisation de graphite et de B₄C. Les neutrons perdent moins d'énergie, car ils sont capturés dans les matériaux de structure. Pour les cas à 38.5%, l'évolution de la teneur en actinides est plus réduite dans la configuration B que les autres. On peut supposer que les couches successives de graphite et de B₄C ralentissent les neutrons en proches parois sans pour autant tous les capturer. Avec une énergie légèrement plus basse, ils sont mieux absorbés par les éléments neutrophages.

TABLEAU 5.4 – Évolution temporelle de la teneur molaire en actinides pour deux teneurs initiales et deux vecteurs extrêmes de plutonium avec l'évolution relative entre le démarrage et à 50 ans

Teneur initiale [%]	Isotopie	B			GB			GBB		
		20 ans	50 ans	Δx [%]	20 ans	50 ans	Δx [%]	20 ans	50 ans	Δx [%]
38.5	UOX	38.3	38.7	0.4	38.8	39.7	3.2	38.5	39.2	1.8
	MIX	39.1	39.9	3.5	39.7	40.9	6.2	39.3	40.4	4.9
4	UOX	6.5	6.9	72.2	6.5	6.9	72.8	6.3	6.7	67.3
	MIX	7.1	7.4	85.7	7.1	7.3	83.5	7.0	7.2	81.2

Les figures 5.12 et 5.13 montrent l'évolution du spectre neutronique dans le sel combustible en cœur pour les cas 38.5% et 4% GBI. Les différences ne sont pas visibles pour le 38.5%GBI, mais le spectre se durcit nettement sur le cas 4%GBI entre le démarrage et la 50^e année de fonctionnement à cause de l'augmentation de la teneur en actinides dans le sel combustible.

La figure 5.14 présente la répartition du taux de capture entre les produits de fission et les actinides mineurs. On constate que l'utilisation des géométries modifiées tend à diminuer la part des captures sur les actinides mineurs. Le cas GB semble au contraire favoriser les captures sur les actinides mineurs. L'augmentation de la teneur en plutonium participe donc principalement à compenser l'apparition des actinides mineurs.

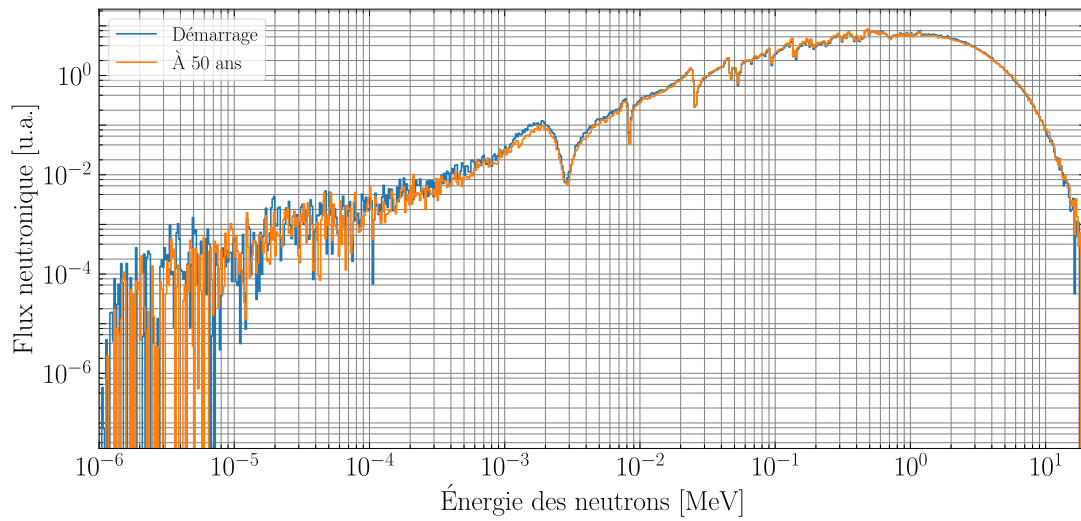


FIGURE 5.12 – Évolution du spectre neutronique du cas 38.5% GBI entre le démarrage et le fonctionnement à 50 ans

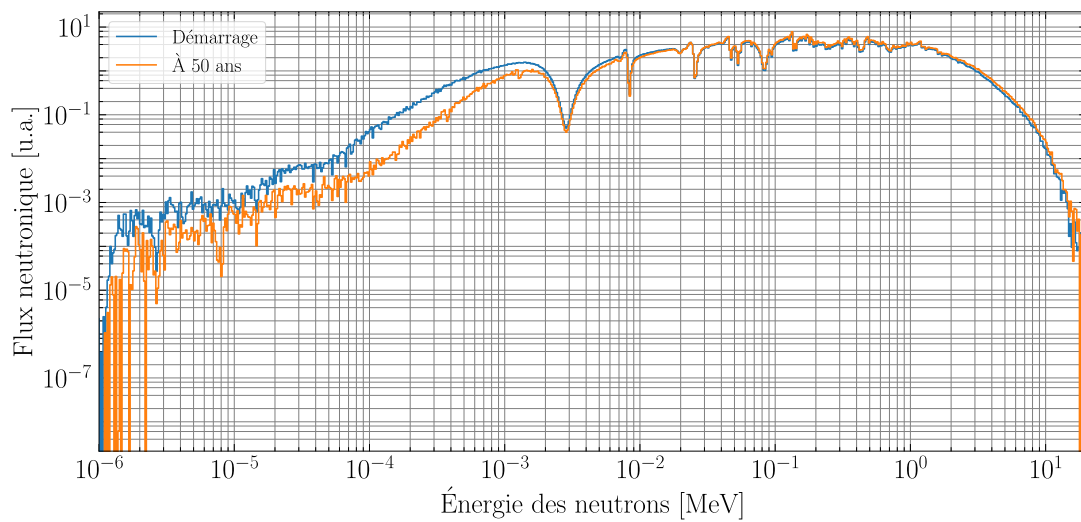


FIGURE 5.13 – Évolution du spectre neutronique du cas 4% GBI entre le démarrage et le fonctionnement à 50 ans

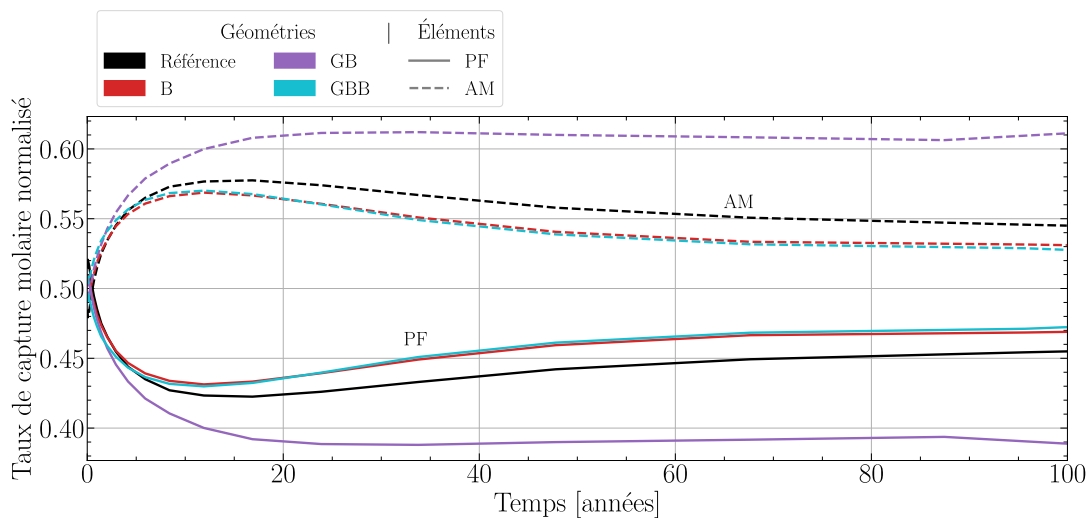


FIGURE 5.14 – Évolution de la répartition du taux de capture molaire entre les PF et les AM pour les configurations 4% initiaux de plutonium alimentées en plutonium ex-MIX

5.4.4 Isotopie des actinides

Les figures 5.15, 5.16 et 5.17 présentent l'évolution isotopique respectivement du plutonium, de l'américium et du curium au cours du temps des configurations 38.5% alimentées en plutonium ex-MIX. À l'instar de ce qui a été remarqué précédemment en section 5.4.2, les différences sont peu observables entre les quatre géométries, excepté sur l'isotopie du plutonium qui est moins dégradée par les trois géométries modifiées. On note que la géométrie GBB limite davantage la dégradation du vecteur de plutonium et l'apparition d'isotopes lourds d'américium et de curium.

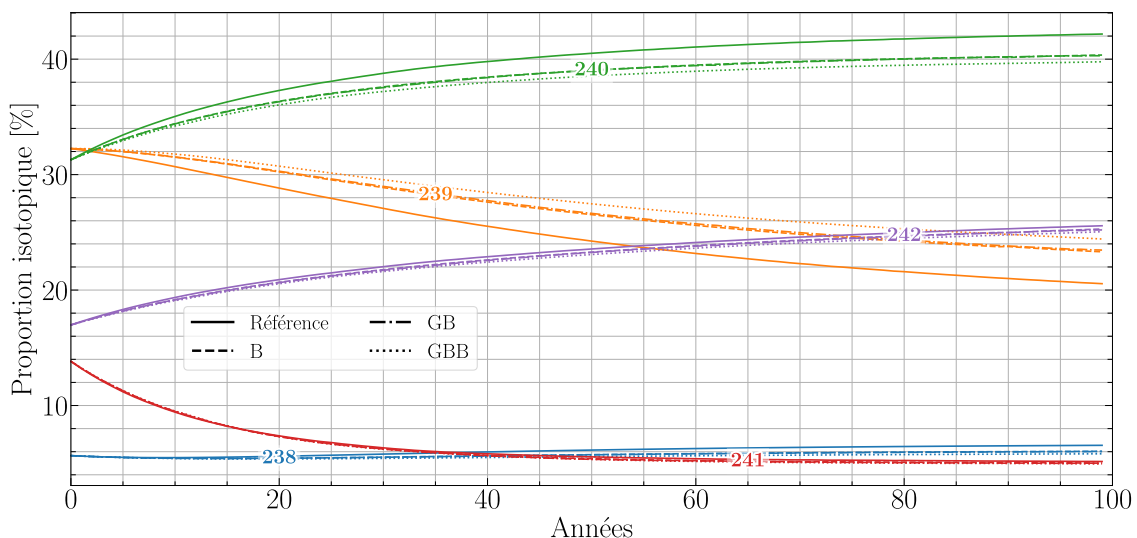


FIGURE 5.15 – Évolution de l'isotopie du plutonium pour les simulations 38.5%Pu_{MIX} avec comparaison au cas de référence

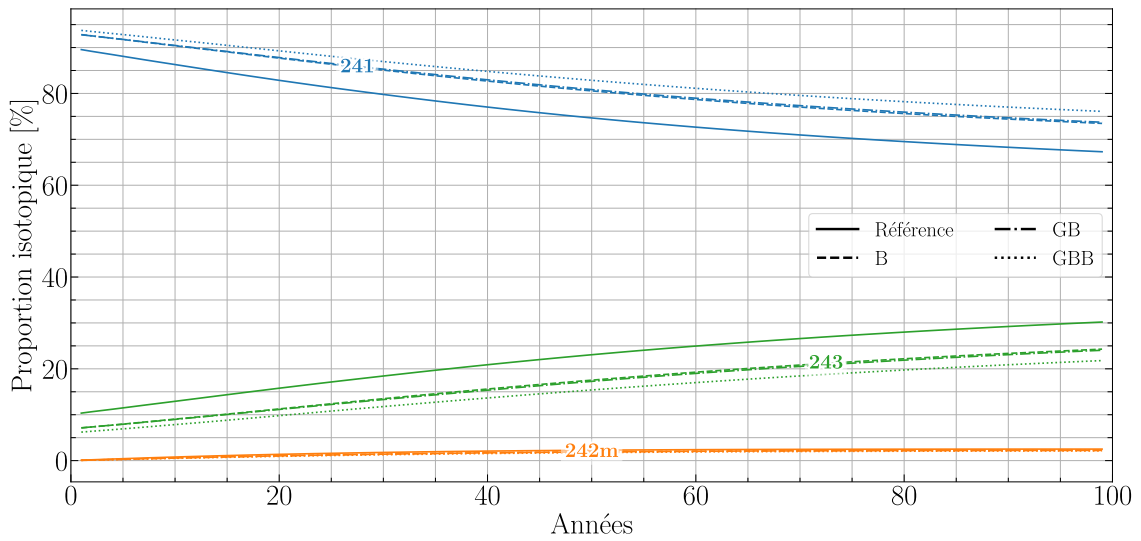


FIGURE 5.16 – Évolution de l'isotope de l'américium pour les simulations 38.5%Pu_{MIX} avec comparaison au cas de référence

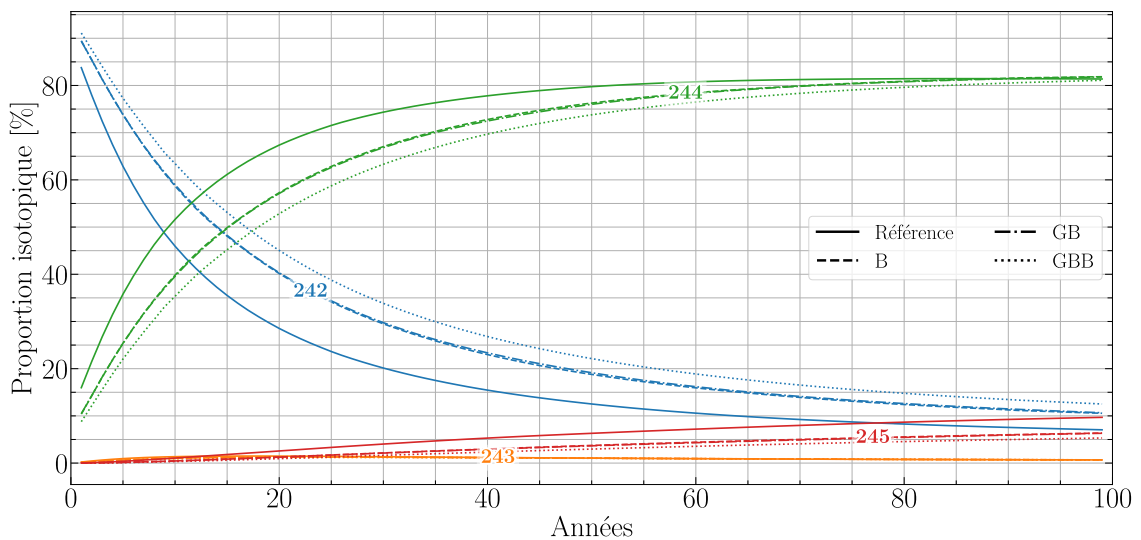


FIGURE 5.17 – Évolution de l'isotope du curium pour les simulations 38.5%Pu_{MIX} avec comparaison au cas de référence

Les figures 5.18, 5.19 et 5.20 s'intéressent aux vecteurs de plutonium, américium et curium des trois configurations 4%Pu_{MIX} avec comparaison au cas de référence. Ici, aucune différence nette entre les quatre géométries n'est visible. La répartition isotopique n'est pas influencée par la composition des matériaux de structure.

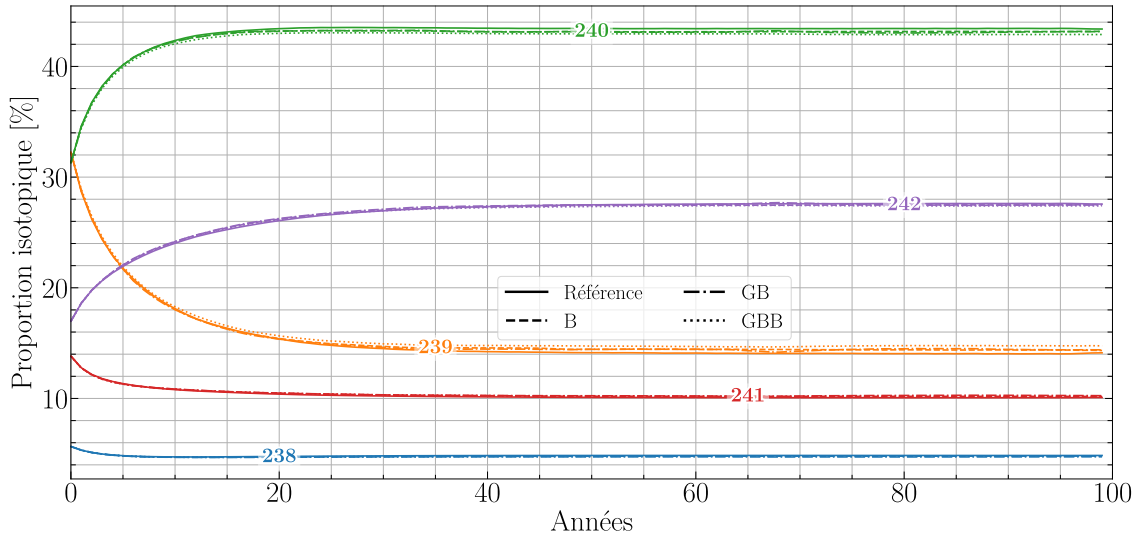


FIGURE 5.18 – Évolution de l'isotope du plutonium pour les simulations 4%Pu_{MIX} avec comparaison au cas de référence

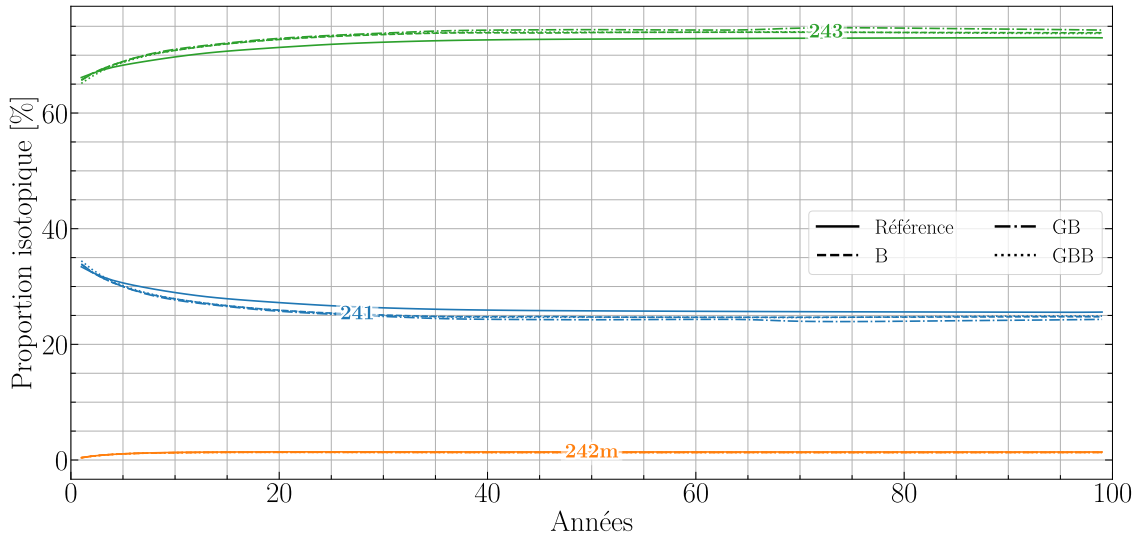


FIGURE 5.19 – Évolution de l'isotope de l'américium pour les simulations 4%Pu_{MIX} avec comparaison au cas de référence

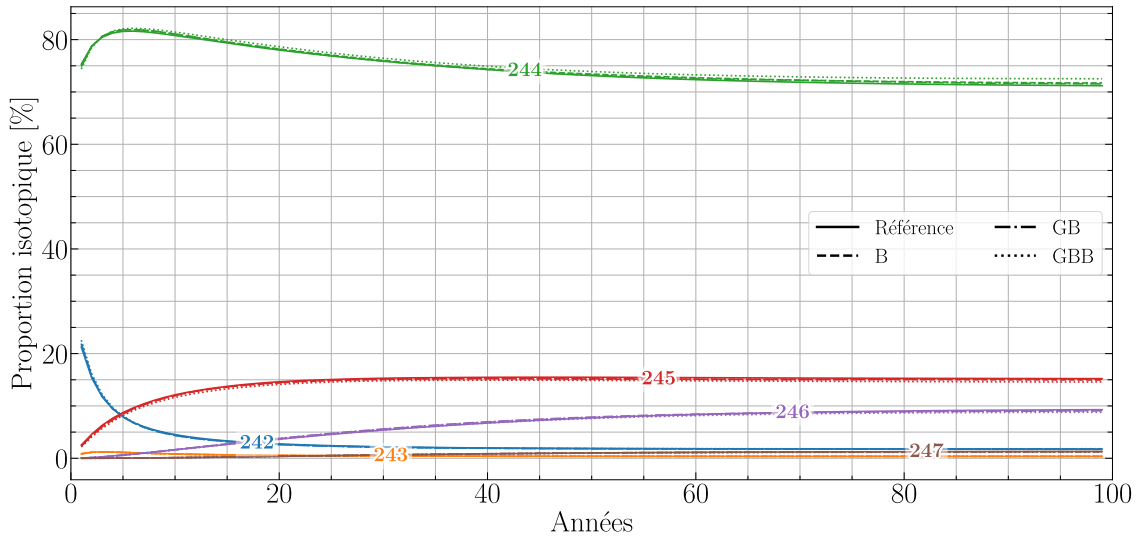


FIGURE 5.20 – Évolution de l'isotopie du curium pour les simulations 4%Pu_{MIX} avec comparaison au cas de référence

5.4.5 Volume de sel combustible

La figure 5.21 montre que le retraitement du sel combustible en 11.9 ans est adapté. Les cas à 38.5% voient une évolution relative du volume comprise entre 1.1% et 1.7%, ceux à 4% entre 0.9% et 0.6%. Il semble néanmoins que la vitesse d'extraction soit un peu élevée pour les cas à 4% puisque l'évolution du volume ionique diminue franchement après avoir passé un maximum en milieu de simulation, et ne se stabilise pas.

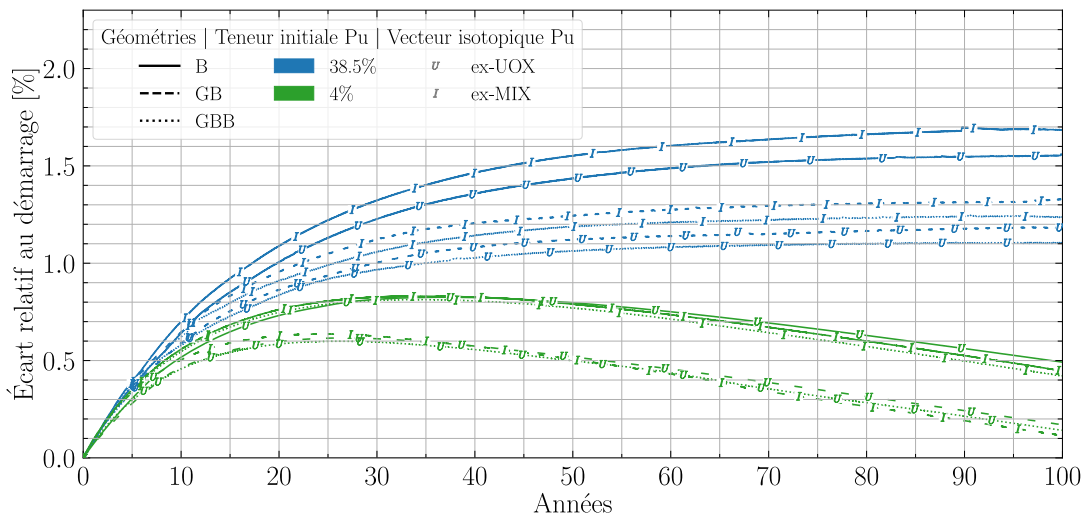


FIGURE 5.21 – Évolution relative du volume ionique dans les neuf cas étudiés ici selon la géométrie, la teneur initiale de plutonium et le vecteur isotopique

5.4.6 Production de chlore et de soufre

5.4.6.a Chlore

On regarde ici la production de ^{36}Cl , radioisotope très volatile hors du sel combustible qui sera à gérer au niveau des déchets et non dans le réacteur, en regard de la production dans le cas de référence en acier. Sa production est diminuée pour les trois nouvelles géométries et, sans surprise, plus faible pour les cas GBB que B (figures 5.22 et 5.23). Les contributions à la production de ^{36}Cl sont montrées en figure 5.24. La production de ce radioélément se faisant principalement par capture (n,γ) sur le ^{35}Cl résiduel, une plus haute énergie des neutrons limite de fait les interactions neutroniques. On observe un renversement des contributions de production du ^{36}Cl pour les géométries modifiées avec une production plus importante à partir du $^{37}\text{Cl}(n,2n)$ que du $^{35}\text{Cl}(n,\gamma)$.

Les différences de production sont minimales pour les cas à forte teneur de plutonium, car le spectre est déjà très rapide, mais beaucoup plus marquées pour les faibles teneurs. On note que la géométrie intermédiaire GB amène une production un peu plus importante de ^{36}Cl . L'utilisation d'un vecteur plutonium ex-MIX conduit à une production un peu plus grande, car les isotopes non fissiles peuvent également diffuser les neutrons et leur faire perdre de l'énergie. De plus, le volume de sel combustible est plus important pour atteindre la criticité, les neutrons peuvent rencontrer plus d'éléments légers avant de rencontrer le réflecteur, et risquent donc davantage la capture sur le ^{35}Cl .

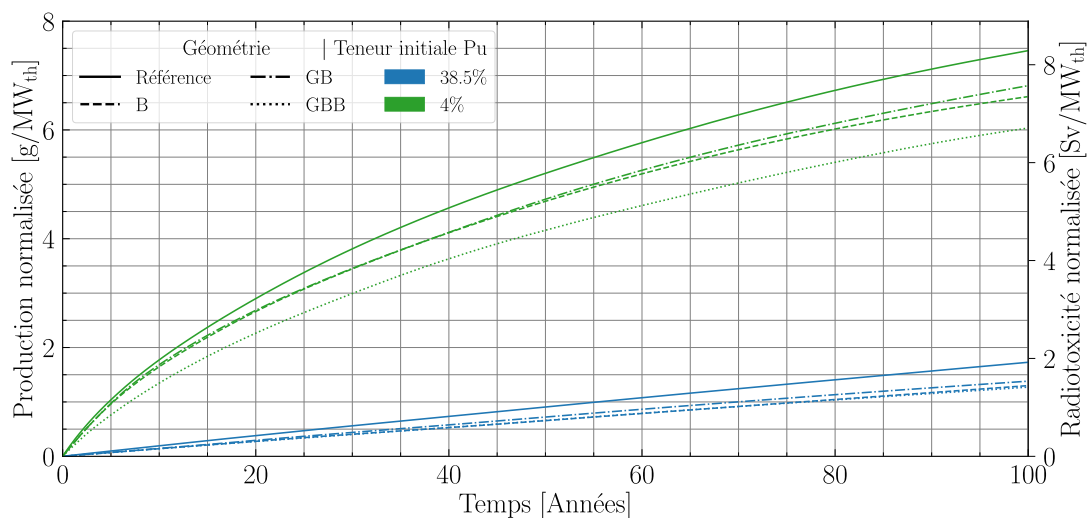


FIGURE 5.22 – Production de ^{36}Cl dans les configurations alimentées en plutonium ex-UOX avec comparaison aux cas de référence en acier 316H

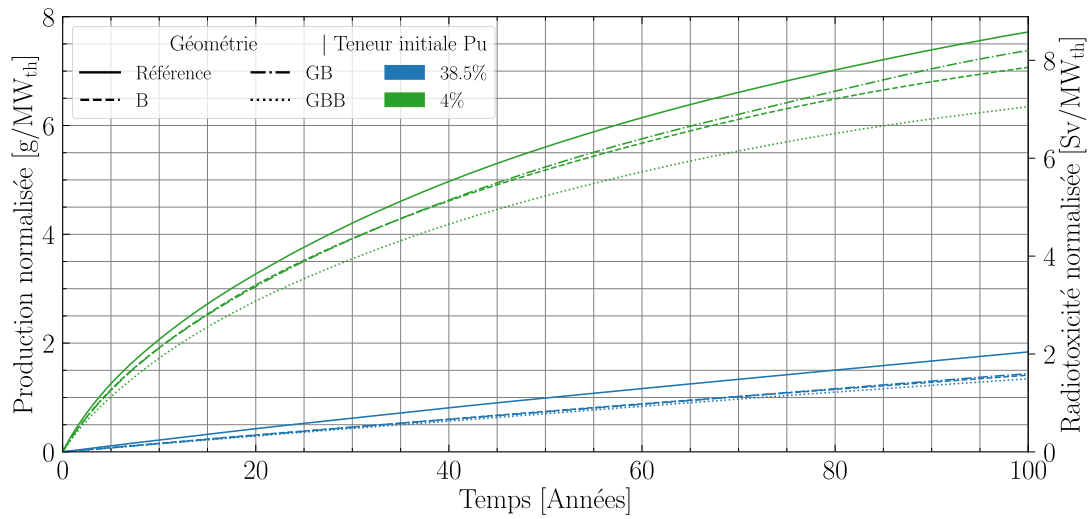


FIGURE 5.23 – Production de ^{36}Cl dans les configurations alimentées en plutonium ex-MIX avec comparaison aux cas de référence en acier 316H

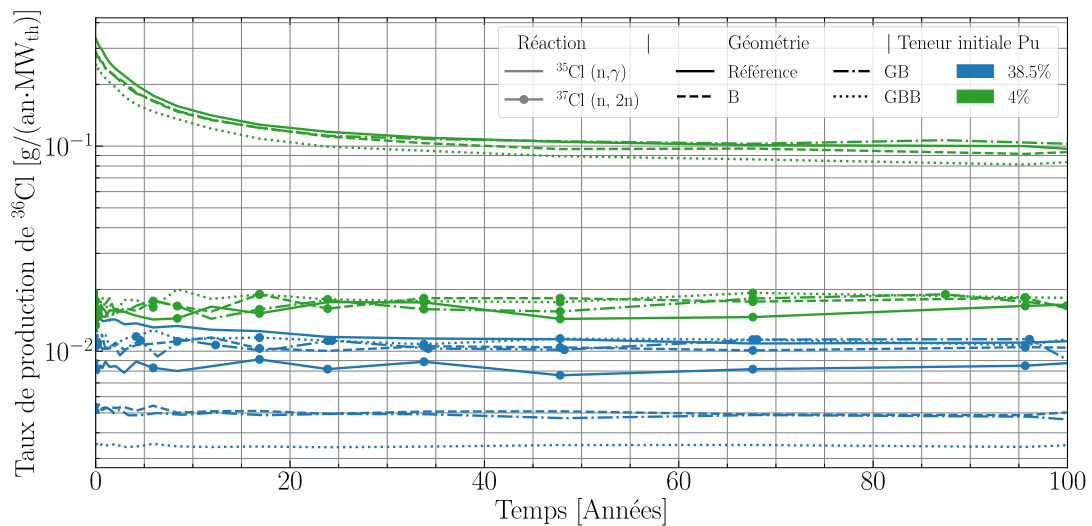


FIGURE 5.24 – Contributions à la production de ^{36}Cl dans les configurations alimentées en plutonium ex-MIX avec comparaison aux cas de référence en acier 316H

5.4.6.b Soufre

A *contrario*, le soufre est plus produit dans les géométries modifiées que dans les cas de référence. La production totale de soufre est présentée en figures 5.25 et 5.26. La production de soufre est réalisée principalement par réaction (n, α) sur le ^{37}Cl les 30 premières années, puis par (n,p) sur le ^{36}Cl pour les configurations à 4%Pu (figure 5.27). La première a lieu à hautes énergies (> MeV), la seconde à basses énergies (eV) et hautes énergies (>1.2 MeV) avec quelques résonances de capture dans la zone épithermique (figure 3.17 de la section 3.4.3). Les géométries modifiées durcissent le spectre et favorisent donc ces réactions.

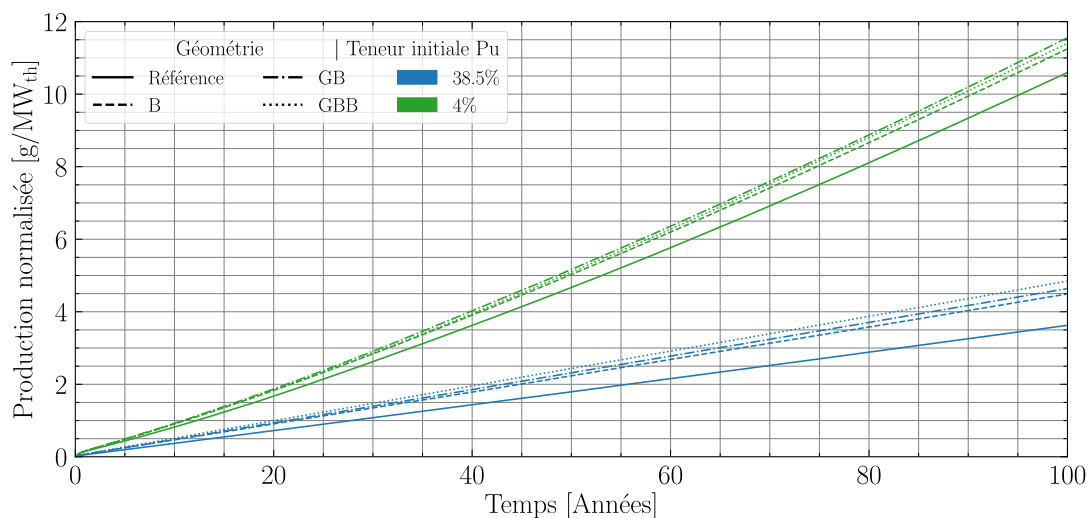


FIGURE 5.25 – Production de soufre dans les configurations alimentées en plutonium ex-UOX avec comparaison aux cas de référence en acier 316H

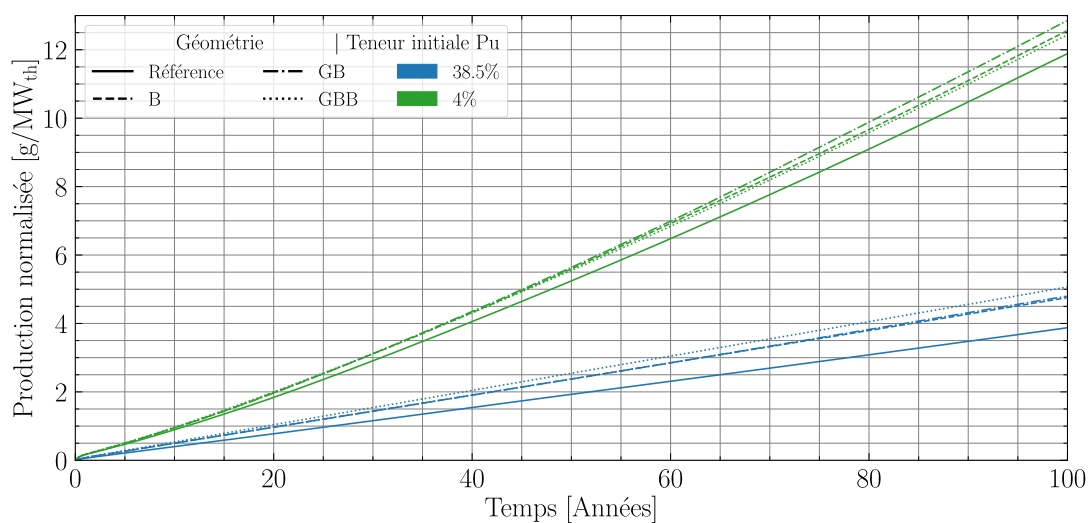


FIGURE 5.26 – Production de soufre dans les configurations alimentées en plutonium ex-MIX avec comparaison aux cas de référence en acier 316H

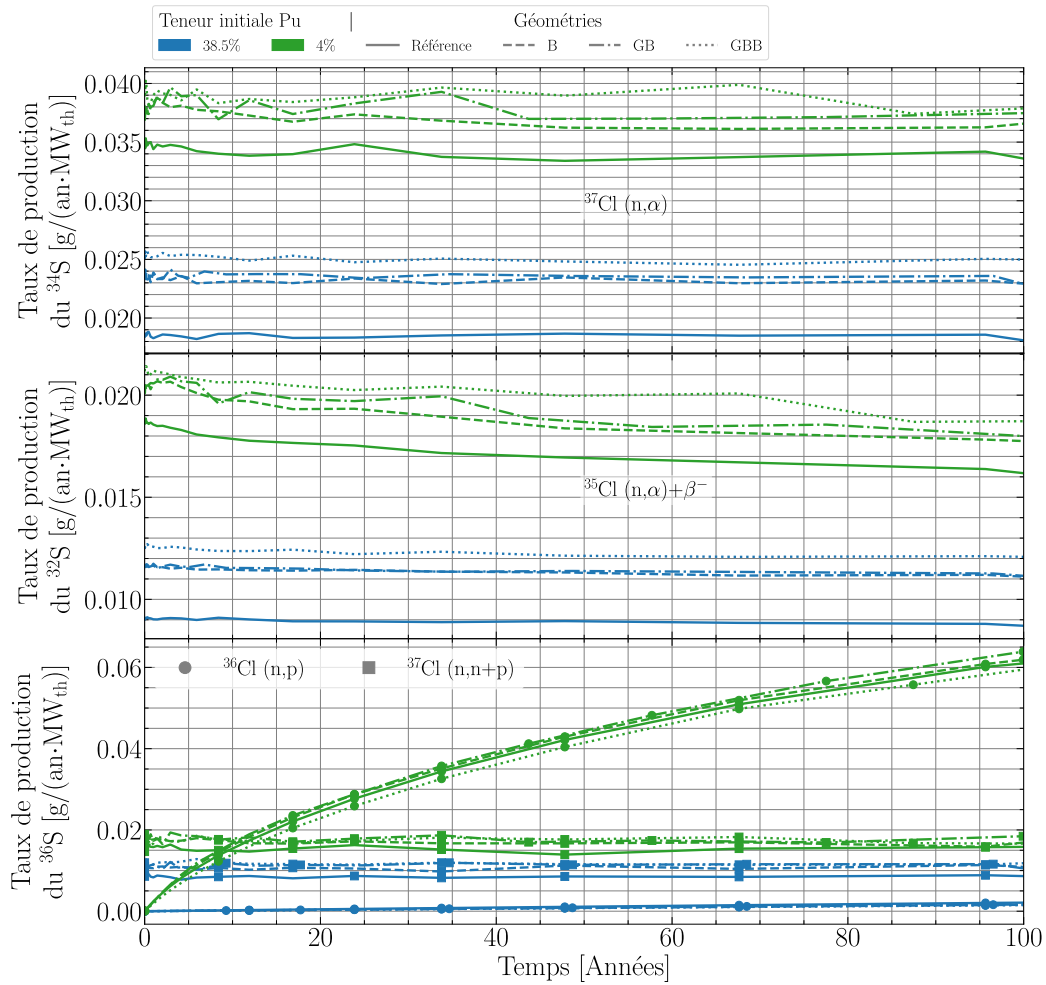


FIGURE 5.27 – Contributions à la production de soufre dans les configurations alimentées en plutonium ex-UOX avec comparaison aux cas de référence en acier 316H

5.5 Efficacité de fission

5.5.1 Mobilisation de plutonium

L'un des critères présentés en section 3.4.2 pour estimer l'efficacité d'une configuration de réacteur incinérateur est la mobilisation du combustible (équation 3.3, $\eta(t) = \frac{\int_0^t m_{\text{fissionnée}}}{m_{\text{initiale}} + \int_0^t m_{\text{alimentée}}}$). L'objectif du réacteur incinérateur est de consommer ce qui est injecté dans le sel au lieu de simplement le stocker. La figure 5.28 compare l'évaluation de ce critère pour le vecteur Pu_{UOX}, et la figure 5.29 pour le vecteur Pu_{MIX}. L'amélioration de l'efficacité de mobilisation est acquise pour toutes les nouvelles géométries et légèrement plus grande pour le cas GBB.

Les configurations à 4% de plutonium initial montent plus rapidement en efficacité, 50% d'efficacité atteint en 10 ans, contre 60 ans pour les configurations à 38.5% de plutonium initial. La masse initiale des configurations à faible teneur en plutonium est plus importante mais la puissance l'est également. Des fissions plus efficaces amènent à une alimentation moins élevée que le cas de référence, donc le décalage entre le numérateur et le dénominateur se réduit. Une fois l'état stationnaire atteint, la masse alimentée est presque égale à la masse fissionnée et ne sert plus à compenser l'apparition des actinides mineurs, et dans une moindre mesure les produits de fission.

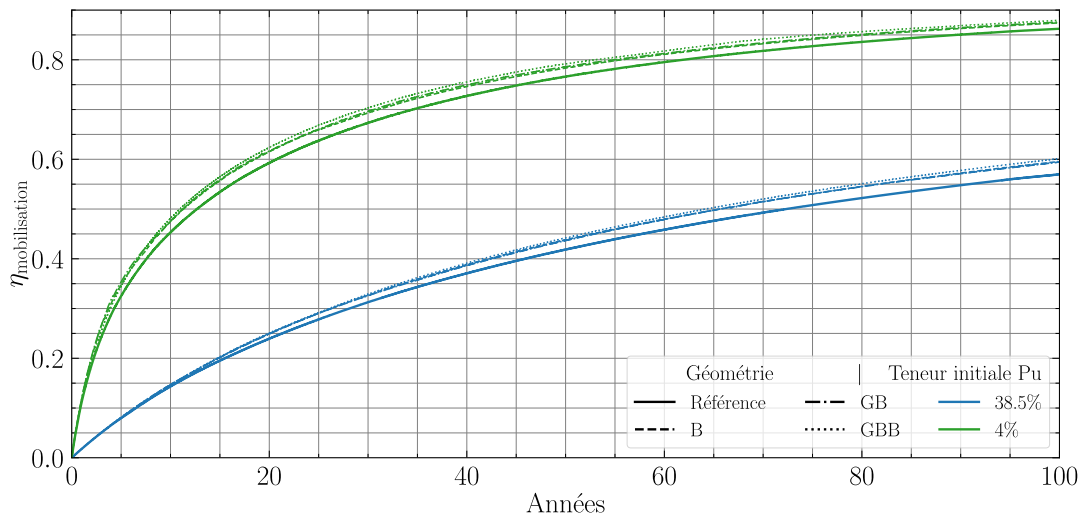


FIGURE 5.28 – Mobilisation du plutonium des designs B/GB/GBB avec comparaison au cas de référence en acier pour le vecteur Pu_{UOX}

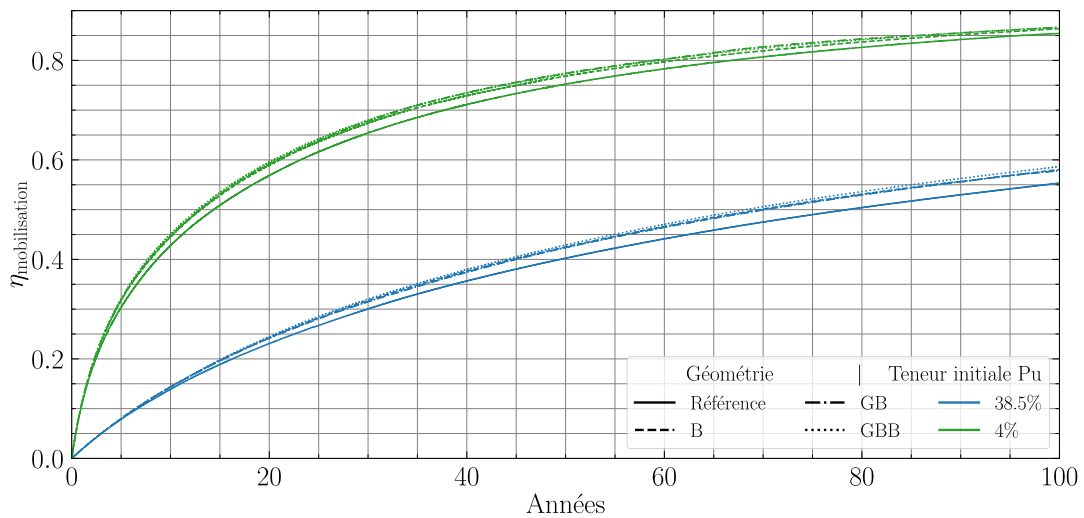


FIGURE 5.29 – Mobilisation du plutonium des designs B/GB/GBB avec comparaison au cas de référence en acier pour le vecteur Pu_{MIX}

5.5.2 Évolution de la proportion de fissions

L'évolution de la proportion de fissions (section 3.4.2) au cours du temps fait suite à l'estimation de ce critère au démarrage en section 5.3.2.

Pour les isotopes du plutonium (figure 5.30), les écarts observés au démarrage sont atténués après 47 ans de fonctionnement entre les géométries. On constate également une amélioration de la capacité à fissionner des isotopes non fissiles, surtout pour les géométries acier comme déjà montré en section 4.4.3.b. L'augmentation de la teneur en actinides pour compenser l'apparition dans le sel combustible des actinides mineurs et des produits de fission durcit le spectre. Plus la variation de la teneur en actinides est grande, plus le spectre se durcira et les actinides fissionneront bien.

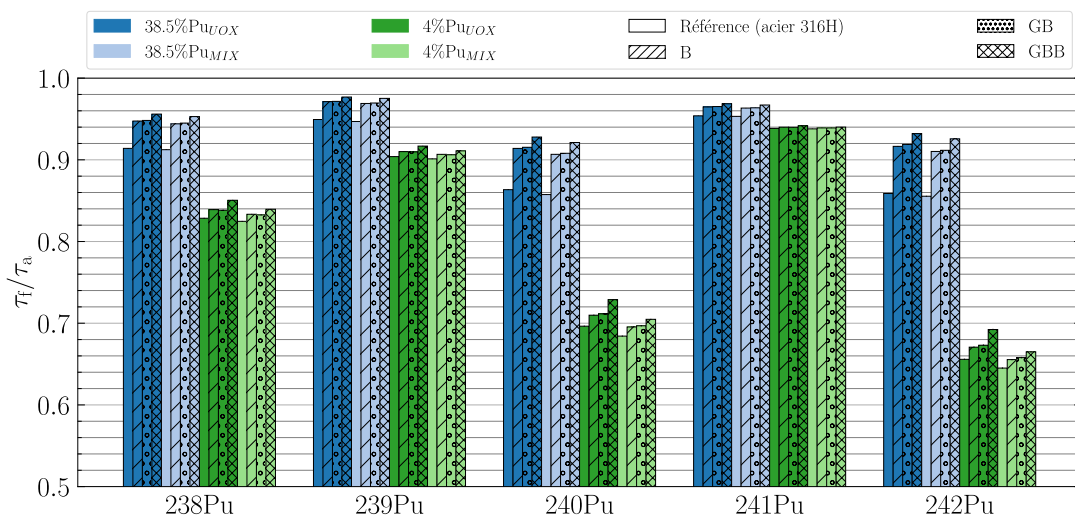


FIGURE 5.30 – Proportions de fissions des designs B/GB/GBB à 47 ans de fonctionnement pour les différents isotopes du plutonium avec comparaison au cas de référence en acier

La figure 5.31 s'intéresse à certains actinides mineurs très présents dans le sel combustible, créés par captures et décroissances successives. Les écarts entre le cas de référence en acier et les géométries modifiées sont plus marqués qu'avec le plutonium. Les isotopes non fissiles du neptunium et de l'américium voient un vrai gain sur la fission dans ces nouvelles géométries pour les fortes teneurs en actinides (60% → 80%). L'apport de rapidité du spectre des géométries modifiées sur la capacité de fission des AM est réduit pour les très grands cœurs (+5% environ).

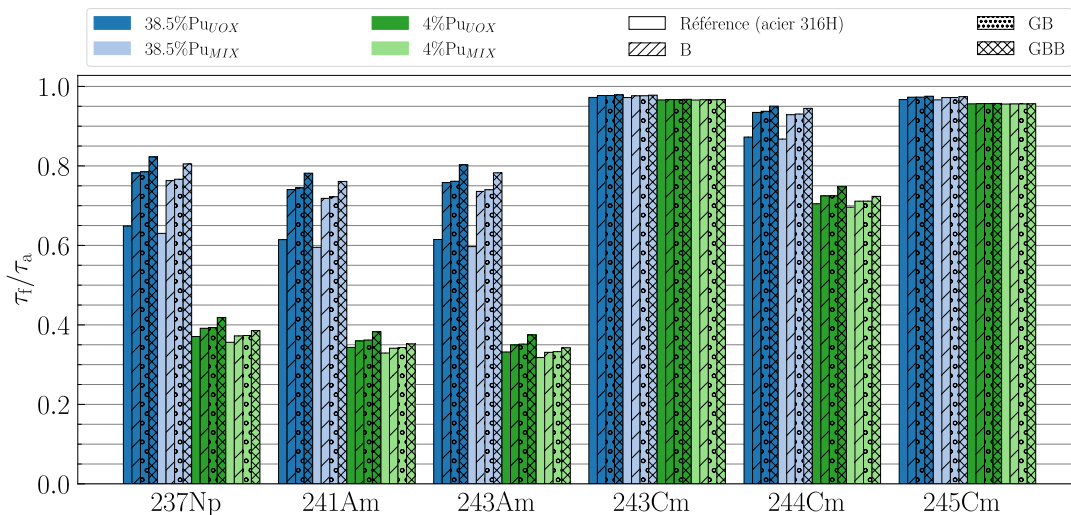


FIGURE 5.31 – Proportions de fissions des designs B/GB/GBB à 47 ans de fonctionnement pour différents isotopes d'actinides mineurs avec comparaison au cas de référence en acier

5.5.3 Consommation des transuraniens

La caractérisation de l'efficacité par un bilan de consommation/production sur le temps de fonctionnement donne une vision globale, contrairement à la proportion de fissions, qui n'est qu'un indicateur à un instant précis. Le bilan réalisé sur différents éléments de la famille des transuraniens est effectué à partir de l'équation 3.5,

$$\text{bilan}_{\text{conso}}(t) = m_{\text{cœur}}(t) + \int_0^t \text{extraction}(t) - m_{\text{init}} - \int_0^t \text{alimentation}(t)$$

Plutonium La consommation de plutonium est quasi identique à teneur initiale identique. Les figures 5.32 et 5.33 montrent seulement une consommation un peu plus importante pour le cas de référence à 38.5%, mais dont l'origine ne peut être déterminée uniquement sur ces graphes. Comme évoqué en section 4.4.3.c, seule la prise en compte de la consommation/production des autres transuraniens permet de déterminer le bilan réel de consommation du plutonium (captures/fissions)

Le temps de consommation de la masse initiale est très peu modifié par rapport aux géométries de référence (47 ans pour les 38.5% et 6 ans pour les 4%).

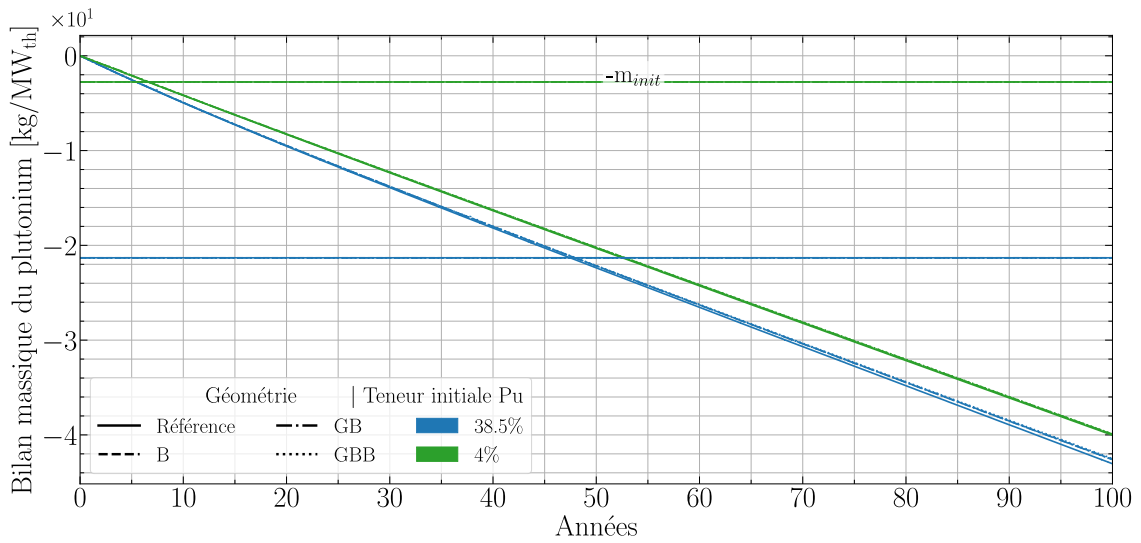


FIGURE 5.32 – Bilan de consommation du plutonium normalisé par la puissance thermique pour les vecteurs Pu_{UOX}

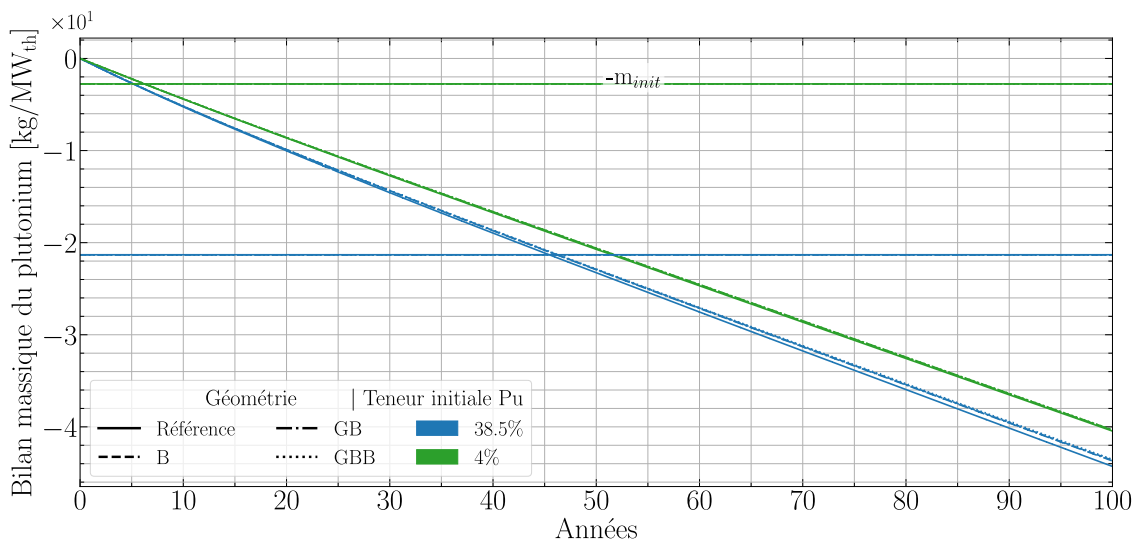


FIGURE 5.33 – Bilan de consommation du plutonium normalisé par la puissance thermique pour les vecteurs Pu_{MIX}

Américium La production d'américium vient des captures et décroissances sur le plutonium, et notamment la décroissance du ^{241}Pu . Ainsi, la production d'américium est favorisée lorsque des vecteurs de plutonium à fortes teneurs en ^{240}Pu et en ^{241}Pu sont utilisés. C'est ce que l'on observe en figures 5.34 et 5.35 avec une production plus importante pour le vecteur Pu_{MIX} . En revanche, malgré la grande capacité de l'américium à fissionner dans les petits volumes grâce au spectre très rapide et au peu de solvant disponible pour les diffusions, il est très largement produit dans les configurations à 38.5% de plutonium initial. On note tout de même que cette production est plus faible de 6.5% relatif lorsque les couches successives de graphite et de B_4C sont ajoutées.

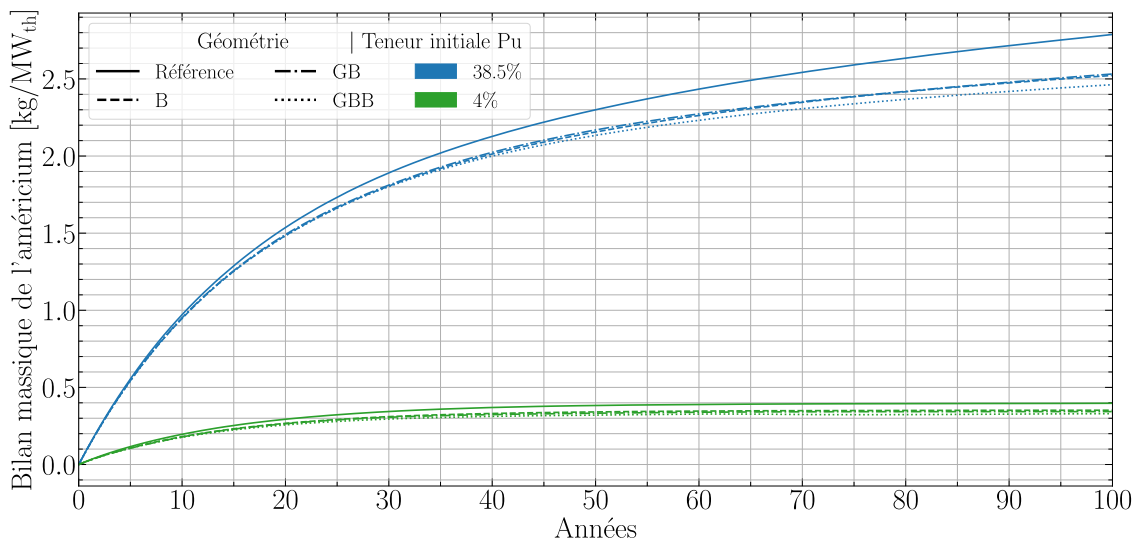


FIGURE 5.34 – Bilan de consommation de l'américium normalisé par la puissance thermique pour les vecteurs Pu_{UOX}

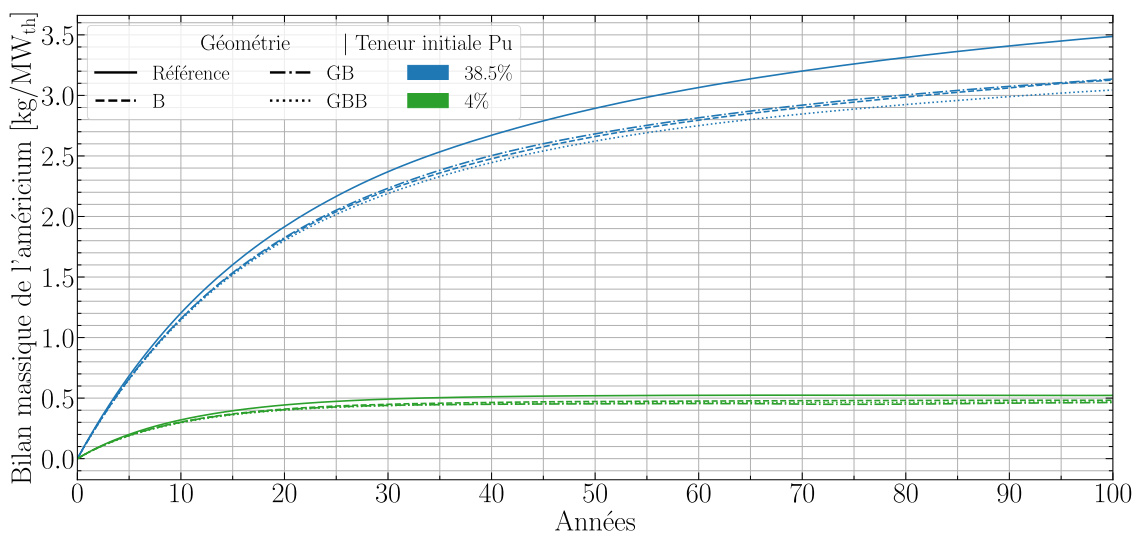


FIGURE 5.35 – Bilan de consommation de l'américium normalisé par la puissance thermique pour les vecteurs Pu_{MIX}

Curium La grande différence sur le bilan de production/consommation entre toutes les configurations se voit sur les figures 5.36 et 5.37. Le remplacement de l'acier par du B_4C et du graphite permet de diminuer la production nette de curium de 50% à 70% relatif pour les configurations à 38.5% initial et de 7% à 20% relatif pour les configurations à 4% initial. La diminution des capacités de capture sur l'américium limite de manière significative la production de curium.

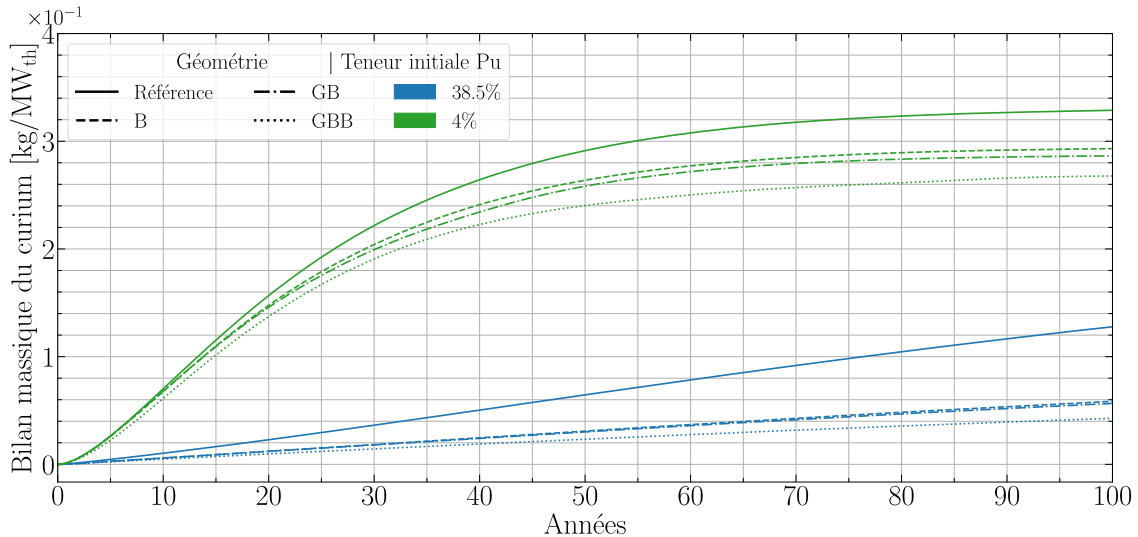


FIGURE 5.36 – Bilan de consommation du curium normalisé par la puissance thermique pour les vecteurs Pu_{UOX}

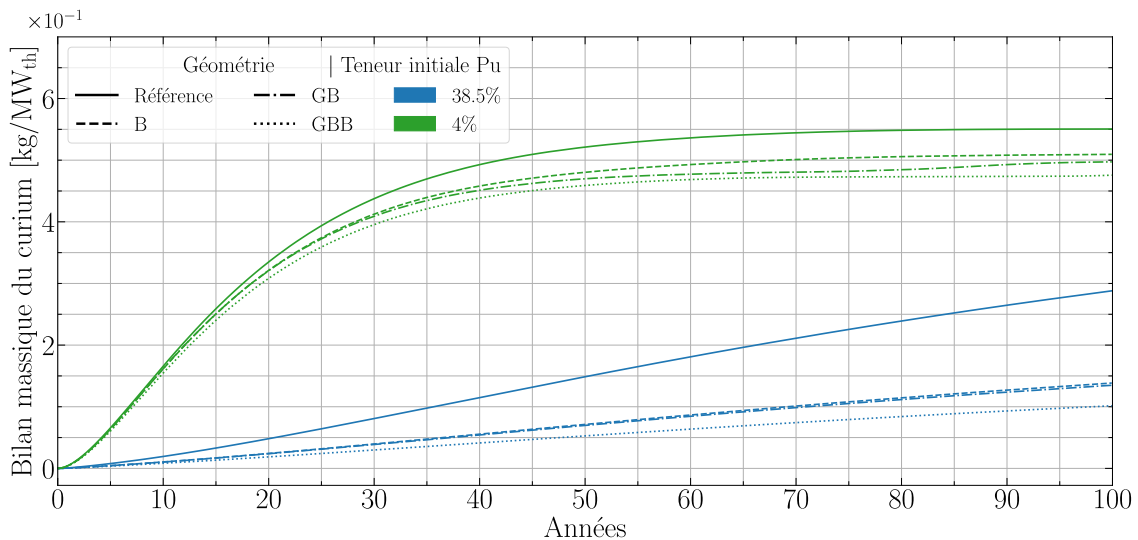


FIGURE 5.37 – Bilan de consommation du curium normalisé par la puissance thermique pour les vecteurs Pu_{MIX}

Bilan global de consommation et de production La figure 5.38 présente le bilan global normalisé par l'énergie produite des différentes configurations à géométrie modifiée. Tout comme les cas de référence, une faible teneur en plutonium initial amène

à l'état stationnaire plus rapidement et donc à s'approcher de l'objectif de consommation de $44.9 \text{ kg}/(\text{TW}_{\text{th}} \cdot \text{h})$ pour le plutonium. À 100 ans de fonctionnement, le plutonium est consommé à hauteur de $46 \text{ kg}/(\text{TW}_{\text{th}} \cdot \text{h})$ pour les configurations 4% Pu_{UOX} et 4% Pu_{MIX}. Les configurations 38.5% Pu_{UOX} et 38.5% Pu_{MIX} arrivent respectivement à $48\text{-}50 \text{ kg}/(\text{TW}_{\text{th}} \cdot \text{h})$ à 100 ans.

La production d'actinides mineurs est faible pour les cas à 4% Pu initial (de l'ordre de $1.5 \text{ kg}/(\text{TW}_{\text{th}} \cdot \text{h})$ à 100 ans). Les sels à 38.5% Pu initial produisent à 100 ans de fonctionnement 4 et 12 $\text{kg}/(\text{TW}_{\text{th}} \cdot \text{h})$ d'actinides mineurs à partir du plutonium.

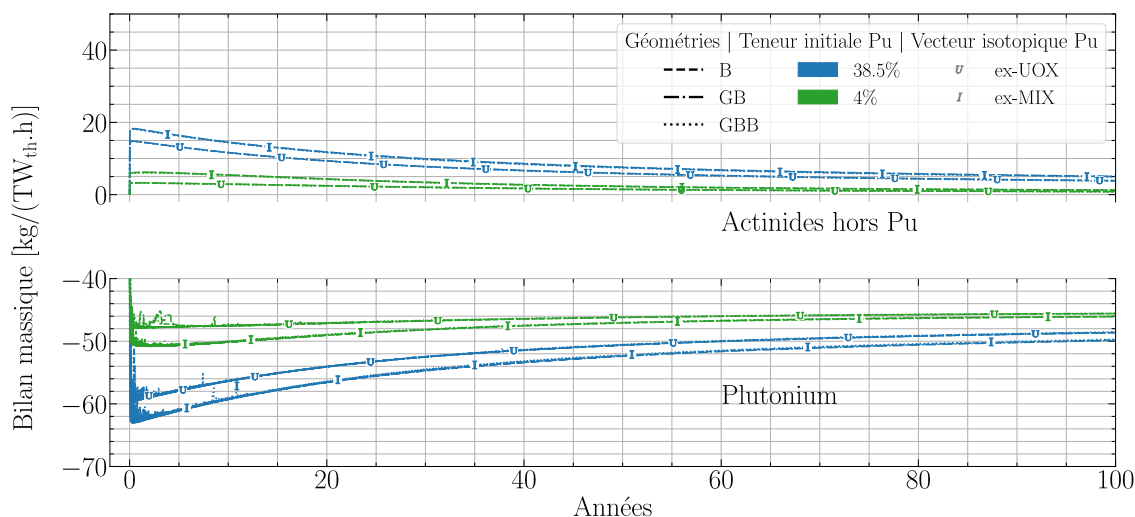


FIGURE 5.38 – Bilan massique global des actinides principaux pour les géométries modifiées

5.6 Contre-réactions de température

5.6.1 Contre-réaction Doppler

L'effet Doppler est globalement très réduit dans les réacteurs à spectre rapide et à sels chlorures. Comme montré en section 4.4.7, les neutrons vont très vite et interagissent par fission principalement. Le changement de la température n'a donc que peu d'effet sur les résonances de capture vu par les neutrons. L'objectif premier du changement des matériaux de structure est de durcir le spectre neutronique pour éviter les captures, potentiellement productrices d'éléments indésirables (activation neutronique, ³⁶Cl, AM...). Enlever ces neutrons du flux neutronique, c'est donc risquer de diminuer encore plus l'effet Doppler.

La figure 5.39 confirme la perte quasi intégrale de cet effet de contre-réaction, quels que soient la géométrie et le vecteur d'alimentation pour une teneur initiale en plutonium à 38.5%. Les géométries avec 4% de plutonium voient leur CCR Doppler diminué par 2 environ au démarrage par rapport au cas de référence en acier, et sont similaires à 50 ans de fonctionnement.

L'effet Doppler est d'autant plus dégradé que les couches de graphite et de B_4C s'ajoutent et suppriment une partie des neutrons de faible énergie. Il est à noter que l'utilisation de graphite ne semble pas entrainer de contre-réaction Doppler positive, contrairement à ce qui avait été réévalué dans le cas du MSBR [75].

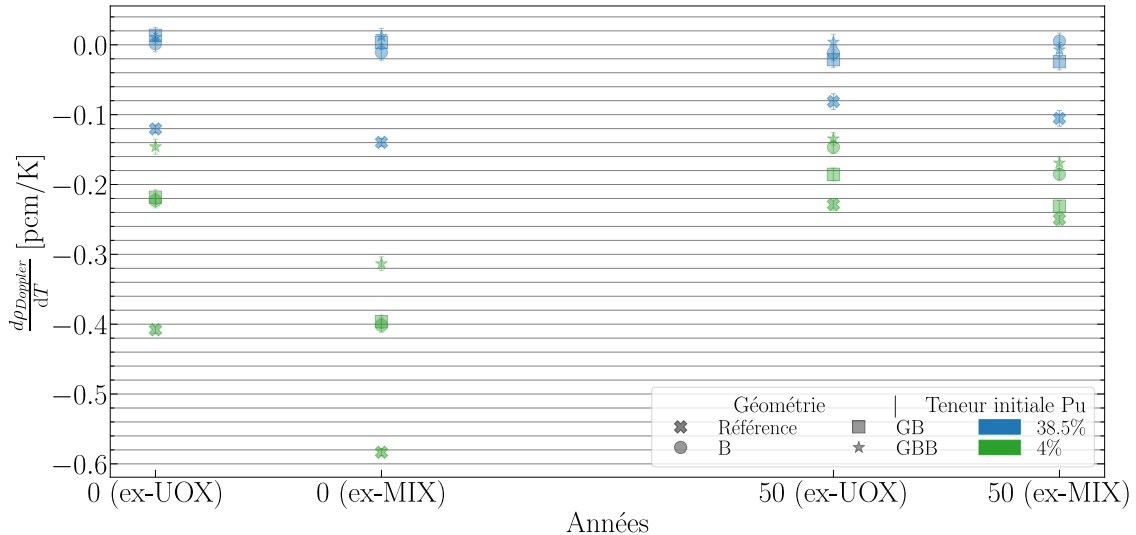


FIGURE 5.39 – Estimation des coefficients de contre-réaction Doppler au démarrage et à 50 ans de fonctionnement

5.6.2 Effet de densité

La section 4.4.7 avait montré que la contre-réaction de température principale sur la neutronique du cœur est l'effet de densité. Cet effet important est également retrouvé ici au démarrage et à 50 ans de fonctionnement, comme illustré par la figure 5.40. Contrairement au cas de référence, les configurations à 4% de plutonium sont favorisées alors que les volumes critiques sont plus grands et que la dilatabilité est plus faible d'environ 40%. L'impact du changement des matériaux de structure de l'acier 316H vers le B_4C /graphite va limiter la population neutronique de faible énergie, les laissant plus facilement fuir au lieu de les renvoyer vers la zone critique. Plus les matériaux de structure environnant le cœur absorberont les neutrons de faible énergie, plus le spectre sera dur, conduisant à moins d'interactions avec le sel combustible. Lors de la dilatation, les neutrons pourront donc s'échapper plus facilement. On observe alors un plus fort impact sur le CCR densité pour une faible teneur en plutonium (même effet que pour la production de ^{36}Cl et de soufre en section 5.4.6).

À 50 ans de fonctionnement, on retrouve la tendance des géométries acier avec une diminution de l'effet de densité à cause de l'opacité progressive du sel avec les AM et les PF produits. Cependant, les neutrons plus rapides des configurations B/GB/GBB peuvent s'enfuir plus facilement que dans les géométries acier. Les géométries à forte teneur initiale en plutonium sont faiblement impactées par le changement de composition du sel grâce au spectre très rapide et donc des neutrons qui interagissent peu avec les noyaux du sel combustible.

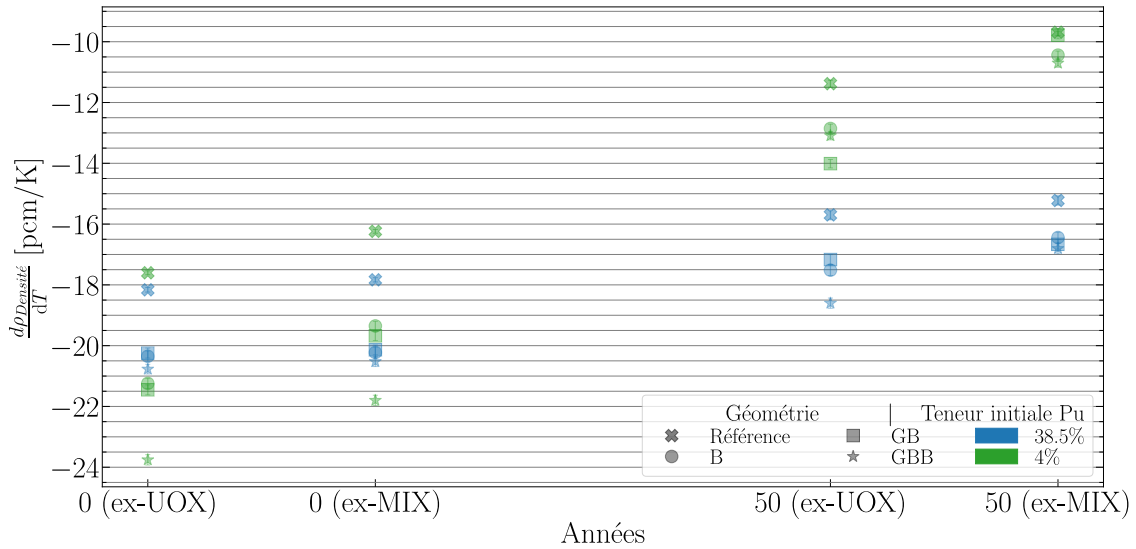


FIGURE 5.40 – Estimation des coefficients de contre-réaction de densité au démarrage et à 50 ans de fonctionnement

Une nouvelle fois pour s'affranchir de la dilatabilité, sur laquelle de nombreuses hypothèses ont été faites, la figure 5.41 présente l'estimation de l'effet de densité normalisée par ladite dilatabilité. On observe un très fort effet de densité pour les faibles teneurs et celui-ci est meilleur pour les géométries visant la suppression de neutrons de faible énergie.

L'évolution de la composition du sel et de la teneur en plutonium pour compenser les absorptions stériles des noyaux neutrophages conduit à un CCR de densité similaire à 50 ans de fonctionnement. Le vecteur Pu_{UOX} voit encore des différences en faveur des configurations à 4% initial.

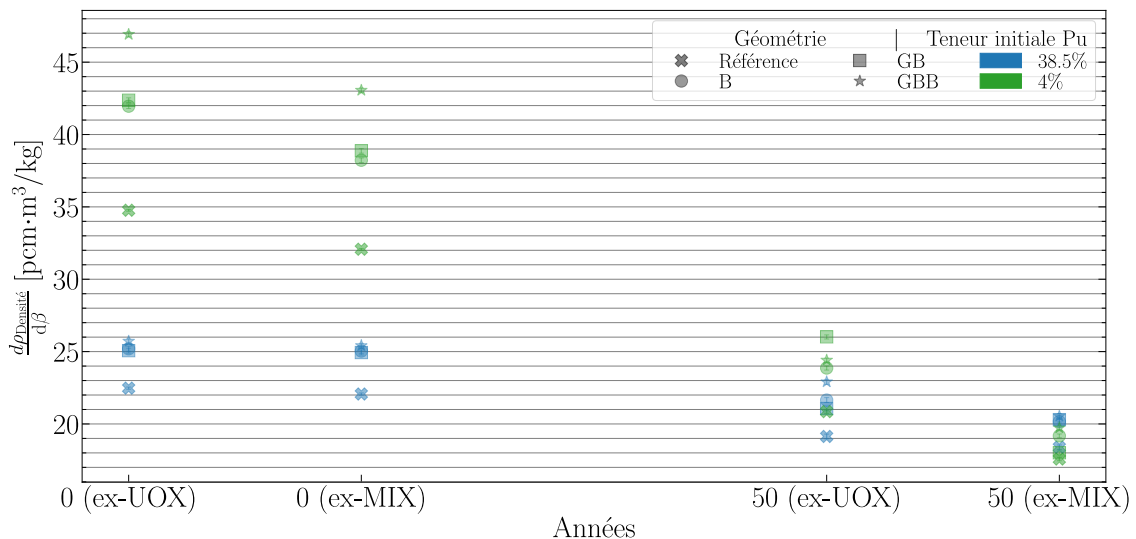


FIGURE 5.41 – Estimation des coefficients de contre-réaction de densité au démarrage et à 50 ans de fonctionnement normalisés par la dilatabilité

5.7 Production de colis CSD-V et radiotoxicité

5.7.1 Production de CSD-V

On vérifie tout d'abord que le temps de refroidissement de 5 ans avant retraitement du combustible est adapté avec les nouvelles géométries. La figure 5.42 montre en effet qu'un tel temps d'attente est suffisant pour diminuer le nombre de CSD-V produit, ce qui est cohérent avec la composition qui est vitrifiée (PF, avec des traces d'actinides à $Z < 93$). C'est le critère de la teneur en platinoïdes (insolubles) qui est atteint. La section 4.4.9 a mis en avant la nécessité de chercher des voies alternatives de gestion de ces éléments, qui ont un impact très fort sur la production de CSD-V.

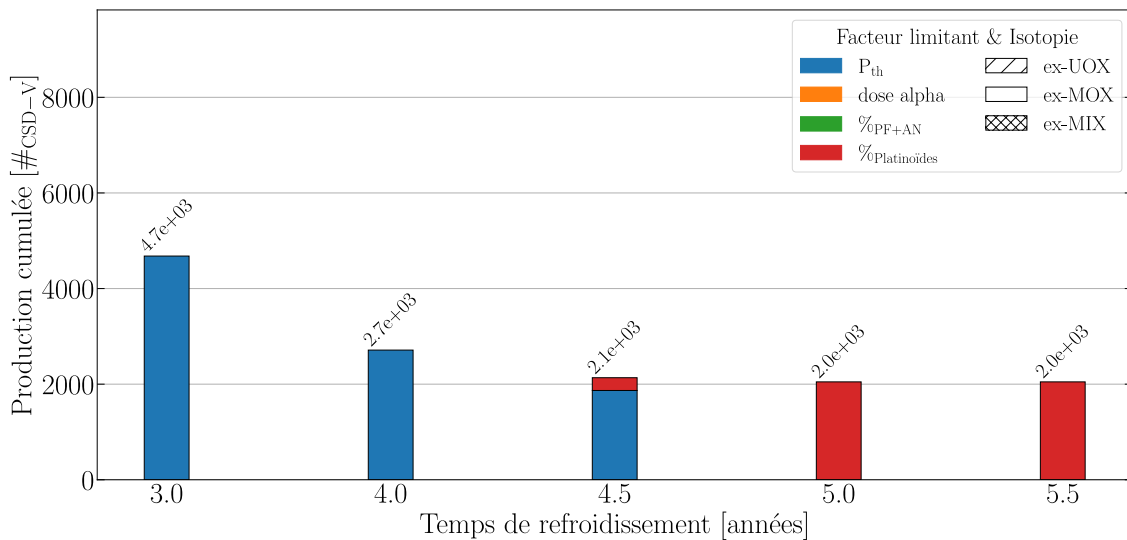


FIGURE 5.42 – Impact du temps de refroidissement sur la production de CSD-V pour le cas 4%GBI avec comparaison au cas de référence

On compare désormais la production de CSD-V normalisée par l'alimentation en plutonium sur les 100 ans de fonctionnement pour les configurations à 38.5% et 4% acier et nouvelles géométries (figure 5.43). On constate que la production de CSD-V n'est pas modifiée au cours du fonctionnement avec le retraitement choisi (extraction PF + actinides dont le $Z < 93$). En revanche, lors de la vitrification du sel combustible déchargé en fin de fonctionnement, on peut diminuer de 5% environ les CSD-V produits par tonne de plutonium alimentée pour toutes les géométries modifiées par rapport aux cas de référence¹. Ceci est lié à l'objectif de ces géométries, c'est-à-dire limiter la montée en Z et A des actinides, comme constaté en section 5.5.3. En effet, les noyaux très lourds tendent à décroître par rayonnement α (ou fission spontanée) qui endommage le verre de confinement (d'où ce critère limitant).

1. Le nombre de CSD-V produit dans l'hypothèse d'un conditionnement du plutonium REP en verres, au lieu d'être réutilisé, est ici présenté pour objectif de comparaison, comme dans la section 4.4.9.

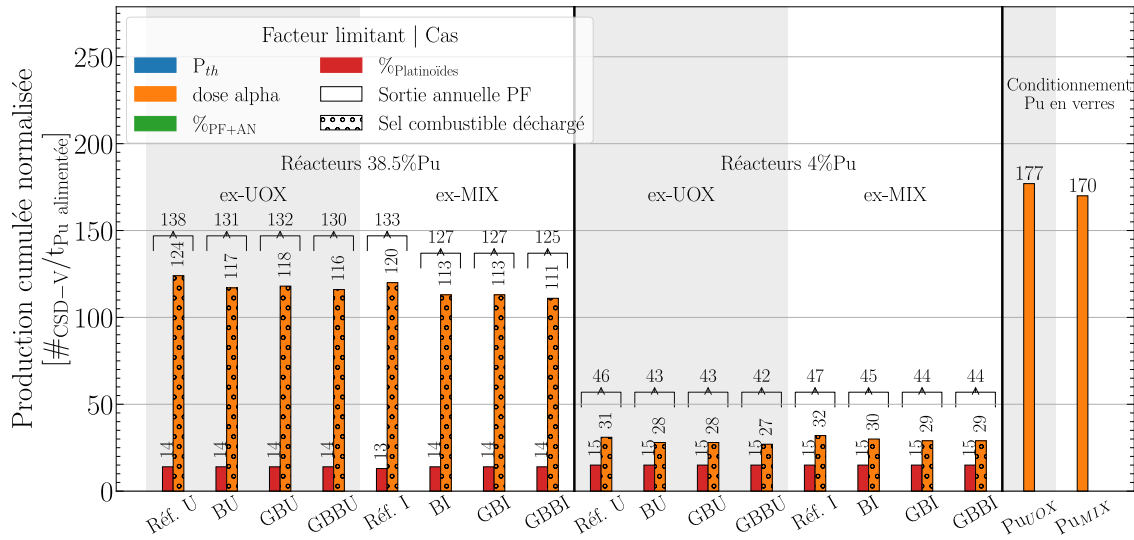


FIGURE 5.43 – Production de colis vitrifiés pour les géométries modifiées avec et sans vitrification du sel combustible, et comparaison aux alimentations et cas de référence

5.7.2 Radiotoxicité associée

La figure 5.44 présente les contributions à la radiotoxicité de la configuration 4GBI (4% plutonium, modérateur graphite + B_4C , alimenté en Pu_{MIX}) si l'on considère la vitrification du sel combustible en fin de fonctionnement ou non. On retrouve la forte contribution de l'uranium qui dépasse la contribution des produits de fission 600 ans après la production des derniers CSD-V. L'hypothèse de séparation parfaite permet même dans l'hypothèse de vitrification du sel combustible de rester sous la radiotoxicité du vecteur d'alimentation par au moins un facteur 10.

Dans l'hypothèse de vitrification du sel combustible, la contribution principale vient du plutonium, après un pic de radiotoxicité des AM.

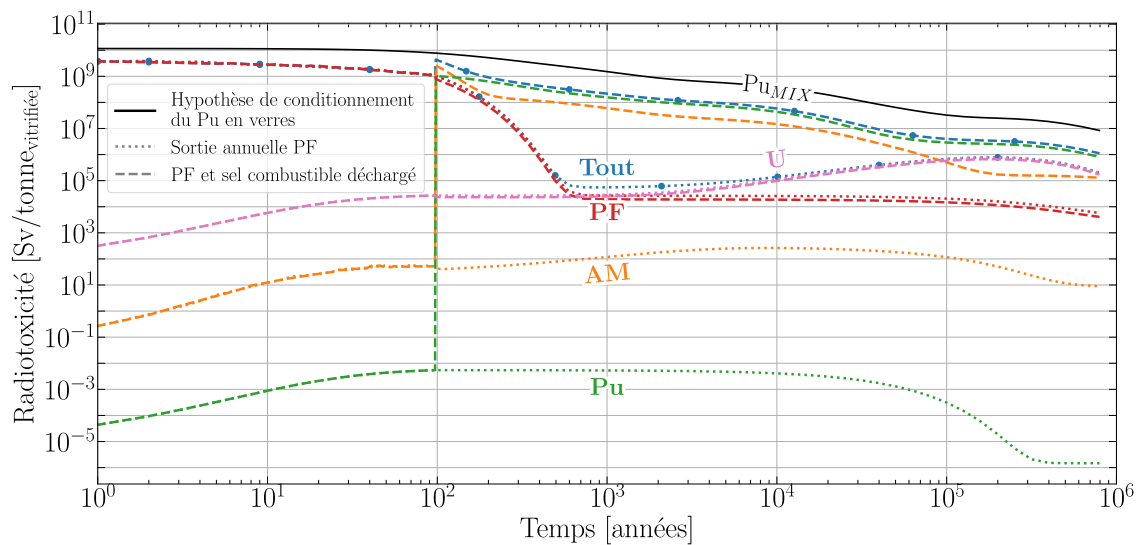


FIGURE 5.44 – Radiotoxicité de la configuration 4GBI avec la vitrification ou non du sel combustible et comparaison avec le vecteur d'alimentation Pu_{MIX}

Les figures 5.45 et 5.46 présentent l'évolution de la radiotoxicité totale des vecteurs d'alimentation (Pu_{UOX} et Pu_{MIX}), les effluents avec et sans vitrification du sel combustible, pour les cas de référence et les géométries modifiées. Les différences sont nettes entre les cas à 4% et 38.5%, défavorisés dans ce dernier cas (section 4.4.9). Les écarts entre les cas de référence et les nouvelles géométries sur le cas de vitrification du sel combustible sont visibles et semblent réduire d'une centaine d'années l'atteinte d'une valeur identique de radiotoxicité.

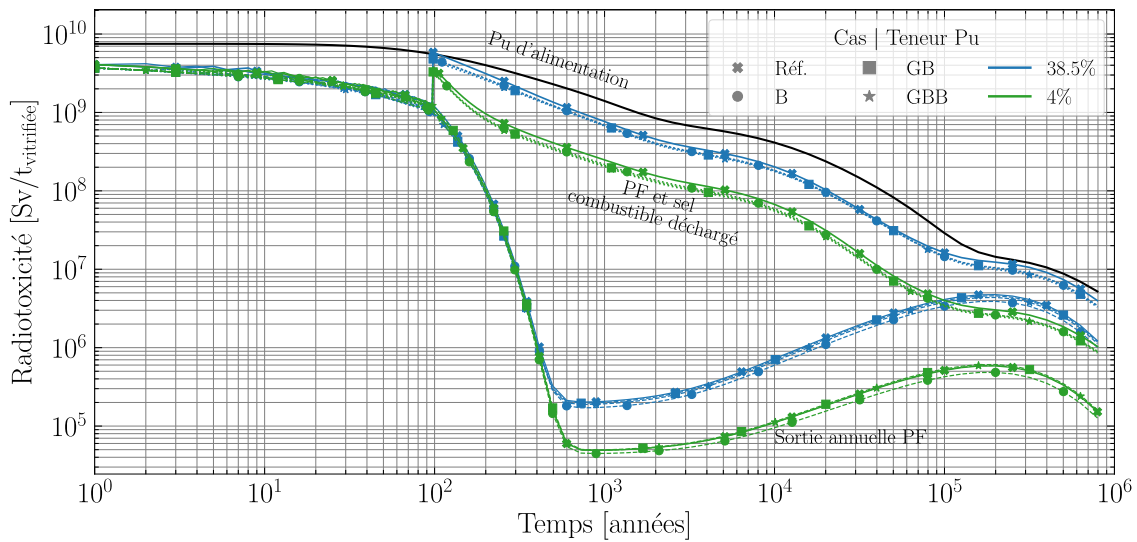


FIGURE 5.45 – Radiotoxicité des configurations alimentées en plutonium ex-UOX avec la vitrification ou non du sel combustible et comparaison au vecteur d'alimentation

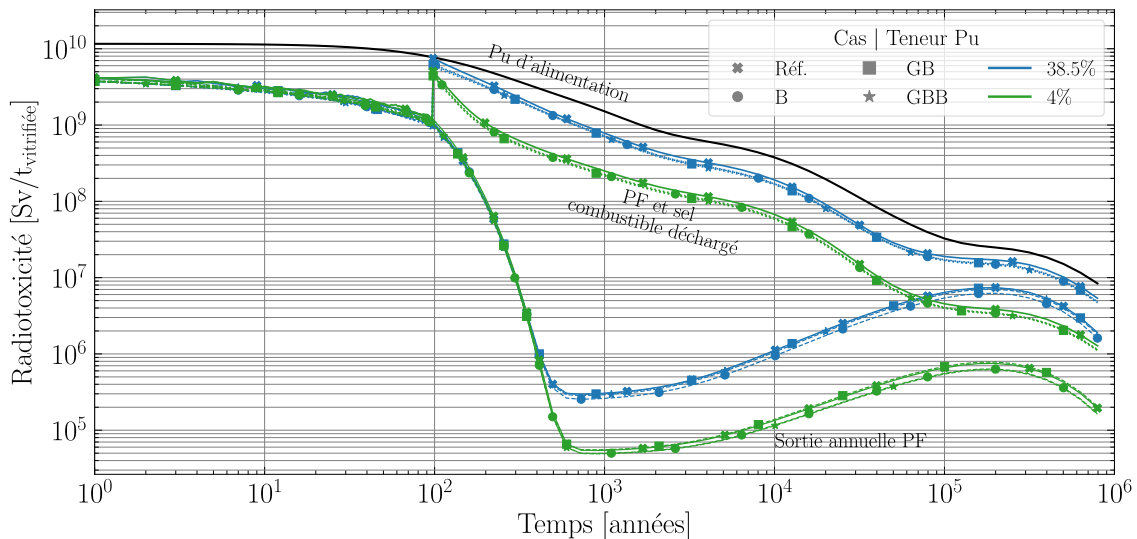


FIGURE 5.46 – Radiotoxicité des configurations alimentées en plutonium ex-MIX avec la vitrification ou non du sel combustible et comparaison au vecteur d'alimentation

5.8 Conclusions

Le remplacement des structures en acier 316H au profit d'associations de B_4C et de graphite peut être prometteur sur la limitation de la montée de la production de noyaux de plus en plus lourds. Bien que le graphite thermalise les neutrons et semble être un choix peu judicieux au vu de l'objectif défini, l'ajout de B_4C , pour absorber les neutrons trop peu énergiques et donc les empêcher de revenir dans la zone critique après ralentissement, rend le spectre neutronique plus dur. On observe une augmentation importante du volume critique puisque la masse critique de plutonium doit être bien supérieure au cas acier pour permettre aux neutrons très rapides d'interagir suffisamment, démarrer et entretenir une réaction en chaîne. Ces volumes plus grands s'accompagnent d'une meilleure efficacité de fission du plutonium au démarrage ainsi qu'au cours du fonctionnement. Les isotopes qui bénéficient le plus du changement des matériaux sont les isotopes non fissiles tels que les ^{240}Pu et ^{242}Pu . Les actinides mineurs voient également leur probabilité de captures réduites, surtout pour les neptuniums et américiums. Il faut tout de même remarquer que les matériaux ont un impact moindre sur l'évolution de la composition lorsque le volume critique devient grand (faible teneur en plutonium), car les neutrons ne voyagent pas forcément jusqu'aux structures.

Les isotopies des différents éléments sont peu impactées, quelles que soient les configurations et géométries regardées. On note en revanche des différences sur la part de curium au sein des transuraniens avec une production plus réduite pour la géométrie GBB (graphite+ B_4C , enveloppe B_4C).

Le critère de mobilisation du plutonium est amélioré de quelques pourcents avec ces nouvelles géométries, mais sans distinction faite entre les trois cas. Le bilan de la consommation du plutonium est indifférent de la géométrie, contrairement au bilan de la production d'américium et de curium. Ceux-ci sont produits en plus faibles quantités par rapport aux cas de référence, quelles que soient la teneur initiale en plutonium et la géométrie. La géométrie GBB montre un réel avantage sur la production de curium, la plus faible parmi les trois configurations modifiées.

La production de ^{36}Cl est moindre avec ces nouvelles géométries qui évitent suffisamment le ralentissement des neutrons pour que le ^{35}Cl ait plus de mal à capturer. En revanche, la production de soufre est quant à elle augmentée pour la même raison (neutrons de haute énergie) : la réaction (n,p) à la base de sa production est favorisée aux hautes énergies.

L'utilisation des matériaux consommateurs de neutrons peu énergiques permet de réduire d'environ 5% la production de CSD-V (par tonne de plutonium alimentée) lorsque l'on considère la vitrification du sel combustible, un gain supplémentaire par rapport à la vitrification directe du plutonium d'alimentation. La radiotoxicité est également diminuée lorsque le sel est vitrifié en fin de fonctionnement. Ainsi, une centaine d'années environ est gagnée sur la diminution de la radiotoxicité.

Les différents avantages apportés par la modification des matériaux de structure doivent être confirmés par une réévaluation de la géométrie GBB avec une enveloppe d'épaisseur plus faible et réaliste de B_4C . L'activation et la gestion des matériaux irradiés doivent être regardées, tout comme la fréquence et la facilité du changement des différents éléments.

6

Définition d'un convertisseur de transuraniens pour la fermeture des cycles électronucléaires (RAPTO_r)

Le choix du combustible d'alimentation est dépendant du cycle du combustible considéré afin d'incinérer les matières non réutilisées. Le concept Réacteur Alimenté en Plutonium et autres Transuraniens pour Orano est un concept de réacteur à sels fondus qui réutilise les transuraniens et dont les hypothèses et contraintes de modélisation sont détaillées en vue de la conception d'un démonstrateur. Le déroulé des études présentées dans ce chapitre est identique à ce qui a été présenté dans le chapitre 4. Les études en évolution nécessitent au préalable d'établir la configuration de départ et les caractéristiques principales des différents cas considérés. Diverses comparaisons sont réalisées pour estimer l'impact des différents choix et temporalités de retraitement pour évaluer des sensibilités sur les compositions des sels combustibles. Un focus sur un cas particulier avec uniquement des actinides mineurs dans l'optique de la fermeture du cycle du combustible sera présenté pour évaluer sa faisabilité. Les caractérisations d'efficacité d'incinération, ainsi que des dégâts d'irradiation dans les matériaux de structure sont réalisées. Les contre-réactions de température et l'estimation de production de CSD-V et de la radiotoxicité associée sont l'épilogue du prédimensionnement d'un démonstrateur RAPTO_r.

Sommaire

6.1	Contexte	204
6.1.1	De la nécessité des hypothèses sur les combustibles à étudier	204
6.2	Contraintes de modélisation	206
6.2.1	Contraintes physiques et chimiques	206

6.2.2	Contraintes industrielles	206
6.2.3	Hypothèses de retraitement	207
6.2.4	Résumé du concept RAPTOR	208
6.3	Caractérisation des sept configurations au démarrage	213
6.4	Caractérisation temporelle des matières	216
6.4.1	Évolution temporelle des cas 100% plutonium : réinjection du plutonium ?	216
6.4.2	Évolution temporelle des cas plutonium + actinides mineurs	220
6.4.3	Retraitement du combustible : explicite ou implicite ?	225
6.4.4	Réacteur 100% actinides mineurs : cas AI	230
6.4.5	Productions de chlore et de soufre	231
6.5	Efficacité de conversion des RAPTOR	235
6.5.1	Mobilisation de matière	235
6.5.2	Proportion de fissions	236
6.5.3	Bilan de consommation	237
6.6	Dégâts d'irradiation	244
6.6.1	Création de lacunes par déplacements d'atomes	244
6.6.2	Production de gaz : hélium et hydrogène	244
6.6.3	Conclusions	248
6.7	Contre-réactions de température	248
6.7.1	Démarrage	248
6.7.2	Évolution temporelle	249
6.7.3	Conclusions	252
6.8	Colis vitrifiés et radiotoxicité	252
6.8.1	Influence du temps de refroidissement avant vitrification	252
6.8.2	Vitrification totale du sel combustible	253
6.8.3	Efficacité du retraitement	255
6.9	Conclusions	258

6.1 Contexte

Dans le cadre de la fermeture du cycle du combustible, définir un réacteur spécifique à cet usage est nécessaire. Le RAPTOR traité dans ce chapitre est un concept de réacteur dont le but est de consommer les matières difficilement valorisables (plutonium de qualité dégradée) ou non valorisables actuellement (considérées comme des déchets, c'est-à-dire les actinides mineurs). Outre le potentiel énergétique de ces matières, l'impact radiologique et environnemental du stockage est loin d'être négligeable. La figure 6.1 montre la contribution des différents éléments d'un combustible utilisé UOX sur la radiotoxicité. Le multirecyclage du plutonium permet de diminuer sa radiotoxicité à long terme, mais la contribution des actinides mineurs est également significative. Leur consommation, afin de les transformer en produits de fission, donne lieu à une réduction drastique de la radiotoxicité, et donc aux besoins de stockage (superficie, temps de gestion, étanchéité des conteneurs, etc.). Ainsi, l'ensemble des transuraniens est considéré pour l'alimentation des réacteurs dans ce chapitre d'étude de faisabilité.

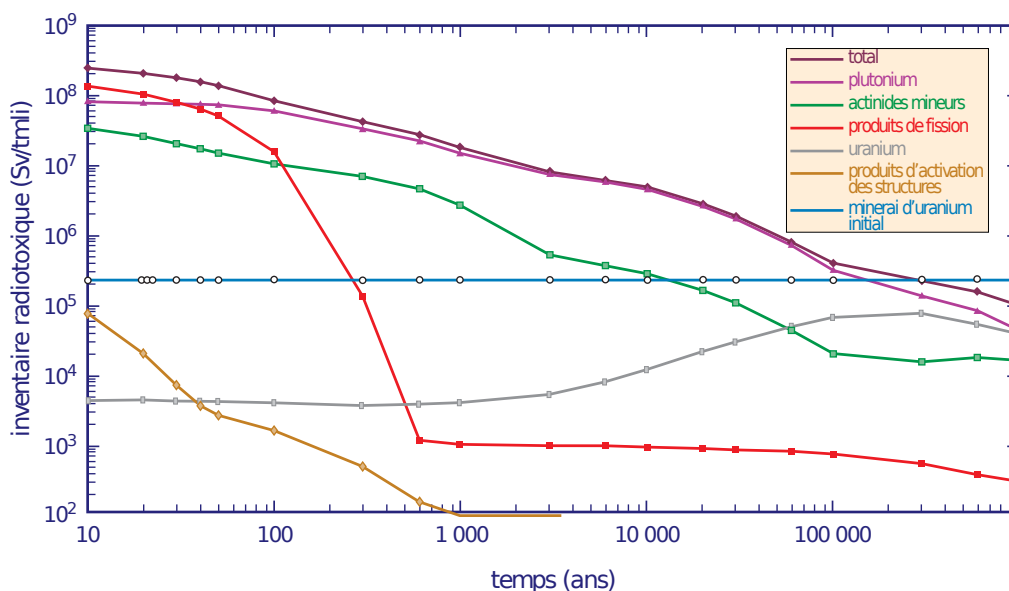


FIGURE 6.1 – Évolution au cours du temps de l'inventaire radiotoxique, exprimé en sievert par tonne de métal lourd initial (Sv/tmli), d'un combustible utilisé (oxyde d'uranium enrichi à 3.7% en uranium 235 déchargé à un taux de combustion de 45 GW · j/t et refroidi cinq ans) [130]

6.1.1 De la nécessité des hypothèses sur les combustibles à étudier

Différents cycles du combustible existent en fonction des contraintes politiques, économiques et technologiques à un moment donné au sein des pays possédant un programme nucléaire, comme explicité au chapitre 1. Afin de montrer les capacités et les limites du concept RAPTOR, on s'intéresse à l'ensemble des cycles du combustible existants et des matières. Deux grands axes sont envisagés : séparation simple des matières (procédé Plutonium Uranium Refining by EXtraction (PUREX) et séparation poussée (procédés DIAMEX/SANEX pour l'extraction des actinides mineurs en aval du retraitement PUREX ou GAMEX pour la séparation groupée des transuraniens [29]). Les recherches sur la séparation poussée semblent bien avancées, mais le procédé n'est pas encore industriellement possible, contrairement à PUREX.

Le procédé PUREX est le procédé de séparation le plus avancé et actuellement mis en œuvre à la Hague pour la séparation de l'uranium et du plutonium du combustible utilisé [29]. L'efficacité de séparation et de décontamination dépasse 99,4% en phase industrielle.

En France, des développements pour la séparation des actinides mineurs ont été menés conjointement par Orano et le CEA. Les procédés DIAMEX/SANEX ont été validés en 2005 et une extraction à hauteur de 99,9% des actinides mineurs d'intérêt a été effectuée en laboratoire. Les méthodes PALADIN et SANEX/TOGA sont des améliorations validées en 2009 de ces deux procédés, puisqu'un seul cycle d'extraction est nécessaire. De même, le procédé GANEX (validé en 2009) a permis une extraction à hauteur de 99,9% des actinides, mais la décontamination des actinides en lanthanides était insuffisante (10% restant dans le flux actinides). Enfin, il est à noter que le procédé EXAm utilise le flux (PF+AM) du procédé PUREX pour extraire uniquement l'américium à hauteur de 99% du curium (proches chimiquement en phase aqueuse), le mélange curium + PF part ensuite à la vitrification. L'ensemble de ces procédés d'extractions peut être simulé avec l'outil PAREX [131].

6.1.1.a Cycle ouvert

Dans le cas d'un cycle ouvert, le combustible utilisé n'est actuellement pas retraité ou seulement pour extraire des matières spécifiques, plutonium par exemple. On s'attachera à étudier la consommation de plutonium ex-UOX, pour des pays qui souhaiteraient diminuer les matières à vitrifier ou stocker à sec. De même, la consommation des actinides mineurs associés au plutonium sera regardée.

6.1.1.b Cycle semi-fermé

Le cycle semi-fermé, actuellement mis en place en France, produit du MOX utilisé, qui, retraité, pourrait permettre de consommer le plutonium qu'il contient. Par ailleurs, la consommation du plutonium ex-MOX ainsi que des AM ex-UOX et ex-MOX permet une valorisation quasi totale des matières radioactives.

6.1.1.c Cycle semi-fermé⁺ / fermé

Dans le cas du cycle semi-fermé⁺, le plutonium est multirecyclé en REP (combustible MIX) et ne sera injecté en réacteurs à sels fondus qu'après être trop dégradé isotopiquement pour être réutilisé en REP. L'étude d'incinération de plutonium ex-MIX est dans l'optique d'un scénario fin de jeu.¹ Les actinides mineurs provenant de combustible UOX utilisé et MIX utilisé seront "enrichis" de plutonium ex-MIX pour le démarrage, afin d'éviter que le cœur du réacteur ne soit trop grand (faible qualité fissile), comme présenté en section 4.3. En cours de fonctionnement, cependant, l'objectif ici est de n'alimenter qu'avec les actinides mineurs.

Dans le cadre d'un cycle fermé (multirecyclage du plutonium en RNR sodium par exemple), seuls les actinides mineurs sont à incinérer. Le mélange d'actinides mineurs utilisé dans ce chapitre (ex-UOX + ex-MIX) vient cependant d'un scénario de multirecyclage en REP et ne correspond pas isotopiquement aux actinides mineurs produits dans un parc

1. Scénario de fin de jeu : ici, scénario dans lequel le nucléaire de fission est arrêté. Il s'agit alors de gérer la production d'énergie pour la transition tout en favorisant la réduction des matières restantes des parcs nucléaires ayant fonctionné par l'utilisation de réactions incinérateurs.

de RNR. On s'attachera alors ici à montrer la faisabilité, ou non, de l'incinération des AM seuls en réacteur à sels fondus, en vue d'autres études plus précises (projets MIMOSA ou ISAC par exemple).

6.2 Contraintes de modélisation

Le prédimensionnement d'un réacteur incinérateur en vue de la construction d'un démonstrateur nécessite un certain nombre d'hypothèses. Elles sont liées, d'une part, à des contraintes scientifiques – puissance spécifique en cœur maximale, solubilité, criticité... Elles sont, d'autre part, liées à des contraintes industrielles – puissance du réacteur, retraitement, enrichissement du chlore... Les différentes hypothèses sont explicitées dans cette section.

6.2.1 Contraintes physiques et chimiques

Le chapitre 3 a montré que la solubilité des actinides dans un sel chlorure est limitée, bien qu'améliorée par rapport à un sel fluorure. Par ailleurs, le chapitre 4 a donné lieu à l'établissement d'un cas enveloppe de teneurs en plutonium nécessaires pour le démarrage à volume donné, selon la qualité du vecteur isotopique. Ces deux aspects sont à prendre en compte pour les cas d'étude utilisant des combustibles contenant des actinides mineurs, qui *a priori* diminue la qualité du vecteur isotopique et donc le couple [fraction d'actinides / volume du cœur].

L'enrichissement du chlore en ^{37}Cl a montré un intérêt sur la réduction du volume critique, ainsi que sur la production plus faible de ^{36}Cl – radioactif et volatile – par capture sur le ^{35}Cl . Un enrichissement serait donc souhaitable.

La section 4.5 semble conclure qu'une puissance supérieure à $150 \text{ MW}_{\text{th}}/\text{m}^3$ est atteignable malgré les propriétés thermiques des sels chlorures qui sont réduites comparées à celles des sels fluorures. La valeur de $150 \text{ MW}_{\text{th}}/\text{m}^3$ sera cependant conservée ici, puisque de grandes incertitudes existent sur la capacité des sels chlorures à transmettre la chaleur.

En l'état actuel des connaissances du retraitement des chlorures, il semble que les composés trivalents soient plus difficiles à extraire (par exemple PuCl_3). Afin de faciliter les procédés de retraitement, une teneur limitée serait bénéfique, mais aucune contrainte concrète n'est définie sur ce paramètre (faute de données existant sur ce point).

6.2.2 Contraintes industrielles

Du point de vue industriel, un réacteur de volume trop faible n'est pas attractif, car développe une puissance thermique (et donc une consommation annuelle) faible. Un réacteur trop imposant, dit de puissance n'est pas adapté non plus pour une version de démonstration et nécessite un grand inventaire pour le démarrage. Une puissance thermique de 300 MW est choisie, car c'est une puissance de réacteur AMR. À cette puissance, la consommation annuelle d'actinides est de 117 kg/an (équation 1.4), soit un vingtième de ce qui est produit en actinides mineurs chaque année dans le parc électronucléaire français.

Par ailleurs, le retraitement du combustible nécessite un refroidissement préalable des matières de quelques années pour les combustibles usés REP. Ainsi, l'hypothèse de réinjection directe effectuée jusqu'à présent doit être justifiée, en comparant différentes durées de refroidissement/retraitement avant réinjection. Ceci est discuté en section 6.2.3.

6.2.3 Hypothèses de retraitement

Dans le cadre des études avec séparation non poussée (type PUREX), il est possible de réinjecter dans le sel combustible le plutonium extrait du sel retraité. On regardera donc l'impact sur l'évolution des configurations 100% plutonium de la réinjection ou non du plutonium dans le sel combustible avec une efficacité de séparation de 100%. Pour les simulations plutonium + actinides mineurs, l'uranium est cette fois réinjecté dans le circuit combustible, avec les TRU, au vu de son impact important sur la radiotoxicité des CSD-V (section 4.4.9).

Jusqu'à présent, le retraitement modélisé consistait à garder dans le réacteur les transuraniens par réinjection instantanée. L'avantage de cette modélisation est d'éviter de simuler des zones où la matière transite, ce qui augmente le temps de calcul (résolution de l'équation de Bateman). Cependant, cette modélisation est éloignée de ce qui sera réalisé dans un réacteur en fonctionnement, où le sel devra diminuer en puissance thermique (décroissances et désexcitations) avant de pouvoir être retraité. Se pose alors la question de l'impact de la modélisation du retraitement sur l'évolution des matières en cœur. On propose de simuler le fonctionnement des réacteurs plutonium + actinides mineurs avec différents temps de refroidissement avant retraitement et réinjection (0 à 5 ans), avec un retraitement dit explicite.

La figure 6.2 présente le processus de retraitement appliqué aux simulations RAPTOR plutonium + actinides mineurs. La première séparation PF/(U+TRU) est le retraitement que l'on souhaite modéliser avec un refroidissement au préalable. On garde l'uranium en cœur désormais, suite à l'analyse de la radiotoxicité des CSD-V en section 4.4.7. La modélisation de plusieurs réservoirs d'attente (stockage temporaire de sel) est nécessaire pour le temps d'attente avant le retraitement du sel combustible à cause de la modélisation de la circulation du sel (\approx décroissance chimique). Les flux étant continus, il est nécessaire d'isoler le sel suffisamment longtemps hors du circuit combustible pour qu'en moyenne le sel à l'extérieur ait attendu la durée objectif. Le nombre de douze réservoirs a été choisi pour faciliter la conversion du temps de refroidissement total (en années) en temps d'attente pour chaque réservoir (en mois). Le circuit de retraitement du réacteur une fois construit ne devrait comporter qu'un seul réservoir d'entreposage de sel.

Cependant, la simulation de 12 réservoirs de sel combustible non traité pose de nombreux défis au code REM, puisque l'équation de Bateman doit être résolue pour chaque isotope dans toutes les zones du réacteur. Cela donne lieu à des matrices gigantesques et non dénuées d'erreur au cours de la simulation. Afin de pallier ces difficultés, CALCIFER rajoute le temps manquant de refroidissement avant le calcul de la production de CSD-V et de leur radiotoxicité.

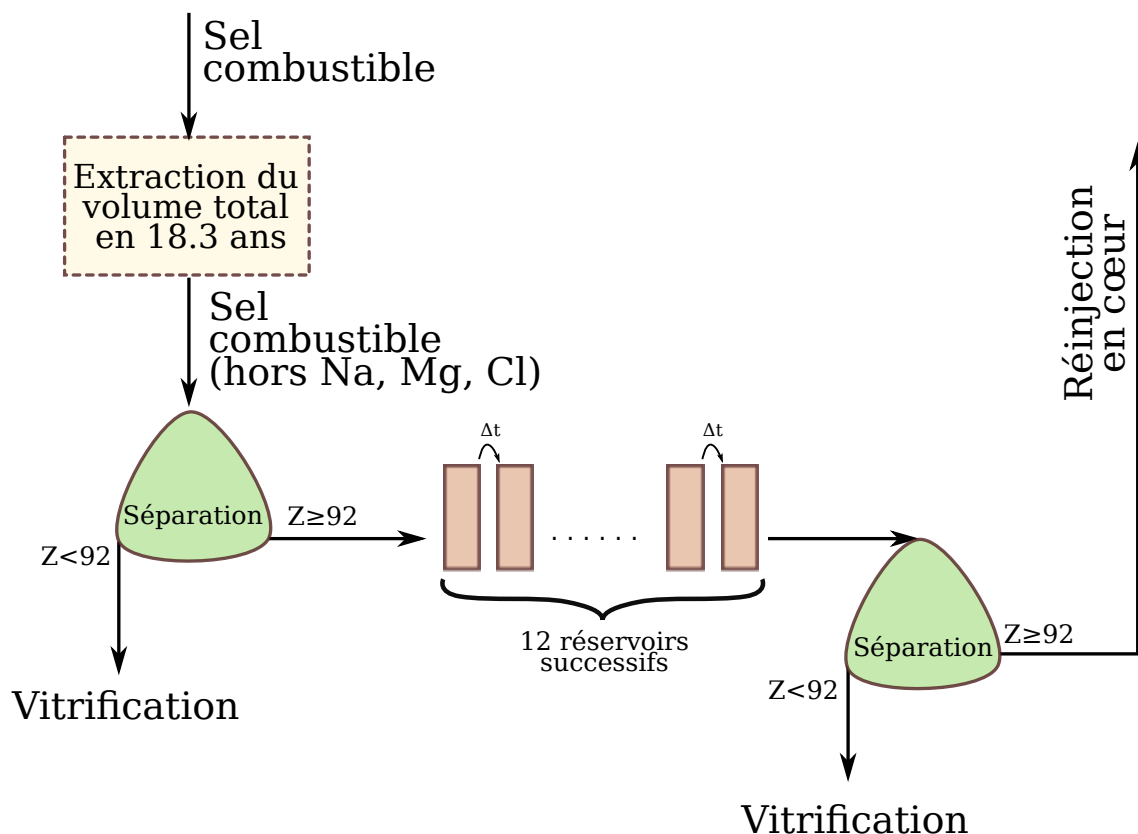


FIGURE 6.2 – Schéma du circuit de retraitement avec les deux séparations PF/(U+TRU), ainsi que les réservoirs pour simuler le refroidissement du sel combustible

6.2.4 Résumé du concept RAPTOR

Au vu des contraintes identifiées, le concept RAPTOR est un réacteur de $300 \text{ MW}_{\text{th}}$, $150 \text{ MW}_{\text{th}}/\text{m}^3_{\text{cœur}}$, soit 2 m^3 de sel combustible en cœur et 4 m^3 total. Les matériaux et épaisseurs sont identiques aux études avec le plutonium seul (acier 316H et protection en B_4C), du chapitre 4.

Le concept RAPTOR a pour objectif de pouvoir être alimenté par des combustibles très différents (Pu, Pu+AM, AM), incorporés dans un sel solvant NaCl-MgCl_2 dont la teneur permet de respecter la ligne eutectique. Le sel combustible utilise un chlore enrichi à 99% en ^{37}Cl .

Le tableau 6.1 présente les caractéristiques des sept configurations étudiées avec les vecteurs utilisés au démarrage et pour l'alimentation. La figure 6.3 illustre ce tableau en représentant les flux de matières des différentes configurations. Ces vecteurs sont détaillés dans le tableau 6.2. Les cas PAU et PAM sont déjà un mélange Pu/AM calculé de manière à équilibrer les flux produits dans le parc français, car les données sont accessibles. Concernant le cas PAI, le plutonium est multirecyclé et son incinération n'interviendrait qu'en cas d'arrêt du nucléaire de fission. Deux études porteront sur les AM ex-MIX + ex-UOX, une avec adjonction de plutonium ex-MIX au démarrage (en proportion à calculer), afin d'améliorer le vecteur isotopique, et une avec uniquement les AM afin d'étudier la faisabilité d'un tel cas extrême pour la fermeture du cycle du combustible. Dans toutes les configurations hors PAI, les vecteurs de démarrage sont identiques au vecteur d'alimentation. Dans le cas de PAI, l'alimentation se fait uniquement avec un mélange d'actinides mineurs ex-UOX+ex-MIX.

Les scénarios sans séparation poussée compareront l'impact de l'extraction et la réinjection du plutonium (simulations hC/iC : figures 6.3a, 6.3b et 6.3c). Tous les autres éléments, hors solvant, sont systématiquement extraits. Les scénarios avec séparation avancée seront focalisés sur l'influence du temps de réinjection du sel retraité sur la neutronique du sel combustible (figures 6.3d, 6.3e et 6.3f). Seuls les éléments du solvant, ainsi que l'uranium et les TRU, sont réinjectés dans le circuit combustible.

Les vecteurs de démarrage et d'alimentation listés en figure 6.2 montrent une dégradation de la qualité fissile avec les réutilisations successives du plutonium (ex-UOX → ex-MOX → ex-MIX).

TABLEAU 6.1 – Cas étudiés de valorisation des matières radioactives selon le cycle du combustible

Nom simulation	PU Pu ex-UOX	PAU Pu + AM ex-UOX	PM Pu ex-MOX	PAM Pu + AM ex-MOX	PI Pu ex-MIX	PAI Pu + AM ex-MIX	AI AM ex-MIX
Cycle	Ouvert			Semi-fermé ⁺			Fermé
Démarrage				(Pu + AM) ex-MOX + AM ex-UOX	Pu ex-MIX	(Pu + AM) ex-MIX + AM ex-UOX AM	AM ex-MIX + AM ex-UOX
Alimentation	Pu ex-UOX	(Pu + AM) ex-UOX	Pu ex-MOX	(Pu + AM) ex-MOX + AM ex-UOX	Pu ex-MIX	(Pu + AM) ex-MIX + AM ex-UOX AM	AM ex-MIX + AM ex-UOX
Extraction	Tous Z sauf 11, 12, 17, 94 (Pu _i C) ---OU---	Tous Z sauf 11, 12, 17, U et TRU extraits et réinjectés	Tous Z sauf 11, 12, 17, 94 (PM _i C) ---OU---	Tous Z sauf 11, 12, 17, U et TRU extraits et réinjectés	Tous Z sauf 11, 12, 17, 94 (Pi _i C ^a) ---OU---	Tous Z sauf 11, 12, 17, U et TRU extraits et réinjectés	Tous Z sauf 11, 12, 17, U et TRU extraits et réinjectés
Temps de séjour extérieur avant réinjection	N.A.	[0,5] ans	N.A.	[0,5]	N.A.	[0,5]	[0,5]

^a iC : Pu en cœur, hC : Pu hors cœur

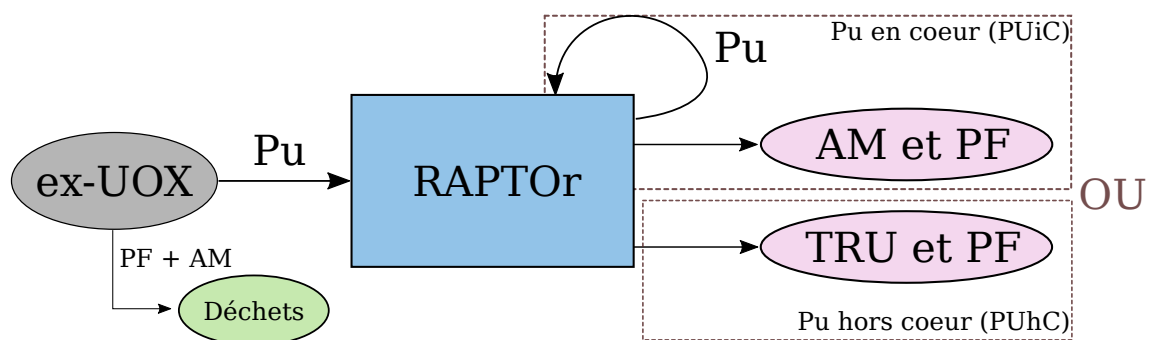
TABLEAU 6.2 – Vecteurs de plutonium et plutonium + actinides mineurs pour les simulations RAPTOR

Z	A	PU ^a	PAU ^a	PM ^a	PAM ^a	PI ^b	AI ^b
94	238	3.10E-2	2.76E-2	4.21E-2	3.25E-2	5.71E-2	
	239	5.21E-1	4.64E-1	3.82E-1	2.95E-1	3.24E-1	
	240	2.52E-1	2.24E-1	3.24E-1	2.50E-1	3.13E-1	
	241	1.18E-1	1.05E-1	1.25E-1	9.62E-2	1.38E-1	
	242	7.76E-2	6.90E-2	1.27E-1	9.81E-2	1.68E-1	
93	237		5.41E-2		7.66E-2		1.80E-1
	241		3.31E-2		8.75E-2		4.31E-1
95	242m		9.00E-5		6.00E-4		6.69E-3
	243		1.62E-2		4.40E-2		2.57E-1
96	243		5.00E-5		2.00E-4		9.44E-4
	244		6.00E-3		1.74E-2		1.07E-1
	245		5.00E-4		1.80E-3		1.55E-2
	246		6.00E-5		2.00E-4		1.08E-3
Teneur fissile ^c [%]		63.9	50.6	46.2	57.0	39.3	2.3

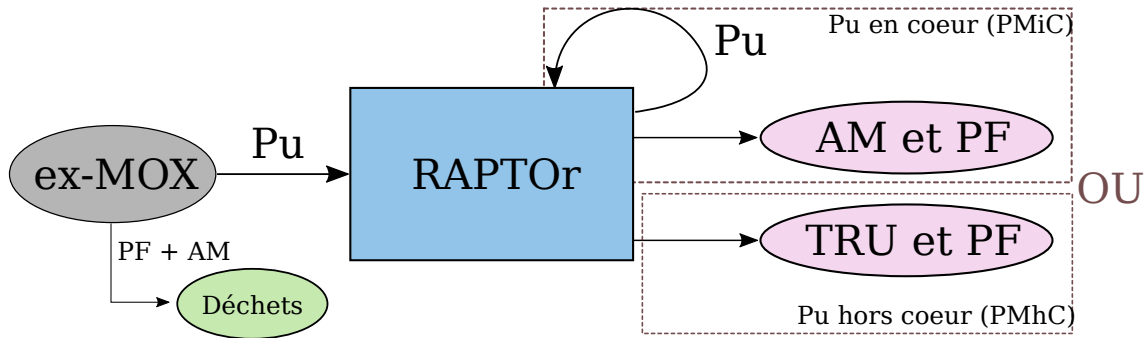
^a Calculs CESAR [103], irradiation à $50 \text{ GW}_{\text{th}} \cdot \text{j/t}$, 5 ans de refroidissement, issus de [104]

^b Calculs SMURE [123], irradiation à $50 \text{ GW}_{\text{th}} \cdot \text{j/t}$, 5 ans de refroidissement, issus de [104]

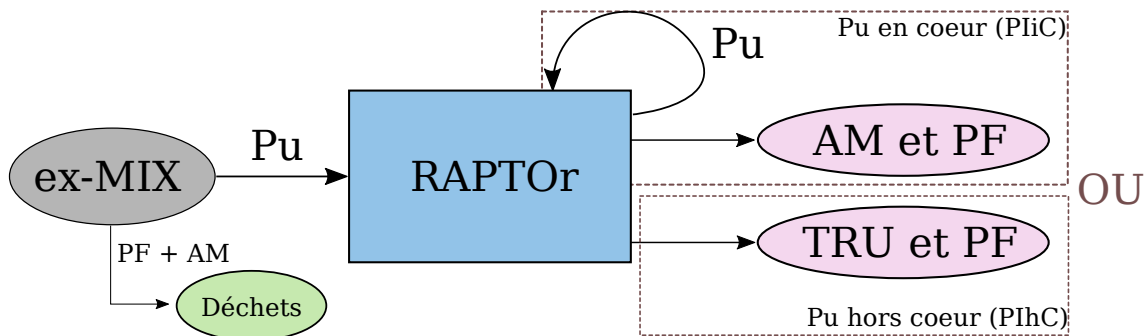
^c Selon la définition de la section 1.2.2



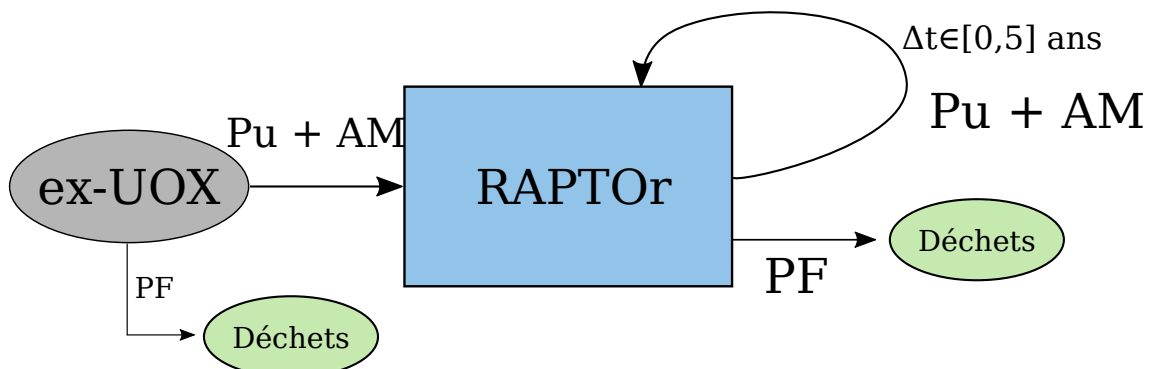
(a) Scénario PU : combustible disponible dans le cycle ouvert avec la séparation actuelle



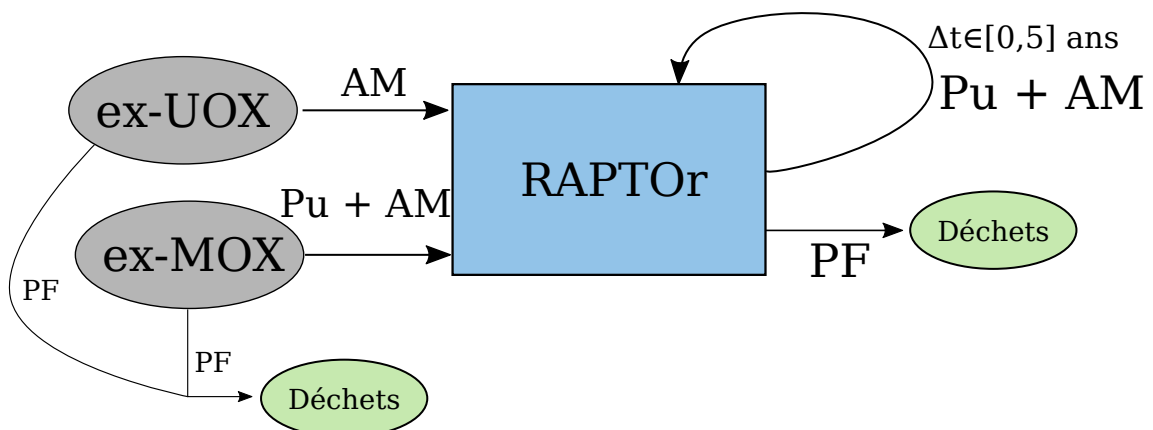
(b) Scénario PM : combustible disponible dans le cycle semi-fermé avec la séparation actuelle



(c) Scénario PI : combustible disponible dans le cycle fermé avec la séparation actuelle



(d) Scénario PAU : combustible disponible dans le cycle ouvert avec la séparation poussée



(e) Scénario PAM : combustible disponible dans le cycle semi-fermé avec la séparation poussée

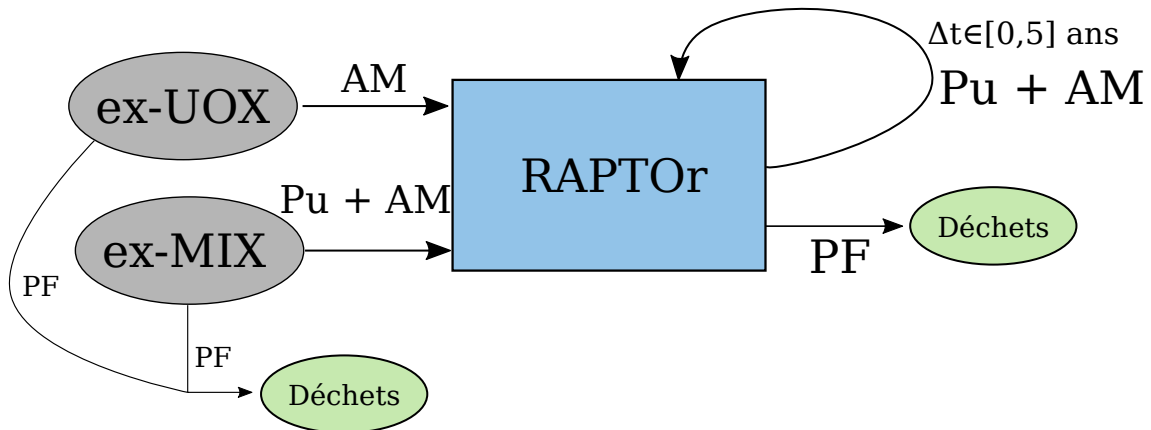
(f) Scénario PAI : combustible disponible dans le cycle semi-fermé⁺ avec la séparation poussée

FIGURE 6.3 – Combustibles disponibles et utilisés dans les RAPTOOr selon les scénarios du combustible considérés et le type de séparation

6.3 Caractérisation des sept configurations au démarrage

Les cas PU, PM et PI sont des cas particuliers des études plutonium du chapitre 4. Il s'agit ici de déterminer la teneur en plutonium pour que le réacteur soit critique avec un volume de 2 m³. Les actinides mineurs sont assimilés à du plutonium pour le calcul de la composition du sel combustible, en suivant l'eutectique du diagramme ternaire.

Pour PAI, l'ajout d'un peu de plutonium ex-MIX permet de réduire la proportion d'actinides dans le sel (amélioration de la qualité fissile), sans toutefois impliquer un trop grand écart à la composition d'équilibre. En effet, la phase transitoire de fonctionnement du réacteur comprend deux aspects : évolution de la composition par fission des actinides avec apparition des PF et AM, et évolution de la composition pour équilibrer avec le vecteur d'alimentation. Les actinides mineurs alimentés sont très peu fissiles, contrairement au plutonium qui sera rapidement consommé (tableau 6.2). Trop de plutonium au démarrage implique un grand changement dans la composition du sel et la simulation de l'évolution peut conduire à des instabilités numériques. Concrètement, un tel réacteur poserait des difficultés côté retraitement, qui changerait notablement durant son fonctionnement.

La figure 6.4 représente le diagramme ternaire avec la teneur de démarrage de chaque configuration indiquée le long de la ligne eutectique pour une zone critique de 2 m³. Les compositions complètes sont listées dans le tableau 6.3, où le cas PAI contient 40% de plutonium ex-MIX au démarrage et 60% d'actinides mineurs, résultant en une teneur en actinides dans le sel de 20.1%. La teneur en noyaux fissiles diminue lorsque le vecteur de plutonium est dégradé et que des actinides mineurs sont ajoutés dans le mélange. Ainsi, une plus forte teneur en actinides est nécessaire pour atteindre la masse critique. Il est à noter que la criticité neutronique est atteinte pour le combustible AI (100% actinides mineurs ex-UOX + ex-MIX) avec très peu de magnésium (volume critique minimum), alors que la teneur en fissile est proche de zéro. Cela est rendu possible par le spectre neutronique à haute énergie, faisant fissionner des éléments non fissiles.

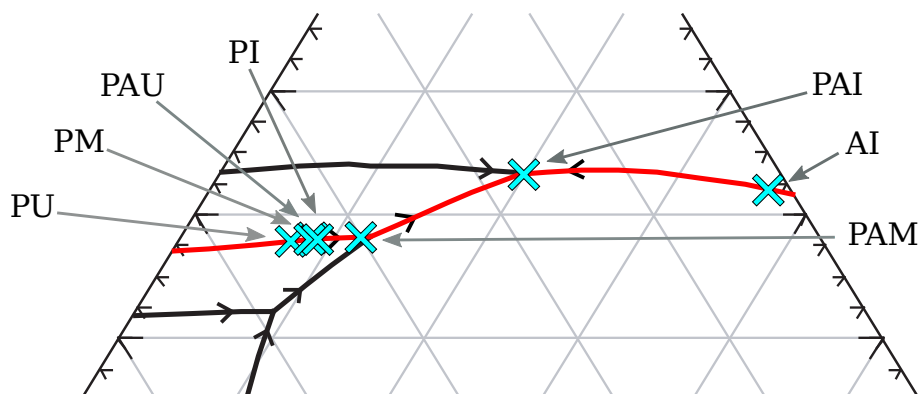


FIGURE 6.4 – Répartition des teneurs en actinides nécessaires au démarrage des RAPTOR le long de la ligne eutectique (d'après [102])

TABLEAU 6.3 – Composition de démarrage du sel combustible des configurations RAPTOR considérés

Scénario	Composition du sel combustible	Teneur fissile ^a [%]
PU	7.3 PuCl ₃ - 34.9 MgCl ₂ - 57.8 NaCl	63.9
PAU	8.6 (TRU)Cl ₃ - 33.5 MgCl ₂ - 57.9 NaCl	57.0
PM	8.5 PuCl ₃ - 33.6 MgCl ₂ - 57.9 NaCl	50.6
PAM	11.8 (TRU)Cl ₃ - 30.0 MgCl ₂ - 58.2 NaCl	39.3
PI	8.9 PuCl ₃ - 33.1 MgCl ₂ - 58.0 NaCl	46.2
PAI	20.1 (TRU)Cl ₃ - 17.4 MgCl ₂ - 62.5 NaCl	19.9
AI	36.0 PuCl ₃ - 1.8 MgCl ₂ - 62.2 NaCl	2.3

^a Selon la définition de la section 1.2.2

La figure 6.5 montre le spectre neutronique en cœur de chaque configuration. Les cas 100% plutonium sont indissociables visuellement, puisque les teneurs d'actinides sont proches. Les cas avec actinides mineurs montrent en revanche un spectre un peu plus rapide, de par leur teneur en actinides plus importante (moins de diffusions sur le solvant).

De même que pour les cas du chapitre 4, une évaluation des capacités de fission au démarrage est nécessaire. La figure 6.6 montre l'estimation globale du potentiel incinérateur de chaque configuration. Ce qui est observé est une image de la teneur de TRU au démarrage. Les vecteurs de meilleure qualité fissile tendent à nécessiter de faibles teneurs et vice-versa lorsque le volume de la zone critique est identique (section 4.3). L'ajout d'actinides mineurs dégrade fortement la proportion de fissions, car la moitié de ces éléments fissionnent plus difficilement.

Le cas AI, 100% actinides mineurs, a la capacité de fission au démarrage la plus faible des sept configurations. Les actinides mineurs de ce cas sont très peu fissiles (2.3%), mais la teneur en TRU très importante dans le sel et le spectre neutronique rapide associé permettent tout de même d'améliorer le bilan de fission de ces éléments avec près de 70% des absorptions qui résultent en fissions.

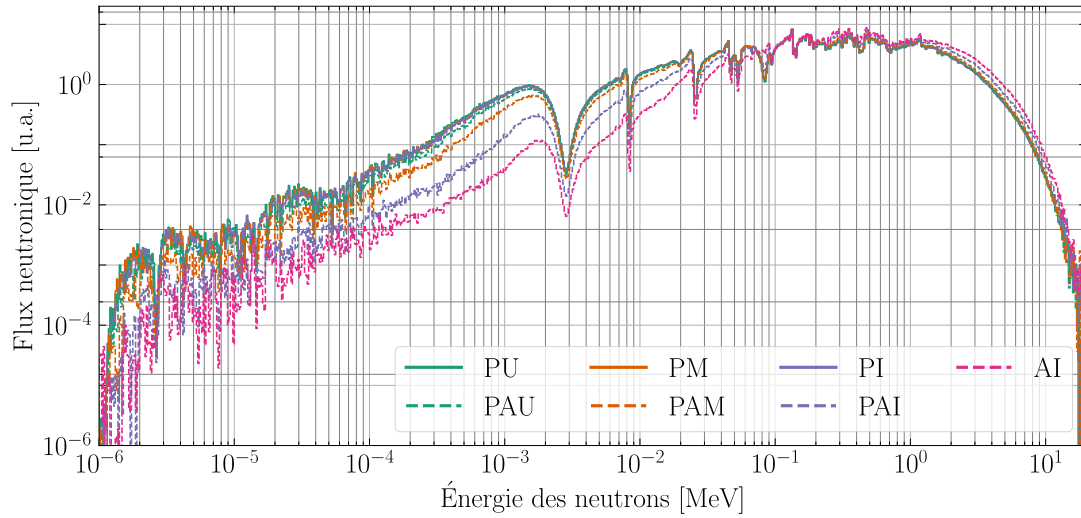


FIGURE 6.5 – Spectres neutroniques en cœur pour les sept configurations de RAPTOR

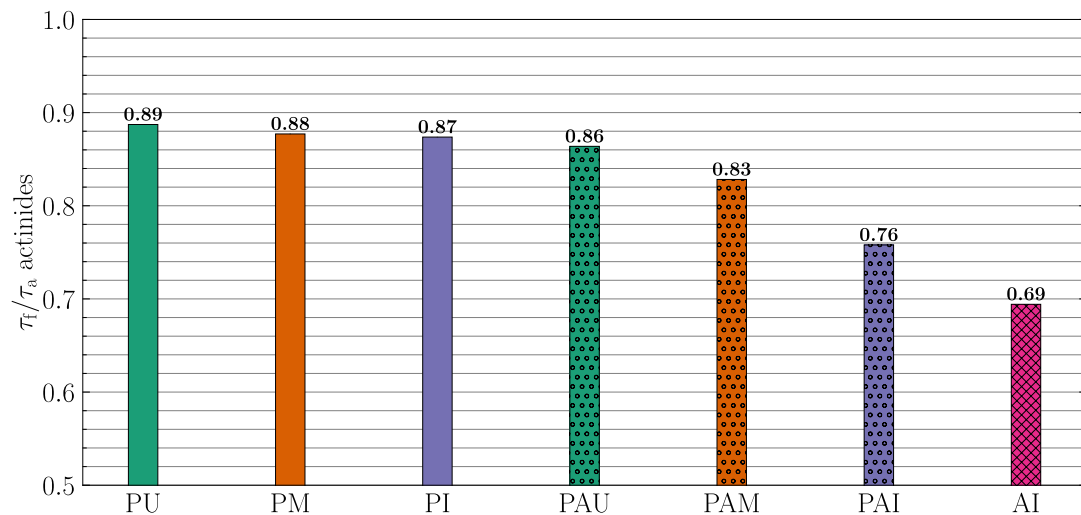


FIGURE 6.6 – Évaluation de la capacité de fission des RAPTOR au démarrage

6.4 Caractérisation temporelle des matières

La caractérisation est faite de manière séparée entre les simulations plutonium (séparation actuelle) et plutonium/actinides mineurs (séparation poussée) pour que les figures soient lisibles. L'étude des configurations alimentées uniquement en plutonium est d'abord présentée en section 6.4.1, puis les cas alimentés en plutonium + actinides mineurs sont détaillés en section 6.4.2, avec discussion de la modélisation du retraitement en section 6.4.3. Le cas particulier de la configuration 100% actinides mineurs est étudié en section 6.4.4 Enfin, le bilan de production de soufre et de ^{36}Cl est effectué en section 6.4.5.

6.4.1 Évolution temporelle des cas 100% plutonium : réinjection du plutonium ?

Parmi les scénarios envisagés, le plutonium peut être extrait avec les AM et PF – similaire à un cycle ouvert – ou être séparé et être réinjecté (multirecyclage). On regarde ici l'effet de l'extraction du plutonium sur l'évolution du cœur.

6.4.1.a Évolution des actinides en cœur

La figure 6.7 compare l'évolution massique des transuraniens. L'extraction du plutonium implique dans les trois cas une production plus réduite d'actinides mineurs. En effet, l'extraction du plutonium diminue la réactivité du sel combustible, impliquant une plus grande alimentation pour la compenser (figure 6.8). Le vecteur isotopique est alors amélioré par l'arrivée de plutonium frais, ce qui retarde la production d'actinides mineurs.

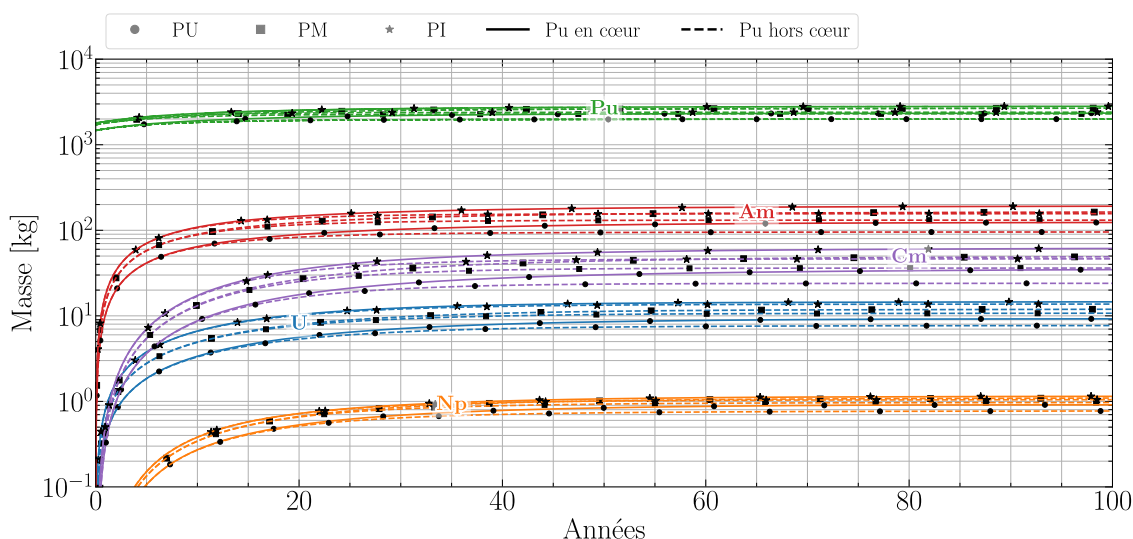


FIGURE 6.7 – Évolution massique des actinides principaux en cœur selon le retraitement du plutonium pour les simulations RAPTOR plutonium (PU, PM et PI)

6.4.1.b Alimentation

La figure 6.8 montre l'alimentation plus importante pour les cas avec extraction de plutonium, puisque la perte de réactivité doit être compensée. La valeur stationnaire de la compensation dépend cependant du vecteur d'alimentation, car le volume d'extraction est identique à toutes les configurations et que le volume de plutonium extrait est plus important dans le cas PI que PU (plus concentré en Pu).

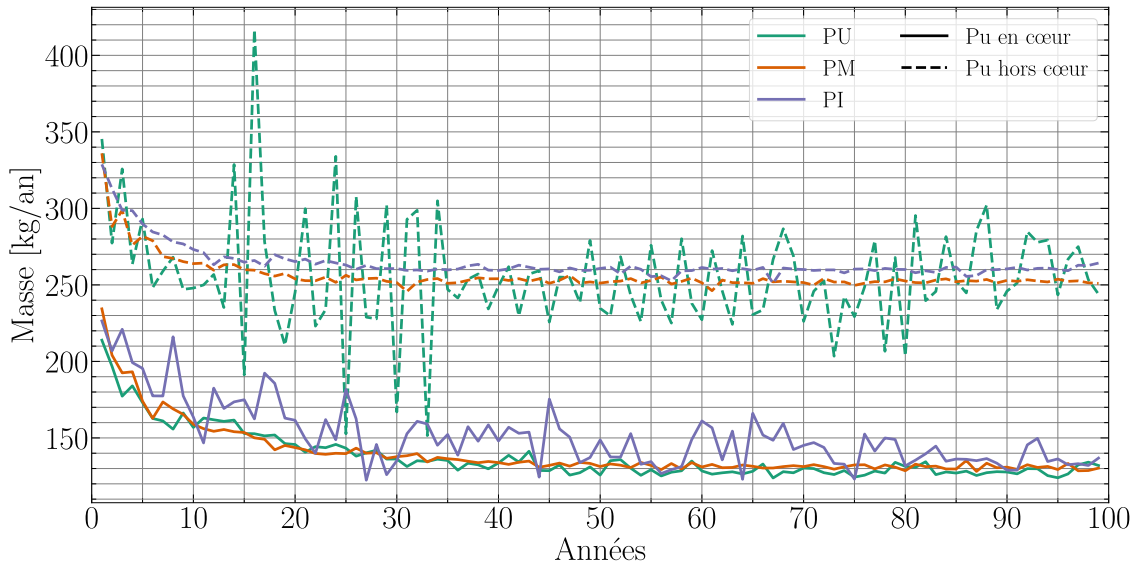


FIGURE 6.8 – Alimentation annuelle selon le retraitement du plutonium pour les simulations RAPTOR plutonium

6.4.1.c Répartition isotopique des transuraniens

Ainsi que déjà explicité, l'extraction du plutonium implique une alimentation plus grande pour compenser la perte de réactivité. On illustre la problématique de la réinjection du plutonium avec le cas PM. L'isotopie du plutonium résultante est meilleure, car peu de captures ont eu le temps de se produire (figure 6.9). L'extraction du plutonium permet également de limiter la production d'actinides mineurs de plus en plus lourds, surtout pour l'américium avec un ^{243}Am présent à hauteur de 54% de l'isotopie dans le cas PMiC contre 46% avec extraction du plutonium (figure 6.10). L'effet de cette extraction sur l'isotopie du curium est fortement réduit puisque les écarts sont de l'ordre de 2% sur la répartition des isotopes (figure 6.11).

Comme pour le curium, l'isotopie de l'uranium produit dépend peu de la gestion du plutonium (figure 6.12). Les captures sur ^{234}U sont plus nombreuses pour lorsque le plutonium est réinjecté. La baisse de la qualité isotopique du plutonium rend les captures un peu plus probables que pour le cas avec extraction de plutonium, où l'injection de combustible neuf garde un spectre neutronique un peu plus rapide (figure 6.9).

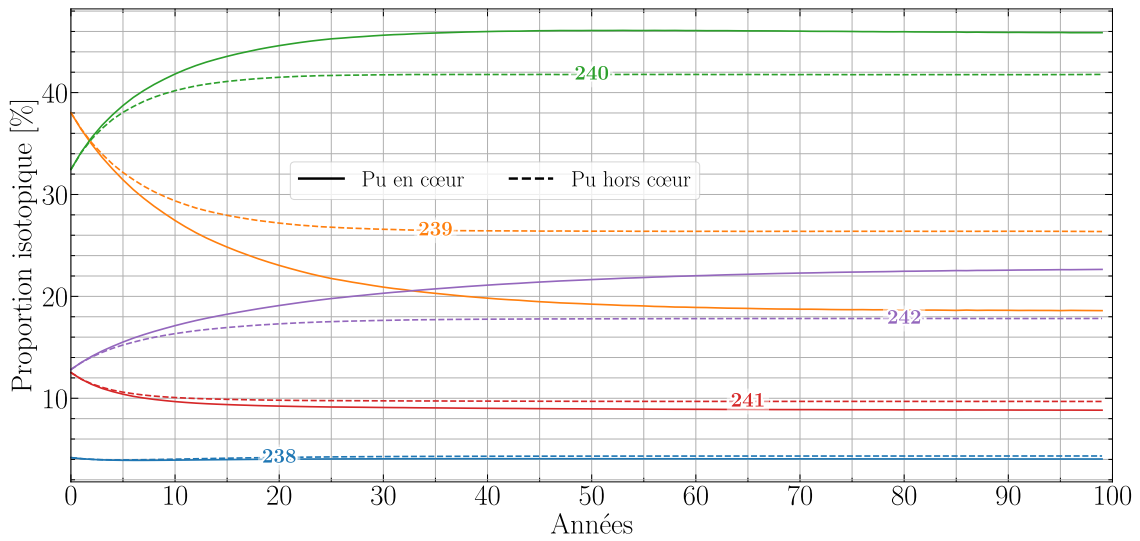


FIGURE 6.9 – Évolution temporelle du vecteur isotopique de plutonium selon la gestion du plutonium pour le cas PM

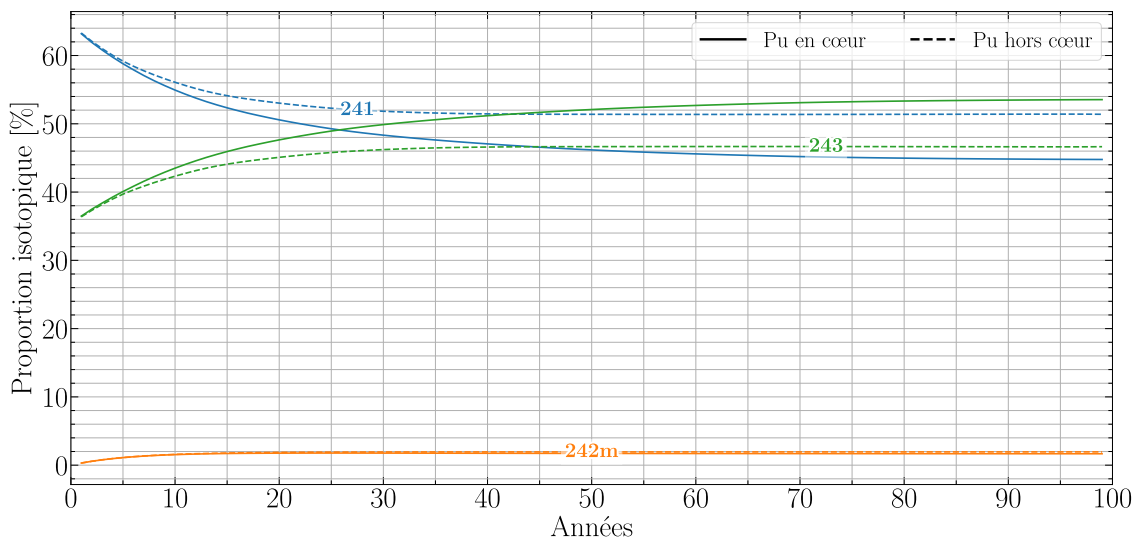


FIGURE 6.10 – Évolution temporelle du vecteur isotopique de l'américium selon la gestion du plutonium pour le cas PM

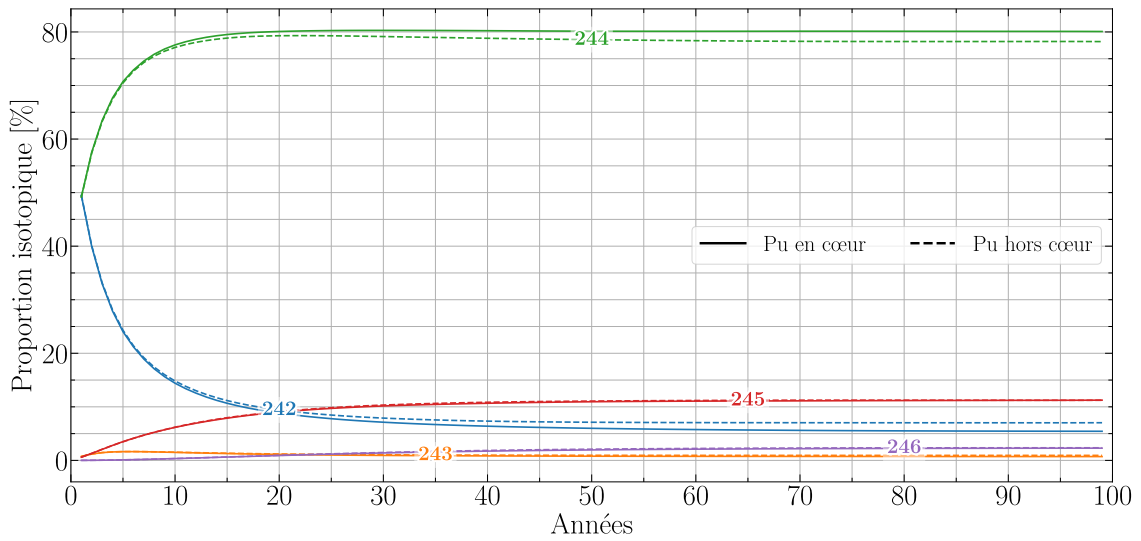


FIGURE 6.11 – Évolution temporelle du vecteur isotopique de curium selon la gestion du plutonium pour le cas PM

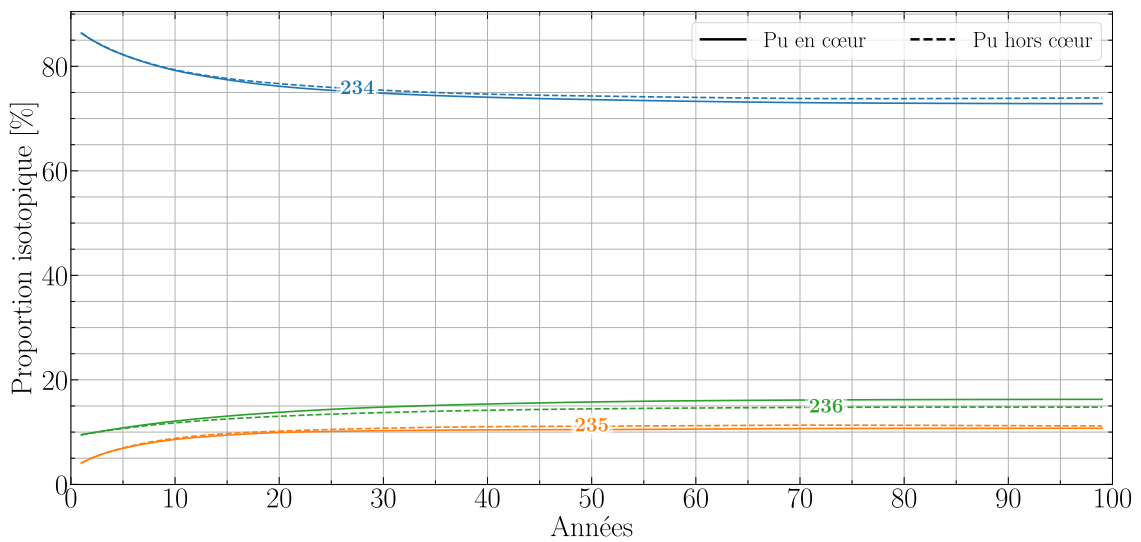


FIGURE 6.12 – Évolution temporelle du vecteur isotopique d'uranium selon la gestion du plutonium pour le cas PM

6.4.1.d Évolution de la composition du sel combustible

La réinjection instantanée du plutonium implique un vecteur plus dégradé que le cas avec extraction du plutonium avec les actinides mineurs et les produits de fission. Le tableau 6.4 montre que l'augmentation de la teneur en actinides est de 30% pour les cas avec extraction, et 50% pour une réinjection directe du plutonium.

TABLEAU 6.4 – Évolution temporelle de la teneur molaire en actinides pour les trois configurations plutonium avec comparaison de la gestion du plutonium et avec l'évolution relative entre le démarrage et l'état stationnaire à 50 ans

Simulation	Gestion Pu	Teneur initiale	20 ans	50 ans	Δx_{AN} [%]
PU	réinjection	7.3	10.1	10.8	49.3
	extraction	7.3	9.4	9.5	30.9
PM	réinjection	8.5	11.8	12.6	47.9
	extraction	8.5	11.0	11.2	31.5
PI	réinjection	8.9	12.2	13.1	48.3
	extraction	8.9	11.5	11.7	31.4

6.4.2 Évolution temporelle des cas plutonium + actinides mineurs

Les simulations avec actinides mineurs sont d'abord étudiées avec réinjection instantanée de l'uranium et des transuraniens.

6.4.2.a Masses d'uranium et des transuraniens en cœur

L'évolution massique des actinides principaux pour les simulations PAU, PAM et PAI est présentée en figure 6.13. On constate l'augmentation des masses de transuraniens (hors Np) pour PAU et PAM par l'alimentation pour compenser la baisse de réactivité du sel combustible (PF). Le neptunium tend à être très consommé et se stabilise à une masse inférieure (PAM) ou égale (PAU) à sa masse initiale. La production d'uranium est également importante et atteinte presque pour moitié la masse de neptunium à 100 ans de fonctionnement. On remarque pour PAU et PAM que la masse de chaque élément tend vers une valeur identique malgré des vecteurs d'alimentation différents.

Le cas PAI montre une forte production d'uranium malgré l'absence de plutonium dans l'alimentation (uniquement AM). Cet uranium provient de la décroissance du ^{238}Pu , produit dans le sel combustible. La mécanique de cette production est détaillée en section 6.4.2.c. La fluctuation des masses dépend principalement de l'alimentation (figure 6.14).

6.4.2.b Alimentation

Les alimentations des trois configurations plutonium + actinides mineurs sont présentées en figure 6.14. L'alimentation de PAI est très fluctuante, ce qui explique les variations observées précédemment sur l'évolution des masses de transuraniens dans le sel combustible. Le comportement de cette alimentation sera expliqué en section 6.4.2.c.

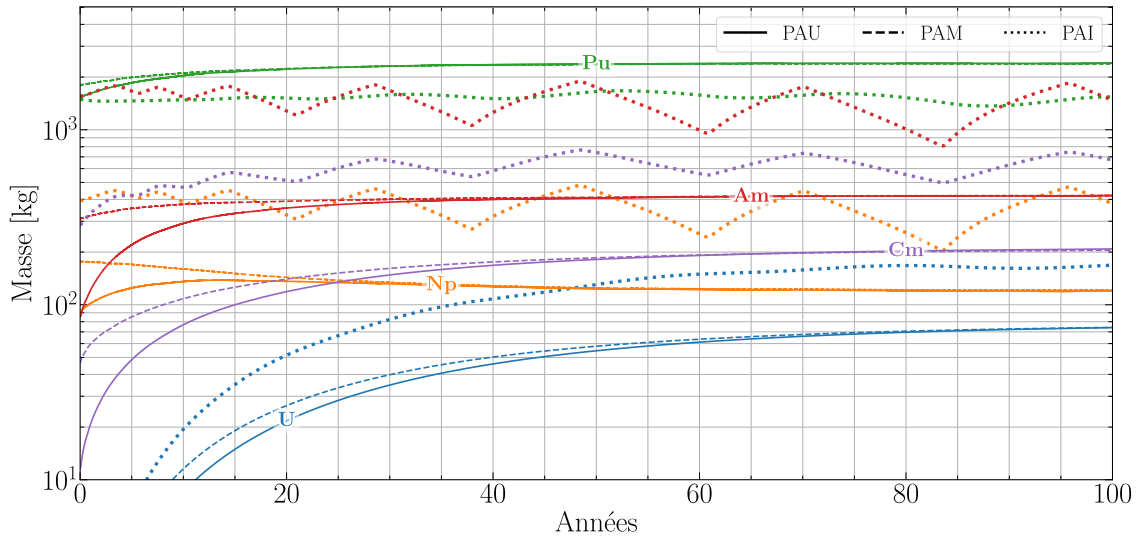


FIGURE 6.13 – Évolution massique des actinides principaux en cœur avec réinjection instantanée U+TRU pour les simulations RAPTOR plutonium + actinides mineurs

Les alimentations de PAU et PAM ont par contre un comportement attendu, avec une suralimentation au démarrage, puis une stabilisation à 50 ans environ à 120 kg/an, soit la masse fissionnée pour produire 300 MW_{th}.

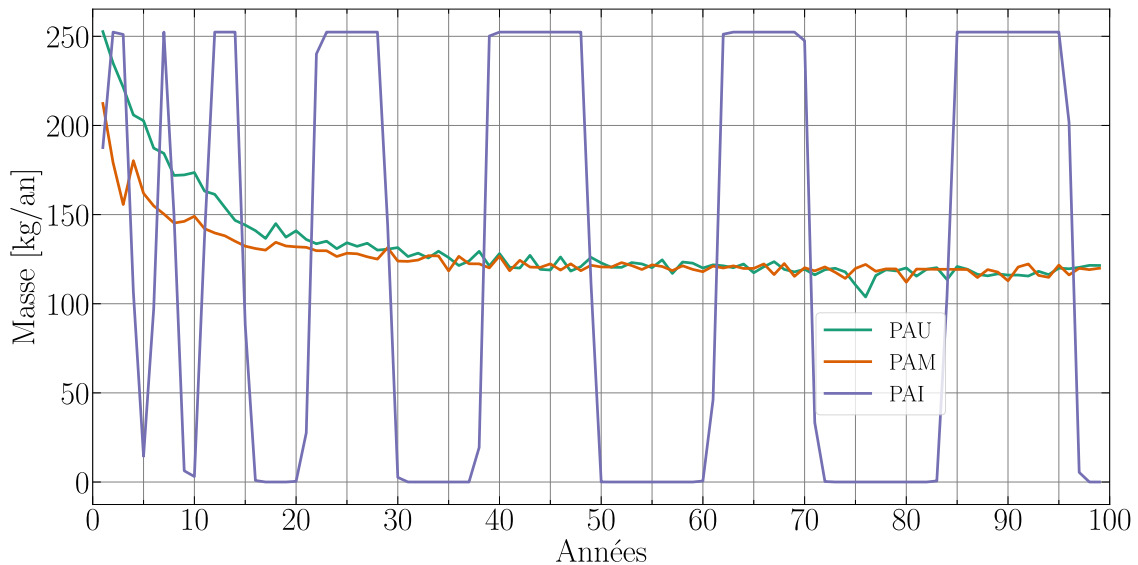


FIGURE 6.14 – Alimentation annuelle pour les simulations RAPTOR plutonium + actinides mineurs avec réinjection instantanée des U+TRU

6.4.2.c Surréactivité introduite par l'américium

Les simulations avec des actinides mineurs mettent en lumière un cycle de production du ^{238}Pu à partir de l' ^{241}Am , très largement présent dans les vecteurs d'alimentation (figure 6.15). Les isotopes d'américium fissionnent mal malgré le spectre neutronique rapide et conduisent à une production de ^{238}Pu , certes non fissile, mais qui fissionne bien mieux que ^{241}Am . Il y a alors une insertion de réactivité à retardement, qui n'est pas

anticipée à ce jour par le code d'évolution REM lorsqu'un contrôle de la réactivité existe. Le ratio de production $^{242}\text{Am}/^{242m}\text{Am}$ à partir de la capture neutronique sur l' ^{241}Am dans le code REM est fixé à 90/10% [132]. Les décroissances des ^{242m}Am en ^{242}Cm seront réduites au vu de la demi-vie de cet isomère et des taux de fission et de capture

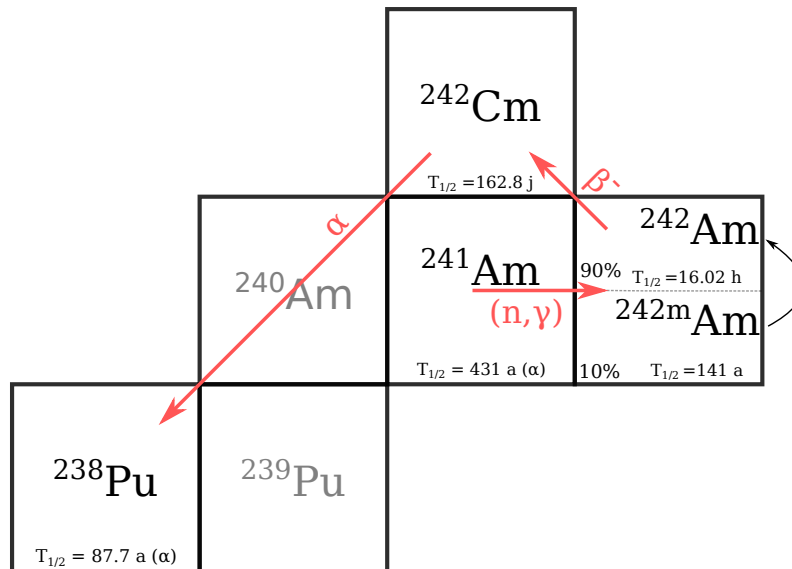


FIGURE 6.15 – Cycle de production du ^{238}Pu à partir de l' ^{241}Am

La figure 6.16 montre l'évolution de la réactivité dans le réacteur PAI (réinjection des U+TRU instantanée). Celle-ci oscille grandement, malgré l'arrêt de l'alimentation dès dépassement de la réactivité cible. Lorsque la réactivité devient négative, l'alimentation reprend avec une augmentation maximum de 10% à chaque ajustement. La décroissance du ^{242}Cm en 162 jours donne une inertie importante au système comme montré en figure 6.17, où l'on peut constater le déphasage entre l'apparition du ^{242}Cm et du ^{238}Cm . La masse de ^{238}Pu évolue lentement (quelques années), mais cet isotope non fissile fissionne bien mieux que l' ^{241}Am alimenté. Toute alimentation en actinides mineurs conduit donc à une sur réactivité progressive par les captures et décroissances successives. Le code REM alimente de manière à contrôler la réactivité à l'instant t et ne peut anticiper la réactivité future due à des décroissances internes dans le combustible.

Le temps d'attente extérieur de 5 ans permet au ^{242}Cm de décroître en partie à l'extérieur, devenant ainsi une source de réactivité réinjectée en continu que REM peut prendre cette fois en compte pour ajuster l'alimentation (figure 6.18). Une période transitoire d'une trentaine d'années reste nécessaire pour que la composition des flux extérieurs se stabilise.

On propose de simuler l'évolution de cette configuration sans contrôle de la réactivité, qui est remplacé par un contrôle de la composition du sel (teneur en actinides x_{AN} fixée à la teneur initiale de 20.1% et qui ne peut être changée au cours de l'évolution). Les figures 6.19 et 6.20 comparent l'évolution selon les deux méthodes de contrôle des cas PAI avec réinjection instantanée et après 5 ans de refroidissement. Ce mode de contrôle permet d'éviter les oscillations de composition et stabilise le comportement du réacteur. On utilisera désormais ce mode de contrôle pour les simulations avec actinides mineurs ex-MIX.

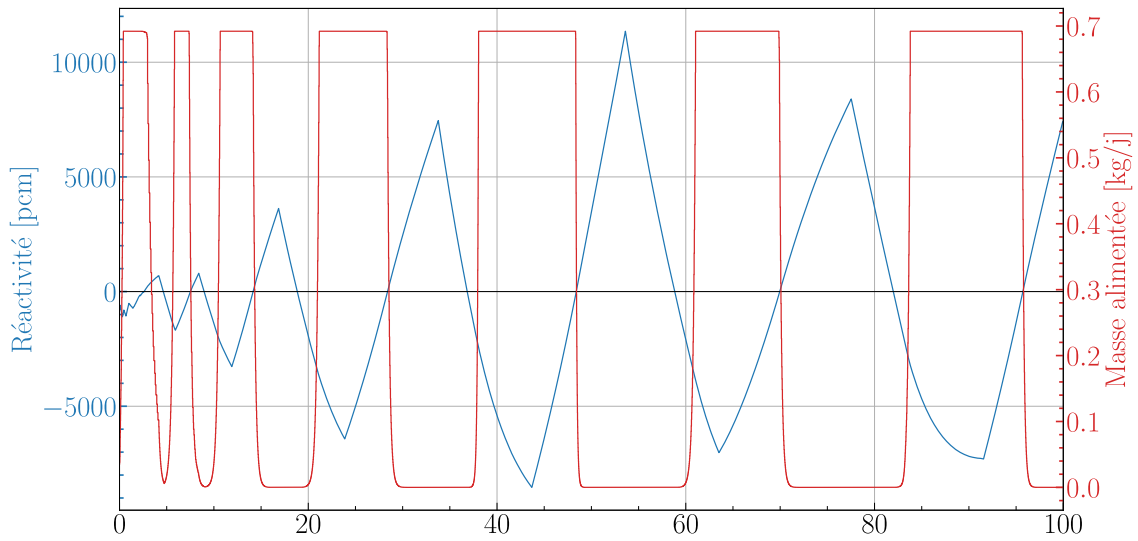


FIGURE 6.16 – Évolution de la réactivité du sel combustible en regard de l'alimentation en actinides mineurs pour le cas PAI avec réinjection instantanée des TRU

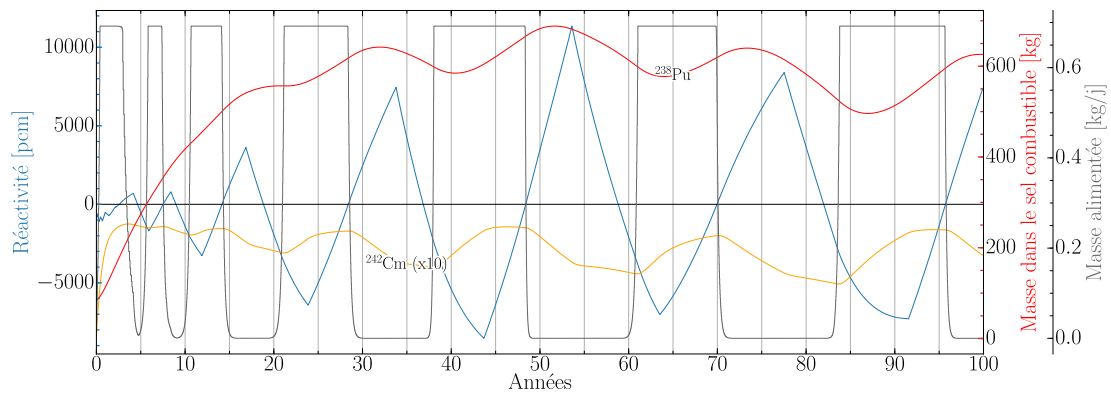


FIGURE 6.17 – Évolution de la réactivité du sel combustible en regard de de la masse de ^{242}Cm et de ^{238}Pu pour le cas PAI avec réinjection instantanée des U+TRU

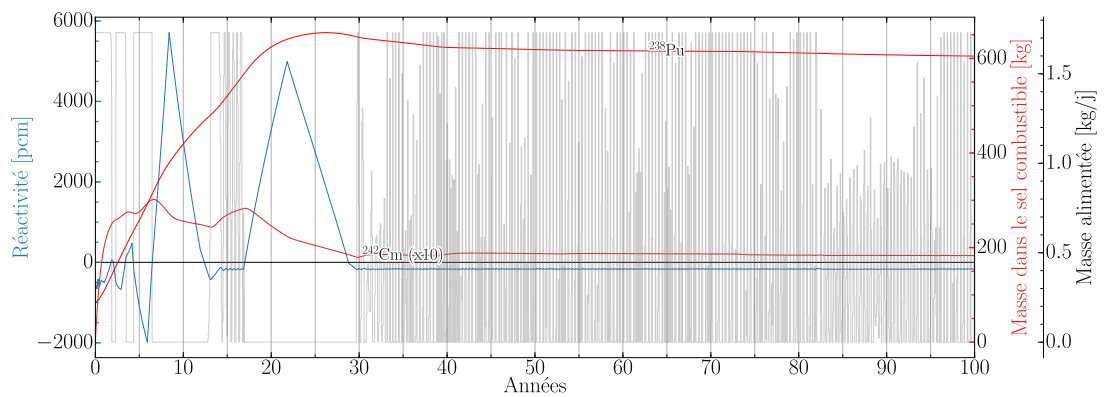


FIGURE 6.18 – Évolution de la réactivité du sel combustible en regard de de la masse de ^{242}Cm et de ^{238}Pu pour le cas PAI avec réinjection à 5 ans des U+TRU

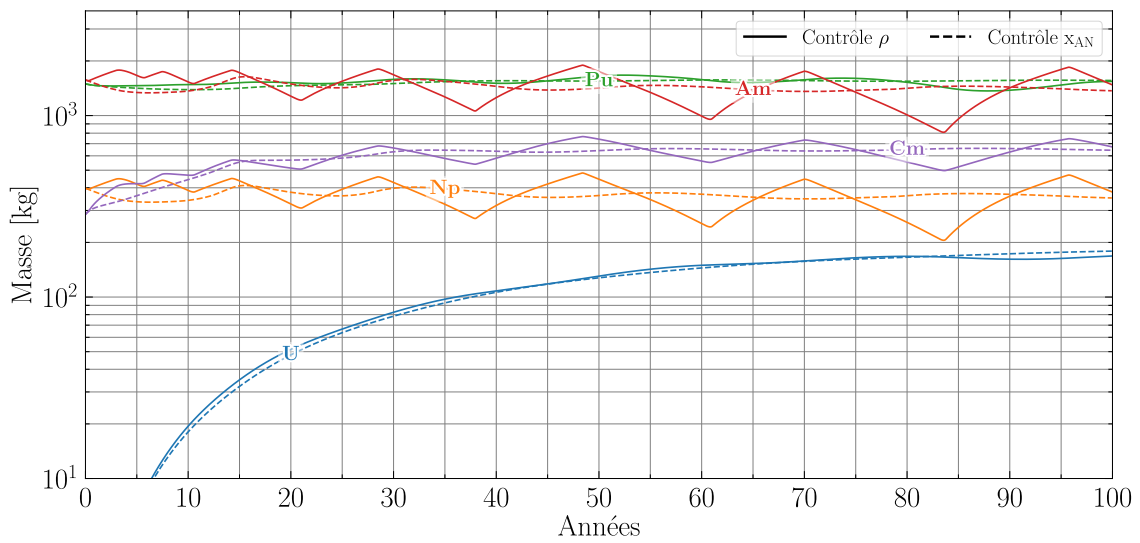


FIGURE 6.19 – Évolution de la masse des transuraniens dans le sel combustible selon le mode de contrôle pour le cas PAI à réinjection directe (ρ : réactivité; x_{AN} : teneur en actinides)

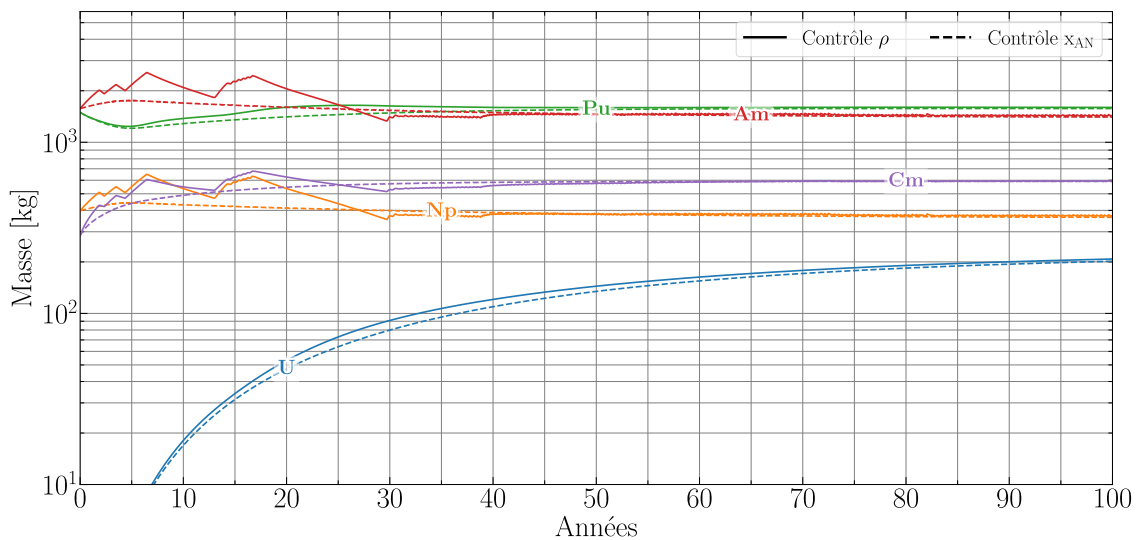


FIGURE 6.20 – Évolution de la masse des transuraniens dans le sel combustible selon le mode de contrôle pour le cas PAI à réinjection après 5 ans à l'extérieur

6.4.3 Retraitement du combustible : explicite ou implicite ?

Le retraitement dit implicite consiste à décrire le retraitement comme uniquement l'extraction des matières d'intérêt (ici les produits de fission) en laissant les autres éléments dans le sel combustible, comme effectué pour les simulations du chapitre 4. Rendre explicite le retraitement consiste alors à extraire tous les éléments du sel et décrire les différentes étapes de séparation, de réinjection et de stockage. Le retraitement explicite nécessite de résoudre les équations de Bateman

On compare ici les évolutions des transuraniens en cœur selon le temps de retraitement extérieur, afin de déterminer si la modélisation du circuit de retraitement possède un impact fort sur la simulation. On s'intéresse au cas PAM, avec 0, 1, 2, 5 ans de temps de retraitement pour le sel extrait, et uniquement 0 et 5 ans de temps de retraitement pour PAU et PAI. Des comparaisons des masses en cœur, des proportions molaires, ainsi que des isotopies de chaque élément sont présentées.

6.4.3.a Évolution massique

La prise en compte du temps de retraitement influe grandement sur les simulations PAU (figure 6.21). L'extraction et réinjection des transuraniens en cinq ans implique une alimentation plus importante pour compenser la perte de réactivité, ce qui améliore la qualité isotopique du combustible.

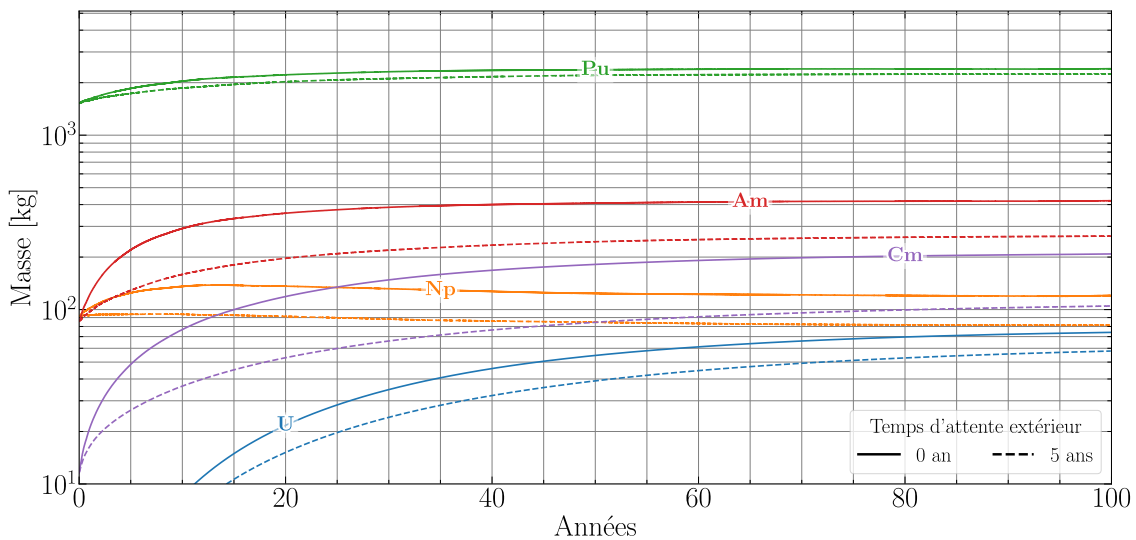


FIGURE 6.21 – Évolution massique des actinides principaux en cœur selon le temps de refroidissement avant réinjection pour les simulations PAU

Pour le cas PAM, le temps de séjour extérieur influe très peu. On observe une baisse de production de curium de quelques pourcents et l'augmentation de la masse d'uranium produit par décroissance du ^{238}Pu de presque 30% pour un sel combustible cinq ans en attente par rapport à une réinjection instantanée (figure 6.22).

Les simulations PAI en figure 6.23 sont particulièrement intéressantes puisque la réinjection permet de stabiliser partiellement l'évolution des matières dans le sel combustible. Ces simulations ont la particularité de ne pas être contrôlées par la réactivité, mais par la proportion d'actinides dans le sel combustible. Le plutonium est fortement consommé les premières années, car très fissile comparé aux AM, avant d'être régénéré

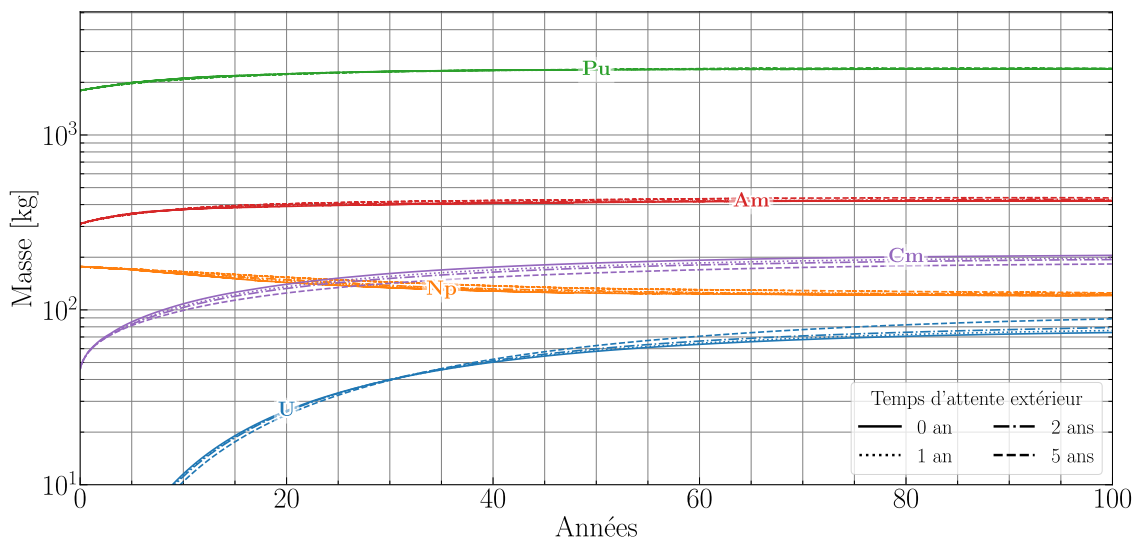


FIGURE 6.22 – Évolution massique des actinides principaux en cœur selon le temps de refroidissement avant réinjection pour les simulations PAM

par le cycle de l' ^{241}Am (section 6.4.2.c). La décroissance à l'extérieur du ^{242}Cm contribue à la stabilité de la composition. Dans ce cas, la simulation du retraitement est essentielle à cause de l'impact fort sur l'évolution des compositions, même si les teneurs des différents transuraniens sont proches.

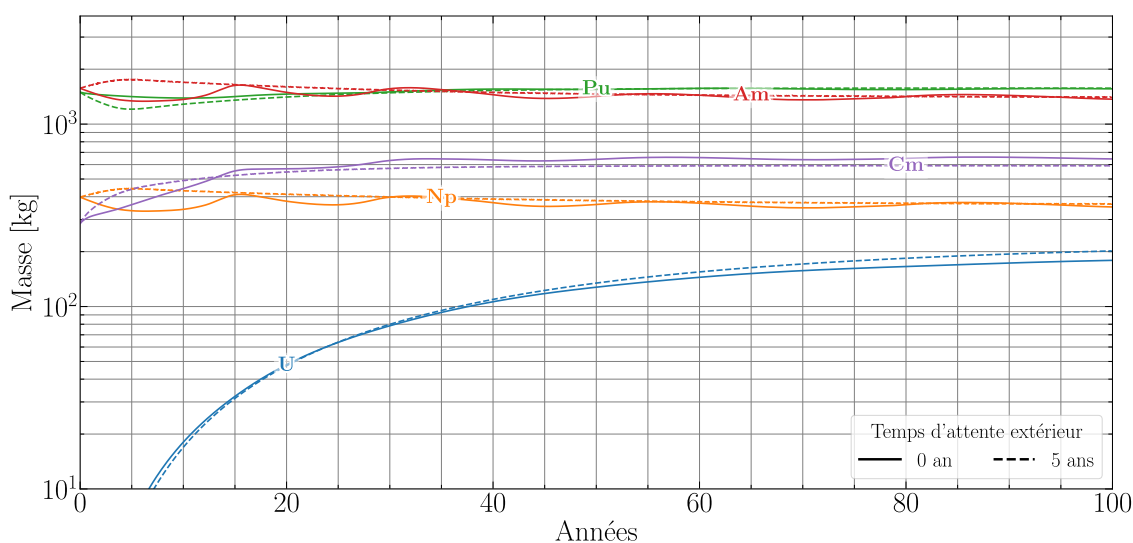


FIGURE 6.23 – Évolution massique des actinides principaux en cœur selon le temps de refroidissement avant réinjection pour les simulations PAI

6.4.3.b Isotopie des transuraniens et de l'uranium

On s'intéresse dans cette partie à l'évolution des isotopies de certains transuraniens et de l'uranium. Par souci de clarté, seul le cas PAU sera ici détaillé. Les conclusions sont identiques pour les autres simulations.

Le choix du cas PAU pour constater l'effet du temps de réinjection sur l'isotopie est avant tout motivé par les différences importantes observées sur les évolutions massiques (figure 6.21). On confirme que le retraitement à 5 ans de refroidissement limite la dégradation du vecteur isotopique du plutonium ^{239}Pu (figure 6.24). Les isotopes plus lourds sont produits en plus faibles proportions et la teneur en ^{239}Pu se maintient au-delà de 20%. Les américiums produits à partir du plutonium le sont en plus faibles quantités et leur extraction (et alimentation) réduit la part d'isotopes lourds dans le sel. L' ^{241}Am reste donc prédominant (figure 6.25). Comme pour le cas PM, peu de différences sont visibles sur le curium hormis le ^{242}Cm , ce qui peut s'expliquer par la décroissance hors cœur plus lente que les absorptions (figure 6.26). L'uranium voit sa teneur en ^{234}U diminuer un peu plus rapidement lorsque le sel combustible patiente à l'extérieur, laissant du temps au ^{238}Pu de décroître (figure 6.27).

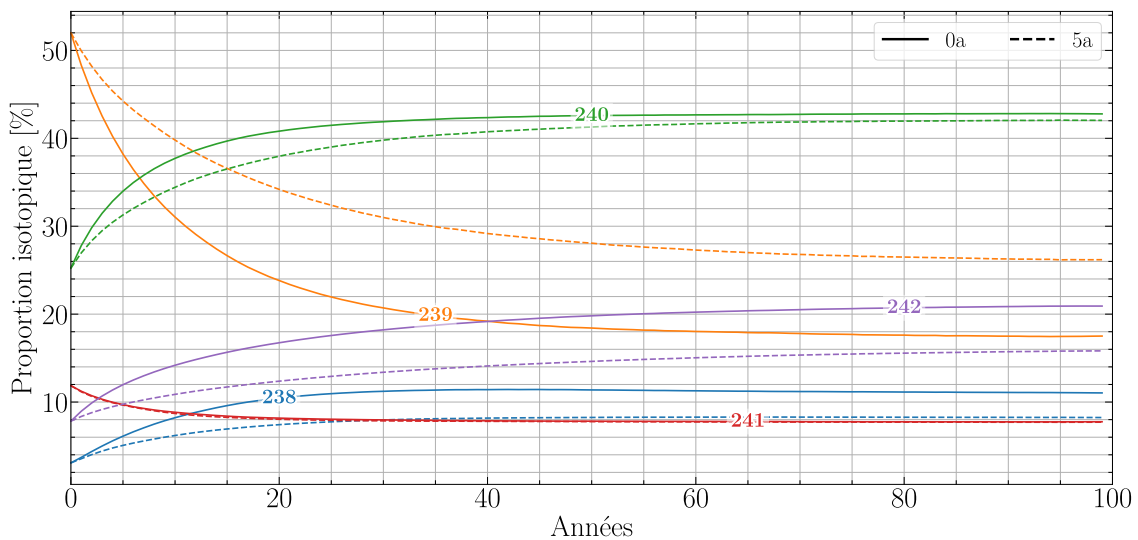


FIGURE 6.24 – Évolution temporelle du vecteur isotopique de plutonium selon le temps de retraitement extérieur pour PAU

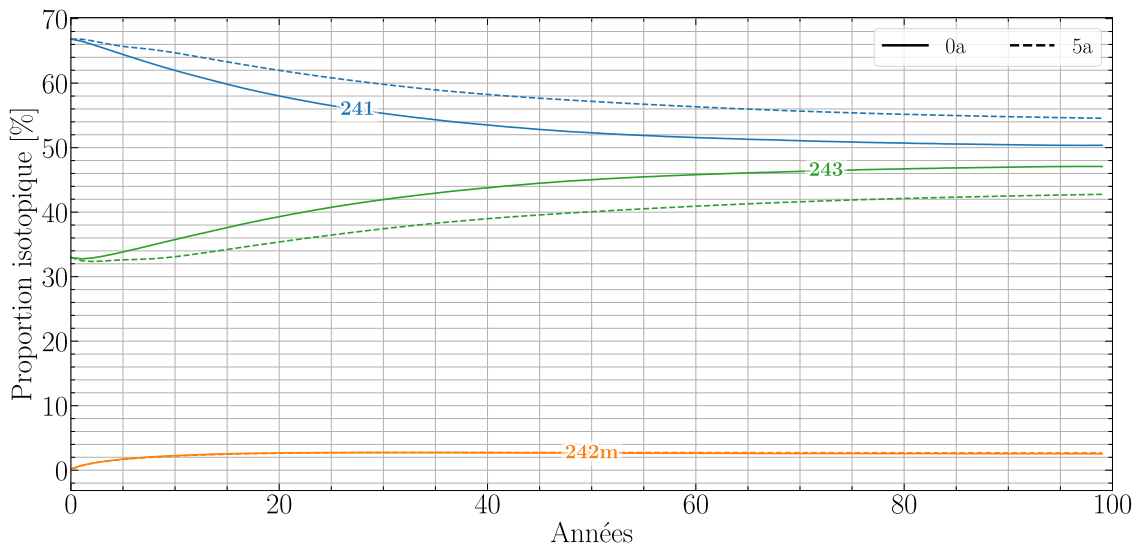


FIGURE 6.25 – Évolution temporelle du vecteur isotopique de l'américium selon le temps de retraitement extérieur pour PAU

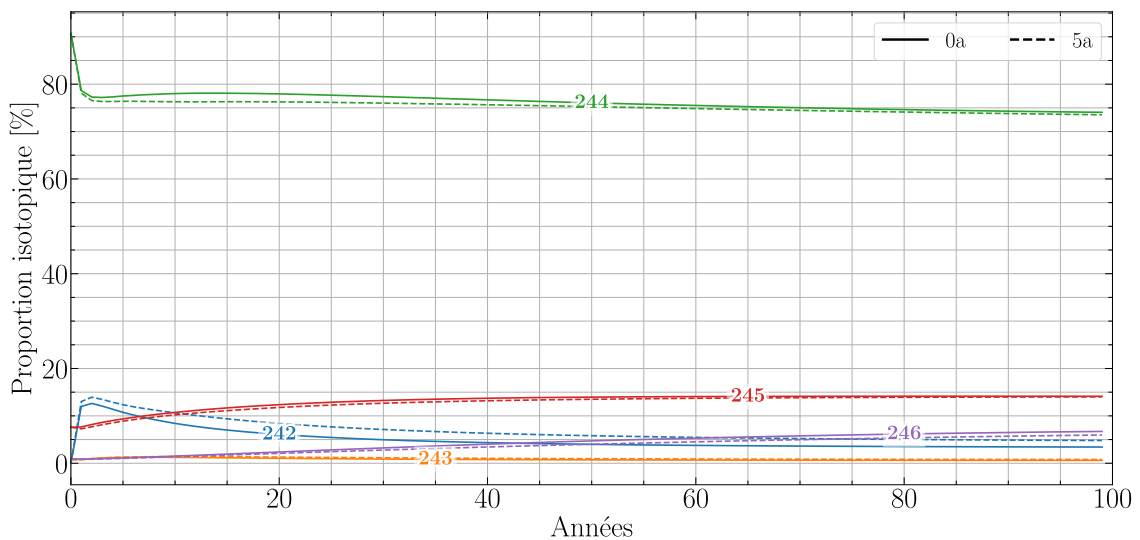


FIGURE 6.26 – Évolution temporelle du vecteur isotopique de curium selon le temps de retraitement extérieur pour PAU

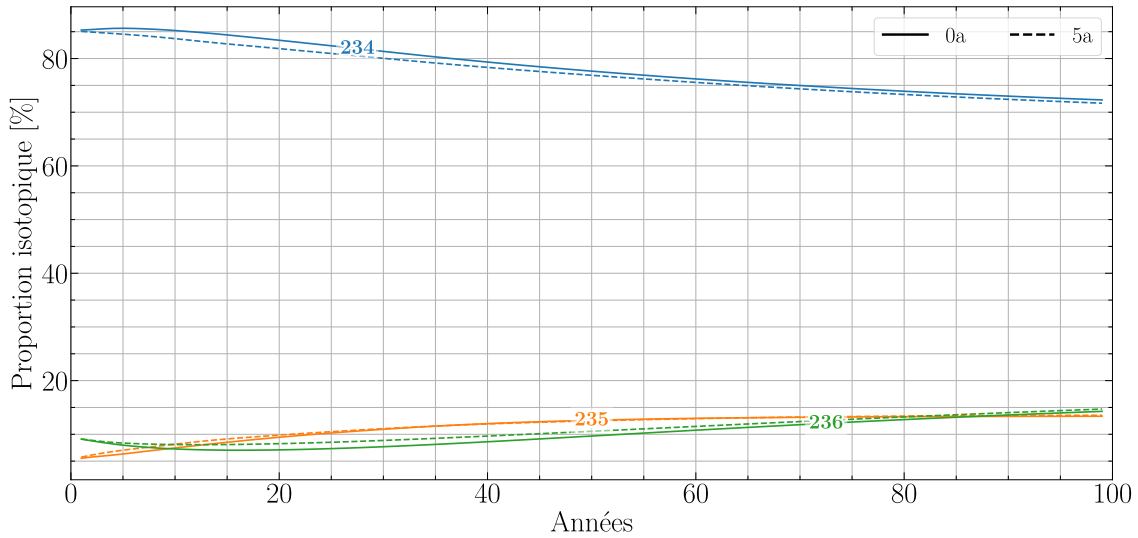


FIGURE 6.27 – Évolution temporelle du vecteur isotopique d'uranium selon le temps de retraitement extérieur pour PAU

6.4.3.c Évolution de la composition du sel combustible

Le tableau 6.5 indique la teneur en actinides dans le sel combustible au cours du temps pour différentes configurations. On note que la teneur en AN des cas PAI est maintenue identique tout au long de l'évolution, comme spécifiée à REM, qui ne contrôle alors plus la réactivité. Peu d'écart observé pour PAM, l'extraction du sel combustible ne semble pas influencer suffisamment sur l'isotopie pour qu'une plus grande concentration en actinides soit nécessaire, comparée au cas à réinjection directe. Le cas PAU montre en revanche une nette différence entre les deux temps de réinjections : l'alimentation plus importante mène à une augmentation plus réduite de la teneur en AN. L'arrivée supplémentaire de combustible «frais» pour compenser l'extraction et l'entreposage du sel hors réacteur avant retraitement limite la dégradation de l'isotopie et donc la nécessité de concentrer le sel en actinides.

TABLEAU 6.5 – Évolution temporelle de la teneur molaire en actinides pour les trois configurations plutonium + actinides mineurs avec comparaison du temps de retraitement extérieur et avec l'évolution relative entre le démarrage et à 50 ans

Simulation	Temps avant réinjection [a]	Teneur initiale	20 ans	50 ans	Δx_{AN} [%]
PAU	0	8.5	12.7	13.5	59.5
	5	8.5	10.8	11.7	37.9
PAM	0	11.8	13.9	14.4	21.8
	5	11.8	13.8	14.5	22.3
PAI	0	20.1	19.8	20.0	-0.4

Suite à la page suivante

TABLEAU 6.5 – Évolution temporelle de la teneur molaire en actinides pour les trois configurations plutonium + actinides mineurs avec comparaison du temps de retraitement extérieur et avec l'évolution relative entre le démarrage et à 50 ans (Suite)

Simulation	Temps avant réinjection [a]	Teneur initiale	20 ans	50 ans	Δx_{AN} [%]
	5	20.1	20.1	20.1	0.2

6.4.4 Réacteur 100% actinides mineurs : cas AI

Dans l'optique de la fermeture du cycle électronucléaire avec des réacteurs de génération IV, seuls les actinides mineurs restent à gérer parmi les actinides. Le cas AI propose l'étude d'un réacteur démarré et alimenté uniquement avec des actinides mineurs ex-UOX et ex-MIX. La problématique de la réactivité introduite par le cycle $^{241}\text{Am}/^{238}\text{Pu}$ nous fait considérer ici la simulation de ce cas sans contrôle de réactivité, remplacé par un contrôle de la teneur en actinides dans le sel fixé à sa valeur initiale (36%), comme pour le cas PAI (section 6.4.2.c).

La figure 6.28 montre l'évolution des principaux actinides dans le sel combustible selon le temps de refroidissement et de réinjection des noyaux U+TRU. Comme pour les simulations PAI, le temps de refroidissement a tendance à limiter les oscillations des masses de chaque élément mais celles-ci peuvent rester importantes (1 t pour l'américium). On observe nettement la production de plutonium qui est conséquente et qui atteint presque la masse d'américium dans le sel combustible. L'uranium, ^{234}U , provient de la décroissance du ^{238}Pu , très fortement produit.

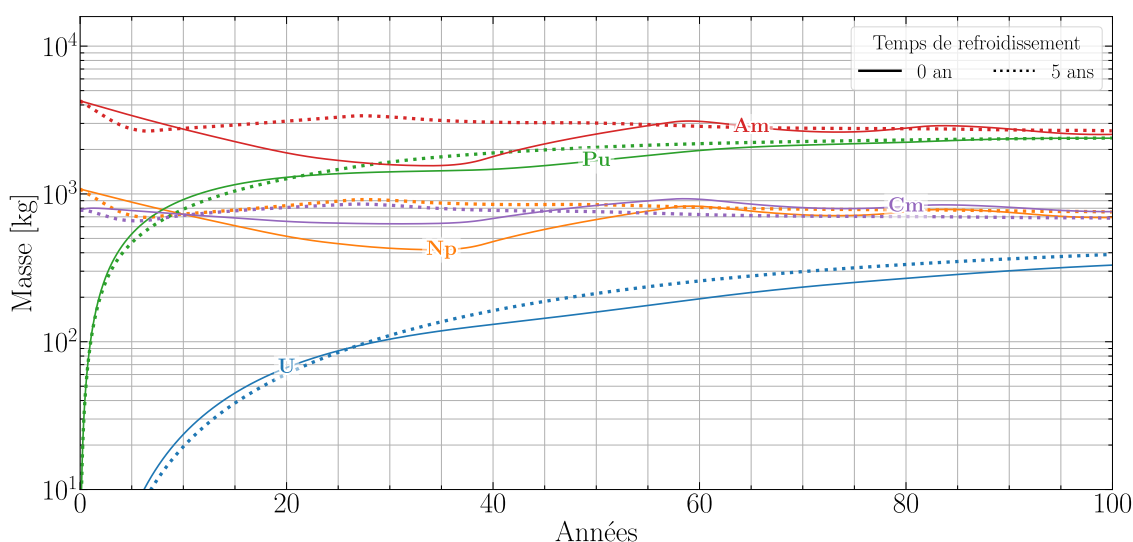


FIGURE 6.28 – Évolution temporelle massique des principaux actinides dans le sel combustible du cas AI (100% actinides mineurs) pour deux temps de réinjection des U+TRU

Malgré une évolution des masses qui semble montrer la faisabilité du fonctionnement d'un tel réacteur, il est cependant nécessaire de se pencher sur l'évolution de la réactivité dans le sel combustible. La section 6.4.2.c a montré que le contrôle dans le code REM

de la réactivité n'est pas adapté actuellement à la simulation de ces cas avec production de ^{238}Pu à retardement et que le contrôle de la teneur en actinides mineurs permet tout de même d'arriver à une auto stabilisation de la réactivité. La figure 6.29 s'intéresse justement à l'évolution de la réactivité du sel combustible. On observe clairement que celle-ci atteint très vite des valeurs inacceptables. Les coefficients de contre-réaction (≈ -15 pcm/K) feraient augmenter la température de près de 1700 K pour absorber 25 000 pcm à 50 ans de fonctionnement, soit la dissociation du sel combustible. L'extraction d'une partie du sel et sa réinjection après 5 ans induit une chute de réactivité de 6 000 pcm environ dans les cinq premières années de fonctionnement, soit une baisse de la température de 400 K, donc la solidification du sel combustible. Dans ces conditions, un mécanisme de contrôle de la réactivité serait nécessaire.

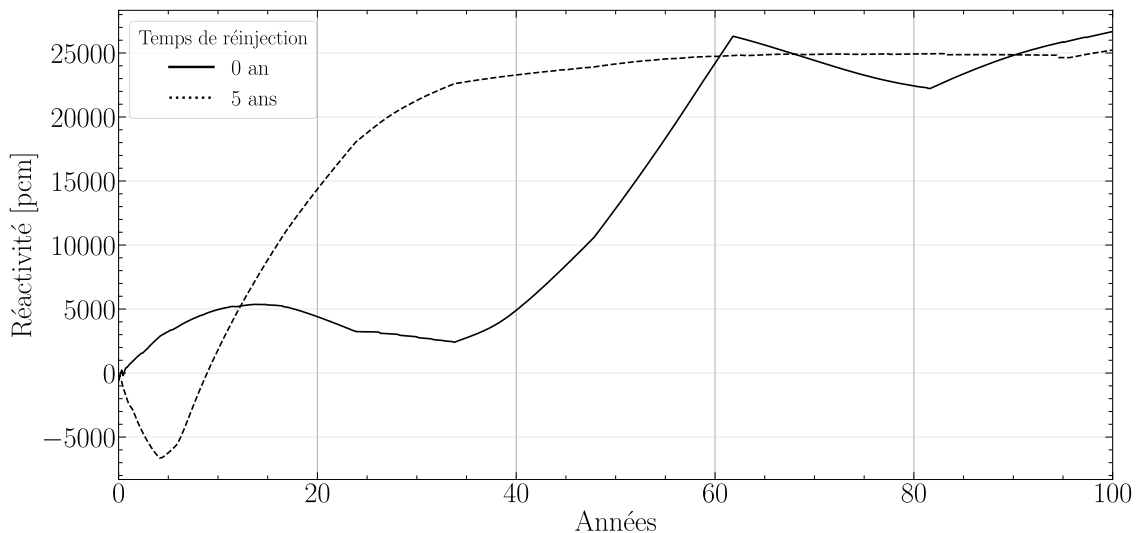


FIGURE 6.29 – Évolution temporelle de la réactivité du sel combustible du cas AI (100% actinides mineurs) pour deux temps de réinjection des U+TRU

La figure 6.30 compare l'évolution de la réactivité selon la valeur de la teneur en actinides à respecter pour le contrôle. Le comportement est le même pour des teneurs à 36% et 38% d'actinides, seule la valeur à 50 ans est différente, correspondant à la concentration de ^{238}Pu dans le sel combustible. Le cas à 30% d'actinides montre une insuffisance de l'alimentation sur les 30 premières années, où la création de ^{238}Pu ne suffit pas à compenser la perte de réactivité liée aux fissions et aux captures sur les différents éléments du sel. Après 30 ans de fonctionnement, la réactivité remonte et se stabilise à une valeur moins élevée que les deux autres cas mais trop grande pour que seules les contre-réactions puissent compenser.

On ne gardera pas ce cas AI dans les sections suivantes puisque les simulations effectuées ne permettent pas d'envisager en l'état qu'un tel réacteur puisse fonctionner. De plus amples analyses ne seraient donc d'aucune utilité.

6.4.5 Productions de chlore et de soufre

On considère ici les cas avec réinjection du plutonium en cœur pour les simulations plutonium, et la réinjection des actinides après 5 ans d'attente pour les simulations plutonium + actinides mineurs. La production de ^{36}Cl se fait principalement par capture neutronique radiative sur le ^{35}Cl et à énergie de neutrons peu rapides (section 4.4.5). Ceci

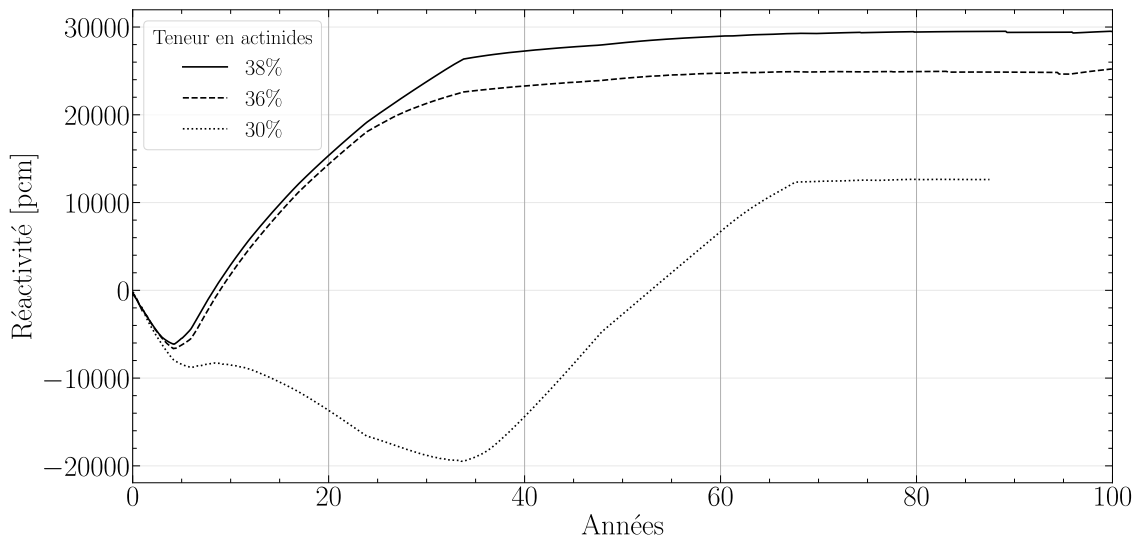


FIGURE 6.30 – Évolution temporelle de la réactivité du sel combustible du cas AI (100% actinides mineurs) avec réinjection des U+TRU à 5 ans selon la teneur en actinides fixée pour le contrôle

est à nouveau confirmé par la figure 6.31, puisque les configurations 100% plutonium produisent plus de chlore radioactif que les configurations avec actinides mineurs. La figure 6.32 présente les contributions à la production de ^{36}Cl à partir des isotopes naturels du chlore. Quelle que soit la configuration, la capture sur le ^{35}Cl est la source principale de création du ^{36}Cl . Le durcissement du spectre avec l'augmentation de la teneur en actinides a un impact sur les contributions en faisant diminuer les captures sur le ^{35}Cl sans pour autant que la production par (n,2n) sur le ^{37}Cl ne devienne majoritaire. L'enjeu est donc de limiter la teneur de ^{35}Cl dans le solvant.

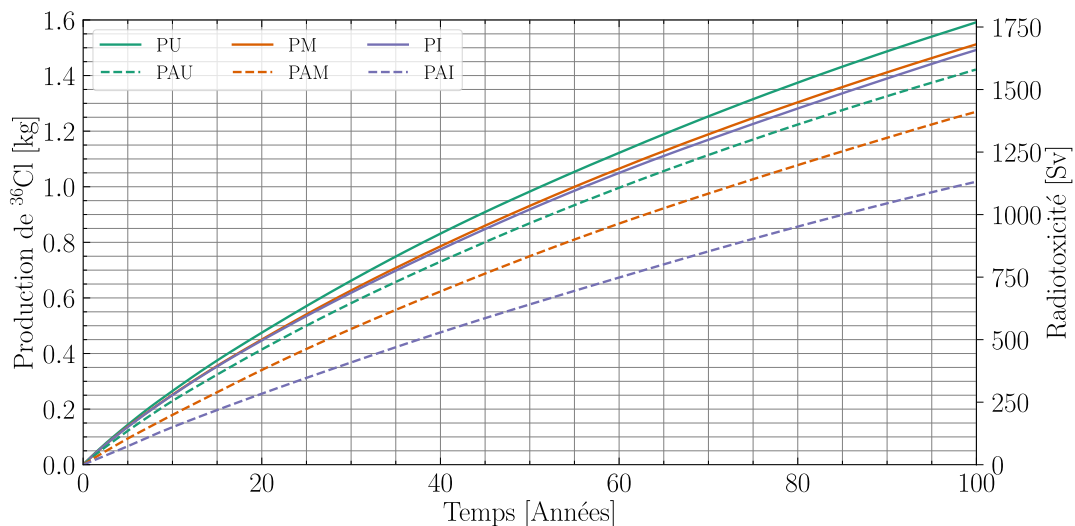


FIGURE 6.31 – Production de ^{36}Cl pour les six configurations RAPTOR (cas Pu en cœur pour les RAPTOR plutonium et réinjection à 5 ans pour les RAPTOR plutonium + actinides mineurs)

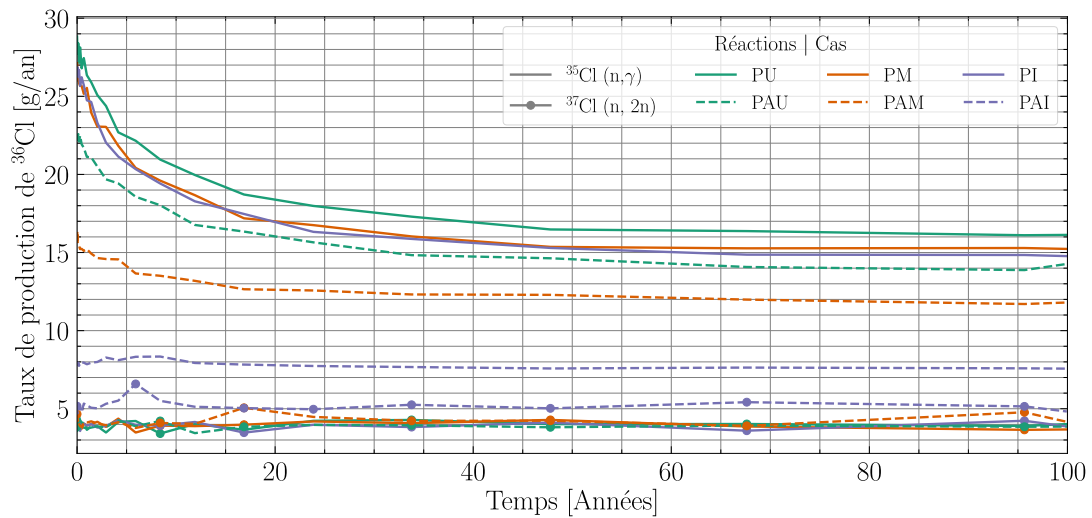


FIGURE 6.32 – Contributions à la production de ^{36}Cl pour les six configurations RAPTOR

La production de soufre est indifférente au combustible utilisé, excepté pour le cas PAI (figure 6.33). La figure 6.34 présente les contributions à la production de soufre par isotope de ce dernier. On constate que le taux de production est globalement constant, excepté pour la réaction (n,p) à partir du ^{36}Cl , qui augmente lorsque celui-ci est produit au fur et à mesure du fonctionnement. Les contributions sont sensiblement les mêmes, quelle que soit la configuration, sauf pour le cas PAI, qui produit plus de soufre par réactions (n, α) sur les deux isotopes naturels du chlore.

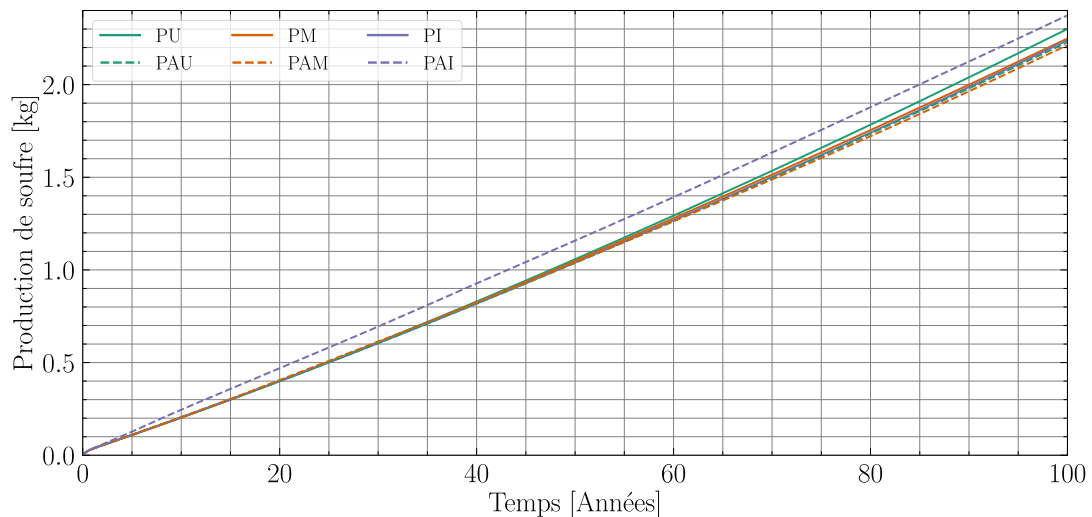


FIGURE 6.33 – Production de soufre pour les six configurations RAPTOR

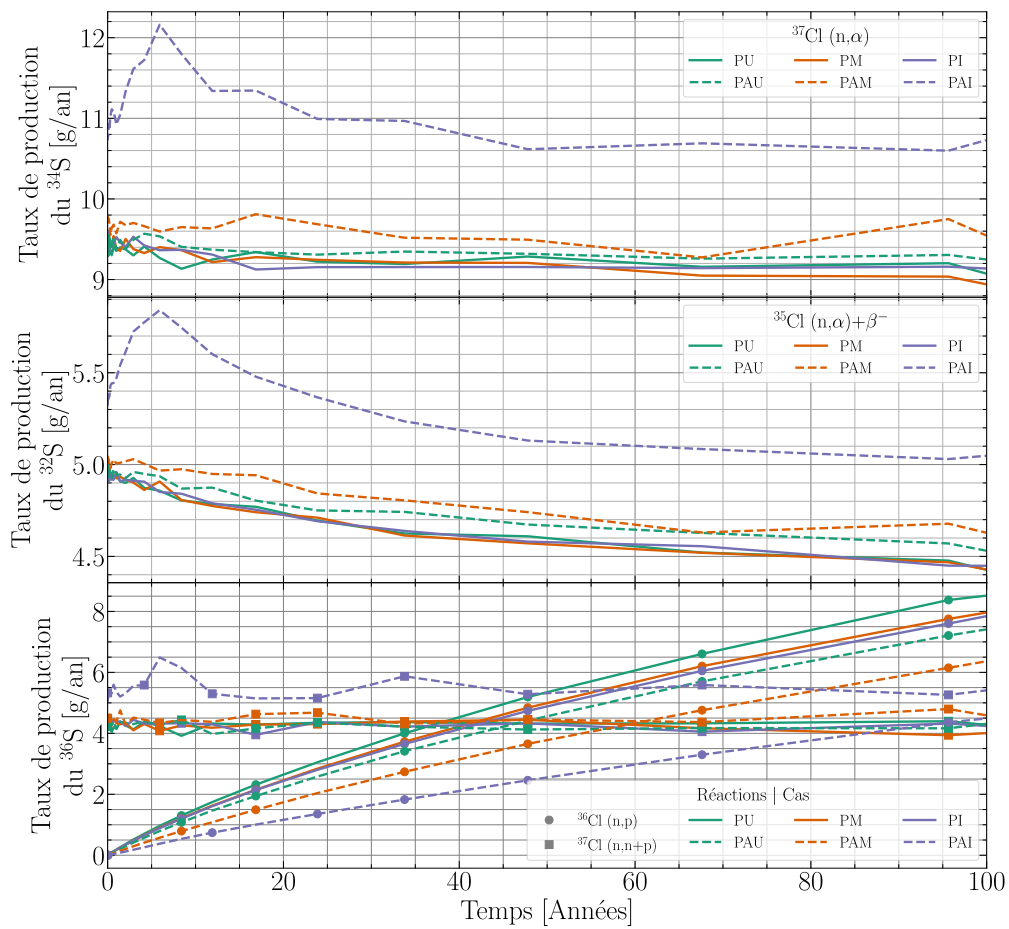


FIGURE 6.34 – Contributions à la production des principaux isotopes du soufre pour les six configurations RAPTOR

6.5 Efficacité de conversion des RAPTOR

À partir de cette section, les simulations PAI sont sans contrôle de la réactivité. Des comparaisons seront effectuées entre les différents temps de retraitement et réinjection, ainsi que du choix de réinjection du plutonium en réacteur.

6.5.1 Mobilisation de matière

Les figures 6.35 et 6.36 présentent l'efficacité selon la définition de la mobilisation de matière (équation 3.3, $\eta(t) = \frac{\int_0^t m_{\text{fissionée}}}{m_{\text{initiale}} + \int_0^t m_{\text{alimentée}}}$). La figure 6.35 compare les cas plutonium avec réinjection ou non du plutonium. La réinjection du plutonium évite une trop grande alimentation, qui détériore ce critère. On note que le vecteur isotopique influe sur l'efficacité de mobilisation (-35% à 50 ans), à volume et puissance constants, à cause de la plus faible qualité fissile de la matière injectée.

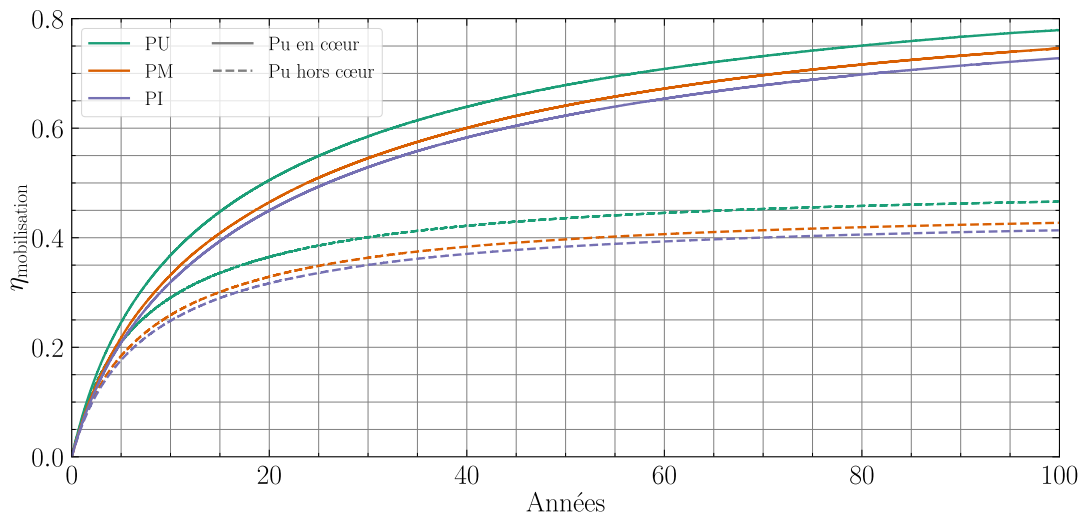


FIGURE 6.35 – Efficacité selon le critère de mobilisation de matière pour les RAPTOR 100% plutonium

La figure 6.36 s'intéresse au temps de réinjection de configurations Pu+AM. Plus le temps de réinjection est long, plus il faut alimenter pour compenser la perte de réactivité due à l'extraction du sel. On observe également une dégradation de l'efficacité jusqu'à 10% en absolu lorsque la qualité de l'alimentation se détériore.

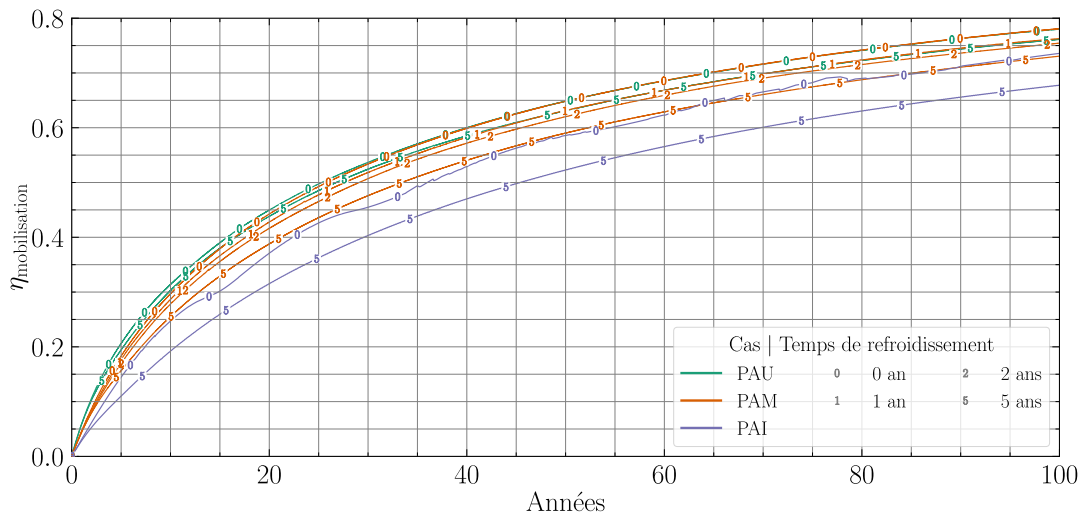


FIGURE 6.36 – Efficacité selon le critère de mobilisation de matière pour les RAPTOR plutonium + actinides mineurs

6.5.2 Proportion de fissions

Le plutonium fissionne de manière quasi identique entre les six configurations après 50 ans de fonctionnement, même si la capture est légèrement plus faible de 1% pour les fortes teneurs de TRU initiales (figure 6.37).

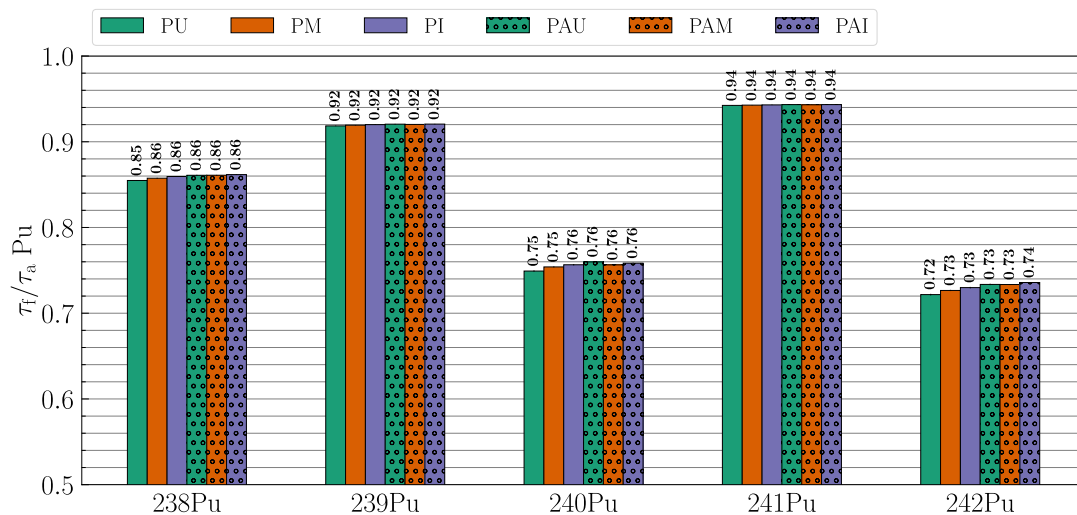


FIGURE 6.37 – Proportions de fission par isotopes principaux du plutonium après 50 ans de fonctionnement pour les six configurations RAPTOR

La figure 6.38 présente les proportions de fission des actinides mineurs principaux pour une réinjection de plutonium (configurations 100% Pu) et une réinjection à 5 ans (configurations Pu+AM). L'américium et le neptunium sont peu fissiles, mais fissionnent un peu mieux dans les configurations avec actinides mineurs. La teneur plus importante en TRU limite les ralentissements des neutrons et donc les captures. Les ^{243}Cm et ^{245}Cm

fissionnent tous les deux très bien quelle que soit la simulation considérée. Le ^{244}Cm a le même comportement que l'américium, et fissionne mieux dans les configurations à actinides mineurs.

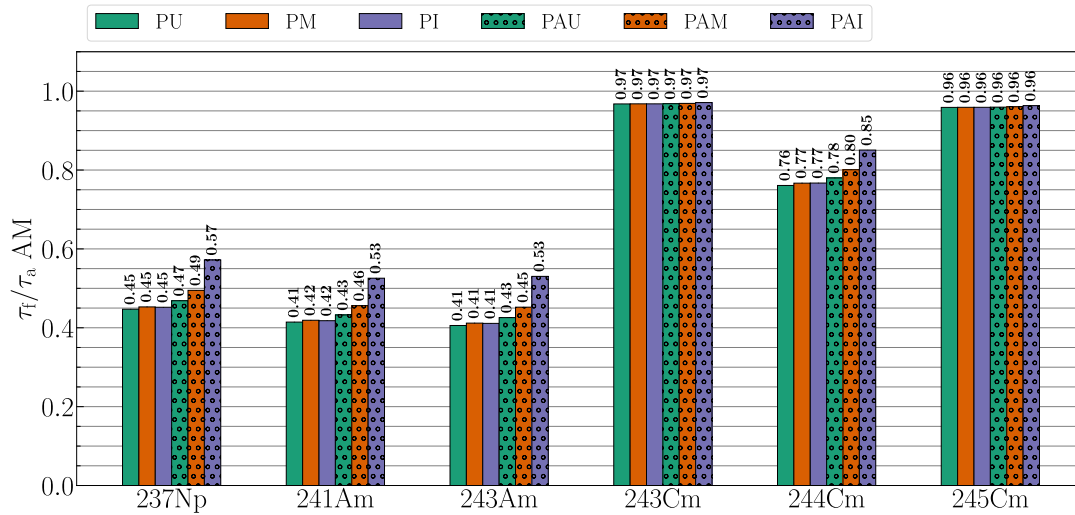


FIGURE 6.38 – Proportions de fission par isotopes principaux des actinides mineurs après 50 ans de fonctionnement pour les six configurations RAPTOR

6.5.3 Bilan de consommation

De même qu'en section 4.4.3.c, on regarde ici les éléments séparément pour faire leur bilan de consommation ou production (équation 3.5, $\text{bilan}_{\text{conso}}(t) = m_{\text{cœur}}(t) + \int_0^t \text{extraction}(t) - m_{\text{init}} - \int_0^t \text{alimentation}(t)$). On distinguera également les configurations plutonium de celles Pu+AM. Lorsque l'élément considéré est présent au démarrage, sa masse sera indiquée sur le graphique afin d'estimer le temps de consommation de cette matière. Une fois ce temps atteint, tout ce qui est consommé en plus est « bonus ».

Plutonium La consommation de plutonium est présentée par les figures 6.39 et 6.40 avec l'indication de la masse initiale de plutonium. On constate que toutes les configurations consomment plus de plutonium que la masse initialement mobilisée excepté les configurations PAI. On aurait pu s'attendre à ce que le cas PAI consomme le plutonium puisque le vecteur de démarrage en contient et n'est pas alimenté. Cependant, le cycle $^{241}\text{Am}/^{238}\text{Pu}$ produit plus de plutonium que ce qui est consommé.

Les configurations RAPTOR plutonium (figure 6.39) consomment le plutonium entre 11 et 13 ans, le choix d'extraire ou de réinjecter le plutonium n'impactant pas la consommation de manière très importante au début. Après quelques dizaines d'années, les configurations avec extraction du plutonium deviennent plus intéressantes, grâce au plutonium injecté qui améliore la qualité isotopique et qui fissionne donc mieux. Il y a donc un gain de disparition avec l'extraction en continu du plutonium.

Les cas PAU et PAM consomment la masse initiale de plutonium entre 13 et 19 de fonctionnement. La figure 6.40 ne montre aucune différence sur le bilan de la consommation selon le temps de refroidissement pour le cas PAM. L'alimentation, l'extraction et la réinjection sont parfaitement équilibrées. Pour le cas PAU, on observe un bilan

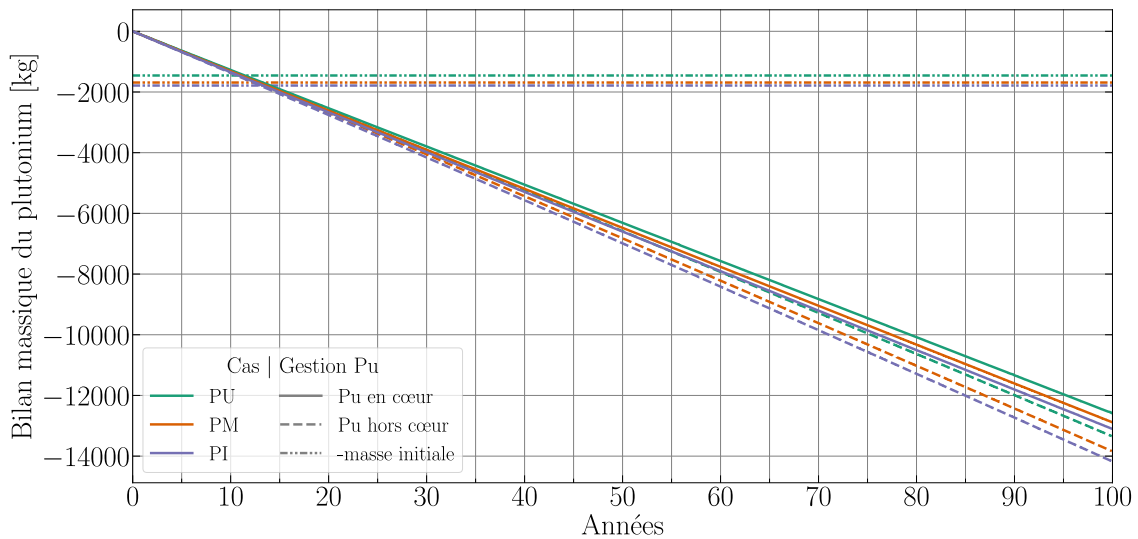


FIGURE 6.39 – Bilan massique du plutonium pour les trois configurations RAPTOR Pu

plus favorable pour une réinjection à 5 ans malgré une suralimentation pour compenser l'extraction du sel et sa mise en attente. Comme pour les cas plutonium suralimenté, l'injection de combustible «neuf» améliore la qualité de l'isotopie améliorant aussi les probabilités d'absorption.

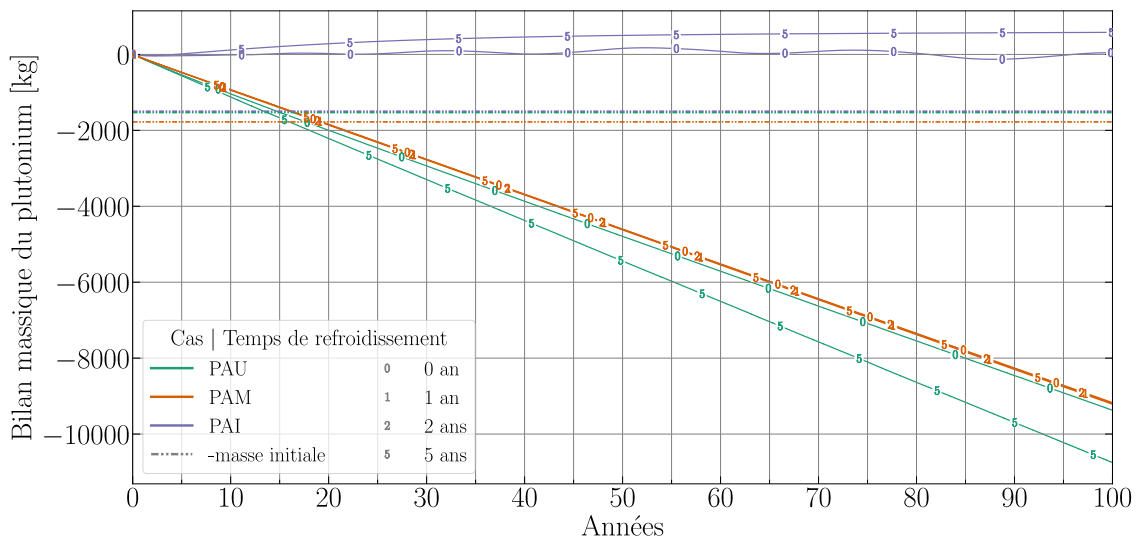


FIGURE 6.40 – Bilan massique du plutonium pour les trois configurations RAPTOR Pu+AM

Américium Comme tous les actinides mineurs dans les configurations RAPTOR plutonium, l'américium est produit dans les cas PU, PM et PI (figure 6.41). La suralimentation et l'extraction du plutonium donnent lieu à une production d'américium plus grande avec un renouvellement des isotopes du plutonium plus rapides qui peuvent ensuite capturer et décroître en américium. Cette production dépend de la qualité du vecteur isotopique, puisqu'un vecteur dégradé nécessitera moins de captures et de décroissances pour former les premiers noyaux d'américium.

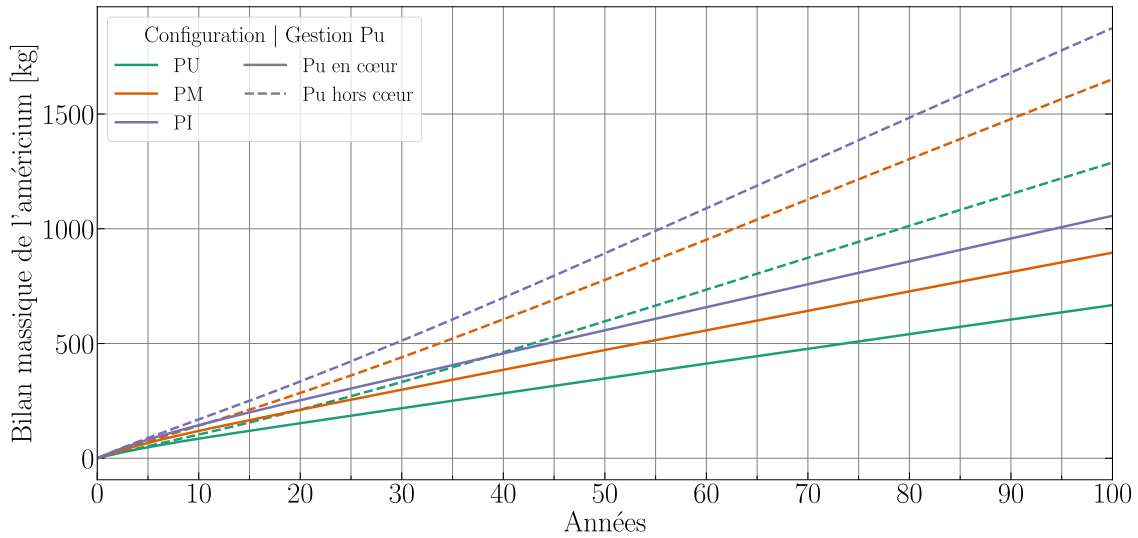


FIGURE 6.41 – Bilan massique de l'américium pour les trois configurations RAPTOR Pu

A contrario, les configurations RAPTOR Pu+AM consomment dans tous les cas l'américium, qui est alimenté (figure 6.42). Le temps de consommation de la masse initiale est la plus réduite pour les cas PAU avec réinjection directe (13 ans), puis PAI (16 ans), PAM (22 ans) et enfin PAU avec réinjection à cinq ans (37 ans).

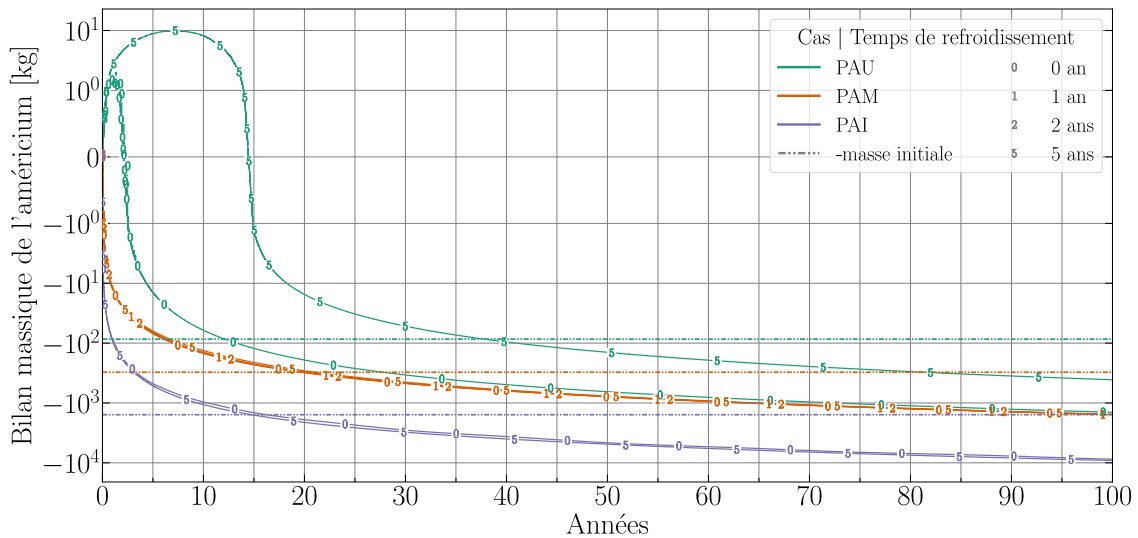


FIGURE 6.42 – Bilan massique de l'américium pour les trois configurations RAPTOR Pu+AM [échelle symlog : linéaire entre -1 et 1 kg, logarithmique en dehors]

Neptunium La figure 6.43 montre une nette production de neptunium puisque celui-ci n'est pas alimenté et est de surcroît extrait tout au long du fonctionnement. Comme l'américium, la production est plus importante lorsque le plutonium est extrait du sel combustible, puisque le neptunium provient de la décroissance de ^{241}Am .

Le neptunium est fortement consommé dans les RAPTOR Pu+AM avec la masse initiale éliminée entre 9 et 17 ans (figure 6.44). Le bilan est de consommation est en faveur du cas PAI qui consomme trois fois plus que les cas PAU et PAM à 50 ans de fonctionnement.

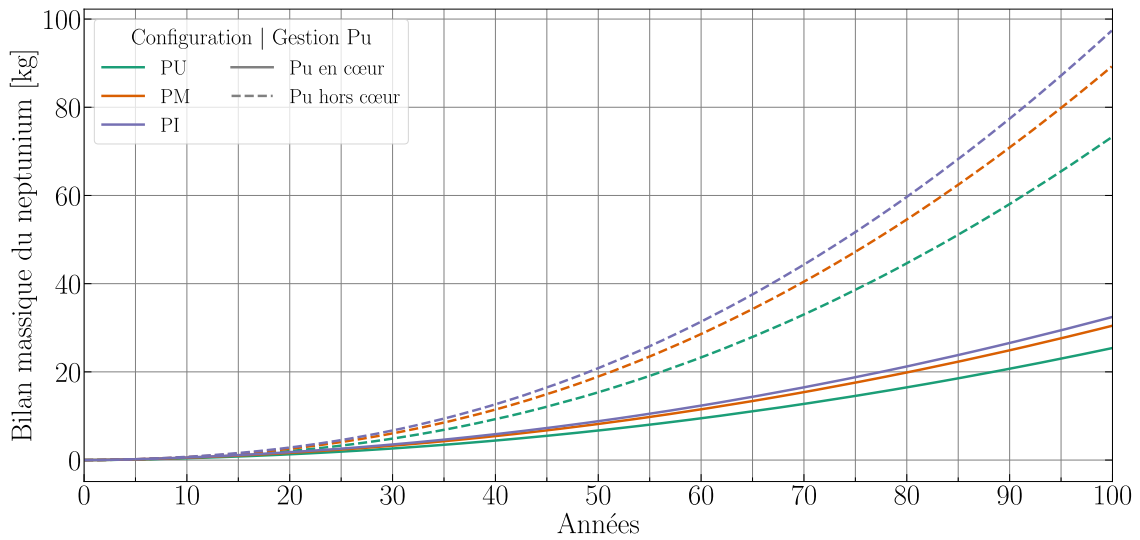


FIGURE 6.43 – Bilan massique du neptunium pour les trois configurations RAPTOR Pu

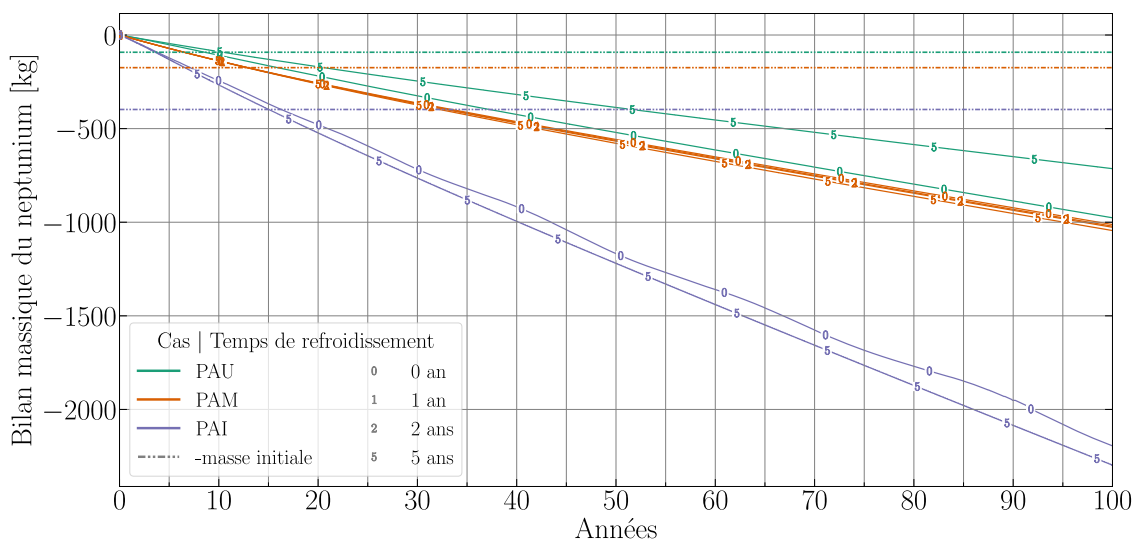


FIGURE 6.44 – Bilan massique du neptunium pour les trois configurations RAPTOR Pu+AM

Curium Sans surprise, le curium est largement plus produit que consommé dans les configurations RAPTOR plutonium (figure 6.45). En revanche, la tendance de production s'inverse par rapport à l'américium et au neptunium. La montée dans les éléments lourds est limitée pour les configurations où le plutonium est extrait et renouvelé. Les captures et décroissances successives nécessitent d'autant plus de temps qu'il y a de réactions à effectuer. La suralimentation de plutonium participe grandement à limiter la production de curium.

Pour les cas plutonium + actinides mineurs, on observe en revanche la consommation de cet élément, surtout pour les cas PAI où la part de curium dans l'alimentation est très grande (figure 6.46). Pour toutes les configurations, une production de quelques dizaines de kilogrammes est observée sur plusieurs dizaines d'années avant que le curium ne commence à être consommé. La masse initiale met beaucoup plus de temps que pour l'américium ou le neptunium à disparaître, voire ne disparaît pas pour le cas PAU avec réinjection à 5 ans.

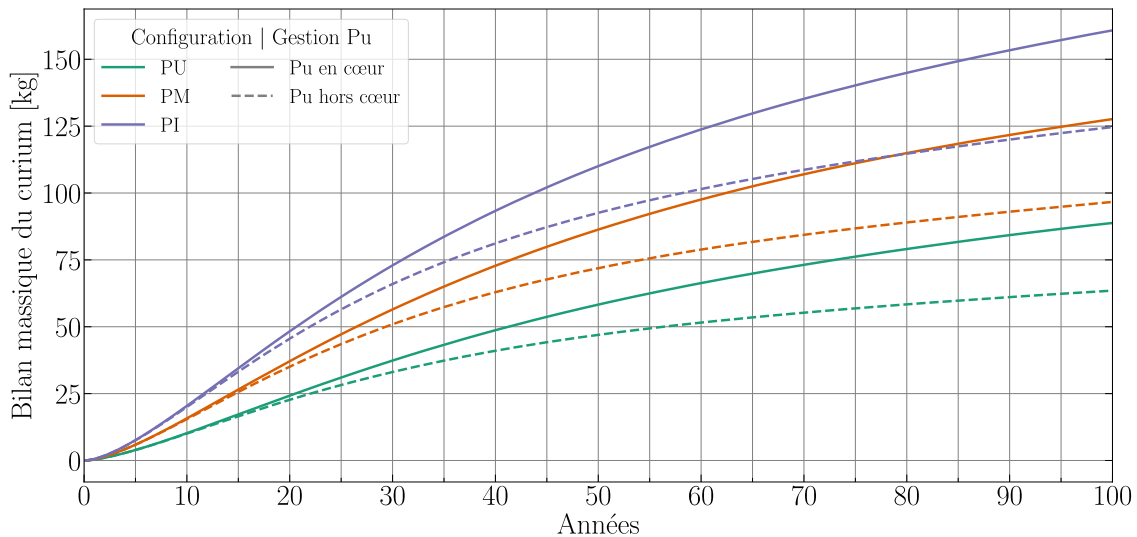


FIGURE 6.45 – Bilan massique du curium pour les trois configurations RAPTOR Pu

Californium Tout comme le curium, le californium est plus produit lorsque le plutonium est réinjecté (figure 6.47). La raison de cette tendance est identique à celle du curium : une dégradation du vecteur isotopique du sel combustible qui mène plus facilement à produire des noyaux à grand A.

Même constat pour les simulations alimentées en actinides mineurs (figure 6.48). Les actinides mineurs des différents cycles du combustible envisagés sont plus ou moins dégradés et mènent inévitablement à la production de noyaux très lourds. L'extraction et le refroidissement avant réinjection conduisent à une alimentation en actinides qui ralentit fortement la production de californium.

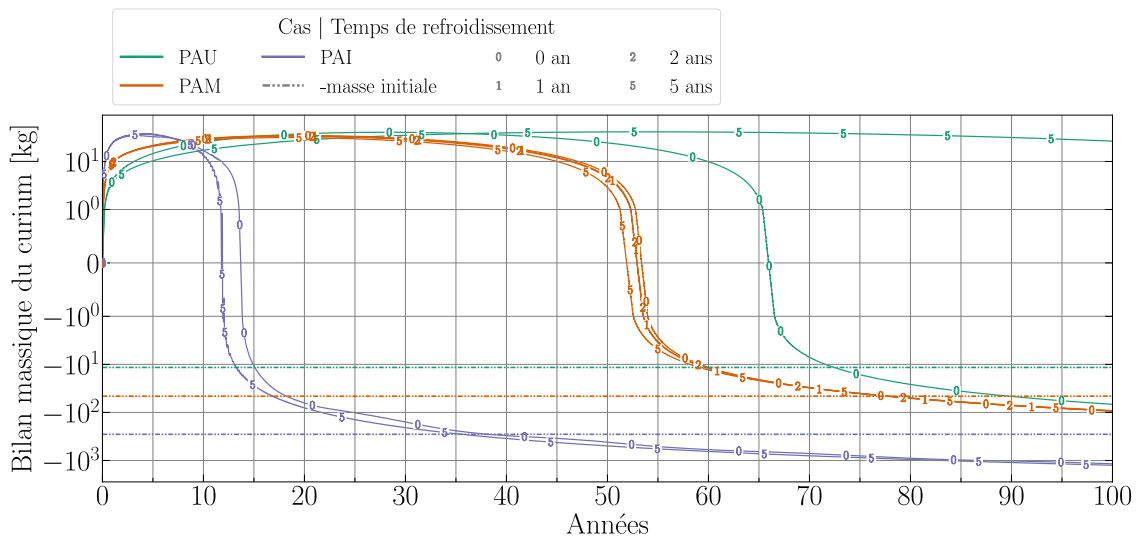


FIGURE 6.46 – Bilan massique du curium pour les trois configurations RAPTOR Pu+AM [échelle symlog : linéaire entre -1 et 1 kg, logarithmique en dehors]

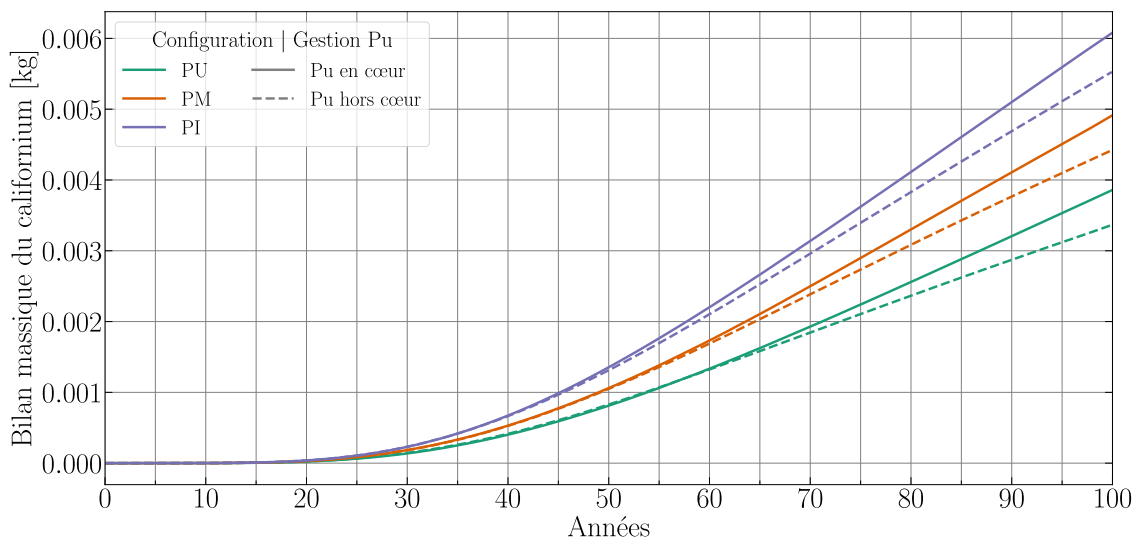


FIGURE 6.47 – Bilan massique du californium pour les trois configurations RAPTOR Pu

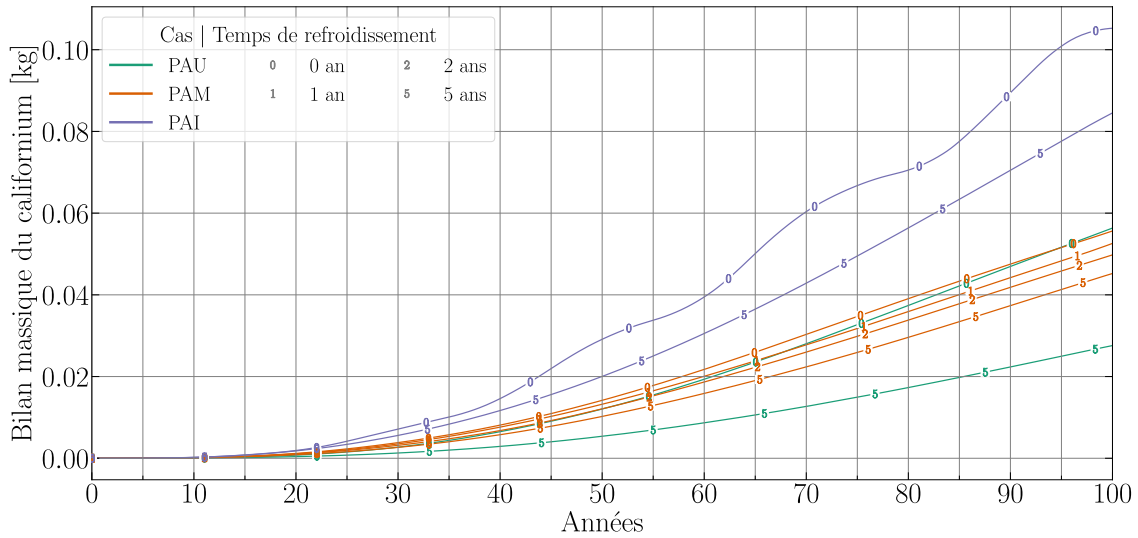


FIGURE 6.48 – Bilan massique du californium pour les trois configurations RAPTOR Pu+AM

Bilan global de consommation et de production La figure 6.49 présente le bilan global normalisé par l'énergie produite des différentes configurations RAPTOR. L'ensemble des concepts atteint en quelques années une consommation de $45 \text{ kg} \cdot \text{h}/\text{TW}_{\text{th}}$ de TRU alimentés, soit $0.5 \text{ kg} \cdot \text{h}/\text{TW}_{\text{th}}$ de plus que ce qui est fissonné (production d'éléments plus lourds). On remarque néanmoins que les concepts alimentés en Pu+AM consomment jusqu'à $46 \text{ kg} \cdot \text{h}/\text{TW}_{\text{th}}$ de TRU, qui sont en partie transformés en éléments plus lourds. La production nette d'actinides hors Pu+AM augmente de 0.5 à $2.5 \text{ kg} \cdot \text{h}/\text{TW}_{\text{th}}$.

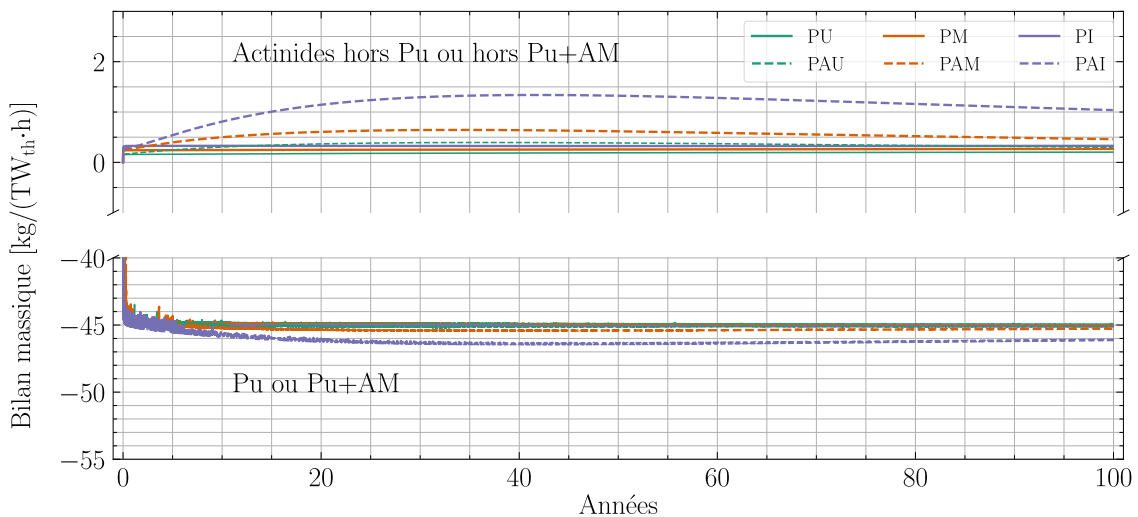


FIGURE 6.49 – Bilan massique global des actinides pour les six configurations RAPTOR

6.6 Dégâts d'irradiation

6.6.1 Création de lacunes par déplacements d'atomes

Le maximum de dpa dans la tranche 0 (d'épaisseur 5 mm) du réflecteur axial supérieur (zone très touchée par les collisions neutrons-atomes) est indiqué en fonction de la couronne pour les six cas en figure 6.50. Le maximum local de 20 dpa/an est très conséquent et implique de choisir des matériaux résistants, qui devront être changés. On rappelle néanmoins que ce taux est probablement surestimé d'un facteur 3 à 4 (section 3.4.5). De manière similaire aux cas plutonium du chapitre 4, le taux de dpa diminue grandement lorsque les zones étudiées sont plus éloignées de l'axe du cœur.

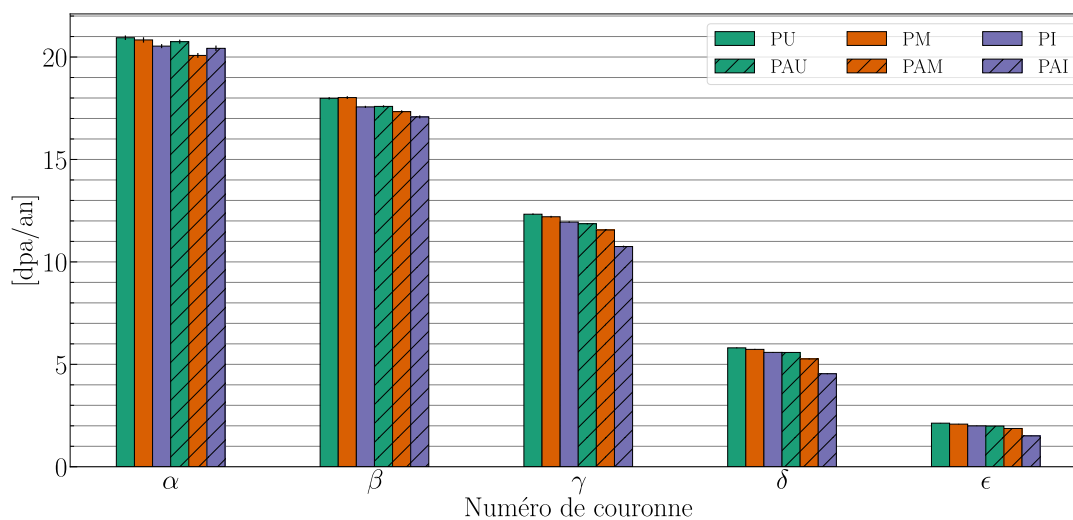


FIGURE 6.50 – Maximum du taux de dpa dans la tranche 0 du réflecteur axial supérieur pour les configurations RAPTOR

De manière similaire, le réflecteur radial, découpé en 5 tranches (section 3.4.5), voit un pic de dpa en son centre d'une vingtaine de dpa au maximum de la production de dpa (figure 6.51). Le taux baisse cependant en une quarantaine d'années de quelques dpa/an (figure 6.53). La figure 6.52 présente l'estimation des DPA au démarrage dans le réflecteur radial selon la méthode ARC pour les configurations RAPTOR alimentées en plutonium. Une diminution d'environ 40% est observée entre la méthode NRT et ARC.

6.6.2 Production de gaz : hélium et hydrogène

La figure 6.54 présente la production et la répartition de l'hydrogène et de l'hélium dans le réflecteur axial supérieur pour les configurations avec actinides mineurs (les cas plutonium ayant déjà été abordés dans la section 4.4.6.b). Aucune différence n'est observée entre les répartitions d'hélium et d'hydrogène visuellement. Tout comme les configurations plutonium, la production d'hydrogène est plus importante proche de la zone critique que celle d'hélium.

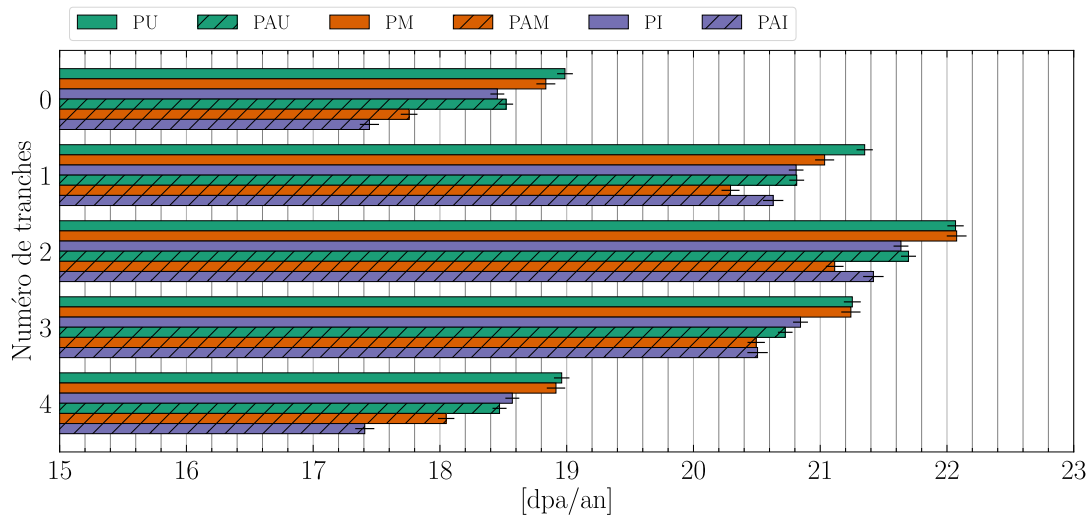


FIGURE 6.51 – Maximum du taux de dpa dans le réflecteur radial pour les configurations RAPTOR

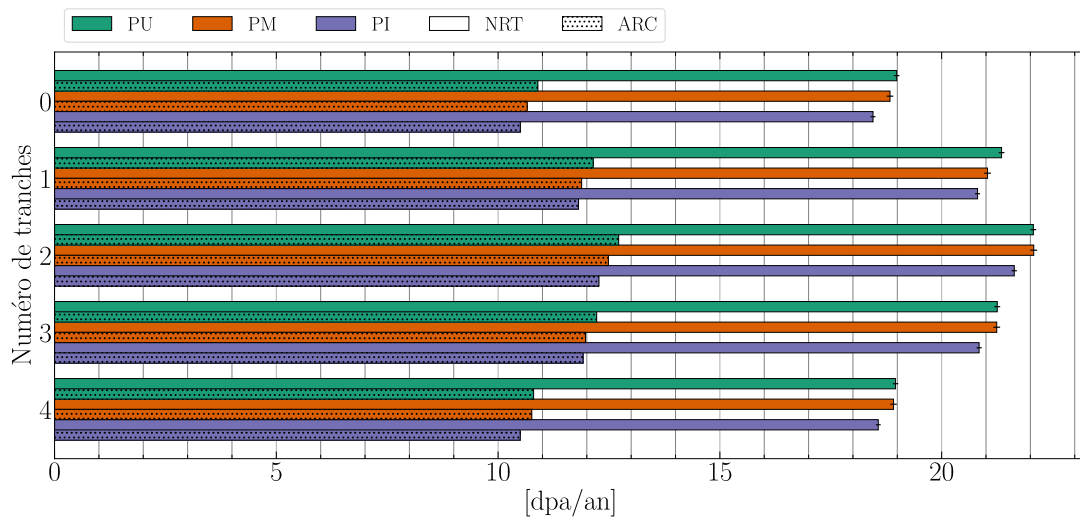


FIGURE 6.52 – Maximum du taux de dpa dans le réflecteur radial pour les configurations RAPTOR plutonium selon la méthode d'estimation des dpa

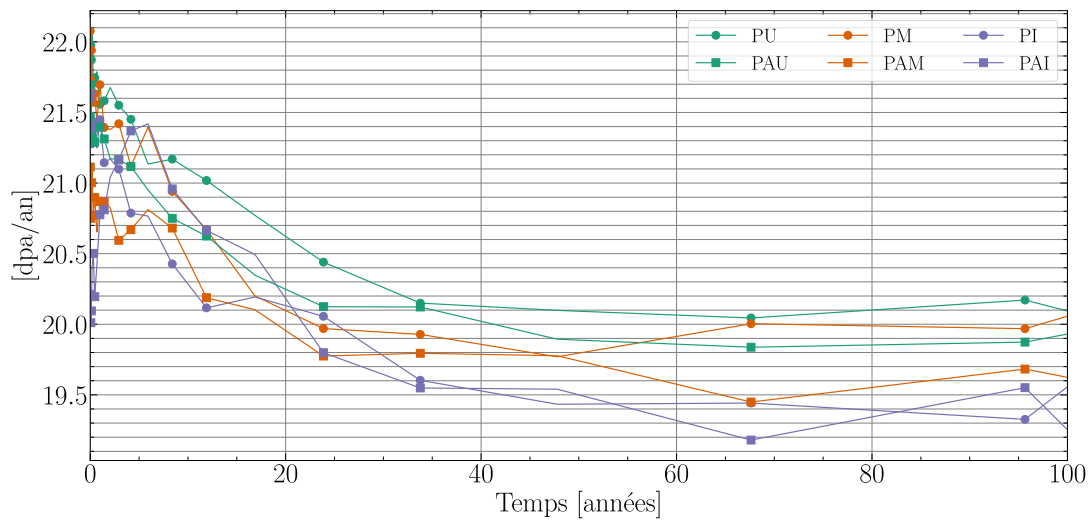


FIGURE 6.53 – Évolution du taux de dpa dans le réflecteur radial pour les configurations RAPTOR

La table 6.6 présente les concentrations maximales d'hélium et d'hydrogène. Cette dernière semble 20% faible pour le cas PAI, peut-être à cause du spectre neutronique un peu plus rapide, dû à une concentration en TRU plus importante. Néanmoins, les différences de concentration en TRU et le vecteur isotopique semblent avoir peu d'influence sur la production des gaz dans les matériaux de structure.

TABLEAU 6.6 – Concentration maximale en hydrogène et hélium à 50 ans de fonctionnement pour les configurations RAPTOR

Cas	Concentration maximale H [appm]	Concentration maximale He [appm]
PU	3876	735
PM	3886	699
PI	3786	715
PAU	3942	686
PAM	3880	639
PAI	4284	555

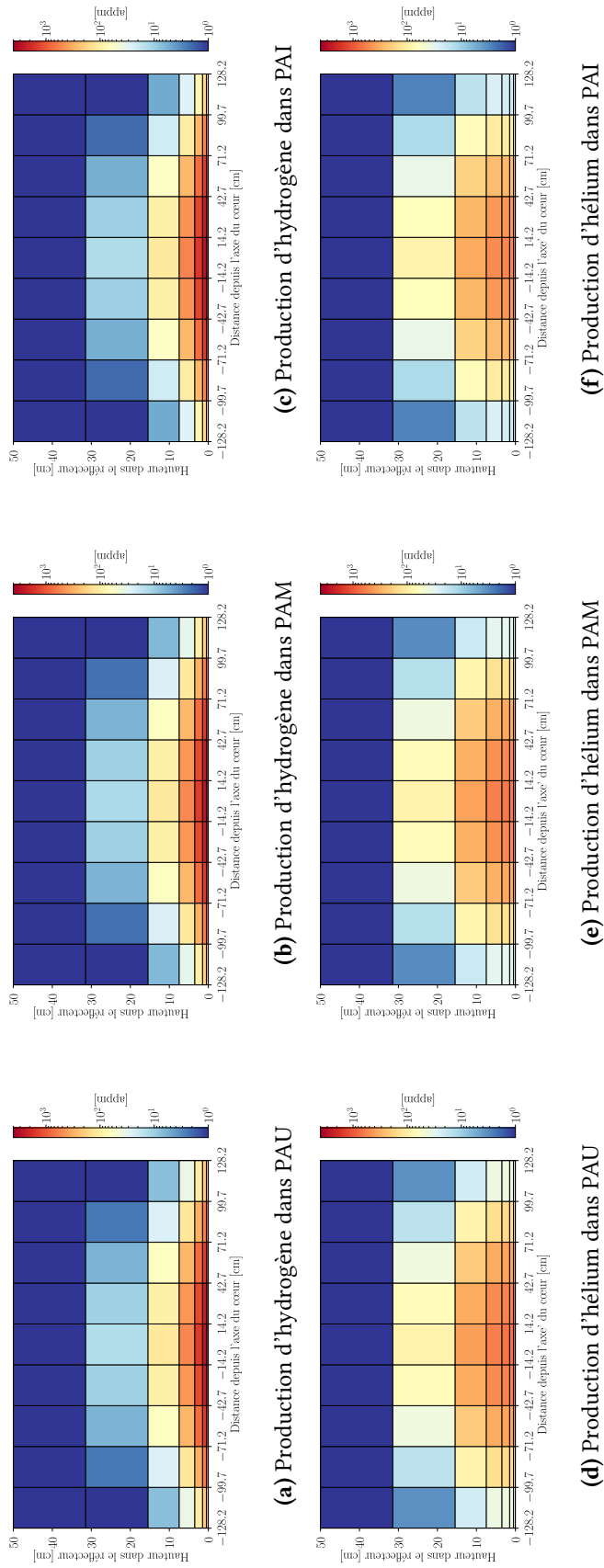


FIGURE 6.54 – Inventaire après 50 ans de fonctionnement de la répartition des concentrations en hydrogène [haut] et en hélium [bas] dans le réflecteur axial supérieur pour les cas PAU, PAM et PAI

6.6.3 Conclusions

Peu de différences sont observées sur les dpa et la production de gaz dans les matériaux de structure pour les six configurations. Le facteur principal pour les dégâts d'irradiation est la puissance thermique du réacteur, qui induit le flux neutronique.

Le taux de dpa est élevé (20 dpa/an par la méthode NRT, 12 dpa/an avec la méthode ARC), ce qui nécessite de développer un design adapté au renouvellement de certaines zones des structures. La production de gaz est élevée, mais leur comportement est incertain (migration hors du réflecteur, diffusion et homogénéisation...). De plus amples études seront donc à réaliser, nécessitant des données non existantes actuellement.

6.7 Contre-réactions de température

6.7.1 Démarrage

La figure 6.55 présente l'estimation du coefficient de contre-réaction Doppler, dérivé de l'ajustement logarithmique sur la réactivité, au démarrage pour les six configurations. Les vecteurs dégradés sont plus favorables pour obtenir un effet Doppler sur le combustible dans le cas du plutonium, malgré une plus grande concentration de celui-ci. Cependant, c'est l'effet opposé qui est constaté pour les configurations avec actinides mineurs. La dégradation du vecteur isotopique implique un Doppler très réduit, voire nul, pour le cas PAI. À cela, deux causes : la forte teneur en actinides limite la thermalisation des neutrons, qui voient peu de résonances de captures, et la baisse d'isotopes favorisant le Doppler (^{240}Pu).

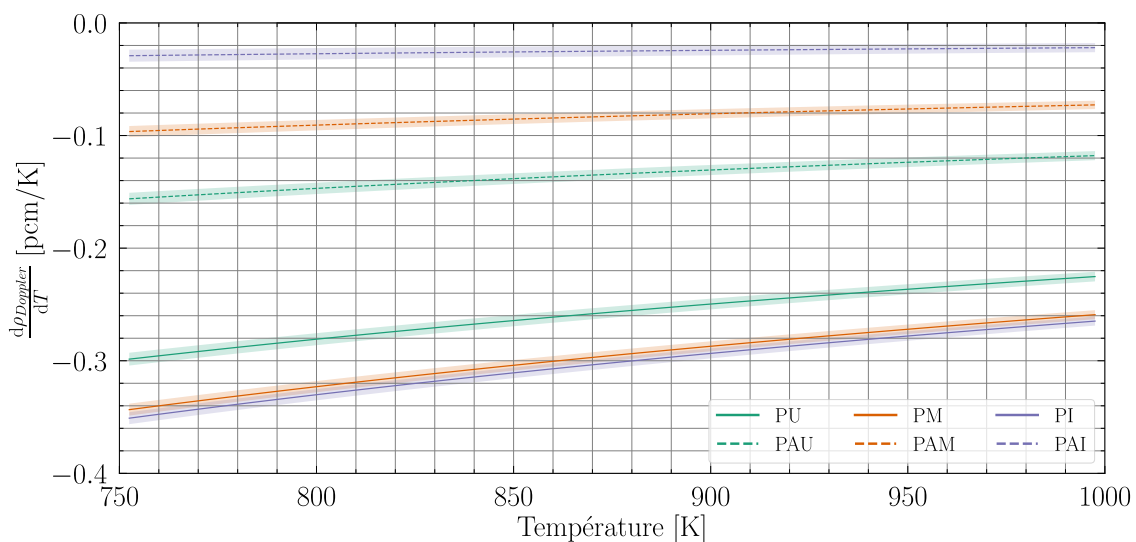


FIGURE 6.55 – Évolution des coefficients de contre-réaction Doppler selon la température au démarrage pour les six configurations RAPTOR

De manière similaire, la contre-réaction de densité, montrée en figure 6.56, est plus favorable aux configurations plutonium à vecteur peu dégradé (idem que dans la section 4.4.7). Il est étonnant que le cas PAI, pourtant très concentré et donc à forte dilatabilité,

ait une contre-réaction si faible. Il faut néanmoins rappeler que la géométrie est identique à toutes les configurations, donc le Laplacien géométrique est identique (surface de fuite de neutrons). La transparence du sel combustible aux neutrons dépend fortement de sa composition. Les sels contenant beaucoup d'actinides mineurs sont plus opaques et les fuites sont limitées. Ainsi, l'effet de densité est réduit.

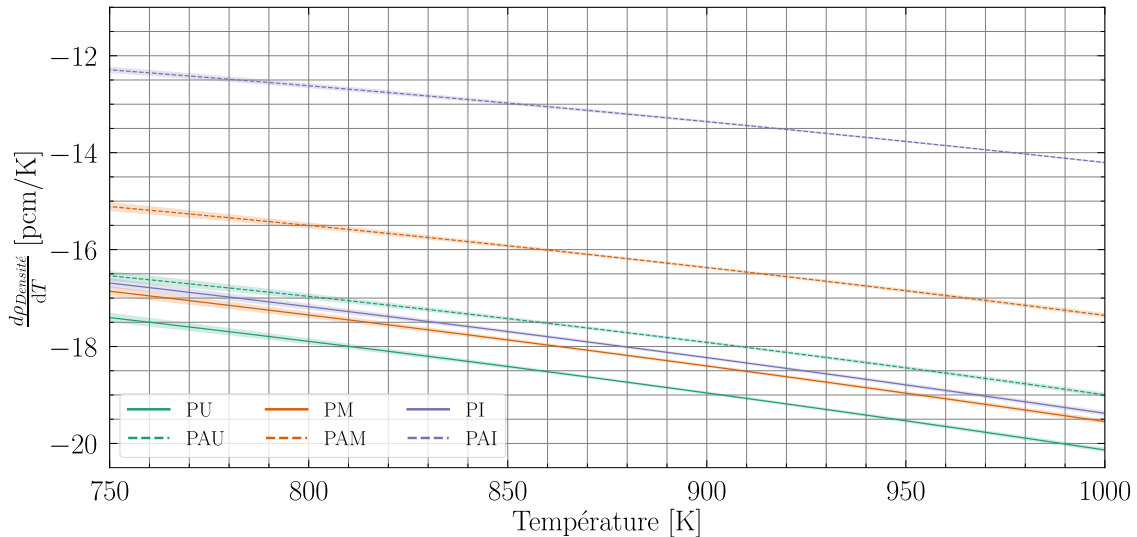


FIGURE 6.56 – Évolution des coefficients de contre-réaction de densité selon la température au démarrage pour les six configurations RAPTOR

6.7.2 Évolution temporelle

L'évolution temporelle du CCR Doppler est similaire à ce qui a déjà été observé au chapitre 4, avec sa diminution en valeur absolue (figure 6.57). Les configurations démarrées au plutonium uniquement voient un changement très important de la composition du sel, qui entraîne une plus grande concentration de plutonium et réduit les absorptions dans les résonances de capture. Les configurations à actinides mineurs sont quant à elles peu impactées.

Tout en restant très négatif, l'effet de densité diminue également avec le temps, mais de manière inégale selon les cas (figure 6.58). Plus le sel est concentré en actinides, moins l'impact sera important puisque le sel est déjà relativement opaque et laisse difficilement passer les neutrons.

La figure 6.59 présente l'évolution temporelle de la dilatabilité. Celle-ci devient plus grande puisque la teneur en actinides augmente (selon l'hypothèse de calcul de la masse volumique). Plus la teneur initiale en plutonium sera faible, plus celle-ci va augmenter avec le temps, de même pour la dilatabilité. Lorsque l'on regarde le CCR densité normalisé par la dilatabilité (figure 6.60), on remarque que l'origine du combustible influe plus que la composition dudit combustible (plutonium ou plutonium + actinides mineurs). Ainsi, à 50 ans, les configurations alimentées ex-UOX (cycle ouvert) conservent un CCR de densité supérieur aux cas ex-MOX (cycle semi-fermé) et ex-MIX (semi-fermé⁺).

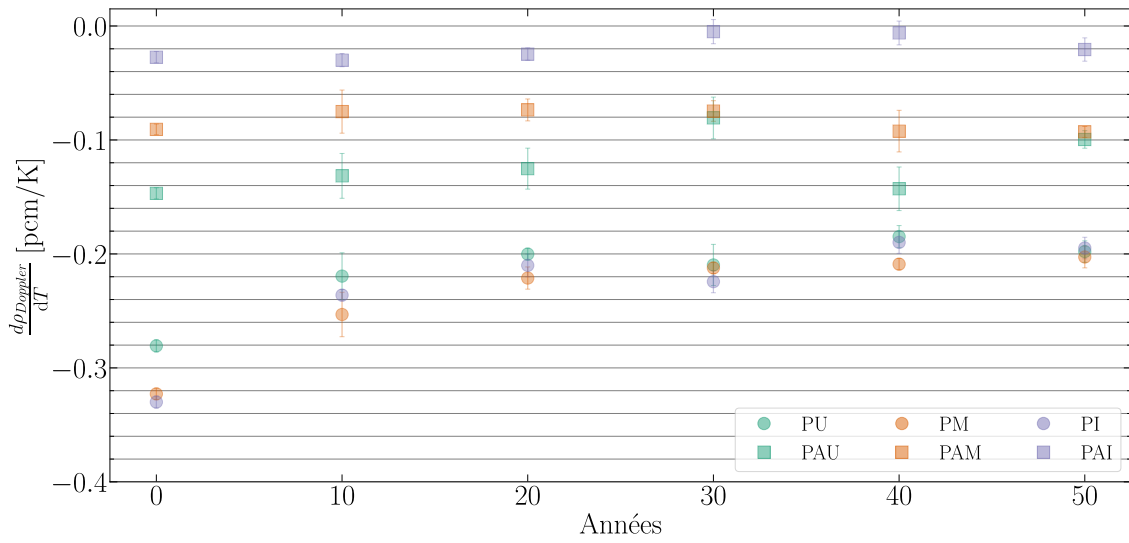


FIGURE 6.57 – Évolution des coefficients de contre-réaction Doppler au cours du fonctionnement pour les six configurations RAPTOR

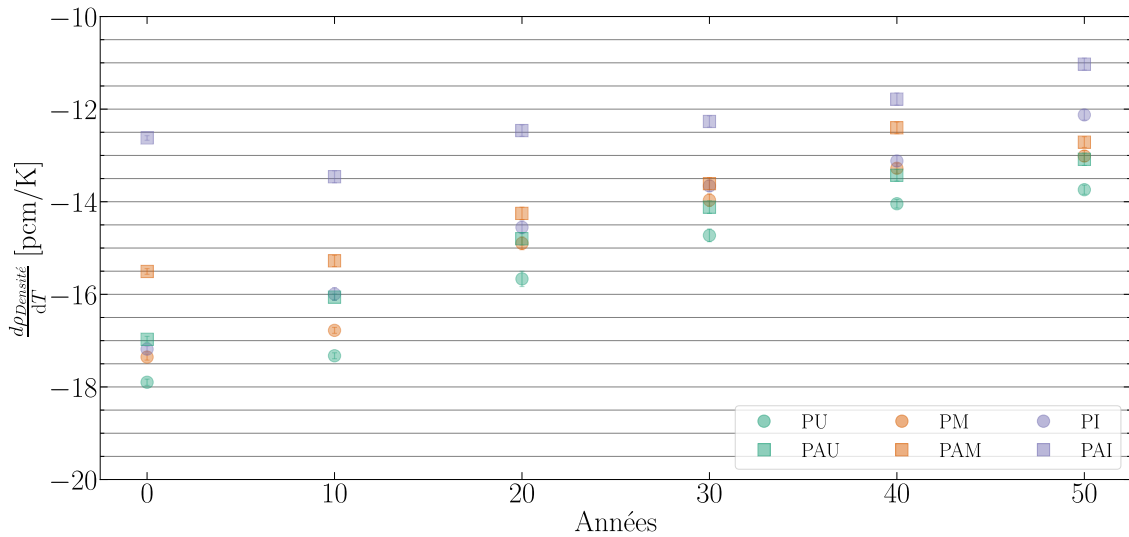
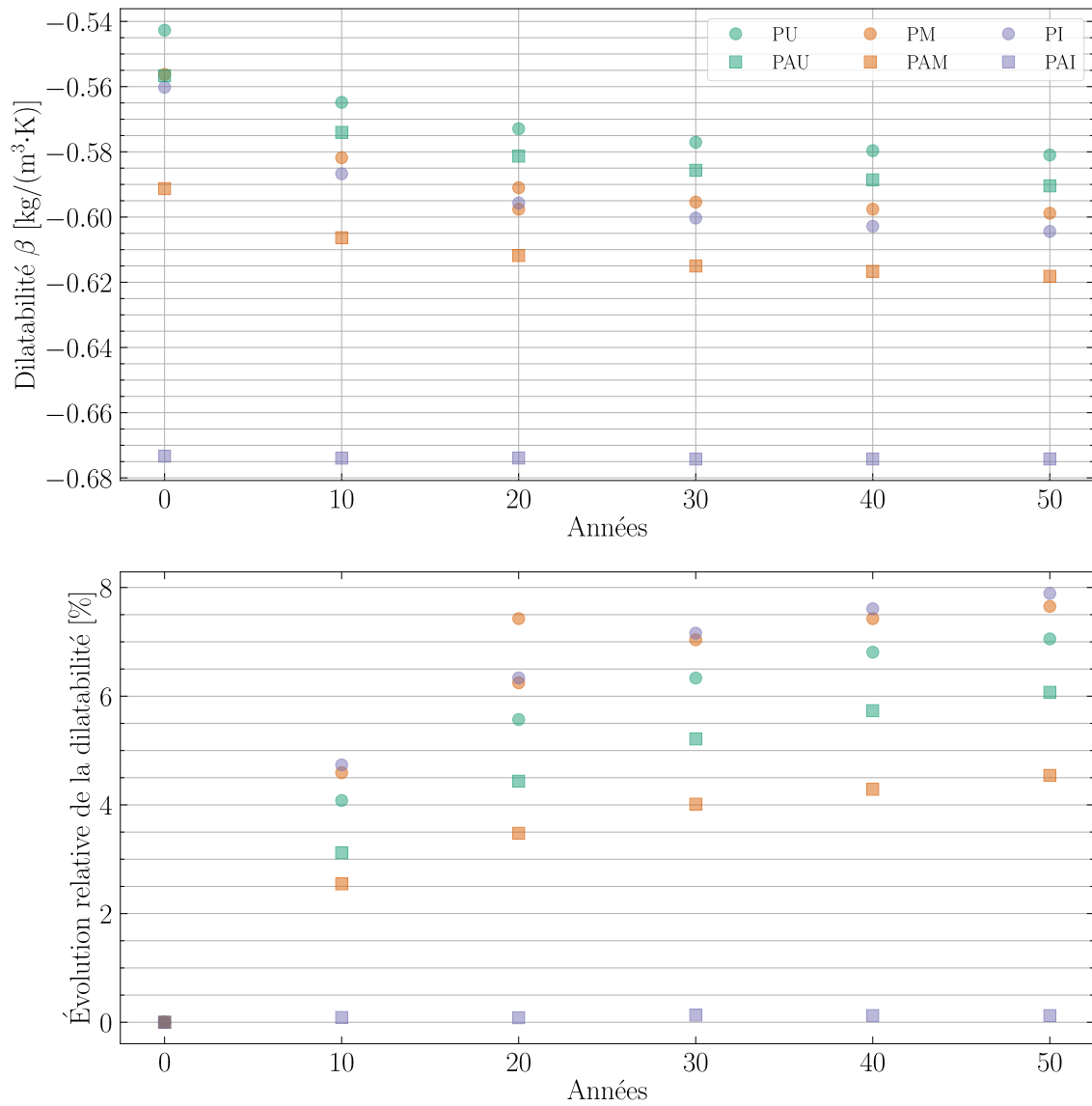


FIGURE 6.58 – Évolution des coefficients de contre-réaction de densité au cours du fonctionnement pour les six configurations RAPTOR

**FIGURE 6.59** – Évolution temporelle de la dilatabilité des six configurations RAPTOR

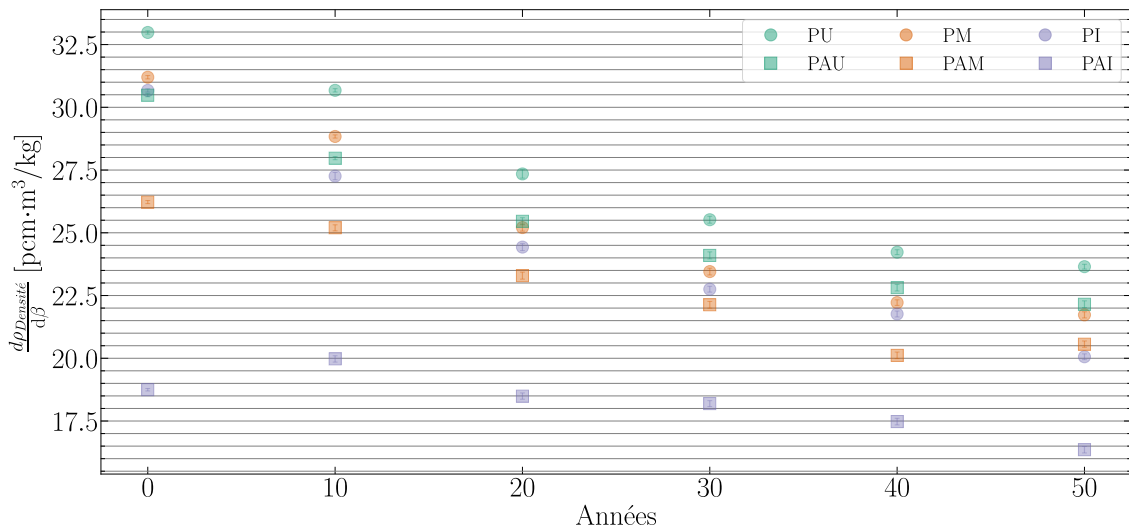


FIGURE 6.60 – Évolution des coefficients de contre-réaction de densité normalisés par la dilatabilité au cours du fonctionnement pour les six configurations RAPTOR

6.7.3 Conclusions

Les contre-réactions de température sont dominées par l'effet de densité, très important : ≈ -12.5 à -18 pcm/K au démarrage, puis -11 à -14 pcm/K à 50 ans. L'effet Doppler est quant à lui très réduit (> -0.35 pcm/K), car le spectre neutronique est rapide et les noyaux du sel combustible capturent peu à ces énergies.

L'irradiation du sel diminue les effets de contre-réaction par une opacité neutronique croissante avec l'augmentation de la teneur en actinides, pour compenser les actinides mineurs principalement et les produits de fission dans un second temps.

L'autostabilité du réacteur devrait être assurée en fonctionnement nominal, quelle que soit la composition du sel combustible et donc le scénario du cycle du combustible choisi.

6.8 Colis vitrifiés et radiotoxicité

6.8.1 Influence du temps de refroidissement avant vitrification

La figure 6.61 présente l'évolution de la production totale de CSD-V à partir des effluents du réacteur, selon le temps de refroidissement avant retraitement. Comme pour les cas 100% plutonium du chapitre 4, le retraitement avant 5 ans donne lieu à une surproduction de CSD-V. En revanche, il est nécessaire d'attendre à minima 5.5 ans pour que la puissance thermique ne prédomine plus. Il est nécessaire de rappeler ici que les simulations plutonium ne réinjectent que le plutonium (actinides mineurs envoyés à la vitrification), et que les simulations avec actinides mineurs supposent une séparation parfaite (hypothèse discutée en section 6.8.3). On choisira un temps de refroidissement de 6 ans pour le calcul de la production de CSD-V et de leur radiotoxicité des CSD-V.

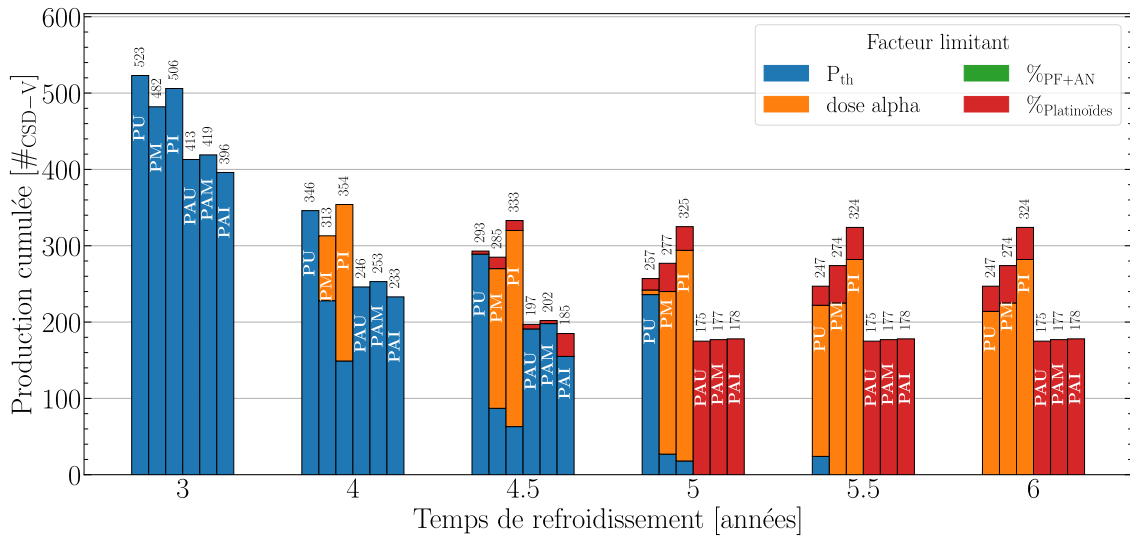


FIGURE 6.61 – Impact du temps de refroidissement sur la production de CSD-V des configurations RAPTOR

6.8.2 Vitrification totale du sel combustible

La figure 6.62 donne le facteur de réduction des colis entre la vitrification directe des TRU alimentés (voir sections 4.4.9 et 5.7) et les extractions + vitrifications du sel combustible des six configurations de réacteur. Le passage en réacteur des actinides permet de gagner un facteur entre 2 et 3 sur le nombre de CSD-V produits dans le cas défavorable de la vitrification du sel combustible (au lieu de 7 à 17). Ce facteur de réduction est d'autant plus important que le temps de fonctionnement du réacteur sera grand, car la source principale du nombre de CSD-V est ce qui reste dans le sel combustible (Pu+AM). Une incinération de ce sel combustible serait recommandée.

On note également que la séparation poussée (cas PAU, PAM, PAI) permet de diviser le nombre de colis produits en fonctionnement entre 30 et 40% par rapport à la séparation actuelle (cas PU, PM, PI). La production de CSD-V dans le cadre de la vitrification du sel combustible est similaire, quel que soit le type de séparation adopté, hormis le cas PAI qui a un sel très concentré en actinides mineurs.

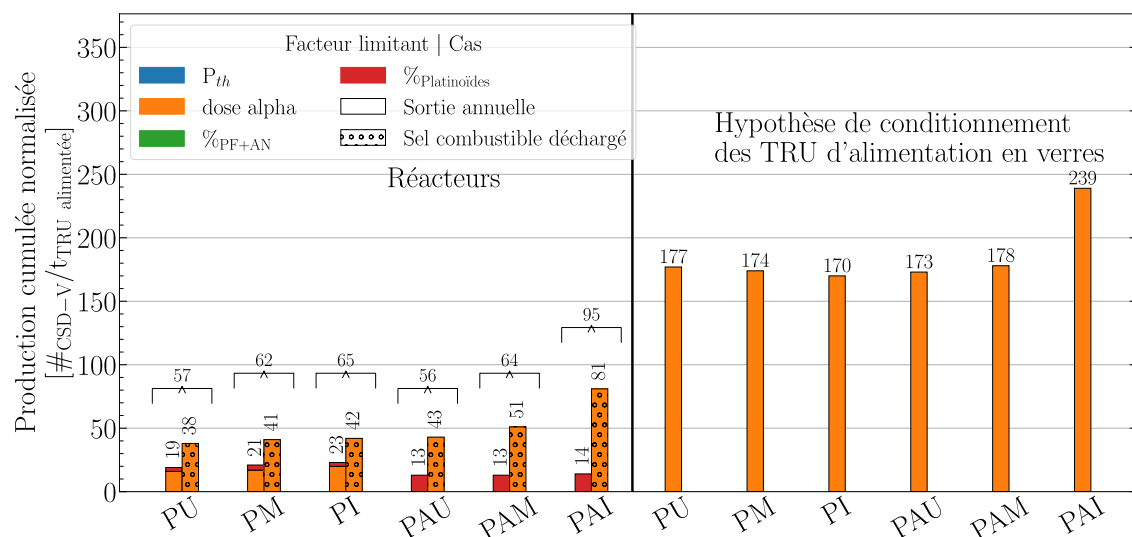


FIGURE 6.62 – Production de CSD-V après six ans de refroidissement au cours du fonctionnement et avec vitrification du cœur des configurations RAPTOR, normalisée selon la masse alimentée

La figure 6.63 présente le calcul de la radiotoxicité des CSD-V produits dans les scénarios, cas PU, PM et PI avec réinjection du plutonium dans le réacteur, seuls les PF et AM sont vitrifiés au cours du fonctionnement. Malgré la présence des AM qui font grimper le nombre de colis produits à cause de la dose α , la radiotoxicité reste inférieure à celle des vecteurs d'alimentation d'environ un facteur 2 sur les 100 premières années (fonctionnement du réacteur). Après l'arrêt du réacteur, le sel déchargé et vitrifié apporte beaucoup de précurseurs α qui fait grimper la radiotoxicité presque au niveau de celle du vecteur d'alimentation avant de fortement diminuer. Les écarts entre le cas PF+AM et celui où le sel déchargé est vitrifié sont plutôt faibles (20 à 60%) à cause de la présence des AM dans le premier cas.

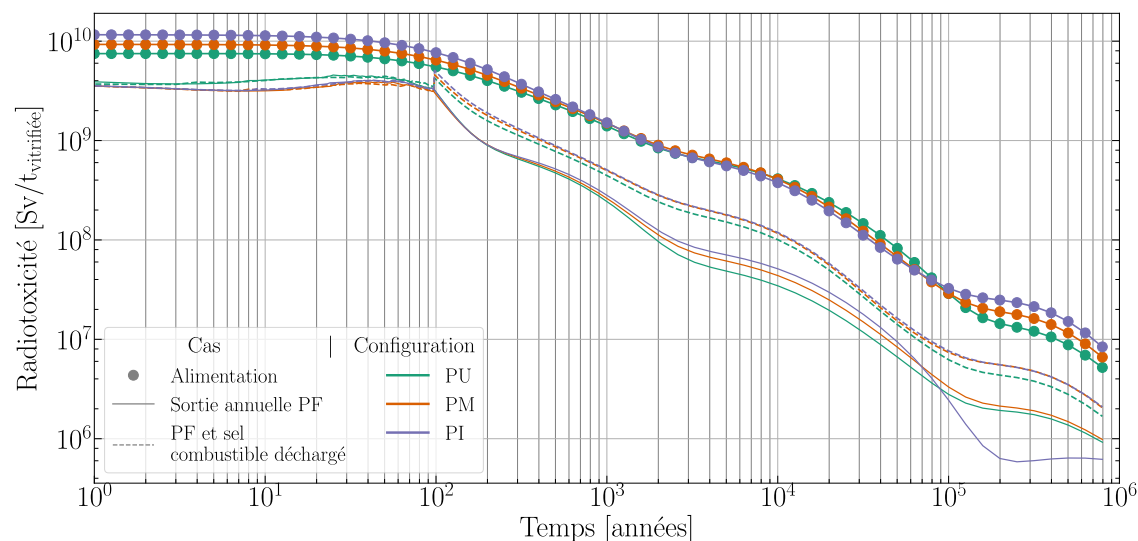


FIGURE 6.63 – Radiotoxicité des CSD-V des RAPTOR plutonium avec réinjection du plutonium en cœur

Le gain de radiotoxicité des cas avec actinides mineurs est plus important (facteur 3 à 10) au cours du fonctionnement, car les TRU sont réinjectés en cœur avec une efficacité de 100% (figure 6.64). La vitrification du sel combustible à 100 ans est source d'un apport en plutonium et actinides mineurs dans les colis, ce qui fait naturellement grimper temporairement la radiotoxicité au-delà de celle du vecteur d'alimentation. Il faut néanmoins souligner que le pic reste inférieur à la radiotoxicité initiale de l'alimentation vitrifiée (il y a déjà eu 100 ans de décroissances). Après 10^5 années, la radiotoxicité du cas PAI avec vitrification du sel combustible remonte à cause du plutonium.

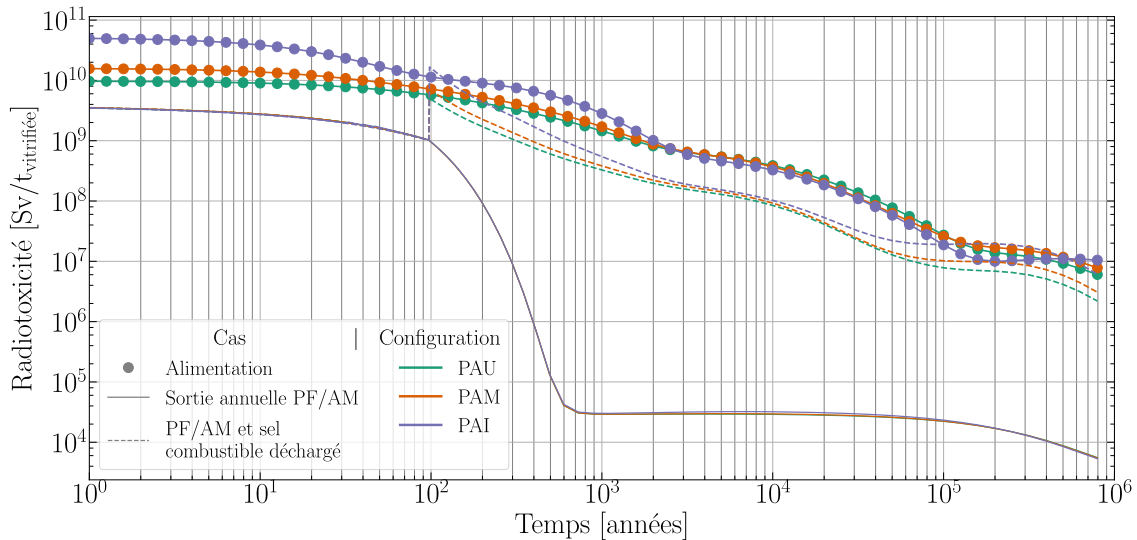


FIGURE 6.64 – Radiotoxicité des CSD-V des RAPTOR plutonium/actinides mineurs avec une réinjection en 5 ans

6.8.3 Efficacité du retraitement

Une haute efficacité du retraitement est essentielle pour limiter les fuites de matière dans les flux où elle n'est pas désirée. Les capacités de séparation des différents actinides mineurs présentées en section 6.1.1 ont été obtenues en laboratoire et restent à valider à l'échelle industrielle. On souhaite donc estimer l'impact de l'efficacité de séparation des TRU des PF sur la production de CSD-V, ici variant de 95 à 100%, avec six ans de refroidissement au préalable. Le tableau 6.7 détaille les efficacités de séparation du retraitement du sel combustible, afin de séparer les U+TRU des autres éléments (PF + AN < U) avant la réinjection dans le circuit combustible.

TABLEAU 6.7 – Efficacités de séparation des éléments avant la réinjection des U+TRU dans le circuit combustible

Éléments	100% (séparation parfaite)	99% (objectif à atteindre)	95% (cas défavorable)
U	100%	99%	99%
Pu	100%	99%	99%
TRU (Z>94)	100%	99%	95%
PF et AN (Z<92)	0%	0%	0%
Solvant	100%	100%	100%

La figure 6.65 présente la production de colis vitrifiés pour les simulations plutonium + actinides mineurs selon l'efficacité de séparation au retraitement. Aucune différence n'est observée sur la vitrification des matières extraites du sel combustible excepté pour le cas PAI à 95% d'efficacité. La vitrification des platinoïdes implique un calcul de CSD-V enveloppe défavorable et masquant l'évolution de la contribution α des actinides mélangés aux produits de fission. Le nombre de colis totaux avec vitrification du sel combustible diminue avec l'efficacité de séparation, car moins d'actinides sont réinjectés dans le circuit combustible nécessitant une alimentation plus grande.

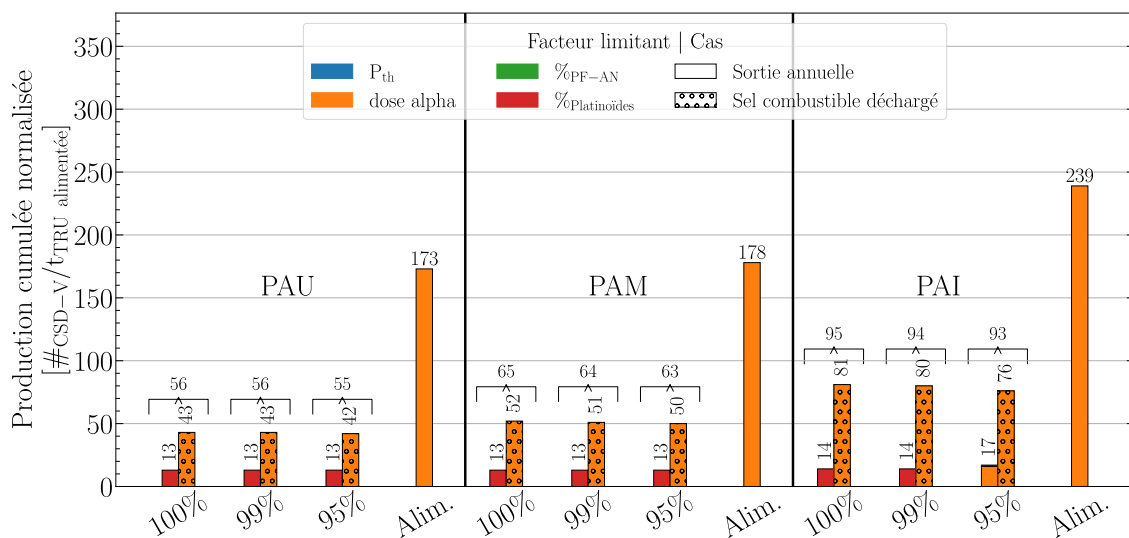


FIGURE 6.65 – Production de CSD-V après six ans de refroidissement au cours du fonctionnement selon l'efficacité de séparation PF/(U+TRU) des configurations RAPTOR plutonium + actinides mineurs

L'estimation de la radiotoxicité associée à la production de colis en fonctionnement de l'efficacité de séparation des matières est donnée en figure 6.66 pour les cas sans vitrification du sel combustible en fin de fonctionnement, et en figure 6.67 lorsque le sel combustible est vitrifié. Alors que l'efficacité de séparation des éléments lors du retraitement impacte fortement la radiotoxicité des colis (plus élevée lorsque l'efficacité est moindre), lorsque le sel combustible est vitrifié, l'apport de radioéléments est conséquent et noie les différences existantes. La séparation parfaite (100%) des U+TRU permet d'atteindre $1E7$ Sv/t en 300 ans environ après le début de la vitrification pour

toutes les configurations plutonium + actinides mineurs. Lorsque l'efficacité diminue, il est nécessaire d'attendre entre 6000 (PAU) et 10 000 (PAI) ans à 99% d'efficacité et entre 10 000 (PAU) et 30 000 (PAI) ans pour 95% d'efficacité. Bien que la diminution soit de plus en plus lente lorsque le vecteur isotopique du sel se dégrade et que l'efficacité de séparation diminue, le gain reste important pour toutes les configurations présentées ici par rapport à la vitrification des vecteurs d'alimentation (>100 000 ans pour atteindre $1E7$ Sv/t).

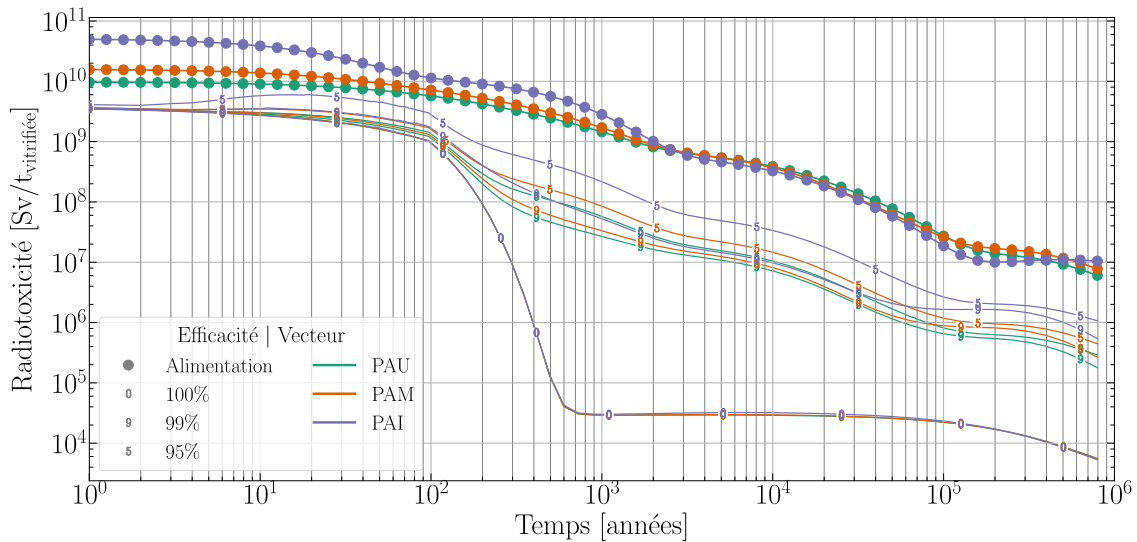


FIGURE 6.66 – Estimation de la radiotoxicité des CSD-V produits après six ans de refroidissement au cours du fonctionnement selon l'efficacité de séparation PF/(U+TRU) des configurations RAPTOR plutonium + actinides mineurs sans vitrification du sel combustible déchargé

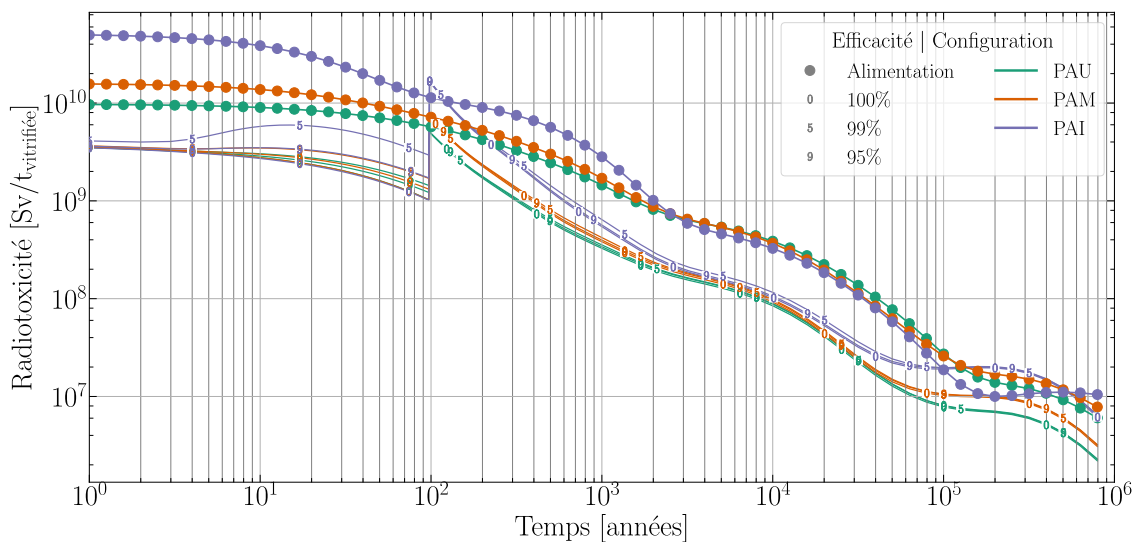


FIGURE 6.67 – Estimation de la radiotoxicité des CSD-V produits après six ans de refroidissement au cours du fonctionnement selon l'efficacité de séparation PF/(U+TRU) des configurations RAPTOR plutonium + actinides mineurs avec vitrification du sel combustible déchargé

6.9 Conclusions

Contexte Les concepts RAPTOR ont été développés dans le but d'étudier la faisabilité de la consommation de matières non utilisées dans différents cycles du combustible avec deux types de séparation (actuelle et avancée). Ce concept a été dimensionné dans l'optique d'en faire un démonstrateur représentatif d'un réacteur incinérateur. Il est donc compact (2 m³ de zone critique, 50% de sel en cœur) et de faible puissance thermique (300 MW_{th}). Les combustibles à incinérer peuvent être du plutonium issu du cycle ouvert, ou bien un mélange d'actinides mineurs ex-UOX et ex-MIX associé à un peu de plutonium ex-MIX afin d'améliorer la qualité isotopique.

Démarrage et évolution Ce chapitre a tout d'abord montré la possibilité de démarrer le réacteur avec différentes qualités de combustible en ajustant la teneur en actinides dans le sel combustible. Le démarrage avec uniquement des actinides mineurs a également été simulé et montré. La proportion de fission au démarrage diminue avec la dégradation isotopique du combustible, ce qui nécessite de plus grandes teneurs d'actinides au démarrage.

Les simulations de l'évolution neutronique par contrôle de la réactivité des configurations plutonium, ainsi que des cas plutonium + actinides mineurs ex-UOX/ex-MOX se déroulent sans problèmes. En revanche, lorsque le vecteur isotopique est très dégradé et que le réacteur est uniquement alimenté en actinides mineurs, la production de ²³⁸Pu à partir de l'²⁴¹Am impacte fortement le contrôle du réacteur. Cette production relativement lente (plusieurs mois) introduit de la réactivité à retardement qui n'est pas anticipée par le code de simulation. Des oscillations de réactivité et de matières conséquentes (plusieurs milliers de pcm et plusieurs centaines de kilogrammes) sont alors observées. Un contrôle de la teneur en actinides dans le sel s'est avéré efficace pour la simulation de ce cas particulier. En revanche, aucune des méthodes de contrôle utilisées n'a réussi à simuler la version 100% actinides mineurs (démarrage et alimentation), de trop grandes oscillations de réactivité sont observées à cause de la production de ²³⁸Pu.

Sensibilités au retraitement Le choix d'une réinjection du plutonium dans le sel combustible au lieu de l'extraire avec les produits de fission et les actinides mineurs a été étudié pour les simulations plutonium. L'extraction du plutonium avec les autres matières implique une suralimentation pour compenser la perte de réactivité induite. Cette suralimentation améliore le vecteur isotopique du sel combustible et limite la production d'éléments lourds. Elle implique cependant une dégradation du vecteur isotopique du plutonium extrait en regard de celui alimenté.

La description du retraitement avec la formulation explicite du temps de refroidissement avant retraitement et réinjection peut fortement impacter l'évolution des matières et des isotopies dans le sel combustible. Certains isotopes vont pouvoir décroître à l'extérieur au lieu de capturer ou fissionner (par exemple ²⁴²Cm → ²³⁸Pu) et les isotopies des matières principalement présentes tendent à s'améliorer (nombre de masses plus petit), puisque la suralimentation pour compenser la perte de réactivité des actinides extraits apporte du combustible «frais».

Éléments délétères La production de chlore radioactif dépend très fortement du vecteur utilisé, puisque les vecteurs de meilleure qualité nécessitent une teneur plus faible dans le sel combustible et les neutrons tendent à davantage collisionner avec le solvant. Ainsi, la production de ^{36}Cl diminue avec la dégradation du vecteur isotopique (et l'augmentation de la teneur en actinides dans le sel combustible). La production de soufre est presque indifférente à la composition du sel combustible, excepté le cas plutonium + actinides mineurs ex-MIX qui l'augmente un peu avec un spectre neutronique le plus rapide des configurations étudiées ici.

Efficacité d'incinération Le critère de proportion de fission montre que les actinides mineurs fissionnent mieux dans les configurations alimentées avec plutonium + actinides mineurs, par le spectre un peu plus rapide lié à la teneur en actinides plus grande. Le plutonium est en revanche peu sensible aux différences de rapidité des neutrons dans les cas étudiés ici.

L'efficacité de mobilisation dépend surtout du retraitement choisi. Lorsque le plutonium n'est pas réinjecté ou que les actinides extraits attendent cinq ans avant d'être réinjectés, l'alimentation est plus importante pour compenser la perte de réactivité. Ainsi, le critère de mobilisation est dégradé à cause de la masse injectée plus importante. Le vecteur d'alimentation influe peu sur ce critère, car l'efficacité de mobilisation se situe entre 70 et 80% à 100 ans pour les configurations où il y a réinjection des actinides.

Le bilan de consommation montre que toutes les configurations RAPTOr consomment le plutonium initial en moins de 20 ans quel que soit le type de retraitement, excepté le cas PAI qui produit davantage de plutonium qu'il n'en consomme. Pour les configurations alimentées uniquement en plutonium, on constate des différences sur la production d'actinides mineurs selon la gestion du plutonium. Une réinjection de celui-ci conduit à une production plus réduite de neptunium et d'américium, mais davantage de curium et de californium sont produits avec la dégradation du vecteur isotopique du plutonium, moins renouvelé en plutonium « frais ». Pour les configurations alimentées en actinides mineurs (avec ou sans plutonium), on observe pour certaines configurations une influence manifeste du temps de refroidissement et de réinjection des actinides sur la consommation des différents éléments. Le temps de consommation des masses initiales peut être allongé ou réduit, notamment sur le curium (de 15 à 70 ans pour consommer la masse initiale). Ainsi, la masse initiale de neptunium est consommée en des temps similaires au plutonium (vingtaine d'années). L'américium a un bilan plus mitigé puisque près de 40 ans peuvent être nécessaires pour consommer la masse initiale selon le vecteur d'alimentation, le cas le plus favorable étant celui sans plutonium qui ne peut se transformer en américium. Le bilan du curium est similaire à celui de l'américium, avec des temps longs de consommation de la masse initiale (37 ans à 73 ans, voire pas consommée du tout).

Dégâts d'irradiation Les différentes configurations montrent peu de différences sur la production de gaz dans les matériaux de structure et de lacunes. L'estimation faite des dpa est conséquente mais probablement surestimée sans la prise en compte de mécanismes de recombinaison. De même, le comportement des gaz produits est incertain et mérite de plus amples investigations et davantage de données à mesurer..

Contre-réactions de température Les contre-réactions de température (Doppler et de densité) montrent l'autostabilité des différentes configurations au cours du fonctionnement. On note cependant un effet Doppler bien plus réduit pour les configurations plutonium + actinides mineurs que pour les cas 100% plutonium. D'une part, la teneur en actinides est très élevée, ce qui mène à un spectre neutronique dur et une absorption dans les résonances faible. D'autre part, le manque ou la très faible teneur en ^{240}Pu , isotope ayant la contribution Doppler la plus importante aux énergies considérées, limite fortement cet effet de contre-réaction.

L'effet de densité est en revanche très fort, comme pour toutes les configurations étudiées jusqu'à présent. On note que la présence d'actinides mineurs rend le sel opaque et limite la fuite des neutrons. Cet effet d'opacité s'observe également en fonctionnement avec l'apparition des produits de fission et d'actinides mineurs créés par captures et décroissances successives. Cela mène à une réduction de l'effet de densité avec le temps de fonctionnement, tout en restant à des valeurs très négatives.

Production de colis CSD-V et radiotoxicité La vitrification d'actinides mineurs en fonctionnement amène à un temps de refroidissement de 6 ans pour la puissance thermique diminue suffisamment et permette une production minimale de CSD-V, dominée par la dose α et la teneur en platinoïdes. Le nombre de colis produit augmente considérablement si le sel combustible est vitrifié en fin de fonctionnement du réacteur avec l'apport de plutonium et autres transuraniens. Un gain conséquent (environ un facteur 3) est malgré cela observable par rapport à la vitrification directe du vecteur d'alimentation. Le concept RAPTOR permet de diminuer considérablement l'emprise géologique des colis vitrifiés.

L'évolution de la radiotoxicité est également largement en faveur du concept RAPTOR développé dans ce chapitre, avec un gain d'environ 2 au cours du fonctionnement du réacteur (cas plutonium), puis plus important une fois la fin de production des CSD-V. La vitrification du sel combustible n'apporte pas assez d'éléments radiotoxiques pour dépasser la radiotoxicité du vecteur d'alimentation. Les cas plutonium + actinides mineurs voient également un gain de 3 à 10 pendant le fonctionnement du réacteur (plus grand après la fin de production des CSD-V). La vitrification du sel combustible apporte en revanche beaucoup d'éléments radiotoxiques, ce qui fait remonter la radiotoxicité globale mais qui reste inférieure à la radiotoxicité initiale du vecteur d'alimentation. Ce pic observé est «bref» (environ 300 ans) et le gain initial est à nouveau observé.

Efficacité de séparation L'efficacité de séparation lors du retraitement du sel combustible impacte peu la production de CSD-V au cours du fonctionnement avec l'hypothèse de vitrification des platinoïdes, excepté pour PAI avec une efficacité de séparation à 95%. L'évolution de la composition du sel combustible (augmentation importante des actinides mineurs) associé à un sel très concentré en actinides (criticité au démarrage) amène des contributeurs α rapidement dans le circuit de vitrification. La diminution de l'efficacité de séparation ne donne cependant pas lieu à une dégradation du gain sur la production de colis par rapport à la vitrification directe du vecteur d'alimentation.

L'impact de l'efficacité de séparation est en revanche visible nettement sur la radiotoxicité avec des décroissances plus lentes lorsque plus d'actinides sont vitrifiés au cours du fonctionnement. La vitrification du sel combustible en fin de fonctionnement apporte

suffisamment de noyaux radiotoxiques pour que l'efficacité de séparation n'influe que très peu. Quelle que soit l'efficacité de séparation, un gain sur la radiotoxicité de plusieurs ordres de grandeur est observé par comparaison aux vecteurs d'alimentation.

Il sera nécessaire de réévaluer la production de colis et leur radiotoxicité après une réflexion sur la gestion des platinoïdes. Les faibles écarts de production de colis pourraient être augmentés, en fonction du nouveau critère prédominant.

7

Intégration de RSF incinérateurs à un parc électronucléaire

Les réacteurs incinérateurs RAPTOOr définis et étudiés dans le chapitre 6 sont utilisés dans ce chapitre pour estimer leur impact sur la réduction des matières au sein d'un parc. Une présentation des hypothèses de modélisation est tout d'abord faite, avant de décrire les différents scénarios pour chaque cycle du combustible d'intérêt. Un inventaire de l'évolution des parcs et des matières est présenté. Enfin, une estimation des colis vitrifiés (CSD-V) est réalisée pour comparer les gains de différents déploiements sur le volume à stocker des déchets ultimes en fin de jeu du nucléaire de fission.

Sommaire

7.1	Hypothèses des scénarios de déploiement	264
7.1.1	Définition de la trajectoire cible de la demande électrique . .	264
7.1.2	Caractéristiques des réacteurs	264
7.1.3	Modélisation des parcs	265
7.2	Scénarios de déploiement au sein d'un parc	268
7.2.1	Cycle ouvert	268
7.2.2	Cycle semi-fermé	279
7.2.3	Cycle semi-fermé ⁺ (multirecyclage REP)	290
7.2.4	Conclusions	302
7.3	Devenir des matières en fin de scénario	302
7.3.1	Production de colis de déchets vitrifiés (CSD-V)	302
7.3.2	Impact du temps de fonctionnement des RAPTOOr sur la production de CSD-V	304
7.4	Conclusions et perspectives	305

7.1 Hypothèses des scénarios de déploiement

L'intégration des RAPTOR au sein d'un parc se fait selon différents scénarios du cycle du combustible présentés dans la section 6.1. On considère donc ici les cycles ouvert, semi-fermé, semi-fermé⁺ pour représenter différentes stratégies de gestion du combustible. Par ailleurs, les parcs modélisés le sont avec des données correspondant à un parc type parc français (type de réacteur, puissance, demande d'électricité).

7.1.1 Définition de la trajectoire cible de la demande électrique

Le code ISF simule des parcs de réacteur en suivant un objectif : répondre à la demande énergétique. La figure 7.1 présente la production d'électricité nucléaire effective entre 1970 et 2020, puis la prévision d'évolution de la demande d'électricité française dans l'hypothèse d'une production électrique assurée uniquement par de l'électronucléaire et d'une croissance de la demande de $0.6 \text{ GW}_e/\text{an}$ jusqu'en 2050 pour suivre la transition énergétique [113], puis est constante jusqu'en 2200 à hauteur de 90 GW_e , soit 645 TWh_e (scénario de référence RTE [6]). Afin d'étudier les scénarios jusqu'à la fin de jeu, on suppose l'arrêt progressif total du parc électrogénérateur REP à partir de 2100. Les réacteurs incinérateurs peuvent démarrer dès 2040 et fonctionnent jusqu'à épuisement de leur combustible (par exemple, du Pu_{UOX} pour un RAPTOR PU). Cette demande est un objectif (fonctionnement du code ISF, voir section 3.3.7) et peut ne pas être atteinte avec l'arrêt progressif du parc à partir de 2100.

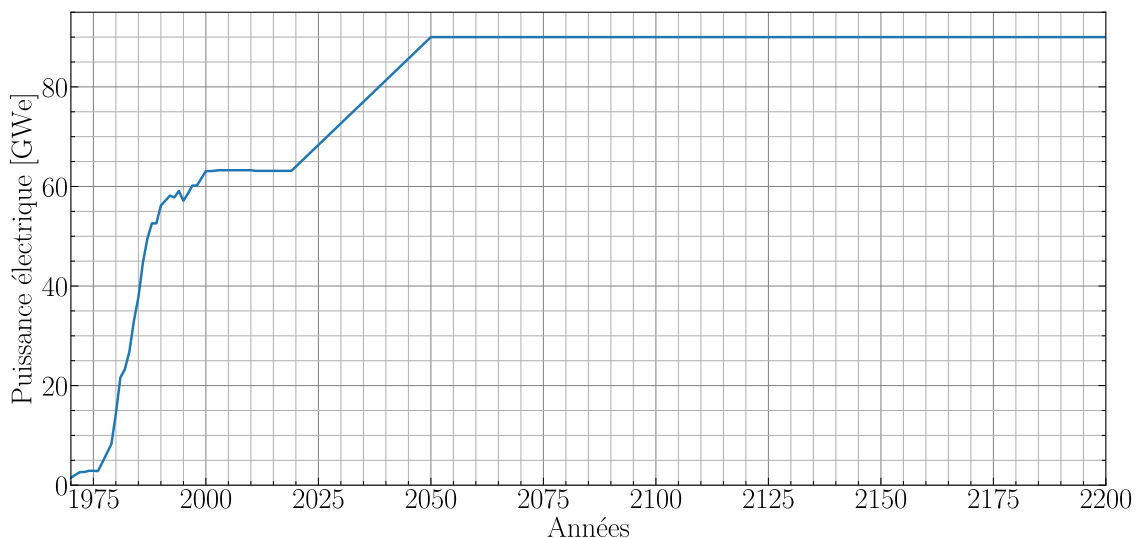


FIGURE 7.1 – Évolution de la production d'électricité nucléaire en France entre 1970 et 2020 et prévisions de la demande électrique française jusqu'en 2300

7.1.2 Caractéristiques des réacteurs

Comme décrit en section 3.3.7, ISF est un code de scénarios simplifié utilisant des données calculées en amont des scénarios pour décrire les différents réacteurs. Le tableau 7.1 présente les caractéristiques des différents réacteurs REP utilisés dans les simulations de déploiement de parc. L'ensemble des réacteurs REP de ce chapitre produit 1.67 GW_e avec

un facteur de charge de 83%, données issues de [104]. Les caractéristiques des réacteurs RAPTO_r seront précisées à chaque scénario mais tous les réacteurs ont un facteur de charge de 100%. Tous les réacteurs ont une durée de fonctionnement de 50 ans sauf mention contraire. Le combustible usé des REP est refroidi pendant 5 ans avant d'être retraité, celui des RAPTO_r est retraité après 6 ans (section 6.8). Le combustible retraité alimente des entreposages de matières qui seront réutilisées ou bien des stockages (CSD-V par exemple).

7.1.3 Modélisation des parcs

La demande électrique suivie par les réacteurs REP et RAPTO_r est celle présentée en figure 7.1. Dans toutes les simulations, un ordre de priorité de démarrage des réacteurs est établi pour favoriser les réacteurs incinérateurs RAPTO_r devant les REP. La fin du parc est actée en 2100, où aucun nouveau REP ne peut démarrer. Les RAPTO_r continuent de fonctionner jusqu'à épuisement de leur combustible. Les simulations sont effectuées jusqu'à extinction du dernier RAPTO_r. La fin de jeu consiste donc à fermer le parc REP et consommer le maximum de substances radioactives avec des RAPTO_r pour limiter les volumes à stocker de déchets finaux.

Pour chaque scénario de déploiement de RAPTO_r, un scénario additionnel est présenté avec une seconde génération de RAPTO_r pour l'incinération du sel déchargé à la fin du fonctionnement (conclusions des sections 4.4.9 et 6.8). Chaque catégorie de RAPTO_r est contrainte sur le nombre d'unités démarrées chaque année (5 par an maximum, rythme moyen de déploiement des REP en France).

TABLEAU 7.1 – Caractéristiques des réacteurs REP utilisés pour la simulation du déploiement des RAPTOR selon le cycle du combustible considéré avec les flux de matières en tonne de métal lourd initial (t_{M_{Li}})

Réacteur	Puissance [GW _e]	Démarrage	Alimentation	Scénario	Sortie
REP UOX ^a	1.67	UOX (120 t _{M_{Li}} , 4.2% ²³⁵ U ^b)	UOX (27.9 t _{M_{Li}} /an)	PU/PM/PI	27.9 t _{M_{Li}} /an 120 t _{M_{Li}}
					PF+AM 5.26E4 g/t _{M_{Li}} Pu 1.138E4 g/t _{M_{Li}} U _{retraité} 9.359E5 g/t _{M_{Li}}
REP MOX ^a	1.67	MOX (120 t _{M_{Li}} , 9.6% PuUOX, 93.4% U _{retraité})	MOX (27.9 t/an _{M_{Li}})	PM/PI	27.9 t _{M_{Li}} /an 120 t _{M_{Li}}
					PF+AM 5.451E4 g/t _{M_{Li}} Pu 6.821E4 g/t _{M_{Li}} U _{retraité} 8.773E5 g/t _{M_{Li}}
					27.9 t _{M_{Li}} /an 120 t _{M_{Li}}
					PF 5.12E4 g/t _{M_{Li}} AM 1.408E3 g/t _{M_{Li}} Pu 1.138E4 g/t _{M_{Li}} U _{retraité} 9.359E5 g/t _{M_{Li}}
					27.9 t _{M_{Li}} /an 120 t _{M_{Li}}
					PF 4.768E4 g/t _{M_{Li}} AM 6.830E3 g/t _{M_{Li}} Pu 6.814E4 g/t _{M_{Li}} U _{retraité} 8.773E5 g/t _{M_{Li}}

Suite à la page suivante

TABLEAU 7.1 – Caractéristiques des réacteurs REP utilisés pour la simulation du déploiement des RAPTOR selon le cycle du combustible considéré avec les flux de matières en tMLi (Suite)

Réacteur	Puissance [GW _e]	Démarrage	Alimentation	Scénario	Sortie
REP MIX ^a	1.67	MIX (120 t _{MLi} , 3.05% ²³⁵ U ^c , 8% Pu _{MIX})	MIX (27.9 t _{MLi} /an)	PI	27.9 t _{MLi} /an 120 t _{MLi} PF+AM 5.784E4 g/t _{MLi} Pu 6.116E4 g/t _{MLi} U _{retraité} 8.810E5 g/t _{MLi}
					27.9 t _{MLi} /an 120 t _{MLi} PF 5.060E4 g/t _{MLi} AM 7.241E3 g/t _{MLi} Pu 6.116E4 g/t _{MLi} U _{retraité} 8.810E5 g/t _{MLi}

^a Hypothèse d'une gestion par tiers de cœur, remplacement total du cœur en 4.3 ans, basé sur les articles [38, 104]

^b 27.9 t UOX à 4.2% ²³⁵U : 234.5 t d'uranium naturel et 206.6 t d'uranium appauvri à 0.25% ²³⁵U

^c 27.9 t MIX à 3.05% ²³⁵U : 152.93 t d'uranium naturel et 127.26 t d'uranium appauvri à 0.25% ²³⁵U

7.2 Scénarios de déploiement au sein d'un parc

Pour chaque cycle considéré, un parc composé uniquement de REP, appelé parc de référence pour l'étude est d'abord présenté, puis les parcs avec intégration de RAPTOR selon la disponibilité de la séparation avancée ou non. L'ajout de réacteurs RAPTOR de 2^e génération, consommateurs du sel déchargé des configurations RAPTOR étudiées dans le chapitre 6 est également considéré pour diminuer la production de CSD-V. La production de CSD-V sera comparée à la valeur seuil de 2 CSD-V/TWh_e, correspondant à la vitrification des produits de fission, inévitablement produits quels que soient le scénario et la gestion du combustible considérés (pour un temps de refroidissement de 5 années [26]). Le cycle ouvert (REP UOX), considérant à terme le stockage direct des combustibles UOX usés, sera également un point de comparaison essentiel dans l'estimation de la réduction des déchets et matières non valorisées. On utilisera le terme «stock» pour les substances non valorisables et «réserve» lorsque ces matières peuvent être réutilisées.

7.2.1 Cycle ouvert

7.2.1.a Parc de référence

Dans le cadre d'un cycle ouvert, seuls des REP UOX sont démarrés. La figure 7.2 présente l'évolution du nombre de réacteurs REP UOX de 1.67 GW_e dans le parc étudié pour répondre à la demande énergétique (figure 7.1). Le nombre de réacteurs déployés est plus faible que la quantité en fonctionnement en France, mais la puissance de ces réacteurs est plus grande (1.67 GW_e), et commence à décroître à partir de 2100 puisqu'aucun nouveau réacteur n'est autorisé à démarrer.

La figure 7.3 montre quant à elle l'évolution des matières issues du fonctionnement des réacteurs. On constate d'une part une consommation continue d'uranium naturel, nécessaire pour fabriquer l'uranium enrichi des combustibles UOX. D'autre part, il y a accumulation des combustibles usés, donc les inventaires d'uranium retraité, de plutonium ainsi que de PF+AM augmentent jusqu'à arrêt du parc. Dans le cycle ouvert modélisé ici, le combustible irradié n'est pas retraité pour valoriser les matières : sans valorisation, les cas de sortie du nucléaire de fission, les combustibles usés sont considérés comme des déchets. Les bilans matières détaillés sont présentés en section 7.3. Par ailleurs, un nombre de CSD-V équivalent est estimé à des fins de comparaison avec les autres cycles analysés dans les parties suivantes. En effet, dans un cycle ouvert, la vitrification des déchets n'est pas utilisée en réalité les combustibles usés sont stockés directement. Le nombre de CSD-V est utilisé ici comme objet de mesure de la quantité produite de déchets.

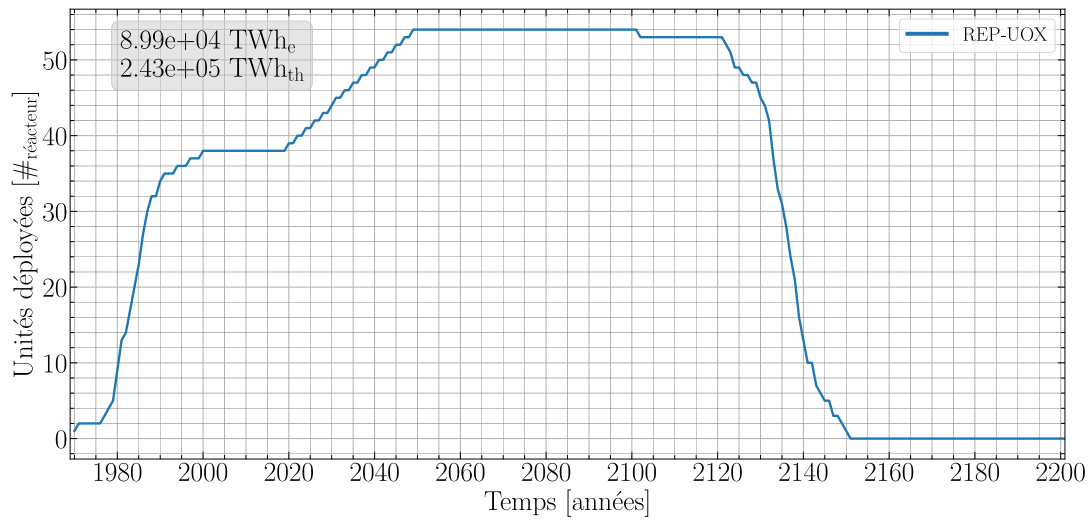


FIGURE 7.2 – Évolution du nombre de réacteurs REP UOX dans le parc avec une gestion du combustible en cycle ouvert pour une énergie totale produite de 8.99×10^4 TWh_e

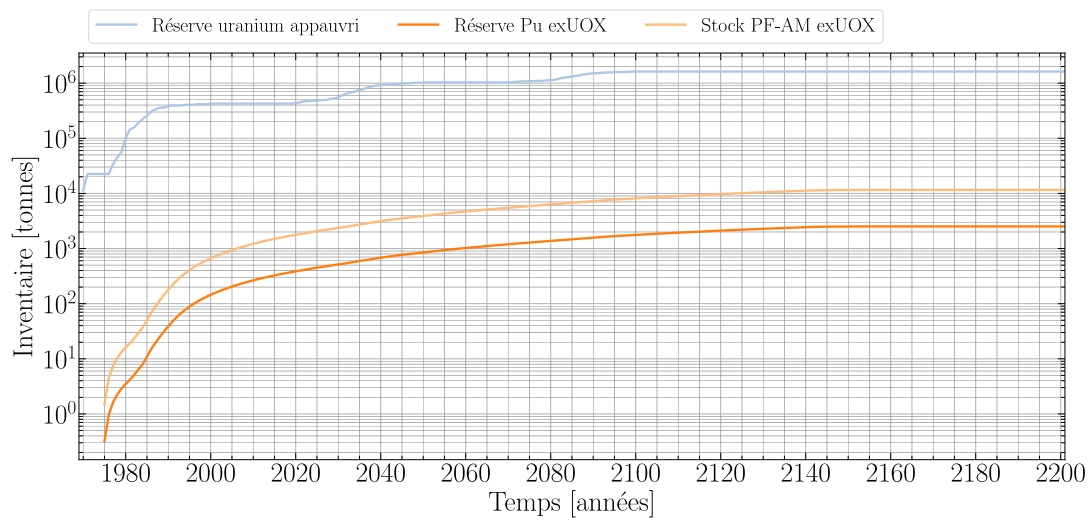


FIGURE 7.3 – Évolution des réserves et stocks d'intérêt dans le parc avec une gestion du combustible en cycle ouvert

7.2.1.b Intégration des RAPTO_r

Le tableau 7.2 liste les caractéristiques des deux couples de RAPTO_r intégrés dans le parc REP UOX. Le RAPTO_r PU, présenté dans le chapitre 6, consomme le plutonium issu des REP UOX et le RAPTO_r PUf finalise l'incinération en consommant le plutonium déchargé des RAPTO_r PU en fin de fonctionnement, avec pour objectif de diminuer la masse de déchets ultimes à la fin du scénario. De même, le RAPTO_r PAU consomme le plutonium et les actinides mineurs produits en REP UOX avec un RAPTO_r PAUF incinérateur de sel combustible. L'ordre de priorité de démarrage est le suivant :

1. RAPTO_r PUf | RAPTO_r PAUF
2. RAPTO_r PU | RAPTO_r PAU
3. REP UOX

TABLEAU 7.2 – Caractéristiques des réacteurs RAPTO_r pour l'intégration dans le cycle ouvert

Réacteur RAPTO _r	Puissance [GW _e]	Démarrage	Alimentation / Extraction à l'état stationnaire	Déchargement
PU	0.12	Pu _{UOX} 1.46 t	Pu _{UOX} ≈ 0.147 t/an PF+AM ≈ 0.107 t/an	Pu 2.29 t PF+AM 5.59 t
PUf	0.12	Pu _{PU} 2.13 t	Pu _{PU} ≈ 0.156 t/an PF+AM ≈ 0.111 t/an	Pu+PF+AM 8.85 t
PAU	0.12	(Pu+AM) _{UOX} 1.72 t	(Pu+AM) _{UOX} ≈ 0.185 t/an PF ≈ 0.099 t/an	Pu+AM 2.65 t PF 5.37 t
PAUF	0.12	(Pu+AM) _{PAU} 2.49 t	(Pu+AM) _{PU} ≈ 0.183 t/an PF ≈ 0.099 t/an	Pu+PF+AM 8.7 t

Séparation actuelle La mise en priorité du démarrage des RAPTO_r PUf et PU conduit à un déploiement très rapide des RAPTO_r car, en 2040, les réserves de plutonium ex-UOX sont importantes. Les figures 7.4 et 7.5 présentent l'évolution du nombre de réacteurs déployés lors de l'intégration des RAPTO_r PU et PUf. La faible puissance des RAPTO_r (et donc de leur consommation) ainsi que l'importance des réserves de plutonium conduisent à un déploiement massif des réacteurs incinérateurs. L'ajout des RAPTO_r dès 2040 conduit à une diminution du nombre de REP UOX en fonctionnement avant le début de l'arrêt programmé en 2100. Un pic de démarrage d'unités RAPTO_r PUf est observé vers 2180, faisant suite à l'extinction des unités PU, qui déchargent le combustible des unités PUf. Cet inventaire disponible est alors aussitôt utilisé.

La répartition de la production de puissance (figures 7.6 et 7.7) montre une production majoritaire par les REP UOX diminuant progressivement avec l'introduction des réacteurs incinérateurs. La transition s'effectue très rapidement avec l'arrêt programmé des REP UOX restants à partir de 2100.

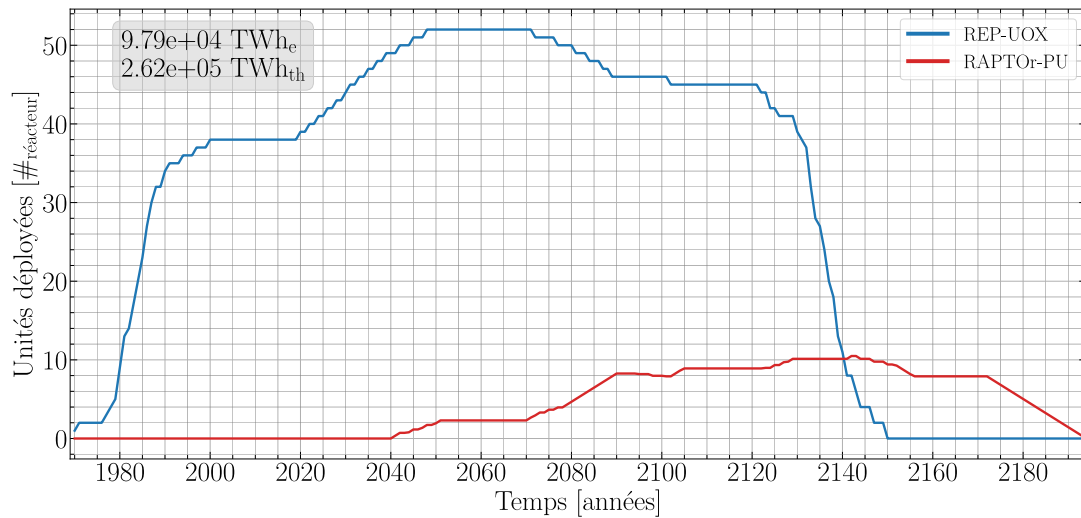


FIGURE 7.4 – Évolution de la composition du parc électronucléaire lors de l'intégration de réacteurs incinérateurs PU dans le parc avec une gestion du combustible en cycle ouvert et une séparation classique de matières pour une énergie totale produite de $9.79E4$ TWh_e

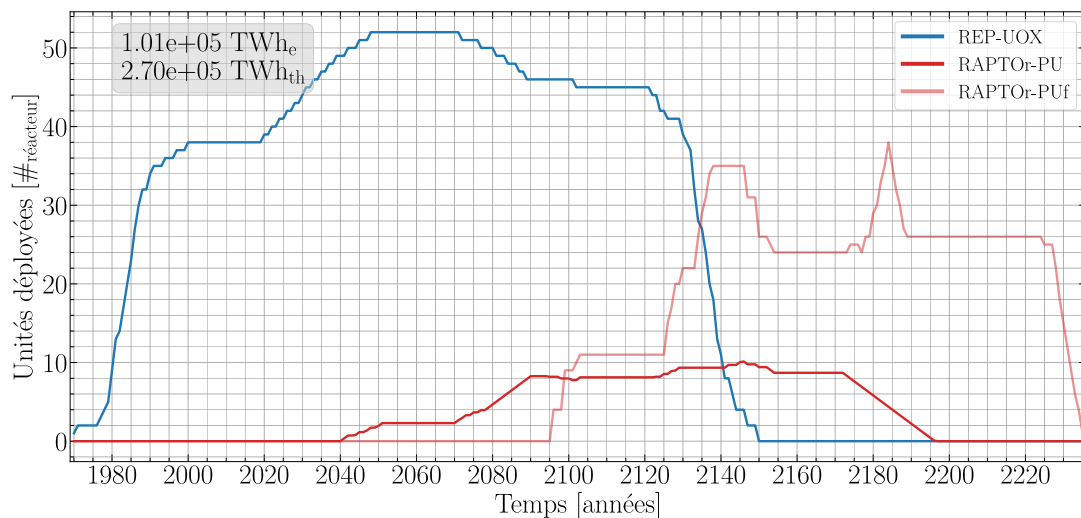


FIGURE 7.5 – Évolution de la composition du parc électronucléaire lors de l'intégration de réacteurs incinérateurs PU/PUf dans le parc avec une gestion du combustible en cycle ouvert et une séparation classique de matières pour une énergie totale produite de $1.01E5$ TWh_e

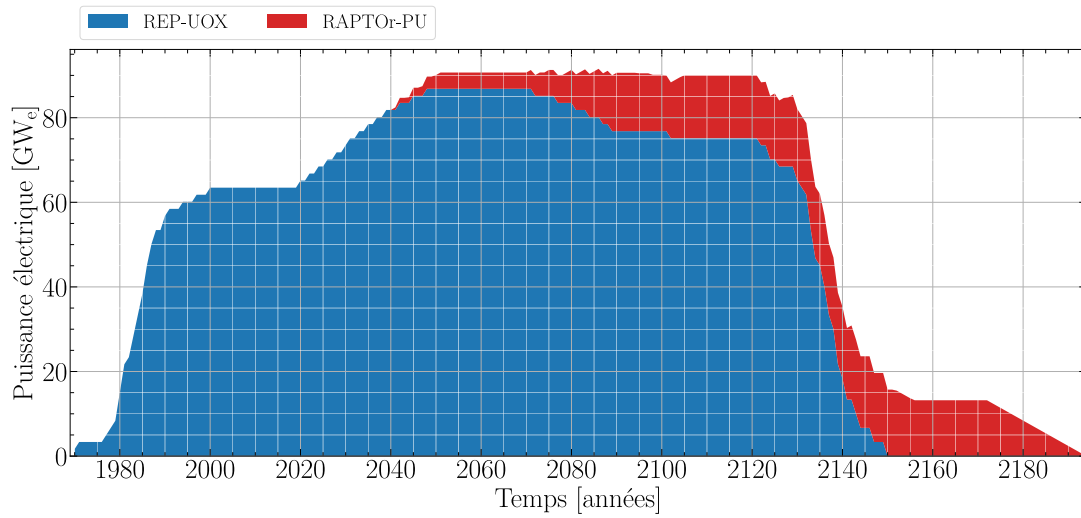


FIGURE 7.6 – Répartition de la puissance produite lors du déploiement des RAPTO_r PU

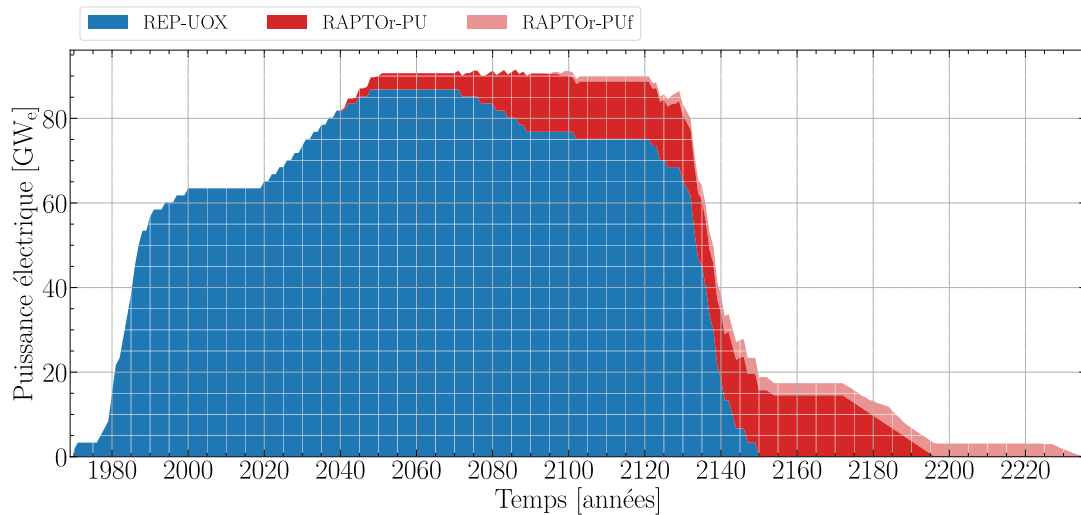
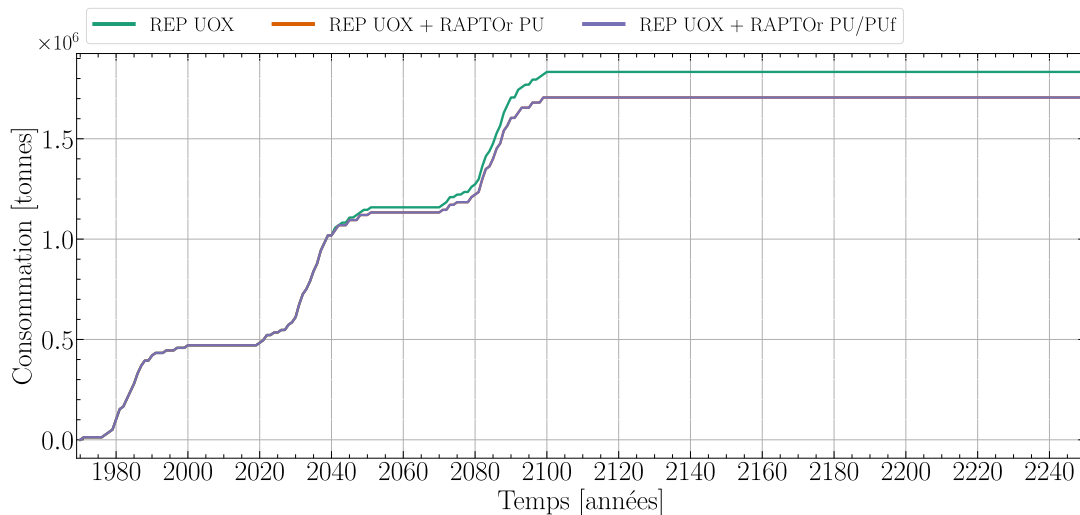


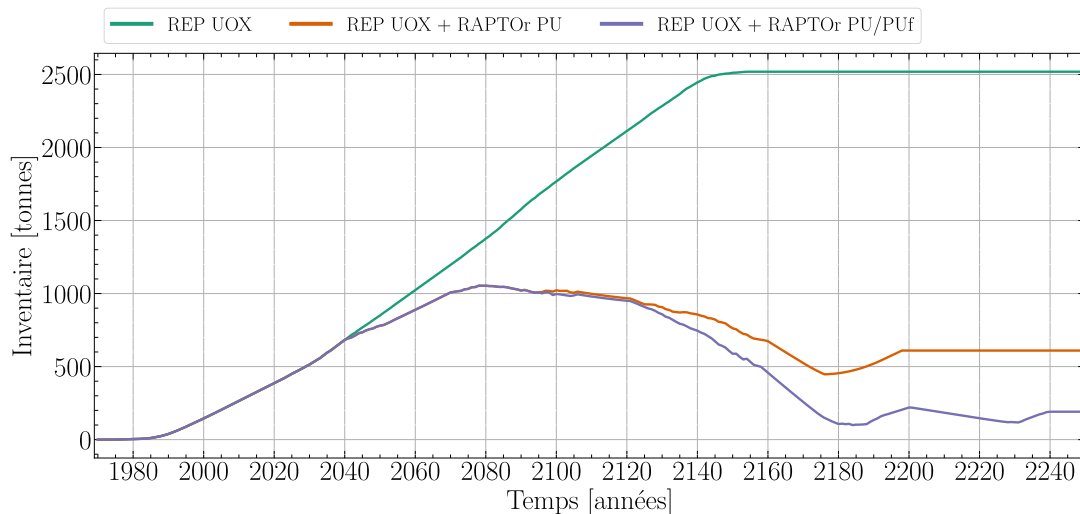
FIGURE 7.7 – Répartition de la puissance produite lors du déploiement des RAPTO_r PU et PUF

La figure 7.8 présente l'évolution de trois matières d'intérêt d'un cycle ouvert selon les types de réacteurs déployés. La figure 7.8a montre une réduction de la consommation d'uranium naturel de 7% lorsque des RAPTOR sont déployés et remplacent les REP UOX. Cela est possible si la puissance thermique des RAPTOR est convertie en énergie électrique comme supposé ici pour répondre à la demande d'électricité.

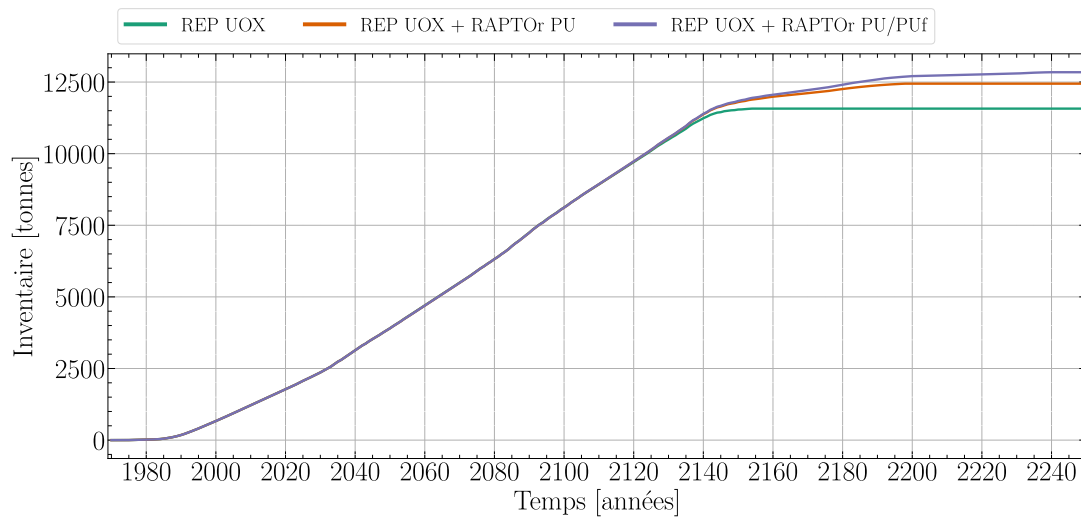
L'inventaire de plutonium est réduit de 76% avec le déploiement des RAPTOR PU, et de 92% avec l'adjonction des RAPTOR PUF (figure 7.8b). *A contrario*, l'inventaire de produits de fission et d'actinides mineurs est plus élevée, respectivement 8% et 11% pour le déploiement des PU et PU/PUf (figure 7.8c) avec les réacteurs RAPTOR PU et PUF. Néanmoins, la production d'énergie thermique étant plus grande d'environ 8% (PU) et 11% (PU/PUf), il est normal que cette masse de PF+AM augmente. On note que l'augmentation est expliquée uniquement avec la production de produits de fission, résultant des réactions de fission. La production d'actinides mineurs étant en effet, bien plus faible (voir par exemple la figure 7.13c).



(a) Consommation d'uranium naturel



(b) Réserves de plutonium



(c) Stocks de produits de fission et d'actinides mineurs

FIGURE 7.8 – Évolution des inventaires en uranium naturel, plutonium et produits de fission/actinides mineurs selon le scénario de déploiement considéré en cycle ouvert et pour une séparation classique des matières

Séparation avancée On considère désormais le cas où la séparation avancée des substances radioactives est disponible à l'échelle industrielle (section 6.1.1), i.e. les actinides mineurs sont séparables des produits de fission à l'échelle industrielle. Les figures 7.9 et 7.10 présentent l'évolution du parc lors de l'intégration des RAPTOR PAU et PAUF. Elles montrent la même tendance que pour le déploiement des RAPTOR PU/PUf, à savoir un grand nombre d'unités démarrées pour consommer les inventaires importants de plutonium et d'actinides mineurs accumulés depuis le démarrage du parc. On observe également le pic de démarrage des RAPTOR f aux alentours de 2180, consommant le sel combustible déchargé des RAPTOR.

La production de puissance suit également la même tendance avec une diminution de la part des REP UOX entre 2040 et 2130 avant monopolisation par les réacteurs incinérateurs en fin de scénario (figures 7.11 et 7.12). On observe une remontée de la part de la part des REP UOX dans la production de puissance vers 2090 puisque les RAPTOR démarrés en 2040 s'arrêtent sans être remplacés par de nouvelles unités, faute de combustible disponible (figure 7.11).

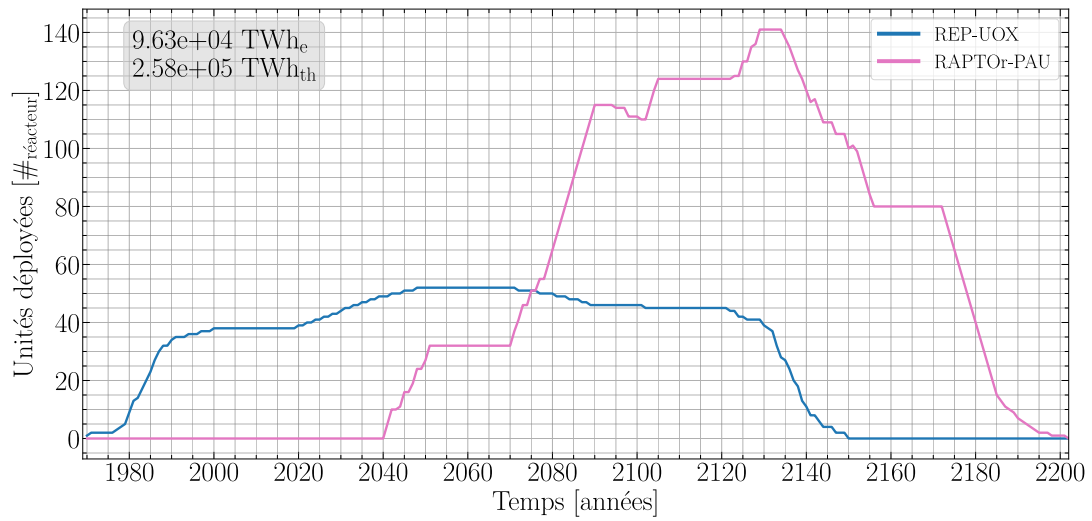


FIGURE 7.9 – Évolution de la composition du parc électronucléaire lors de l'intégration de réacteurs incinérateurs PAU dans le parc avec une gestion du combustible en cycle ouvert et une séparation avancée de matières pour une énergie totale produite de $9.63E4$ TWh_e

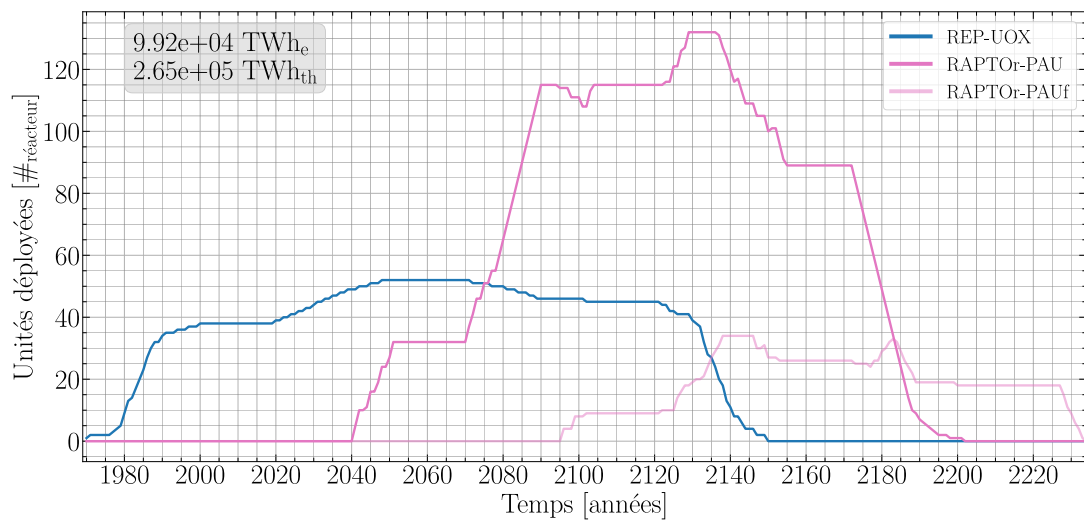


FIGURE 7.10 – Évolution de la composition du parc électronucléaire lors de l'intégration de réacteurs incinérateurs PAU/PAUf dans le parc avec une gestion du combustible en cycle ouvert et une séparation avancée de matières pour une énergie totale produite de $9.92E4$ TWh_e

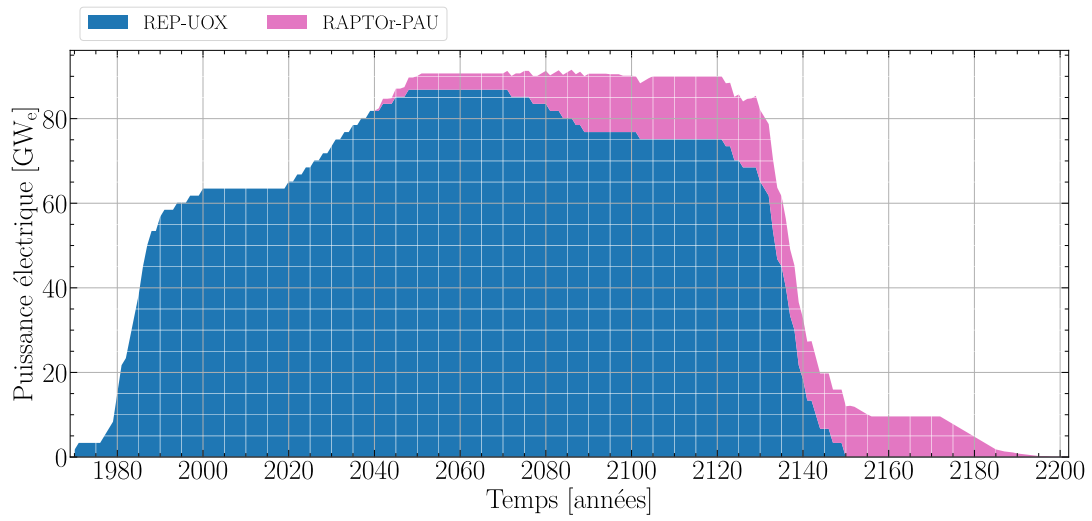


FIGURE 7.11 – Répartition de la puissance produite dans le parc lors du déploiement des RAPTO_r PAU

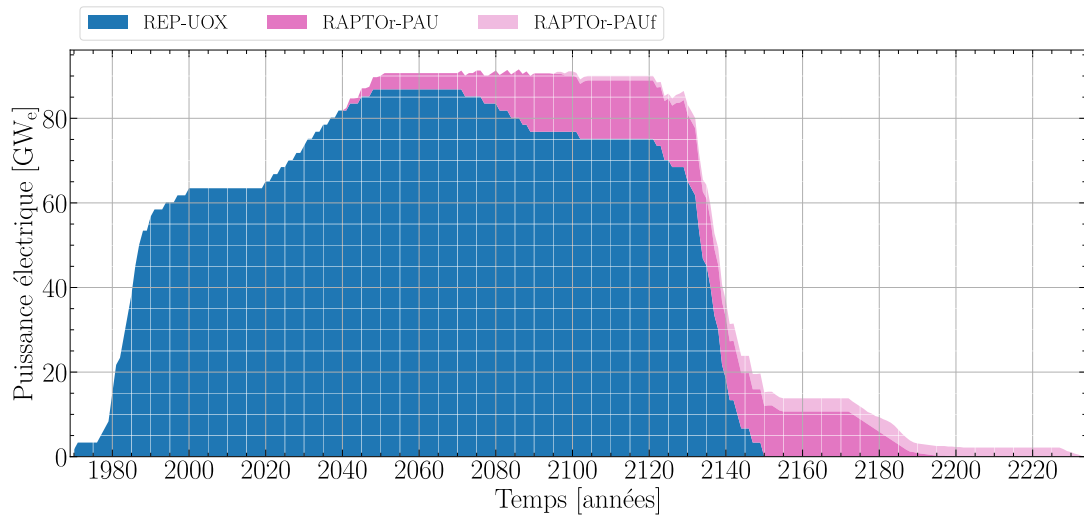
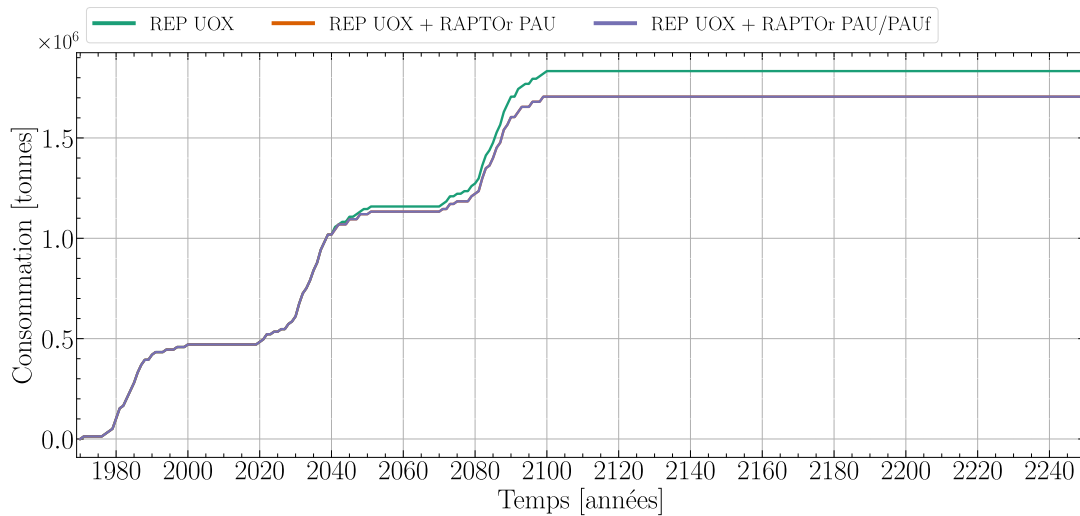
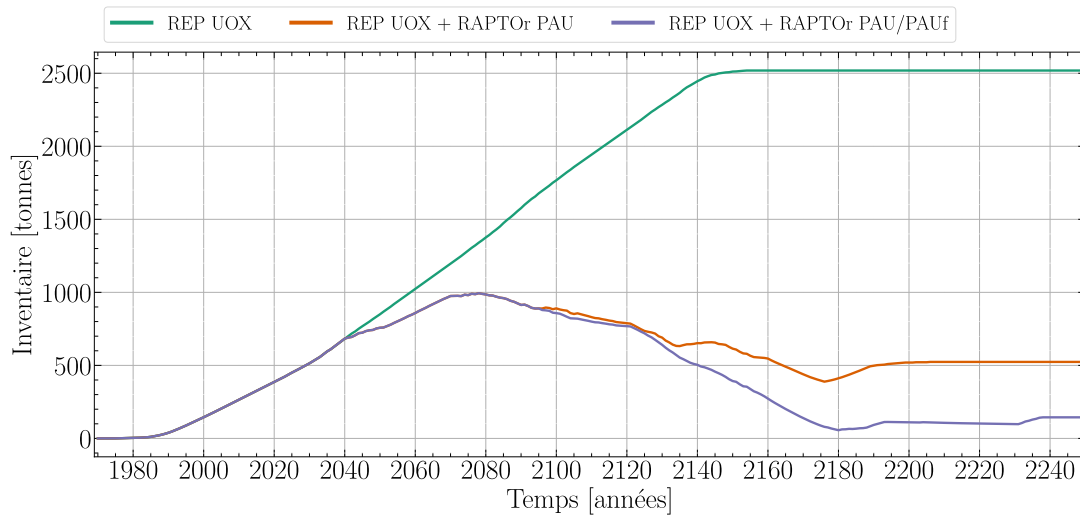


FIGURE 7.12 – Répartition de la puissance produite dans le parc lors du déploiement des RAPTO_r PAU et PAUf

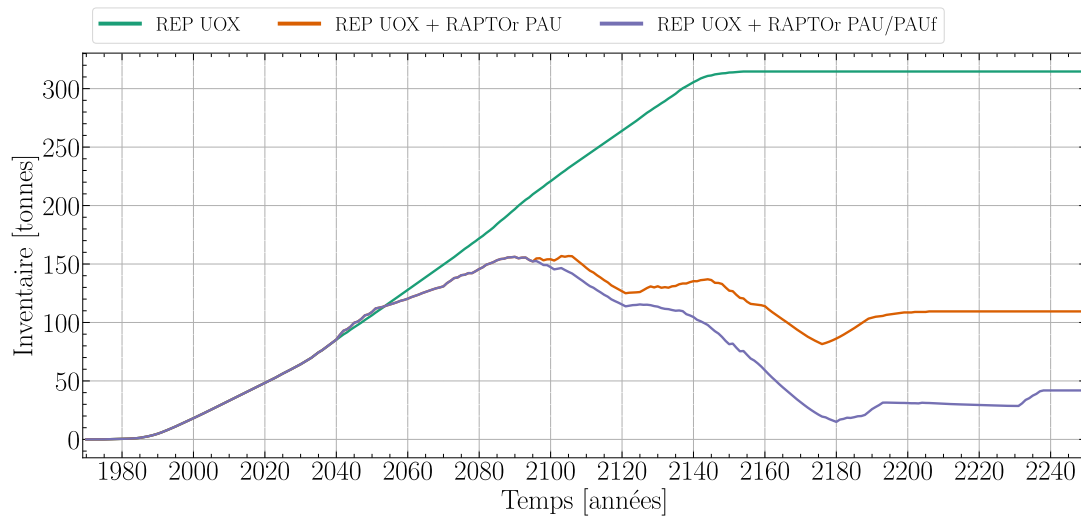
L'évolution des quatre matières d'intérêt, avec ici séparation des produits de fission et des actinides mineurs, est présentée en figure 7.13. La consommation d'uranium naturel est diminuée de 7% avec l'utilisation des RAPTOR PAU/PAUf, comme avec les réacteurs PU. Les inventaires de plutonium sont stabilisés à 21% et 6% de l'inventaire du parc REP UOX. La consommation des actinides mineurs en sus du plutonium amène également à un gain important sur l'inventaire final (-65% avec les RAPTOR PAU et -87% avec les RAPTOR PAU/PAUf). Les produits de fission sont en revanche plus élevés, comme attendu, de 7/8% en masse puisque l'énergie produite thermique totale est plus grande en cette proportion.



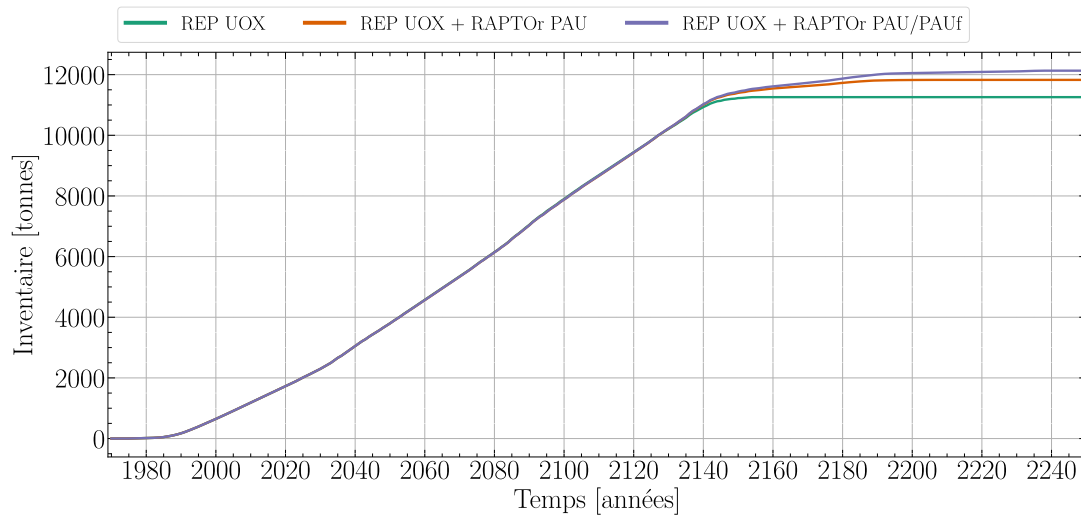
(a) Consommation d'uranium naturel



(b) Réserves de plutonium



(c) Réserve d'actinides mineurs



(d) Stocks de produits de fission

FIGURE 7.13 – Évolution des inventaires en uranium naturel, plutonium, actinides mineurs et produits de fission selon le scénario de déploiement considéré en cycle ouvert et pour une séparation avancée des matières

7.2.2 Cycle semi-fermé

7.2.2.a Parc de référence

Le parc modélisé met en œuvre dans les REP une stratégie du monorecyclage du Pu extrait des combustibles UOX usés par fabrication de combustible MOX, comme dans le parc français. La figure 7.14 présente le nombre d'unités déployées de réacteurs chargés soit en UOX soit en MOX (contre un chargement 2/3 UOX | 1/3 MOX). Malgré le retard de déploiement des réacteurs MOXés par rapport à l'historique français, le ratio 90%UOX/10%MOX est bien retrouvé à l'état stationnaire.

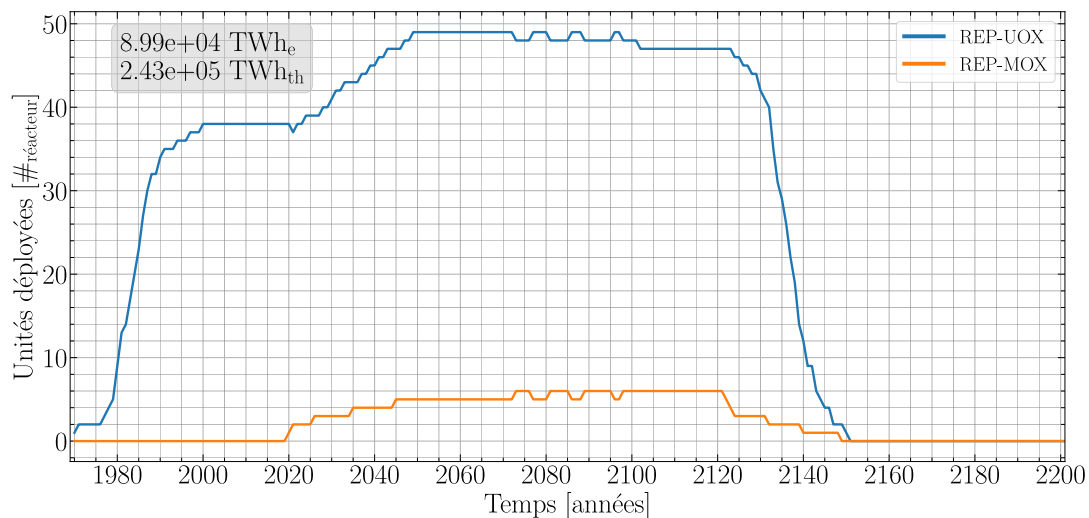


FIGURE 7.14 – Évolution du nombre de réacteurs REP UOX/MOX dans le parc avec une gestion du combustible en cycle semi-fermé

La figure 7.15 inventorie les différentes matières consommées et produites par le parc modélisé. La réserve de plutonium ex-UOX est stabilisée jusqu'en 2100, puisque les REP MOX consomment ce plutonium, mais l'arrêt progressif du parc avec la même contrainte pour l'ensemble des réacteurs conduit à une accumulation de plutonium ex-UOX. Cet inventaire final (environ 720 t) est tout de même réduit par rapport à celui du cycle ouvert (environ 2500 t). Le plutonium ex-MOX s'accumule à hauteur de 10 t car non valorisé dans ce scénario.

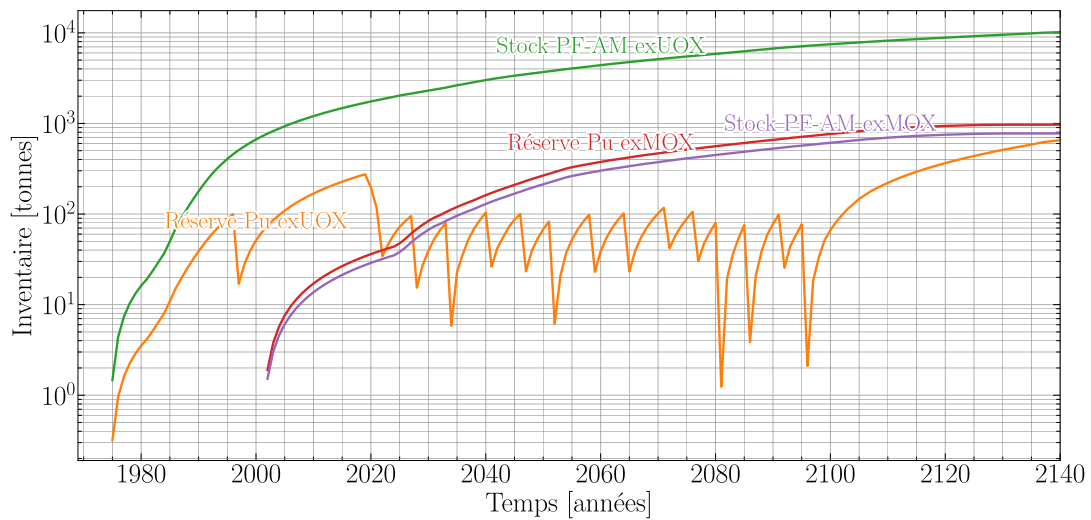


FIGURE 7.15 – Évolution des réserves et stocks d'intérêt dans le parc avec une gestion du combustible en cycle semi-fermé

7.2.2.b Intégration des RAPTOR

L'objectif ici est de consommer les matières issues des combustibles MOX usés avec les RAPTOR PM et PAM¹. Des RAPTOR PU seront également ajoutés pour consommer le plutonium issu des UOX usés. L'utilisation de différents réacteurs RAPTOR pour consommer les différentes qualités de plutonium est nécessaire vis-à-vis des limitations de flexibilité du code ISF. Avec un parc symbiotique, un seul RSF serait nécessaire et alimenté avec un combustible mixte ex-UOX/ex-MOX. Le tableau 7.3 liste les caractéristiques des deux groupes de RAPTOR intégrés dans le parc REP UOX/MOX. L'ordre de priorité de démarrage est le suivant :

- | | |
|-----------------------------|--------------|
| 1. RAPTOR PMf RAPTOR PAMf | 4. REP MOX |
| 2. RAPTOR PUF | 5. RAPTOR PU |
| 3. RAPTOR PM RAPTOR PAM | 6. REP UOX |

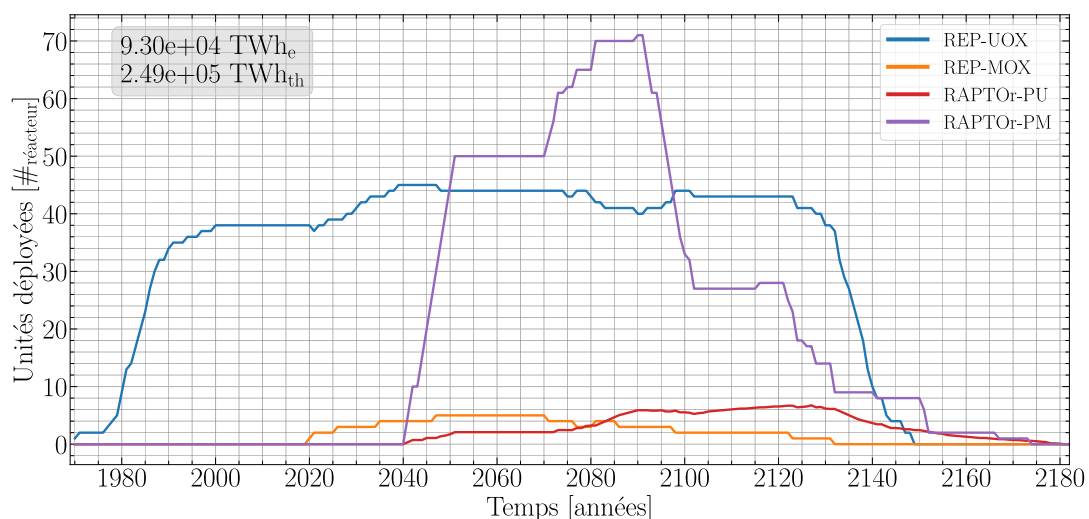
1. Le RAPTOR PAM consomme également les AM ex-UOX.

TABLEAU 7.3 – Caractéristiques des réacteurs RAPTOR pour l'intégration dans le cycle semi-fermé

Réacteur RAPTOR	Puissance [GW _e]	Démarrage	Alimentation / Extraction à l'état stationnaire	Déchargement
PM	0.12	Pu _{MOX} 1.69 t	Pu _{UOX} ≈0.148 t/an PF+AM ≈0.094 t/an	Pu 2.61 t PF+AM 5.45 t
PMf	0.12	Pu _{PM} 2.45 t	Pu _{PU} ≈0.16 t/an PF+AM ≈0.097 t/an	Pu+PF+AM 9.04 t
PAM	0.12	Pu _{MOX+AM(UOX+MOX)} 2.31 t	(Pu+AM) _{U+M} ≈0.162 t/an PF ≈0.099 t/an	Pu+AM 3.16 t PF 5.07 t
PAMf	0.12	(Pu+AM) _{PAM} 2.99 t	(Pu+AM) _{PAM} ≈0.164 t/an PF ≈0.100 t/an	Pu+PF+AM 8.96 t

Séparation actuelle Les figures 7.16 et 7.17 présente l'évolution du nombre de réacteurs déployés lors de l'intégration des RAPTOR PU, PM, PUF et PMf. Le nombre de RAPTOR à démarrer pour la consommation du plutonium ex-MOX est réduit puisque la production dudit plutonium est elle-même limitée (10% du plutonium produit en REP).

Les figure 7.18 et 7.19 donnent lieu au même constat que précédemment, à savoir une production de puissance majoritairement par REP UOX qui se réduit progressivement au profit des RAPTOR de différents types démarrés dès 2040. L'intégration d'une seconde génération de RAPTOR implique l'arrêt du dernier réacteur nucléaire (PUf) en 2235, soit 50 ans environ plus tard que pour le scénario avec uniquement les RAPTOR PU/PM. Cela est dû aux matières de démarrage disponibles uniquement lorsqu'un RAPTOR de première génération ferme, au bout de 50 ans de fonctionnement.

**FIGURE 7.16** – Évolution de la composition du parc électronucléaire lors de l'intégration de réacteurs incinérateurs PM dans le parc avec une gestion du combustible en cycle semi-fermé et une séparation classique de matières pour une énergie produite totale de 9.30 TWh_e

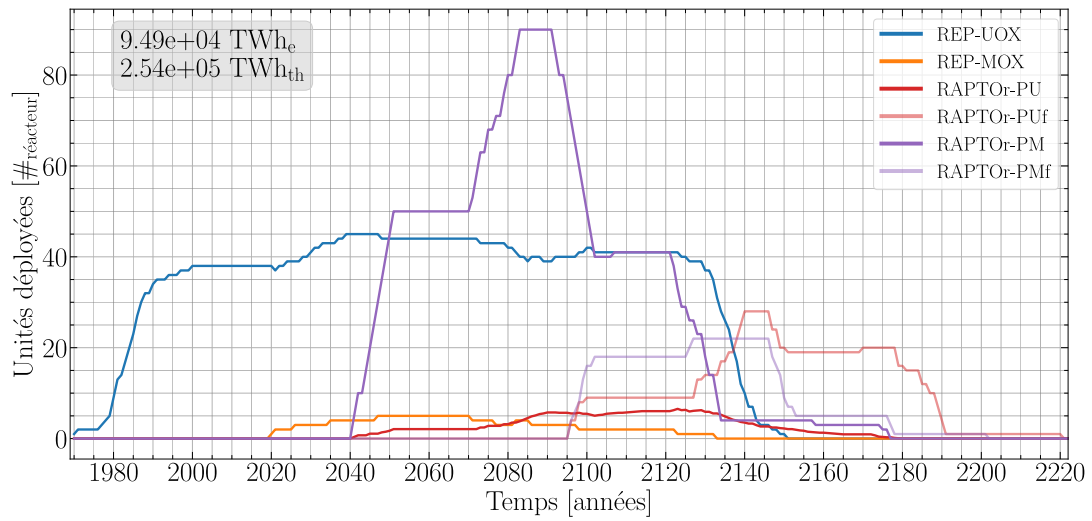


FIGURE 7.17 – Évolution de la composition du parc électronucléaire lors de l’intégration de réacteurs incinérateurs PM/PMf dans le parc avec une gestion du combustible en cycle semi-fermé et une séparation classique de matières pour une énergie produite totale de 9.49E4 TWh_e

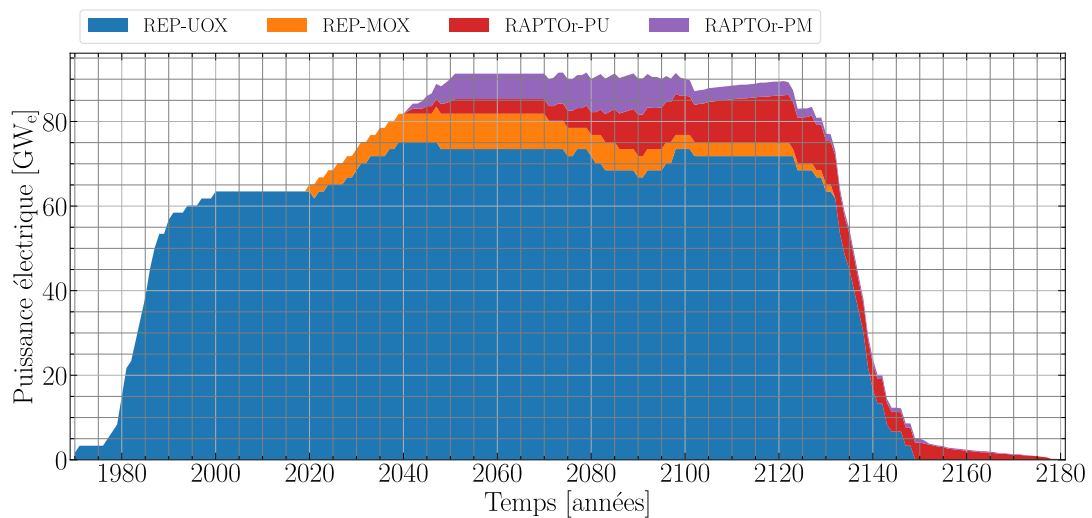


FIGURE 7.18 – Répartition de la puissance produite lors du déploiement des RAPTO_r PU/PM

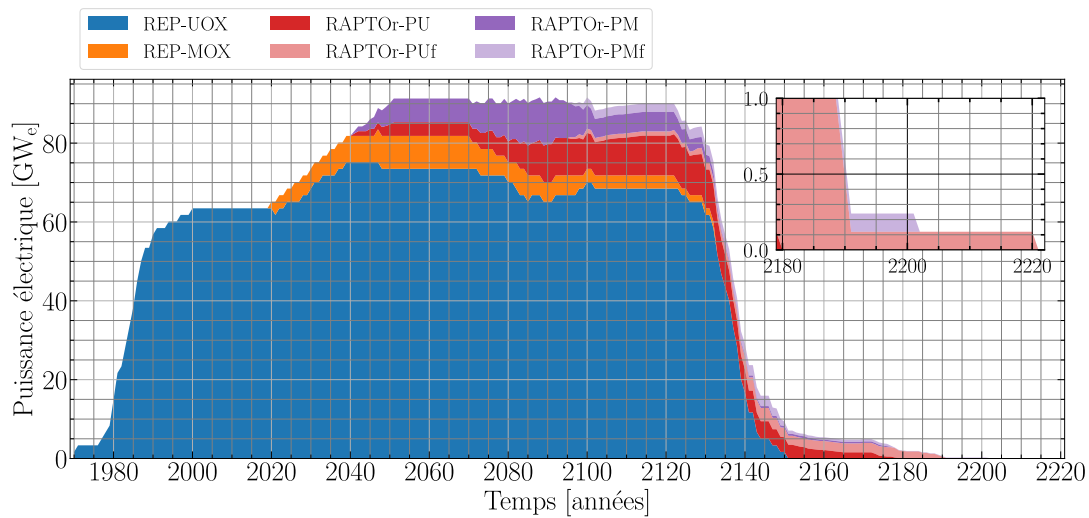
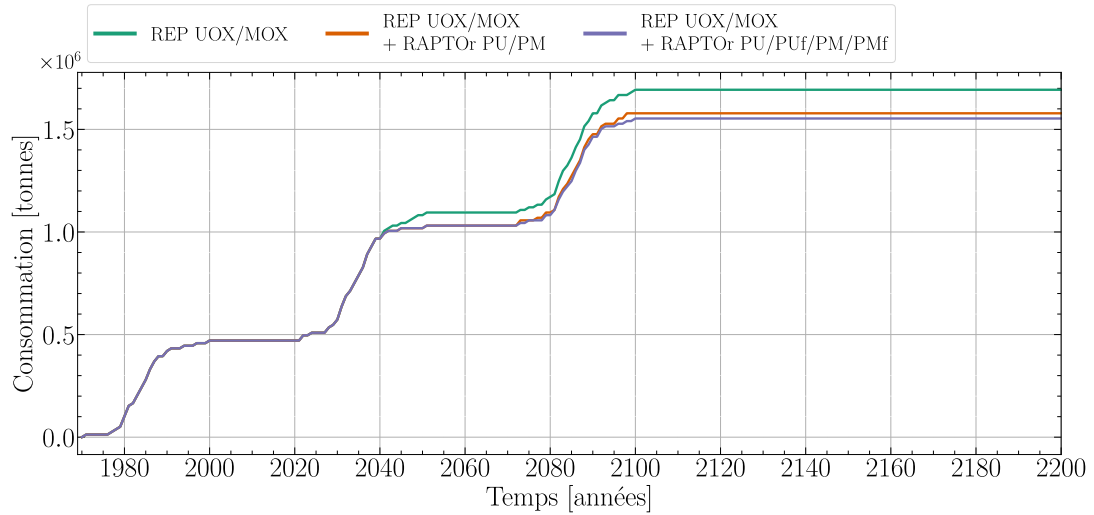


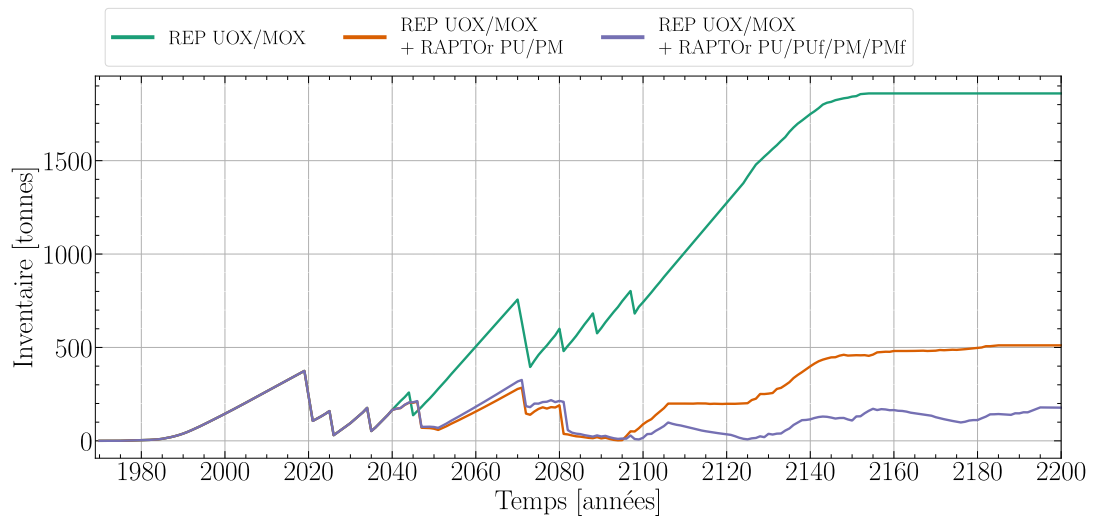
FIGURE 7.19 – Répartition de la puissance produite lors du déploiement des RAPTOR PU/PM/PUf/PMf

La figure 7.20 présente l'évolution de trois matières d'intérêt d'un cycle ouvert selon les types de réacteurs déployés. La figure 7.20a montre un gain de 7% sur la consommation de l'uranium naturel avec les RAPTOR finaux si les réacteurs incinérateurs sont électrogènes (par rapport au parc REP UOX/MOX). En effet, la puissance électrique (rendement de 40%) des RAPTOR est prise en compte pour l'atteinte de l'objectif de demande électrique. Ainsi, une partie de l'énergie électrique produite provient du recyclage des matières du parc et non d'uranium enrichi à partir d'uranium naturel. On note que l'utilisation de MOX permet de faire diminuer la consommation d'uranium naturel de 9% environ par rapport à un parc uniquement composé de REP UOX sur toute la durée de fonctionnement du parc.

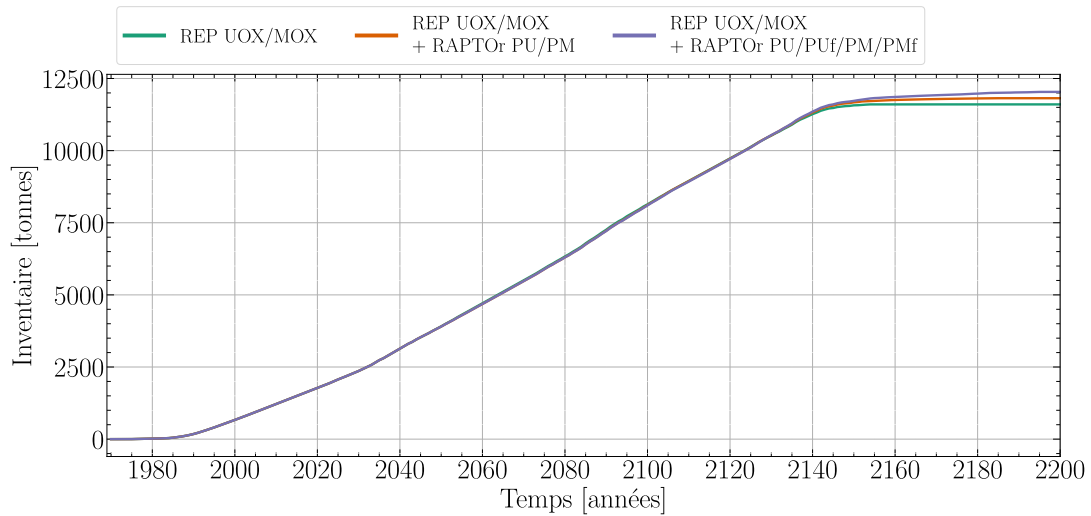
La production de plutonium est stabilisée à 30% de l'inventaire du parc REP UOX/MOX pour le cas PU/PM et 10% pour le cas avec seconde génération de RAPTOR (figure 7.20b). La production de PF+AM en figure 7.20c est plus importante de 4 à 5% à cause de la production d'énergie thermique plus importante qui implique plus de produits de fission.



(a) Consommation d'uranium naturel



(b) Réserves de plutonium



(c) Stocks de produits de fission et d'actinides mineurs

FIGURE 7.20 – Évolution des inventaires en uranium naturel, plutonium et produits de fission/actinides mineurs selon le scénario de déploiement considéré en cycle semi-fermé et pour une séparation classique des matières

Séparation avancée Les figures 7.21 et 7.22 présentent l'évolution du nombre de réacteurs déployés lors de l'intégration des RAPTOR PAM et PAMf, auxquels sont adjoints des réacteurs PU et PUf pour la consommation du plutonium ex-UOX résiduel. Le démarrage des RAPTOR de seconde génération ne peut se faire qu'à partir de 2090, avec l'arrêt et le déchargement du premier RAPTOR. Les RAPTOR PU sont davantage démarrés puisque les inventaires en Pu_{UOX} sont plus importants que pour l'ensemble ($\text{Pu}_{\text{MOX}}/\text{AM}_{\text{MOX}}/\text{AM}_{\text{UOX}}$).

En figures 7.23 et 7.24, la répartition de la puissance suit le même schéma que précédemment avec un remplacement des UOX par des RAPTOR. On note que la seconde génération de RAPTOR représente une puissance électrique installée très faible puisque le mélange des sels combustibles à réutiliser ne représente pas une masse importante.

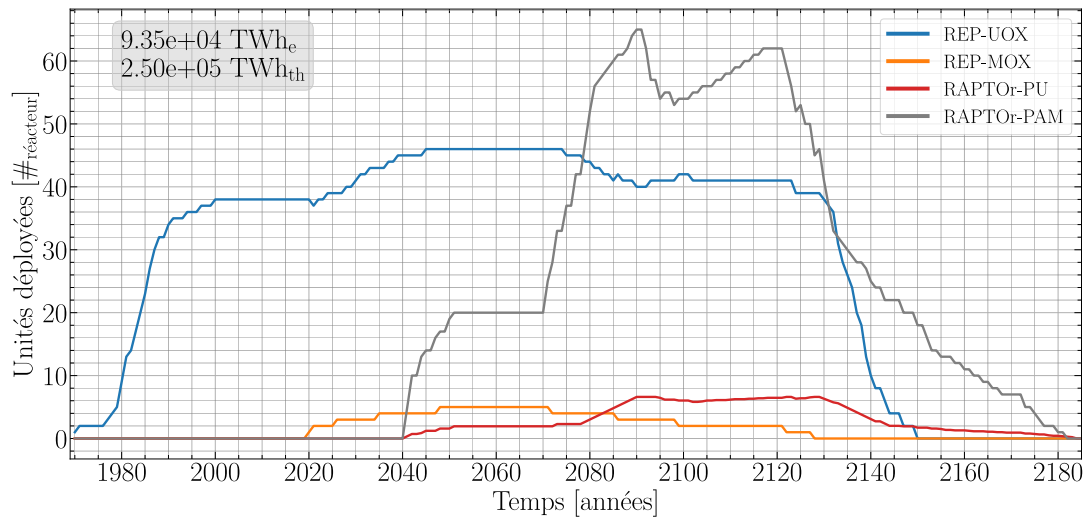


FIGURE 7.21 – Évolution de la composition du parc électronucléaire lors de l’intégration de réacteurs incinérateurs PAM dans le parc avec une gestion du combustible en cycle semi-fermé et une séparation avancée de matières pour une énergie totale produite de $9.35E4$ TWh_e

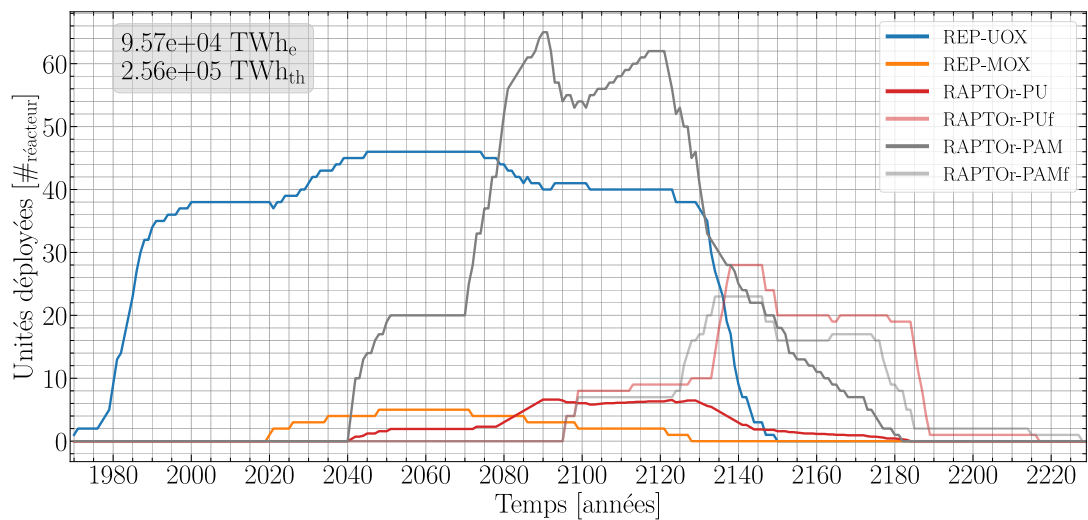


FIGURE 7.22 – Évolution de la composition du parc électronucléaire lors de l’intégration de réacteurs incinérateurs PAM/PAMf dans le parc avec une gestion du combustible en cycle semi-fermé et une séparation avancée de matières pour une énergie totale produite de $9.57E4$ TWh_e

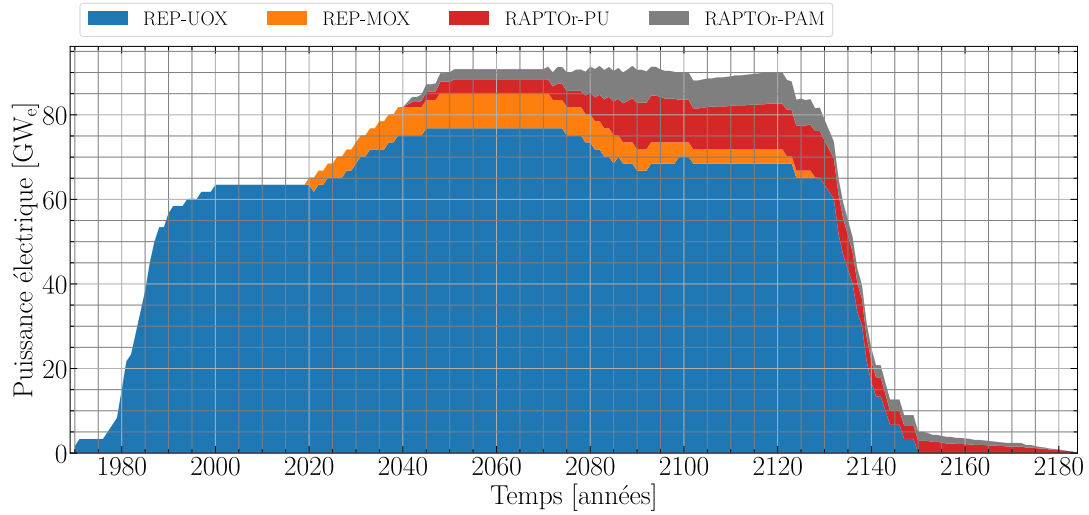


FIGURE 7.23 – Répartition de la puissance produite lors du déploiement des RAPTO_r PAM

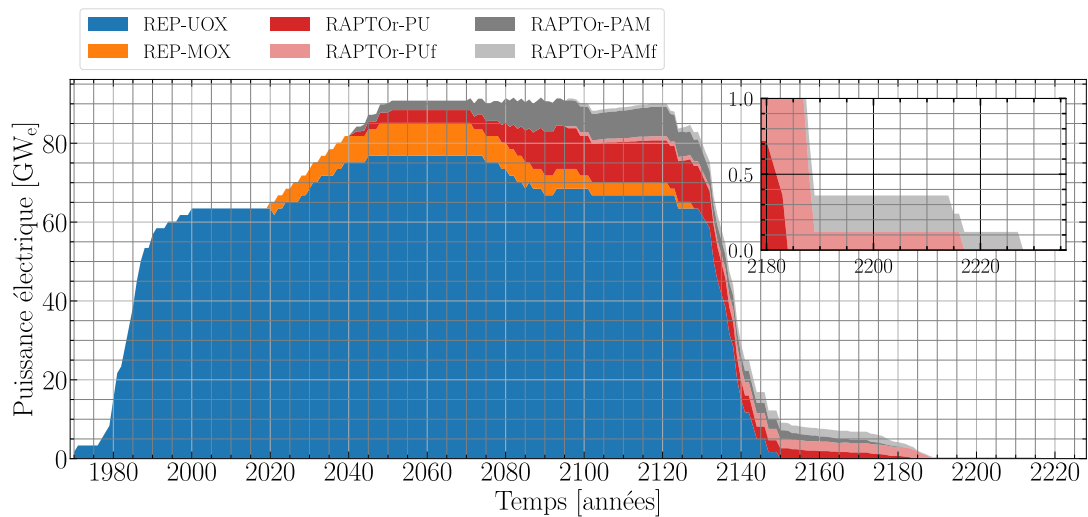
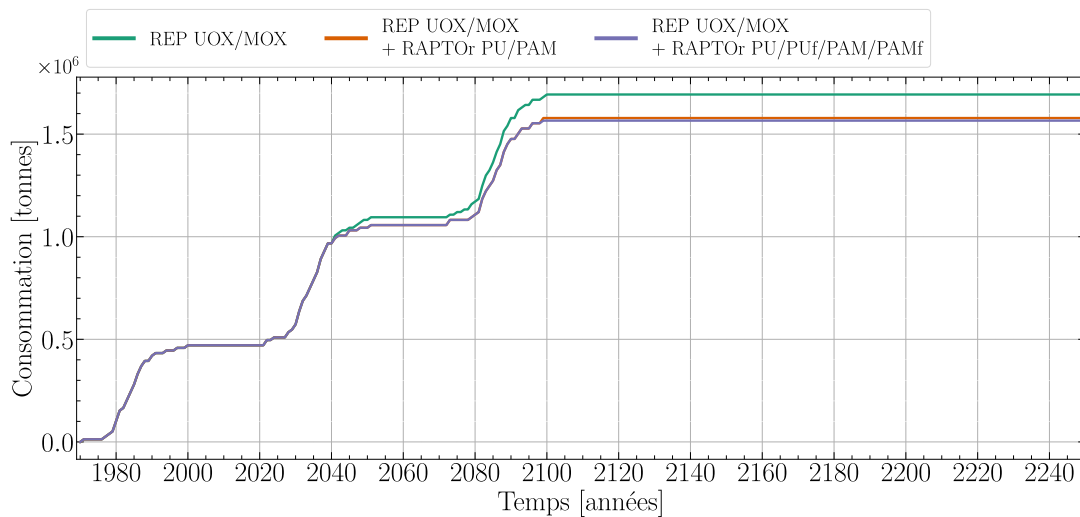


FIGURE 7.24 – Répartition de la puissance produite lors du déploiement des RAPTO_r PAM et PAMf

La figure 7.25 montre cette fois une réduction de 7.5% de la consommation d'uranium naturel en fin de scénario par rapport au parc UOX/MOX seul. Le bilan plutonium est similaire au cas précédent, avec uniquement les réacteurs PU/PM (-72% pour la première génération de RAPTOR et -91% en ajoutant une seconde génération de RAPTOR).

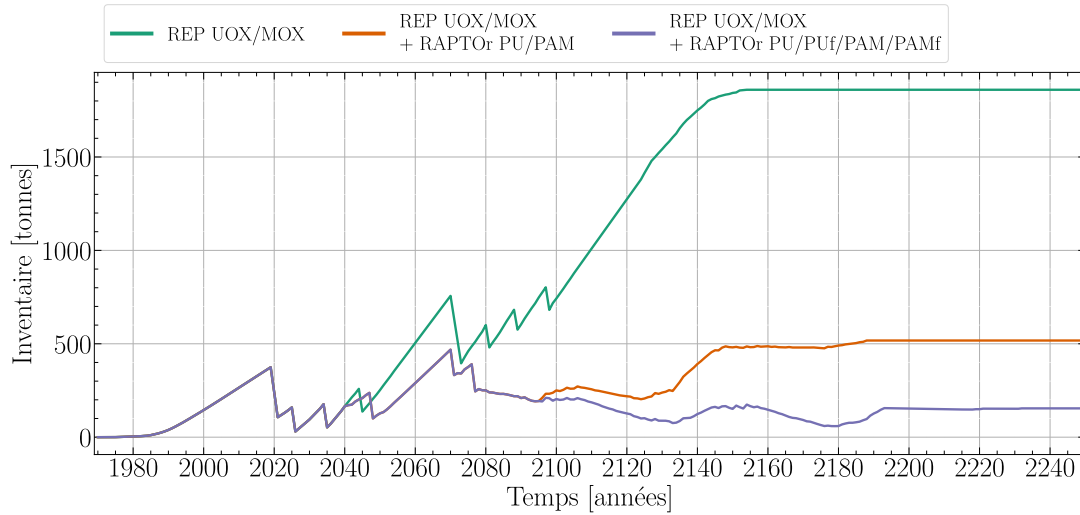
Bien que l'on constate une diminution de l'inventaire en actinides mineurs de -17% par rapport au parc REP, aucune différence n'est observée entre les deux scénarios RAPTOR. À la fermeture de tous les réacteurs, le déchargement des RAPTOR de seconde génération apporte beaucoup d'actinides mineurs. Ce bilan quelque peu mitigé s'explique par l'utilisation de réacteurs PU/PUf qui déchargent annuellement des actinides mineurs, qui ne sont pas réutilisés. En effet, la simplicité et la rapidité du code ISF, liées à l'utilisation de données de réacteurs calculées en amont, limitent ici les simulation de déploiement de réacteurs puisque aucun réacteur étudié jusqu'à présent ne consomme d'actinide mineurs sorti d'un réacteur PU/PUf. Dans la réalité, ces actinides mineurs seraient réinjectés dans un RAPTOR PAU ou PAUf et leur quantité s'en verrait donc diminuée².

La production de produits de fission est comme à son habitude plus importante (+3% et +5%) lorsque la puissance thermique déployée est plus grande.

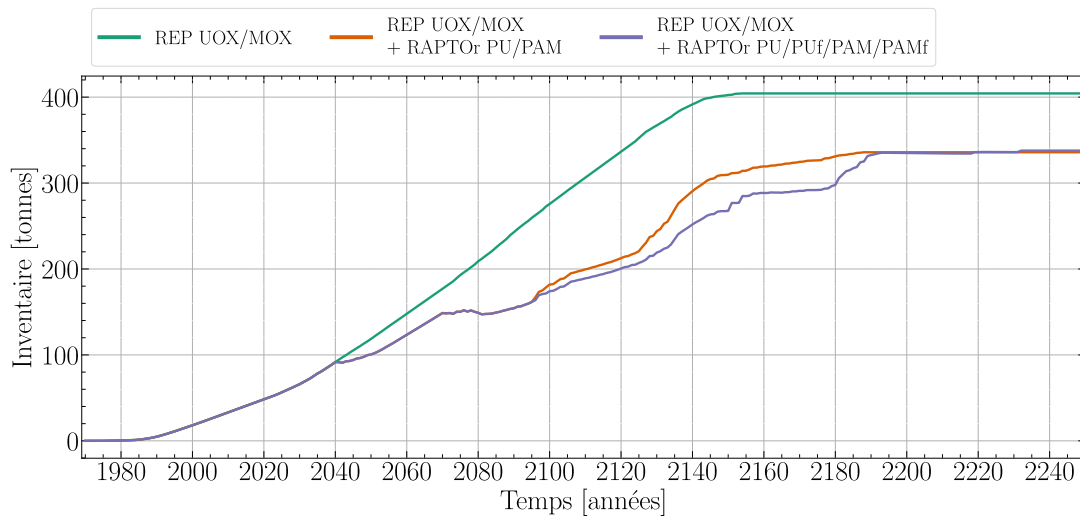


(a) Consommation d'uranium naturel

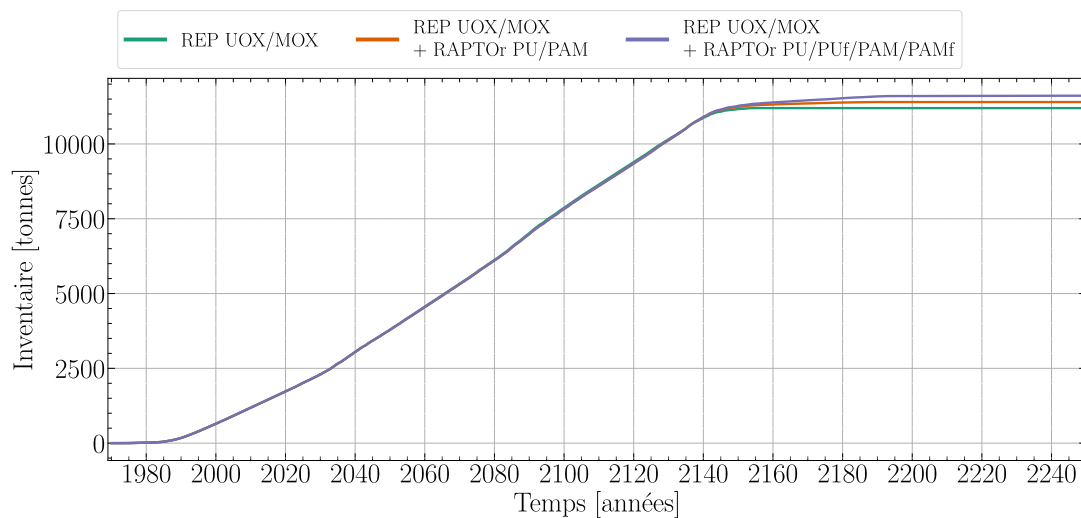
2. Un scénario ne considérant que l'utilisation de réacteurs PAM/PAMf permet de diminuer les AM de 64% mais voit le bilan de plutonium diminuer de seulement 57%.



(b) Réserves de plutonium



(c) Réserve d'actinides mineurs



(d) Stocks de produits de fission

FIGURE 7.25 – Évolution des inventaires en uranium naturel, plutonium, actinides mineurs et produits de fission selon le scénario de déploiement considéré en cycle semi-fermé et pour une séparation avancée des matières

7.2.3 Cycle semi-fermé⁺ (multirecyclage REP)

7.2.3.a Parc de référence

Le plutonium est désormais multirecyclé en REP. La figure 7.26 présente l'évolution d'un parc UOX vers un équilibre UOX/MIX avec le démarrage de quelques réacteurs MOX d'une durée de fonctionnement de 30 ans, avant l'utilisation de combustible MIX à partir de 2045, soit 5 ans après le démarrage théorique des premiers RAPTOR [38]. Il faut en effet produire un combustible proche du plutonium ex-MIX, ici du plutonium ex-MOX assimilé en qualité à du plutonium ex-MIX, pour pouvoir démarrer les REP MIX. Il est à noter la part de combustible MIX atteint au mieux 20% (figure 7.27) contre 36% supposé pour un parc symbiotique UOX/MIX, pour le calcul des compositions des combustibles des RAPTOR PI et PAI utilisées dans ce travail de thèse [38, 104]. Cette différence provient des hypothèses faites, des limites du code ISF qui a pour objectif de répondre à une demande d'énergie et non d'équilibre des matières, et l'utilisation d'un nombre limité de descriptions de réacteurs. L'équilibre UOX/MIX étant modifié, la composition du combustible utilisé par les RAPTOR PAI risque d'être non adaptée à la consommation homogène du $Pu_{MIX}/AM_{MIX}/AM_{UOX}$.

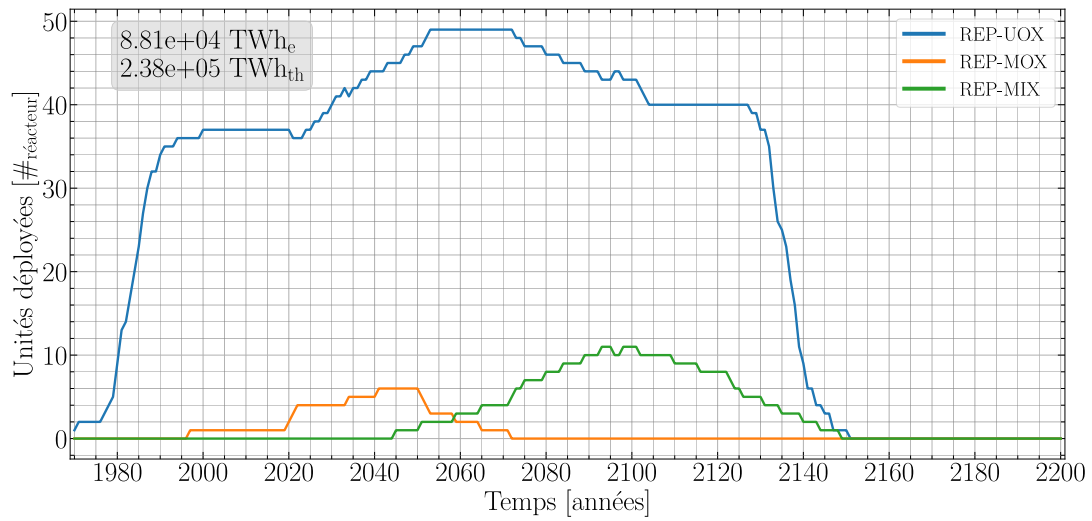


FIGURE 7.26 – Évolution du nombre de réacteurs REP UOX/MOX/MIX dans le parc avec une gestion du combustible en cycle semi-fermé⁺

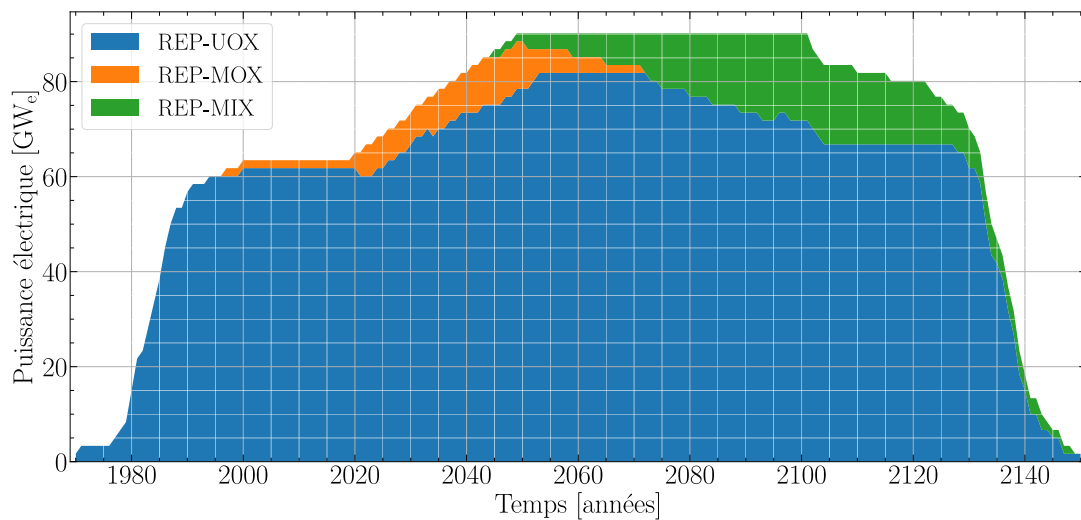


FIGURE 7.27 – Répartition de la production de puissance électrique dans le parc avec une gestion du combustible en cycle semi-fermé⁺

La combinaison des REP UOX/MIX stabilise relativement bien les masses de plutonium dans le parc (figure 7.28). Celles-ci augmentent naturellement avec la fermeture des réacteurs.

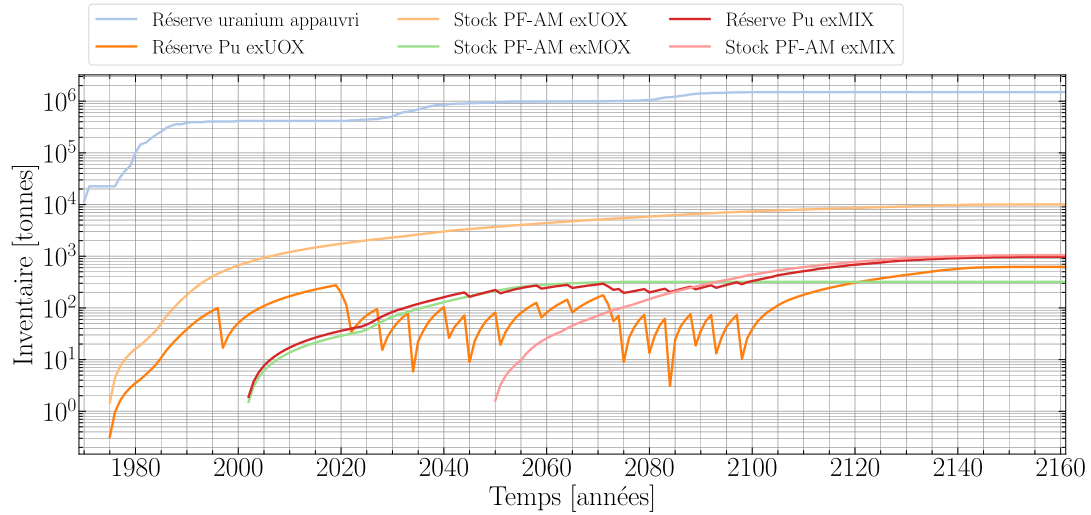


FIGURE 7.28 – Évolution des réserves et stocks d'intérêt dans le parc avec une gestion du combustible en cycle semi-fermé⁺

7.2.3.b Intégration des RAPTOR

Comme pour le cycle semi-fermé, des RAPTOR PU et PUF sont ajoutés pour consommer les inventaires de Pu_{UOX} restantes. Le tableau 7.4 liste les caractéristiques des RAPTOR intégrés dans le parc REP UOX/MIX.

- | | |
|--------------------|---------------|
| 1. RAPTOR Pif/PAIf | 5. RAPTOR PUF |
| 2. RAPTOR PI/PAI | 6. RAPTOR PU |
| 3. REP MIX | 7. REP UOX |
| 4. REP MOX | |

TABLEAU 7.4 – Caractéristiques des réacteurs RAPTOR pour l'intégration dans le cycle semi-fermé⁺

Réacteur RAPTOR	Puissance [GW _e]	Démarrage	Alimentation / Extraction à l'état stationnaire	Déchargement
PI	0.12	Pu _{MIX} 1.79 t	Pu _{MIX} ≈0.163 t/an PF+AM ≈0.095 t/an	Pu 2.29 t PF+AM 5.93 t
PIf	0.12	Pu _{PI} 2.6 t	Pu _{PI} ≈0.164 t/an PF+AM ≈0.098 t/an	Pu+PF+AM 9.17 t
PAI	0.12	Pu _{MIX+AM(UOX+MIX)} 3.75 t	Pu _{MIX+AM(UOX+MIX)} ≈0.153 t/an PF≈0.100 t/an	Pu+AM 4.12 t PF 4.63 t
PAIf	0.12	(Pu+AM) _{PAI} 3.92 t	(Pu+AM) _{PAI} ≈0.151 t/an PF ≈0.100 t/an	Pu+PF+AM 9.13 t

Séparation actuelle Les figures 7.29 et 7.30 présentent l'évolution du nombre de réacteurs déployés lors de l'intégration des RAPTOR PI et PIf dans le parc UOX/MIX. Parmi les RAPTOR, la configuration PU est prédominante au vu des inventaires de plutonium ex-UOX importants suite à la fermeture du parc REP. Enfin, il est à noter que les hypothèses choisies pour le déploiement ainsi que le fonctionnement du code ISF impliquent un déploiement court du combustible MIX et qui est éloigné des études de la littérature actuelle (≈6% de MIX dans la part REP, contre 36% [104]) et qui présente donc peu d'intérêt.

Les figures 7.31 et 7.32 montrent la répartition de la production électrique au cours du temps. La part produite par les RAPTOR augmente au fil du temps, avec une stagnation vers 2090 pour le scénario PI puisque la fermeture des RAPTOR PI (non renouvelés à cause du manque de de plutonium ex-MOX/MIX) est compensée par le déploiement des unités PU, alimentées avec le combustibles retraites des REP UOX qui commencent à fermer. La même constatation peut être faite avec le scénario PI/PIf.

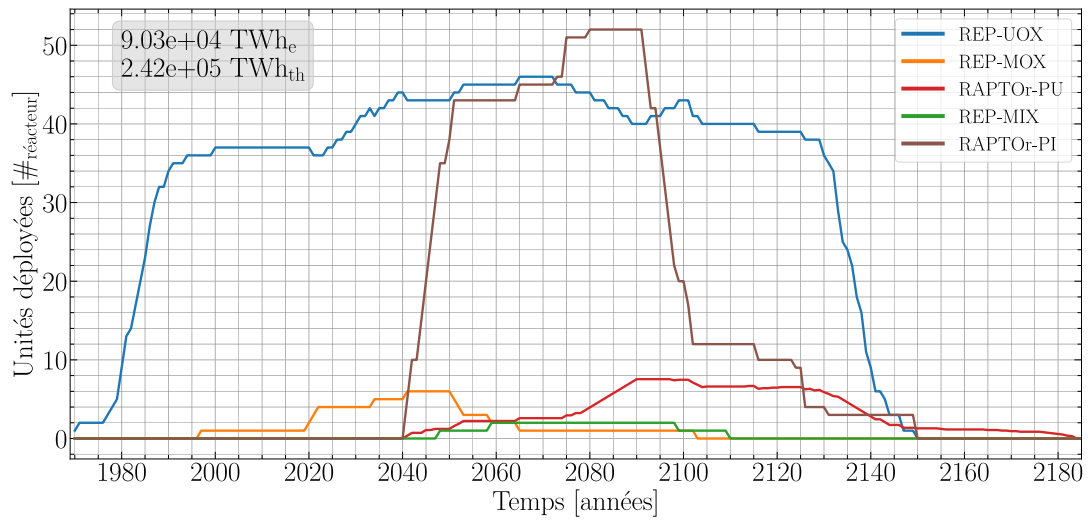


FIGURE 7.29 – Évolution de la composition du parc électronucléaire lors de l’intégration de réacteurs incinérateurs PI dans le parc avec une gestion du combustible en cycle ouvert et une séparation classique de matière pour une production d’énergie totale de $9.03E4$ TWh_e

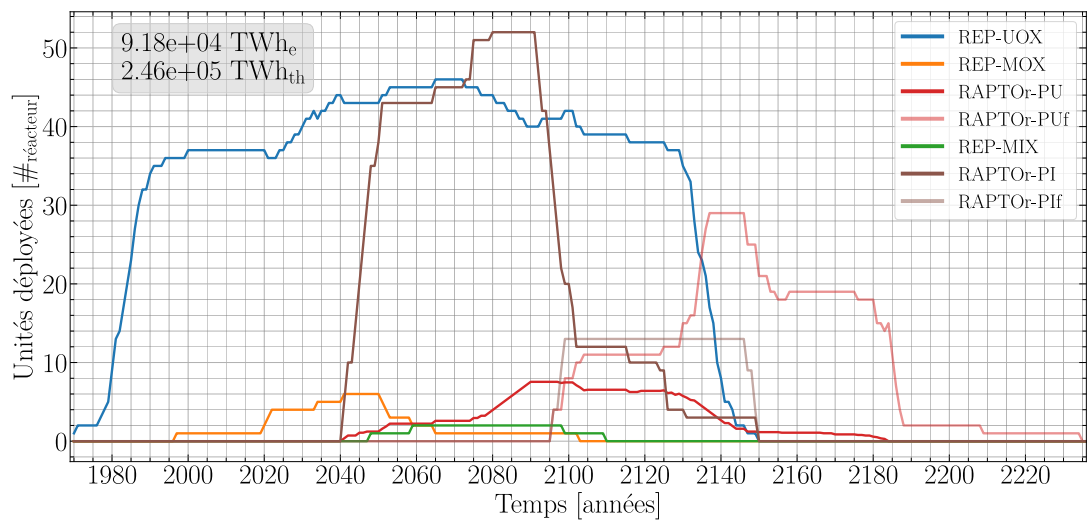


FIGURE 7.30 – Évolution de la composition du parc électronucléaire lors de l’intégration de réacteurs incinérateurs PI/PIf dans le parc avec une gestion du combustible en cycle ouvert et une séparation classique de matière pour une production d’énergie totale de $9.18E4$ TWh_e

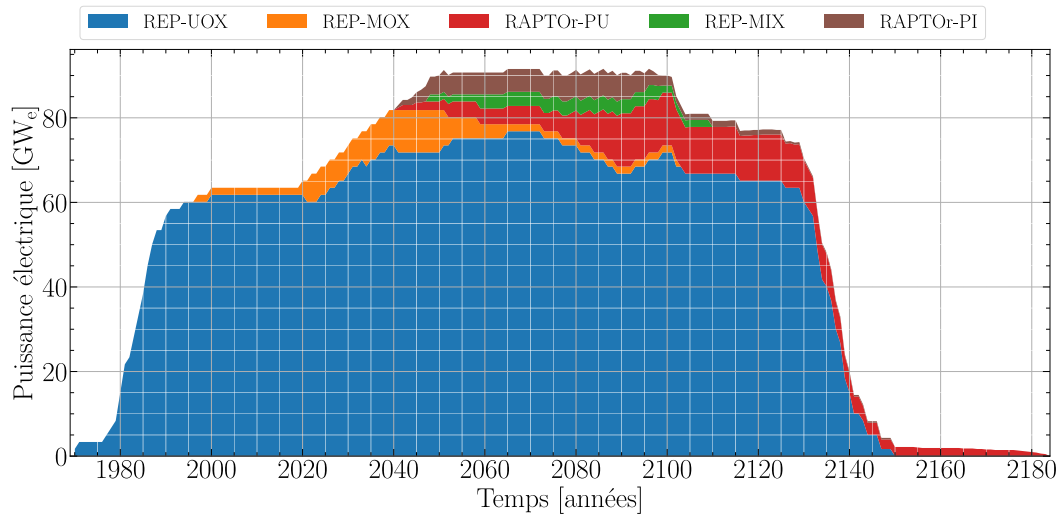


FIGURE 7.31 – Répartition de la puissance produite lors du déploiement des RAPTOr PI

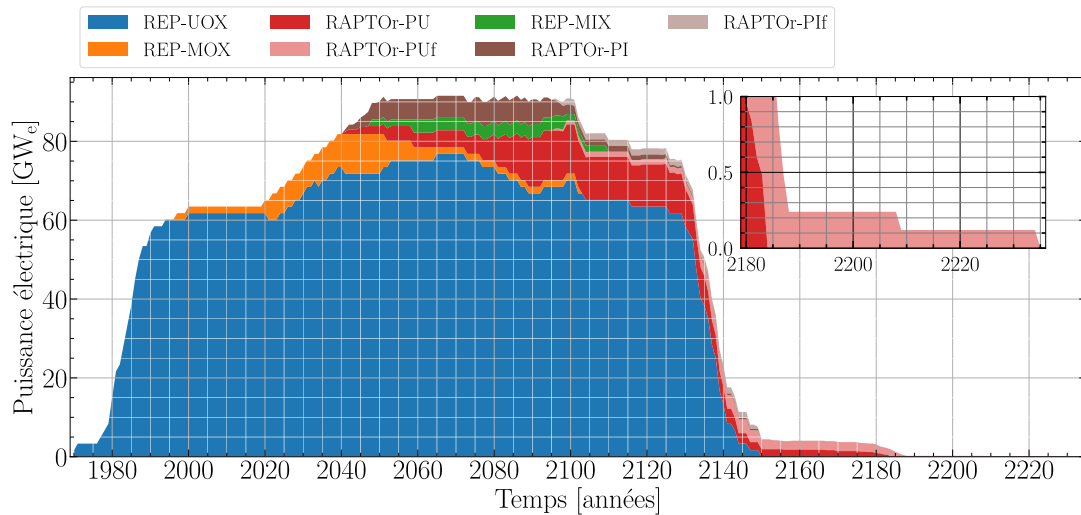
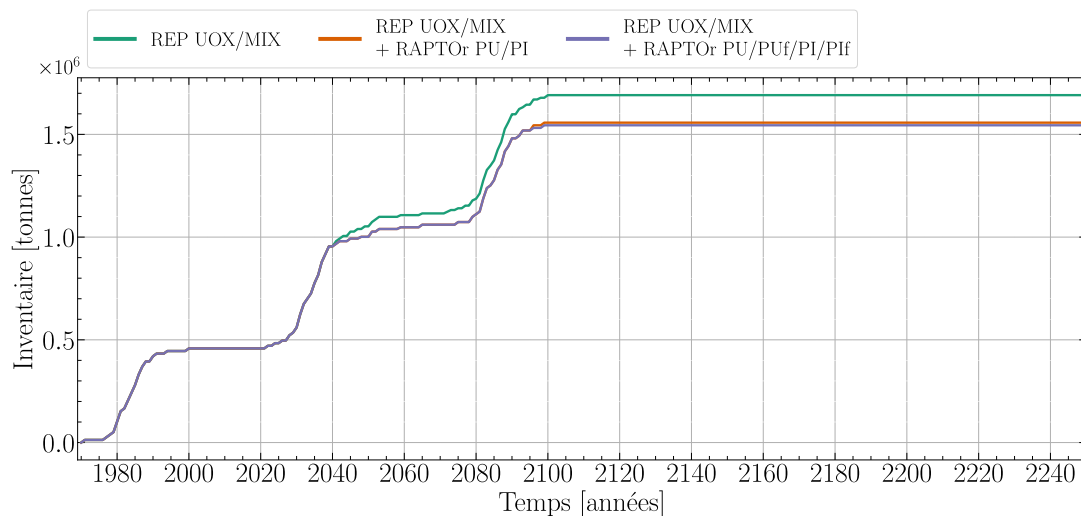
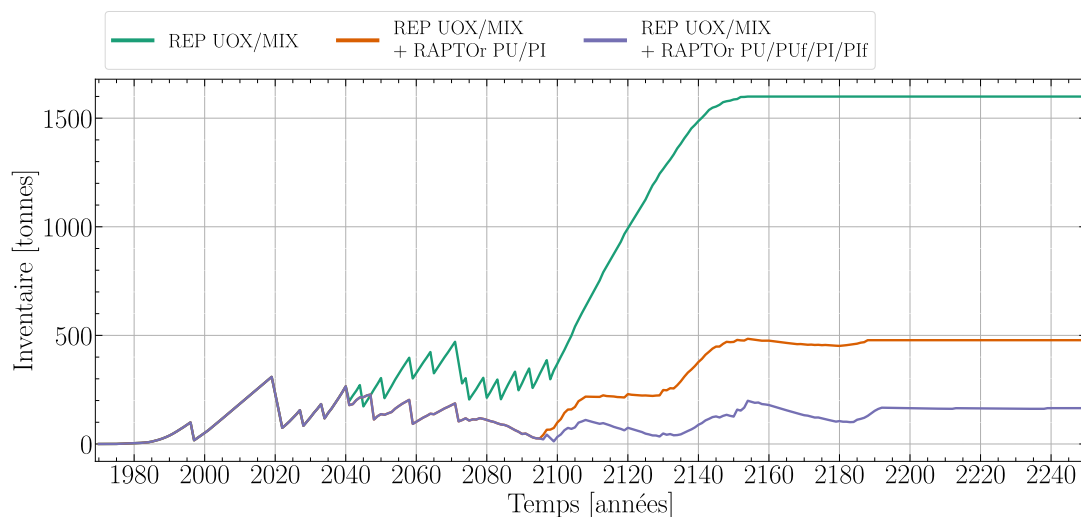


FIGURE 7.32 – Répartition de la puissance produite lors du déploiement des RAPTOr PI et PIf

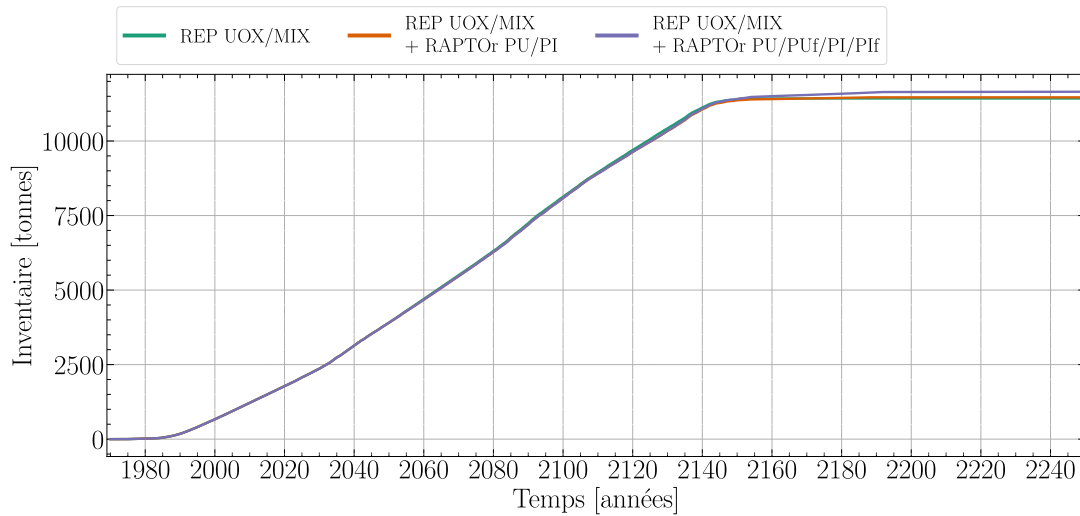
La figure 7.33 présente l'évolution de trois matières d'intérêt d'un cycle multirecyclage Pu selon les types de réacteurs déployés. La figure 7.33a permet un gain de 8% sur la consommation d'uranium naturel avec le déploiement des RAPTOR. Ce gain s'explique par le nombre important de RAPTOR démarré, toutes filières confondues, dès 2040, réduisant le nombre de réacteurs REP en fonctionnement. Les inventaires de plutonium sont donc considérablement amoindris (-80% pour la 1^{re} génération de RAPTOR et -90% avec 2 générations de réacteurs incinérateurs). Les masses de produits de fission et d'actinides mineurs sont peu différenciables puisque la production d'énergie thermique est similaire entre les trois scénarios et que les actinides mineurs produits par le parc REP sont plus importants, rendant le bilan PF+AM similaire selon les cas.



(a) Consommation d'uranium naturel



(b) Réserves de plutonium



(c) Stocks de produits de fission et d'actinides mineurs

FIGURE 7.33 – Évolution des inventaires en uranium naturel, plutonium et produits de fission/actinides mineurs selon le scénario de déploiement considéré en cycle semi-fermé⁺ et pour une séparation classique des matières

Séparation avancée Les figures 7.34 et 7.35 présentent l'évolution du nombre de réacteurs déployés lors de l'intégration des RAPTOR PAI et PAIf (consommateurs de TRU). Le nombre de RAPTOR de chaque type est limité à une trentaine simultanée, excepté les RAPTOR PU qui consomment le Pu_{UOX} largement disponible dès 2040.

La répartition de la puissance installée est toujours en faveur des REP UOX puis des RAPTOR PU/PUf lorsque la fin du déploiement des REP approche (figures 7.36 et 7.37). Le choix de déployer le combustible MIX à partir de 2045 ne permet pas de bien déployer cette filière comme dans les scénarios de référence [38].

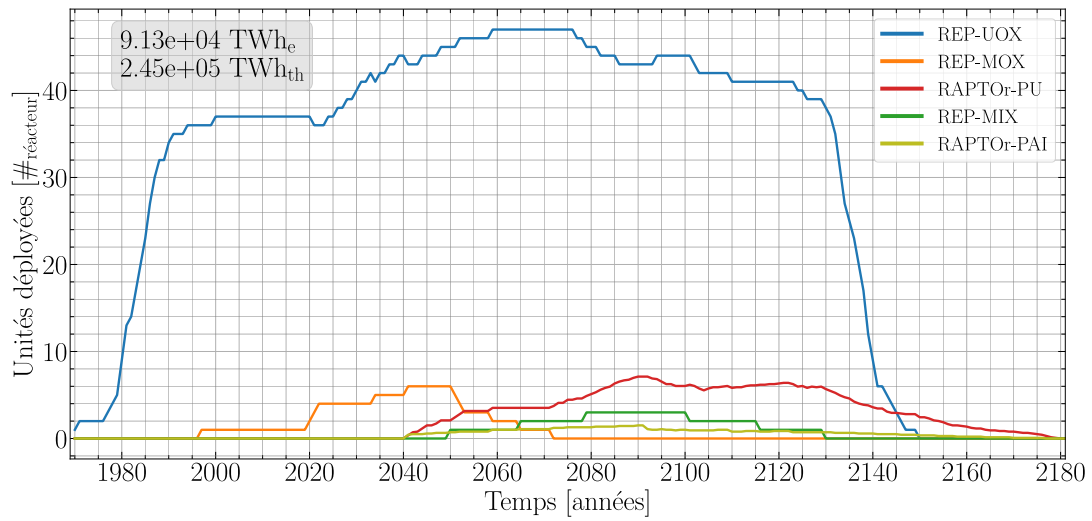


FIGURE 7.34 – Évolution de la composition du parc électronucléaire lors de l’intégration de réacteurs incinérateurs PAI dans le parc avec une gestion du combustible en cycle semi-fermé⁺ et une séparation avancée de matières pour une production d’énergie totale de 9.13E4 TWh_e

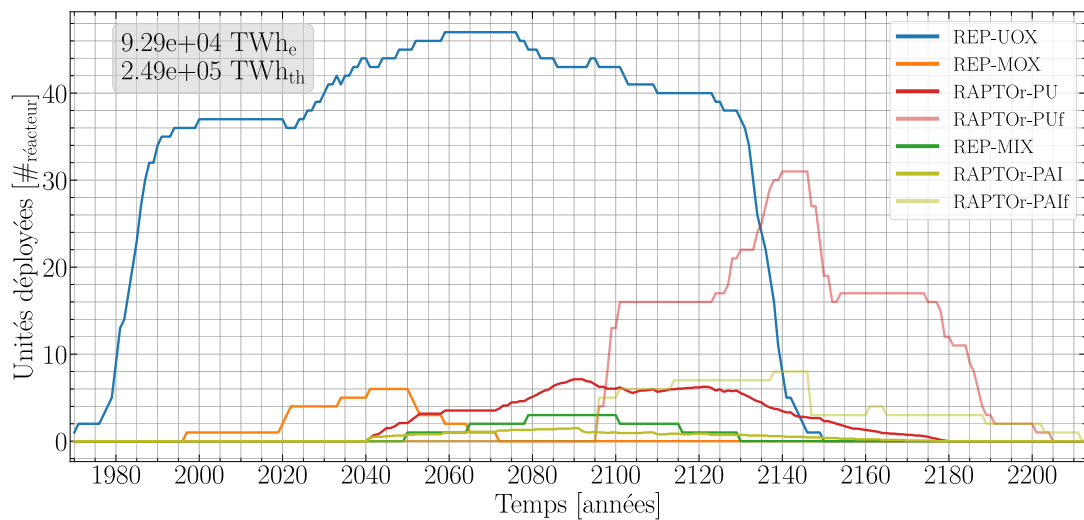


FIGURE 7.35 – Évolution de la composition du parc électronucléaire lors de l’intégration de réacteurs incinérateurs PAI/PAIf dans le parc avec une gestion du combustible en cycle semi-fermé⁺ et une séparation avancée de matières pour une production d’énergie totale de 9.29E4 TWh_e

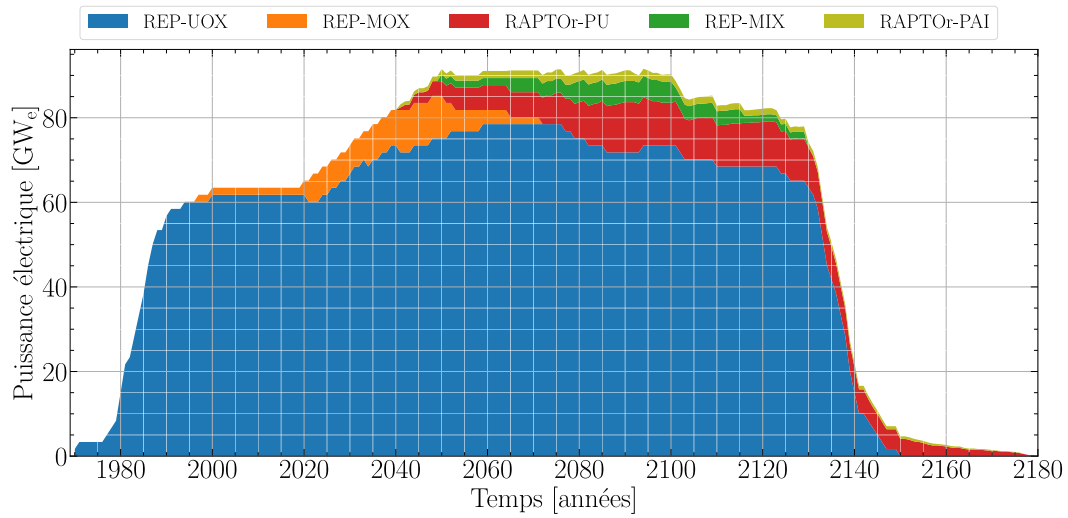


FIGURE 7.36 – Répartition de la puissance produite lors du déploiement des RAPTO_r PAI

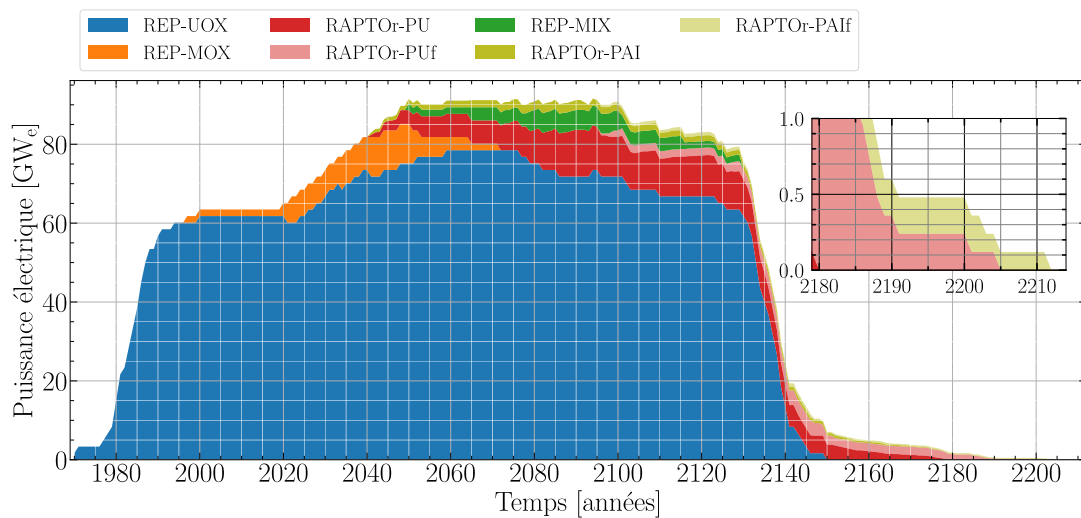
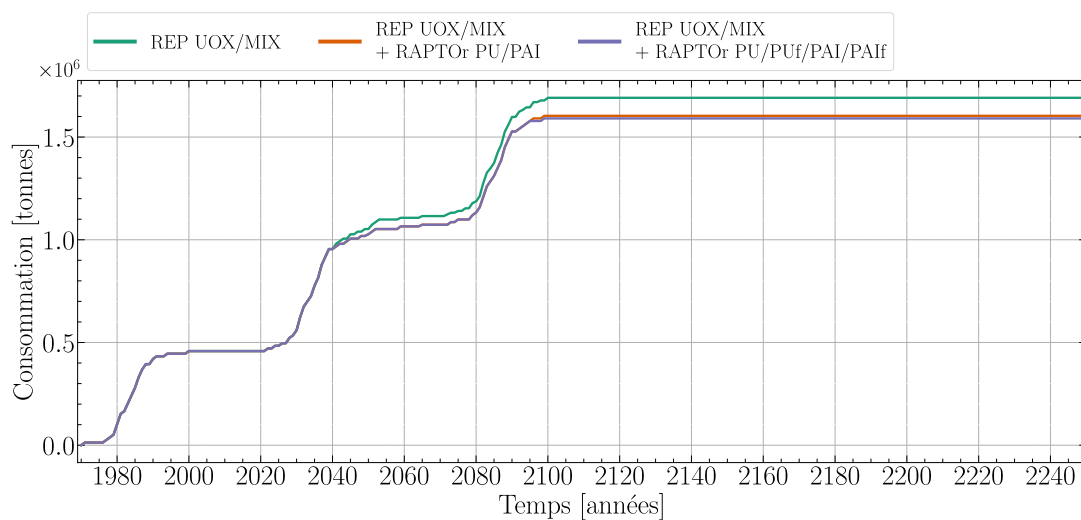
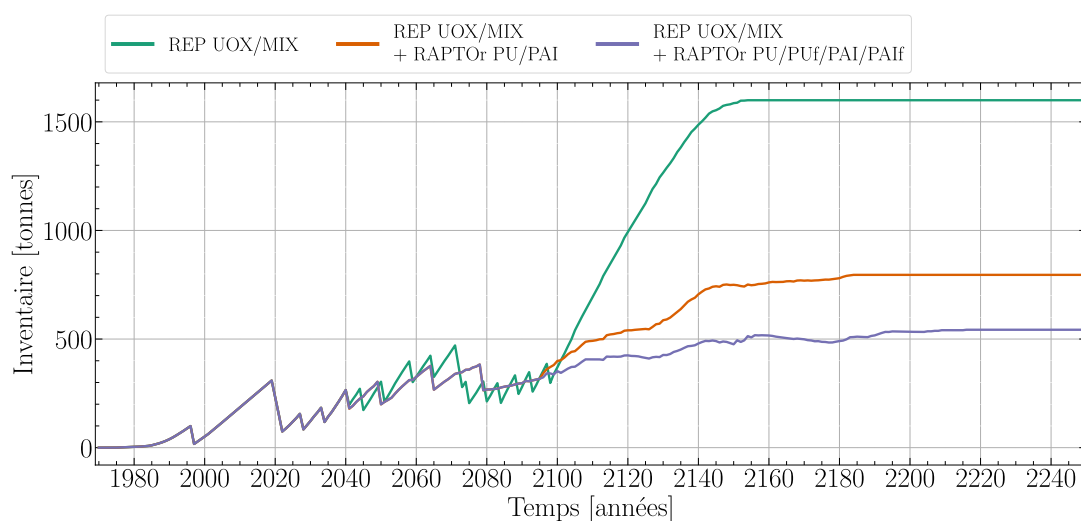


FIGURE 7.37 – Répartition de la puissance produite lors du déploiement des RAPTO_r PAI et PAIF

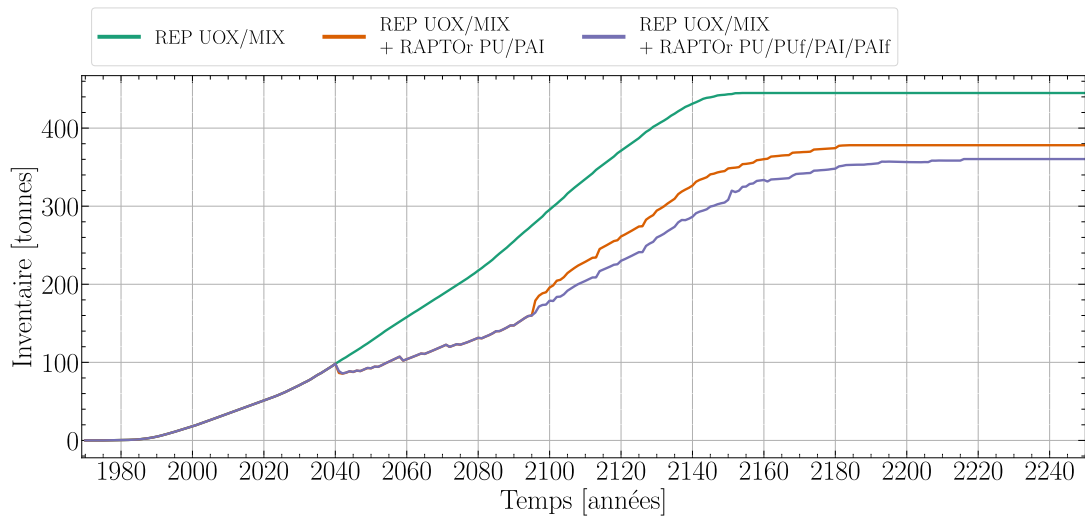
La figure 7.38a montre une réduction de la consommation d'uranium naturel de 5% par rapport au parc 100% REP. La production de plutonium est stabilisée à 47% (1^{re} génération de RAPTO_r) et 34% (2 générations de RAPTO_r) de l'inventaire du parc REP (figure 7.38b). L'inventaire en actinides mineurs est également stabilisé à hauteur de respectivement 85% et 81% et (figure 7.38c). Contrairement aux scénarios de cycle ouvert avec les RAPTO_r PAM/PAUf, la seconde génération de RAPTO_r permet de faire diminuer davantage l'inventaire des AM malgré l'utilisation des réacteurs PU/PUf qui produisent des AM non réutilisés ici. La masse des produits de fission peut ici être différenciée selon les scénarios puisque les actinides mineurs sont séparés. La production d'énergie thermique plus importante (+5%) conduit à une production de produits de fission plus importante du même ordre de grandeur.



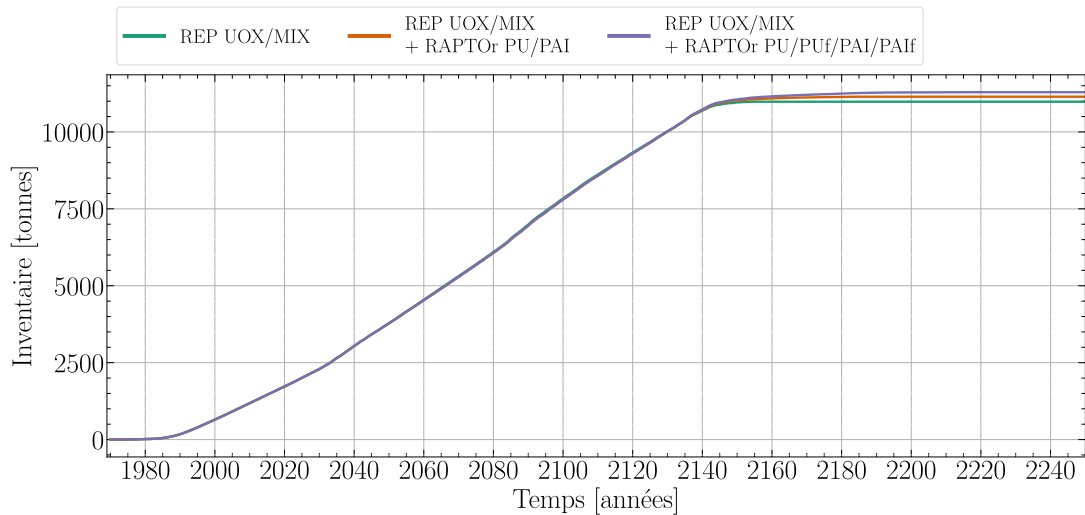
(a) Consommation d'uranium naturel



(b) Réserves de plutonium



(c) Réserve d'actinides mineurs



(d) Stocks de produits de fission

FIGURE 7.38 – Évolution des inventaires en uranium naturel, plutonium, actinides mineurs et produits de fission selon le scénario de déploiement considéré en cycle semi-fermé⁺ et pour une séparation avancée des matières

7.2.4 Conclusions

L'étude préliminaire d'intégration de réacteurs à sels fondus incinérateurs dans différents parcs de réacteurs REP montre l'impact important sur la réduction des substances qui ne sont pas valorisées ou partiellement. Les inventaires en plutonium et en actinides mineurs peuvent être réduits jusqu'à 90% selon les cycles du combustible mis en jeu. La réutilisation du sel combustible des RAPTOR en fin de vie est intéressante pour consommer en plus grande quantités les TRU. Ce transvasement pose néanmoins des problématiques de sûreté, de sécurité, de radioprotection qu'il faut étudier.

Un effet sur la consommation d'uranium naturel est également observé, par le démarrage des RAPTOR avant l'extinction des REP. Indiqués prioritaires, ils produisent une partie de la puissance électrique demandée, ce qui économise l'équivalent en uranium naturel.

Des limites ont été montrées comme la staticité des descriptions des réacteurs dans le code ISF qui ne permettent pas de transitions de combustible ni le changement de combustible alimenté (par exemple, les AM en sortie des RAPTOR plutonium, ce qui dégrade le bilan final).

7.3 Devenir des matières en fin de scénario

Dans le cas d'une sortie du nucléaire de fission, les matières présentes en fin de scénario sont des déchets qui sont ici supposés vitrifiés.

7.3.1 Production de colis de déchets vitrifiés (CSD-V)

À partir des évolutions de parc présentées en section 7.2, une estimation du nombre de CSD-V total produit est réalisée en faisant les hypothèses suivantes :

- Vitrification de tous les éléments, plutonium compris
- Vitrification du sel combustible en sa totalité (hypothèse identique aux calculs des sections 4.4.9, 6.8, 5.7)

Les figures 7.39, 7.40 et 7.41 comparent le nombre total de CSD-V produits normalisé par l'énergie électrique totale produite. On remarque que la consommation du plutonium et du plutonium plus des actinides mineurs conduit à un gain très important sur la production totale de colis vitrifiés puisque ces éléments sont en partie transformés en produits de fission, moins limitant sur la production de colis. Le monorecyclage et multirecyclage en REP permet un gain de 18 à 25% par rapport au cycle ouvert avec REP UOX. La séparation poussée et l'utilisation de deux générations de RAPTOR permet de gagner jusqu'à 43% sur le nombre produit par TWh_e. Il est également utile de constater que la séparation avancée et deux générations de RAPTOR permettent de s'approcher du seuil de 2.51 CSD-V/TWh_e, minimum estimé produit avec la vitrification des produits de fission seuls. Cette estimation est réalisée à partir de la production totale de PF et d'énergie du parc REP UOX simulé ici, avec une production de 20.11 CSD-V/t_{PF bruts} issue de calculs CALCIFER de vitrification des PF issus des RAPTOR.

Les gains sur le cycle semi-fermé⁺ sont les moins bons des scénarios avec intégration de RAPTOR, mais il est nécessaire de se rappeler que la composition du parc avec ISF est différente de ce qui a été supposé pour les compositions des alimentations des RAPTOR, donnant lieu à des incinérations non adéquates. La production d'actinides mineurs non réutilisés dans les scénarios avec séparation poussée, ce qui permet de consommer les AM, donne également lieu à des inventaires importants en fin de scénario qui dégrade fortement le bilan.

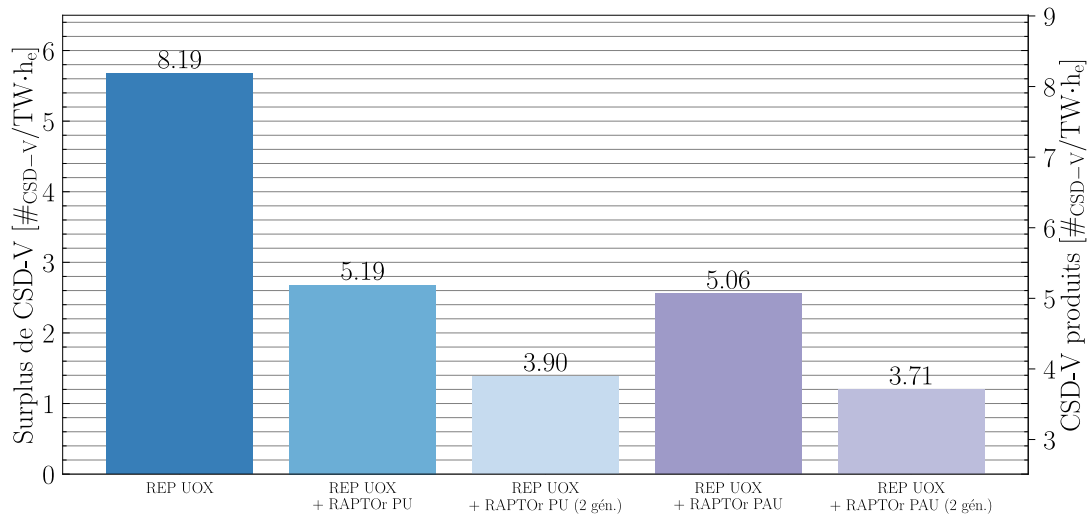


FIGURE 7.39 – Estimation de la production de CSD-V total normalisée en énergie produite dans le parc avec une gestion du combustible en cycle ouvert

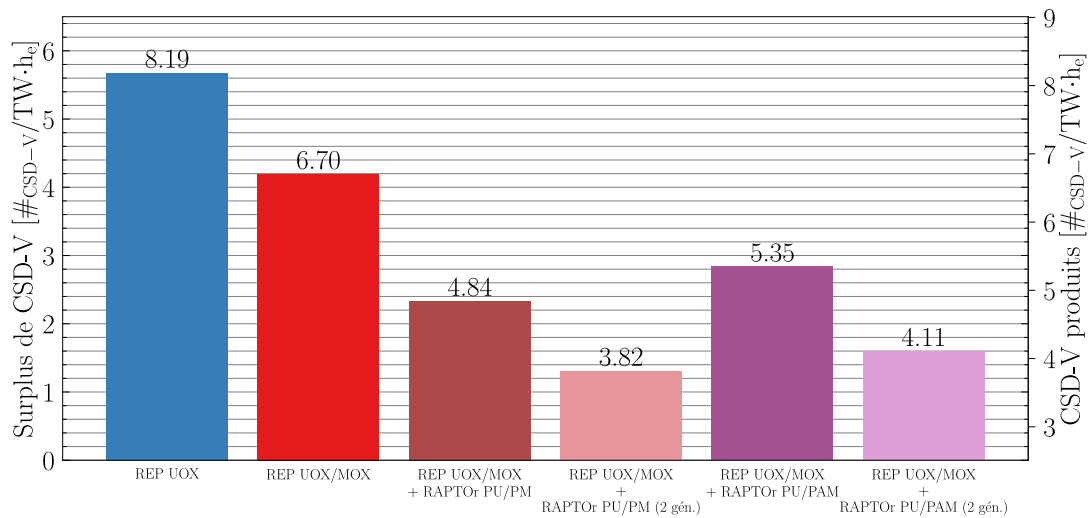


FIGURE 7.40 – Estimation de la production de CSD-V total normalisée en énergie produite dans le parc avec une gestion du combustible en cycle semi-fermé

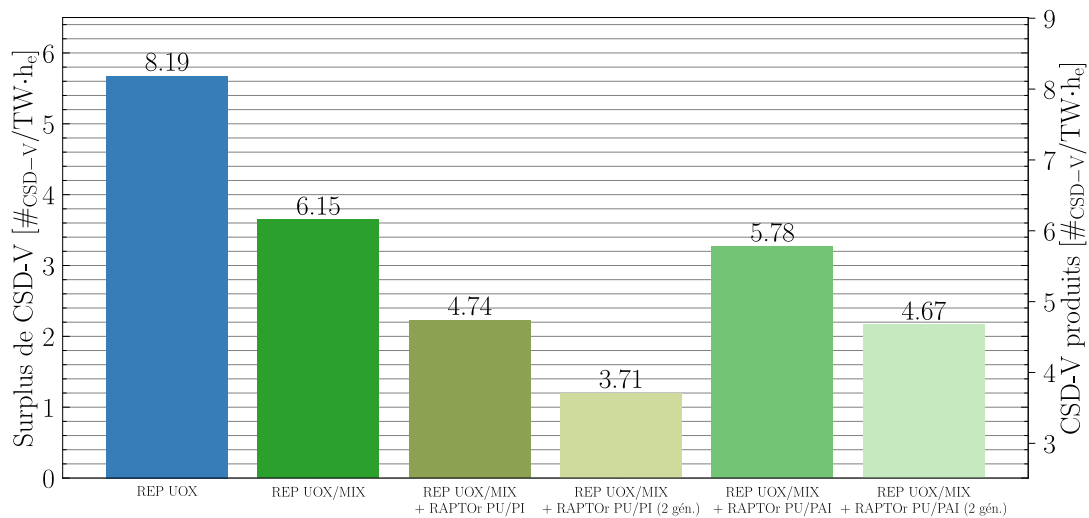


FIGURE 7.41 – Estimation de la production de CSD-V total normalisée en énergie produite dans le parc avec une gestion du combustible en cycle semi-fermé⁺

7.3.2 Impact du temps de fonctionnement des RAPTOR sur la production de CSD-V

L'avantage et l'inconvénient des réacteurs à sels fondus est qu'ils sont rarement à l'état stationnaire (ou après plusieurs dizaines d'années). Ainsi, le choix du temps de fonctionnement impacte la composition du sel déchargé en fin de vie du réacteur et des matières extraites au cours du fonctionnement. La figure 7.42 montre un exemple de cet impact du choix du moment de déchargement du sel combustible des réacteurs PAU et PAM, avec un déchargement classique à 50 ans et un à 100 ans. La prolongation de 50 ans de la durée de fonctionnement du réacteur (ou 2x50 ans avec transvasement du sel combustible à l'identique et non retraité) permet ici de diminuer la production de CSD-V de 20% relatif environ en permettant d'atteindre un état proche de l'état stationnaire et en retardant la vitrification du sel combustible. Il est donc essentiel de considérer ces réacteurs incinérateurs en dynamique pour optimiser au mieux la consommation des substances radioactives en fin de jeu du nucléaire. Comme mentionné précédemment, les problématiques de radioprotection, de sûreté etc. du sel combustible utilisé devront être regardées.

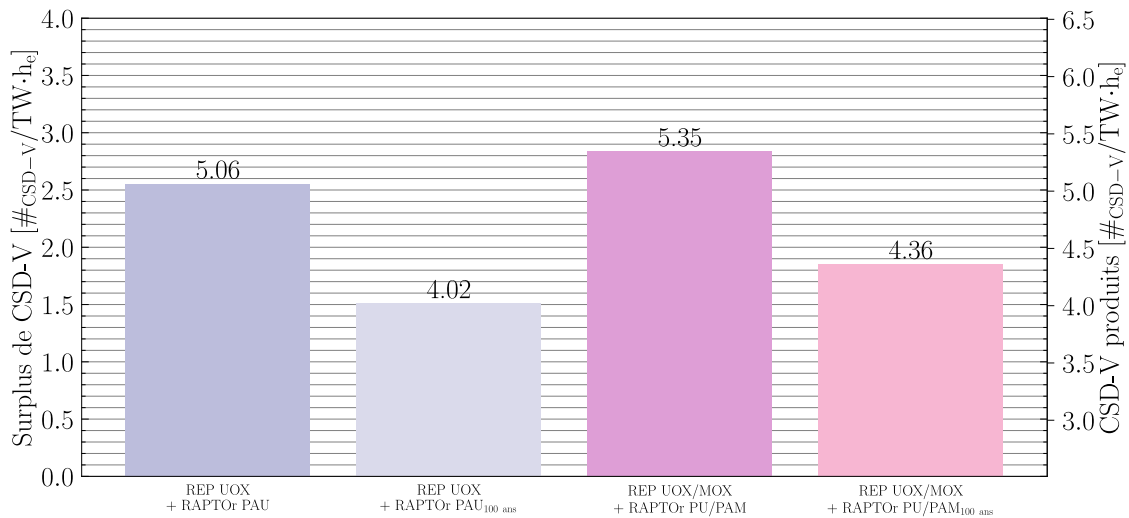


FIGURE 7.42 – Impact du temps de fonctionnement d’un RAPTOR sur l’estimation de la production de CSD-V

7.4 Conclusions et perspectives

L’utilisation d’ISF, un code volontairement simpliste pour la simulation de déploiements de réacteurs intégrant des RSF, dans le cadre des premiers essais d’intégration de réacteurs incinérateurs RAPTOR, montre un gain sur les inventaires finaux des matières entreposées. Le déploiement des différentes configurations donne lieu à une réduction de 17% à 90% des matières à vitrifier une fois le nucléaire de fission arrêté.

La modélisation de parcs plus complexes, avec deux générations de RAPTOR, pour l’incinération du sel combustible déchargé en fin de vie, a montré sa nécessité par une meilleure consommation des matières disponibles.

La production de CSD-V à partir de PF, AM et Pu produits dans les REP et RAPTOR diminue d’autant plus qu’une séparation des actinides mineurs est disponible à l’échelle industrielle et que plusieurs réacteurs incinérateurs sont déployés pour consommer l’ensemble des Pu+AM issus de la strate REP. L’incinération peut être suffisamment efficace pour tendre vers la valeur seuil de CSD-V produits en considérant uniquement les produits de fission.

Les réacteurs utilisés ici sont caricaturaux puisqu’ils sont très peu flexibles sur les changements d’isotopie d’alimentation en fonctionnement. Des calculs plus avancés sur les évolutions du sel combustible en vue d’utiliser des codes de scénario dynamiques, permettant d’ajuster la durée de fonctionnement des réacteurs ainsi que leurs alimentations sont nécessaires pour mieux estimer le gain apporté par ce concept de réacteur.

Conclusion générale et perspectives

Conclusions

De nombreux enjeux politiques, économiques et environnementaux peuvent conduire à utiliser l'énergie nucléaire pour la production d'électricité. Offrant de nombreux avantages comme la concentration en énergie et les faibles émissions de gaz à effet de serre, la production électronucléaire fait l'objet de critiques sur le risque d'accident ou la production d'éléments radioactifs artificiels à très longue durée de vie (plusieurs millions d'années) qu'il faut gérer. Sur ce second sujet, différentes solutions visant à limiter l'inventaire des déchets en radionucléides très gênants sont envisagées comme le multirecyclage du plutonium. Ce multirecyclage est actuellement à l'étude principalement dans les réacteurs en fonctionnement (majoritairement des réacteurs à eau), donc limité par le spectre neutronique thermique, et doit être étendu à des réacteurs à spectre rapide. Par ailleurs, l'utilisation d'un réacteur à sels fondus pour l'incinération des inventaires de transuraniens permet d'éviter l'utilisation de combustible solide, dont la fabrication et le comportement sous irradiation sont complexes.

L'adaptation en version incinérateur du concept de réacteur à sels fondus, principalement étudié avec des sels fluorures depuis les années 1950, est faite dans ce travail de thèse en privilégiant un sel solvant chlorure, qui peut mieux solubiliser le plutonium et les autres actinides. Peu de concepts de RSF incinérateurs ont été proposés, la régénération de la matière fissile étant souvent privilégiée dans les réacteurs de génération IV. Les rares études menées sur l'utilisation des sels chlorures dans le nucléaire induisent une mauvaise connaissance des propriétés physico-chimiques de ces sels. Des hypothèses ont donc été faites sur l'évolution de ces propriétés pour les études neutroniques et thermohydrauliques.

Le choix final du sel solvant ($NaCl-MgCl_2$) parmi d'autres candidats (Ba, Cs, Ca et Sr) est basé ici sur la prise en compte de différents critères dont une meilleure disponibilité des données physico-chimiques (bien qu'incomplètes) et la compacité du volume de cœur à composition donnée pour diminuer la masse critique d'actinides. La prise en compte des contraintes de la chimie du retraitement ou de la production de radioisotopes est également importante.

Différentes études de sensibilités ont conduit à considérer un enrichissement élevé en ^{37}Cl (pour diminuer le volume critique et limiter la production de ^{36}Cl radiotoxique) et un matériau de réflecteur en acier base nickel afin de limiter le ralentissement des neutrons

et donc la possibilité de production d'actinides mineurs lourds. Le RSF à sels chlorures en version incinératrice est flexible dans les isotopies de combustible utilisables avec l'adaptation de la composition du sel combustible (teneur magnésium / teneur actinides) de manière à rester sur l'eutectique du sel ternaire, où les sels à ces compositions ont une température de fusion basse.

La conception d'un réacteur incinérateur pose également la question de la définition de l'efficacité d'incinération. Différents critères ont été proposés : mobilisation de matière, bilan de consommation et proportion de fission.

Une mobilisation plus efficace signifie que la masse d'actinides nécessaire au démarrage est réduite par rapport à ce que le réacteur fissionne. Le réacteur ne sert alors pas de *stockage* de matière radioactive.

Le bilan de consommation/production donne une vue d'ensemble à un instant donné de la matière consommée ou produite par le réacteur. En y adjoignant la masse fournie initialement, une estimation du temps de consommation de l'inventaire initial peut être donnée. Une fois ce temps écoulé, le démarrage du réacteur est rentabilisé du point de vue de la masse injectée de combustible. Une attention toute particulière doit être portée à ce critère puisqu'il ne permet pas de connaître la manière dont a disparu la matière (fissions, captures).

L'estimation de la répartition entre les deux réactions principales (capture et fission) peut se faire à l'aide du dernier indicateur proposé : la proportion de fission, un rapport entre les taux de fission et de capture sur les différents éléments du combustible. Cet indicateur est adapté pour identifier les configurations qui tendent à produire davantage de noyaux lourds mais occulte le rythme de production/disparition, qui peut être favorable à la disparition par fission mais très lent pour consommer une quantité donnée d'actinides.

Les critères de mobilisation de matière et de bilan de consommation semblent être les plus adaptés pour comparer différentes configurations.

Une version incinératrice de plutonium d'isotopie plus ou moins dégradée (ex-UOX, ex-MOX et ex-MIX) avec différents teneurs en plutonium et donc de volumes critiques différents (de petits cœurs de quelques centaines de litres à forte teneur autour de 38.5% de plutonium jusqu'à de grands cœurs de plusieurs mètres cubes avec de faibles teneurs en plutonium jusqu'à 2.5%) permet d'étudier les caractéristiques principales en évolution temporelle. Les faibles teneurs de plutonium et les vecteurs dégradés donnent lieu à une production plus importante d'actinides mineurs à cause du spectre neutronique moins rapide dû aux diffusions sur le solvant. Cependant, ce spectre neutronique moins rapide contribue à faire évoluer la composition du sel en quelques années jusqu'à l'état stationnaire. Le bilan de consommation normalisée en puissance thermique (ainsi que le critère de mobilisation de matière) est alors plus favorable aux grands volumes de cœur.

La puissance élevée développée est en revanche un inconvénient pour les matériaux de structure, qui vont être endommagés par collisions neutron-atomes (dpa et réarrangement atomique), ainsi que par la production et la migration de poches d'hydrogène et d'hélium par réactions surtout sur le fer et le nickel de l'acier. La puissance thermique du réacteur étant directement reliée au flux neutronique, les structures s'endommagent plus rapidement pour les configurations à faible teneur de plutonium.

Concernant la sûreté intrinsèque des réacteurs étudiés, la stabilisation de la réaction en chaîne s'effectue à l'aide de mécanismes de contre-réactions. Les deux effets neutroniques de température (Doppler de densité) ne sont pas comparables en termes d'ampleur. L'effet Doppler est très faible au vu de l'énergie des neutrons très élevés, qui sont peu capturés. La présence de ^{240}Pu et les faibles teneurs en plutonium initial (énergie plus faible des neutrons) améliorent l'effet Doppler. L'effet de densité est en revanche très important comme les neutrons sont rapides et que le sel leur semble transparent. Cet effet est le mécanisme principal de régulation de la puissance neutronique en fonctionnement normal grâce à la dilatation du sel combustible, qui migre alors partiellement hors du cœur donc hors flux.

La production de colis vitrifiés (CSD-V) en sortie des RSF incinérateurs, paramètre utile pour l'estimation de l'impact de ce type de réacteurs sur la réduction de l'inventaire de matière envoyé à la vitrification, est diminuée par rapport à la vitrification directe du plutonium d'alimentation. Ceci fait gagner de la place en stockage géologique profond, destination finale des CSD-V, et du temps sur le confinement des déchets de haute activité à vie longue (HA-VL).

Le développement de géométries modifiées avec des matériaux neutrophages donne lieu à une suppression des neutrons thermiques. Les bilans de production des actinides mineurs et de colis vitrifiés s'en trouvent donc améliorés. Les volumes critiques et masses critiques sont en revanche considérablement plus importants pour que suffisamment d'interactions aient lieu et enclenchent la réaction en chaîne. La contre-réaction Doppler devient quasi nulle et l'effet de densité est amélioré avec la suppression des neutrons thermiques.

Les optimisations thermohydrauliques du circuit combustible réalisées indiquent qu'une puissance spécifique de $150 \text{ MW}_{\text{th}}/\text{m}^3$ est atteignable pour différentes tailles de réacteur. L'augmentation de la puissance volumique semble également envisageable dans les limites physiquement acceptables.

Le développement et l'étude du concept incinérateur cette fois de transuraniens de $300 \text{ MW}_{\text{th}}$ RAPTOR montrent la possibilité de consommer les substances radioactives produites non valorisées (actinides mineurs) ou disponibles à l'arrêt d'un parc électro-nucléaire (plutonium). Le réacteur peut être alimenté avec un mélange de plutonium et d'actinides mineurs ou uniquement d'actinides mineurs (plutonium présent dans la charge initiale). L'alimentation en actinides mineurs (majoritairement de l'américium) conduit à une production retardée de plusieurs mois de ^{238}Pu , introduisant une sur-réactivité du sel combustible. Le contrôle de la réactivité dans le code de simulation utilisé doit donc être adapté dans ce cas précis.

Les coefficients de contre-réactions sont plus faibles lorsque des actinides mineurs sont alimentés. L'effet Doppler est quasiment nul au vu de l'énergie des neutrons, trop élevée pour permettre suffisamment de captures. L'effet de densité est d'autant plus faible que le vecteur isotopique est dégradé à cause de l'opacification du sel combustible limitant la fuite des neutrons. L'effet de densité, bien que moins négatif que dans le cas du RSF incinérateur de plutonium seul, reste cependant très négatif et permet donc l'auto-stabilisation de la réaction en chaîne et donc un bon niveau de sûreté intrinsèque en fonctionnement.

L'isotopie du combustible est sensible au choix de retraitement (réinjection du plutonium, temps d'attente avant séparation et réinjection), qui doit donc être modélisé de manière complète. L'efficacité de séparation des actinides du flux des PF impacte peu la production de colis, car la vitrification de platinoïdes est un cas enveloppe défavorable et masque l'augmentation de la contribution α . En revanche, la radiotoxicité est fortement impactée par l'efficacité de séparation avec des temps de stockages multipliés par plusieurs ordres de grandeur si la fuite d'actinides dans le flux vitrifié est importante.

Enfin, des scénarios préliminaires de déploiement de réacteurs incinérateurs RAPTOR dans divers parcs électronucléaires selon le cycle du combustible considéré montrent un gain important sur les inventaires à gérer à la fermeture d'un parc électronucléaire. La séparation avancée des matières (PF/AM) permet de réduire encore plus les stocks qui devront être vitrifiés (Pu, PF, AM).

Perspectives

Différentes propositions d'études complémentaires ont été faites au fil du manuscrit en lien avec des questions ou des limites identifiées dans ces travaux. Parmi ces perspectives possibles de la thèse, quatre sont mises en lumière ici.

L'estimation des dpa faite dans les différentes études est certainement surestimée, le modèle disponible dans NJOY pour les calculs des sections efficaces utilisées par les codes de transports ne prenant pas en compte tous les mécanismes de recombinaison. Cette sur-estimation est un cas enveloppe défavorable à la conception puisqu'il met des contraintes très fortes sur le choix des matériaux de structure pour la résistance neutronique, en plus des contraintes de corrosion et de température. Une réévaluation avec le modèle ARC-dpa est nécessaire pour les futures études de conceptions de réacteurs à neutrons rapides à sels fondus.

La problématique du remplacement d'une partie des matériaux de structure au cours du temps à cause de l'irradiation neutronique met en lumière la question de la gestion des déchets non issus du combustible. Des études sur l'activation des matériaux de structure et de leur gestion devront être réalisées afin d'estimer au mieux le gain sur les déchets finaux. Également, les produits de fission platinoïdes produits dans le sel combustible ont un comportement inconnu dans le réacteur (dépôt uniforme ou localisé, obstructions de canaux, etc.). S'ils sont extraits en fonctionnement, une voie de gestion plus adaptée que la vitrification devra être envisagée pour réduire le nombre de CSD-V.

L'amélioration des scénarios de déploiement avec la simulation de réacteurs plus dynamiques (changement de combustible en cours de fonctionnement, durée de vie adaptée du réacteur) devra être faite pour mieux estimer le gain des réacteurs incinérateurs sur les inventaires finaux.

Enfin, la construction d'un prototype pour valider notamment les codes de simulation, les méthodes de retraitement et les matériaux de structure choisis sera essentielle dans le développement des réacteurs incinérateurs.



Paramètres physico-chimiques des sels adoptés pour un réacteur convertisseur

Cette annexe présente le calcul des paramètres physico-chimiques des sels combustible et intermédiaire choisis pour la conception d'un réacteur convertisseur de transuraniens. Les masses volumiques, capacités calorifiques, conductivités thermiques ainsi que les viscosités dynamiques sont évaluées à partir de données expérimentales et modèles souvent incomplets. Des hypothèses ont donc dû être faites afin d'estimer au mieux ces différents paramètres pour réaliser les premières études de caractérisation et de dimensionnement.

Sommaire

A.1	Composition des sels choisis	315
A.1.1	Sel combustible	315
A.1.2	Sel intermédiaire	315
A.2	Détermination des propriétés physico-chimiques	316
A.2.1	La masse volumique	317
A.2.2	La capacité calorifique	320
A.2.3	La conduction thermique	322
A.2.4	La viscosité dynamique	323
A.3	Matériau de structure	325
A.3.1	Composition	326
A.3.2	Masse volumique	326
A.3.3	Capacité calorifique	326
A.3.4	Conductivité thermique	326
A.4	Synthèse	327
A.5	Perspectives	327

A.1 Composition des sels choisis

Pour un convertisseur de transuraniens, le choix des sels se porte sur le $\text{NaCl-MgCl}_2\text{-PuCl}_3$ pour le sel combustible et l'eutectique du LiCl-NaCl-KCl pour le sel intermédiaire. La composition à l'eutectique permet une température de fusion la plus faible possible, permettant un fonctionnement à température suffisamment basse pour protéger les matériaux de structure.

A.1.1 Sel combustible

Le sel combustible est un mélange ternaire avec un solvant binaire NaCl-MgCl_2 et un sel de transuraniens $(\text{TRU})\text{Cl}_3$, dont on suppose le comportement similaire au plutonium. Ainsi, la figure A.1 montre la ligne eutectique en rouge, permettant l'utilisation de teneur en TRU de 0% à 38.5%.

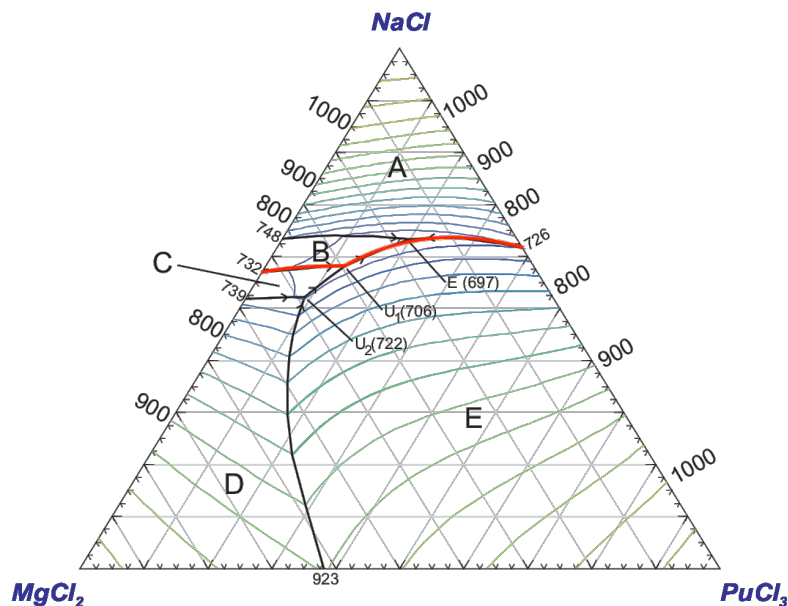


FIGURE A.1 – Diagramme ternaire du sel combustible $\text{NaCl-MgCl}_2\text{-PuCl}_3$ où les proportions sont molaires, les températures sont exprimées en Kelvin et les lignes de niveau sont séparées de 25 K. La ligne rouge représente la ligne eutectique où les températures de fusion sont les plus basses [102]

A.1.2 Sel intermédiaire

Le diagramme ternaire de la figure A.2 permet de déterminer la composition molaire de l'eutectique KCl-LiCl-NaCl , donnée dans le tableau A.1, où la température de fusion est de 317°C.

TABLEAU A.1 – Composition molaire de l'eutectique KCl-LiCl-NaCl [133]

Composant	Proportion molaire
LiCl	0.5153
NaCl	0.1387
KCl	0.3460

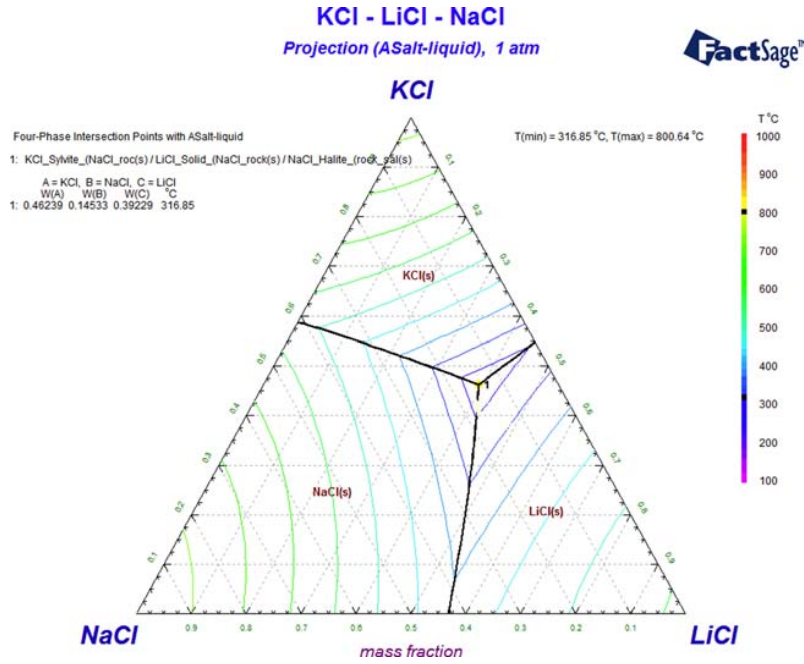


FIGURE A.2 – Diagramme ternaire du sel intermédiaire KCl-LiCl-NaCl où les proportions sont massiques, les températures sont exprimées en degrés Celsius et les lignes de niveau sont séparées de 50°C. [133]

A.2 Détermination des propriétés physico-chimiques

La plupart des paramètres physico-chimiques des sels choisis n'est pas connue. Il est nécessaire de choisir une méthode d'évaluation de chacun de ces paramètres qui sont :

- la masse volumique ρ en kg/m^3
- la capacité calorifique C_p en $\text{J}/(\text{m}^3 \cdot \text{K})$
- la conductivité thermique λ en $\text{W}/(\text{m} \cdot \text{K})$
- la viscosité dynamique μ en $\text{Pa} \cdot \text{s}$

A.2.1 La masse volumique

On peut faire l'approximation que la masse volumique ne dépend que des volumes occupés par chaque ion, en les renormalisant pour correspondre à une masse volumique connue d'une composition proche de celle utilisée. Les volumes des ions composant les sels choisis sont calculés à partir des rayons ioniques lités dans le tableau A.2.

TABLEAU A.2 – Rayons ioniques des ions des sels considérés [134]

Ion	Rayon ionique [pm]
Li ⁺	76
Na ⁺	102
Mg ²⁺	72
Cl ⁻	181
K ⁺	138
Pu ³⁺	86

A.2.1.a Sel combustible

La masse volumique ρ du solvant $NaCl-MgCl_2$ peut être approximée par l'équation A.1 dont les coefficients a_0 , b_0 et c_0 dépendent des proportions de chaque composant, voir tableau A.3.

$$\rho = a_0 T_K^2 + b_0 T_K + c_0 \quad (A.1)$$

TABLEAU A.3 – Coefficients dépendant de la teneur en $MgCl_2$ pour le calcul de la masse volumique du solvant, à partir de la corrélation établie par [135]

	0% $MgCl_2$	30% $MgCl_2$
a_0	-2.490e-7	-2.490e-7
b_0	2.017e-8	9.881e-9
c_0	1.8461	1.8478

L'utilisation des rayons ioniques permet de retrouver la masse volumique expérimentale en corrigeant par un facteur dépendant de la température. L'évolution de ce coefficient en fonction de la température T_K peut être représentée par une forme quadratique du type $\alpha T_K^2 + \beta T_K + \gamma$, où α , β et γ prennent les valeurs données dans le tableau A.4.

TABLEAU A.4 – Valeurs des coefficients α , β et γ pour la correction de la masse volumique calculée avec les rayons ioniques selon la teneur en $MgCl_2$

	0% $MgCl_2$	30% $MgCl_2$
α	-7.320e-8	-7.526e-8
β	-6.423e-20	5.486e-10
γ	0.54455	0.55922

Il est alors possible de rajouter une proportion donnée de plutonium dans le calcul de la masse volumique par les rayons ioniques et appliquer le même facteur de correction. En appliquant cette méthode pour des températures de 500°C à 800°C et des teneurs de 0 à 50% et en réalisant une régression bidimensionnelle sur les résultats obtenus, on obtient une paramétrisation de la masse volumique sous la forme de l'équation A.2.

$$\rho = [[a \cdot x_{Pu} + b] \cdot x_{Pu} + c] \cdot x_{Pu} + d, \text{ pour } x_{Pu} \in [0, 0.5] \quad (A.2)$$

où x_{Pu} est la concentration molaire en plutonium et les coefficients $[a, b, c, d]$ ont une forme linéaire $k = k_1 \cdot T + k_2$ et dépendent de la teneur en magnésium, comme détaillés en tableau A.5.

TABLEAU A.5 – Sous-coefficients k_1, k_2 pour le calcul de la masse volumique du sel combustible selon la teneur en magnésium

i	0% $MgCl_2$				30% $MgCl_2$			
	a_i	b_i	c_i	d_i	a_i	b_i	c_i	d_i
1	-1.1088	1.7651	-1.4170	-0.4609	-0.6478	1.2007	-1.2423	-0.4602
2	4972.9	-7916.3	6355.5	2067.0	2903.0	-5380.7	5567.0	2062.1

Les coefficients k_1, k_2 peuvent également être déterminés de manière plus générale pour toute teneur de magnésium x inférieure à 50% avec un polynôme d'ordre 2 $k_i = k_{i2} \cdot x^2 + k_{i1} \cdot x + k_{i0}$, avec les $[k_{i2}, k_{i1}, k_{i0}]$ déterminés disponibles en tableau A.6.

TABLEAU A.6 – Coefficients pour la détermination des k_i pour le calcul de la masse volumique du sel combustible pour toute teneur de magnésium inférieure à 50%

j	2	1	0
a_{1j}	-1.0577	1.8529	-1.1072
b_{1j}	0.9941	-2.1787	1.7639
c_{1j}	-0.17278	0.63436	-1.4170
d_{1j}	-0.002441	0.003069	-0.46085
a_{2j}	4757.3	-8322.4	4965.7

Suite à la page suivante

TABLEAU A.6 – Coefficients pour la détermination des k_i pour le calcul de la masse volumique du sel combustible pour toute teneur de magnésium inférieure à 50% (Suite)

j	2	1	0
b_{2j}	-4476.5	9792.0	-7911.1
c_{2j}	781.46	-2862.5	6355.4
d_{2j}	11.077	-19.501	2066.9

L'hypothèse est faite que l'estimation de la masse volumique d'un sel ternaire avec le plutonium représente bien les sels avec les autres actinides. L'expression finale de la masse volumique est indiquée en équation A.3 et utilise les coefficients du tableau A.6. Quelques valeurs particulières de masse volumique sont données en tableau A.7.

$$\rho = [a_1 \cdot x_{\text{Pu}}^3 + b_1 \cdot x_{\text{Pu}}^2 + c_1 \cdot x_{\text{Pu}} + d_1] \cdot T + a_2 \cdot x_{\text{Pu}}^3 + b_2 \cdot x_{\text{Pu}}^2 + c_2 \cdot x_{\text{Pu}} + d_2, \text{ pour } x_{\text{Pu,Mg}} \in [0, 0.5] \quad (\text{A.3})$$

TABLEAU A.7 – Estimation de la capacité calorifique pour quelques compositions de sel combustible

Sel combustible	ρ à $T_K = 800 \text{ K}$ [kg/m^3]
38.5 PuCl ₃ - 61.5 NaCl	2978
11.5PuCl ₃ - 58.2NaCl- 30.3MgCl ₂	2166
4PuCl ₃ -57.5NaCl-38.5MgCl ₂	1864

A.2.1.b Sel intermédiaire

Le tableau A.8 liste les coefficients a et b pour le calcul de la masse volumique $\rho = a + b \cdot T$ du sel ternaire *LiCl-NaCl-KCl* selon les proportions molaires de chaque composant [136].

TABLEAU A.8 – Coefficients a et b pour le calcul de la masse volumique du sel intermédiaire $\rho = a + b \cdot T_K$ selon la composition du sel [136]

KCl	LiCl	NaCl	a	b ($\times E4$)
100	0	0	1.67509	-3.17031
0	100	0	1.95315	-5.01899
0	0	100	1.93316	-5.37806
25	75	0	1.89740	-4.67213
50	50	0	1.87309	-4.76675
75	25	0	1.81487	-4.50271

Suite à la page suivante

TABLEAU A.8 – Coefficients a et b pour le calcul de la masse volumique du sel intermédiaire $\rho = a + b \cdot T_K$ selon la composition du sel [136] (Suite)

KCl	LiCl	NaCl	a	b ($\times E4$)
16.66	16.66	66.66	1.92438	-5.32368
16.66	66.66	16.66	1.90862	-4.87144
33.33	33.33	33.33	1.89617	-5.04757
66.66	16.66	16.66	1.79647	-4.27233

En utilisant les rayons ioniques, il est possible de déterminer le volume molaire pour chaque composition donnée dans le tableau A.8 puis d'obtenir des coefficients de correction pour des températures allant de 300°C à 700°C. En considérant, pour chaque température, un coefficient de correction moyen, on obtient l'évolution de la masse volumique de l'eutectique sous la forme de l'équation A.4.

$$\rho = 1975.1 - 0.46261 \cdot T_K \quad (\text{A.4})$$

A.2.2 La capacité calorifique

En l'absence de données, on réalise une combinaison linéaire des capacités calorifiques des constituants pour approcher celles des sels. Ceci peut se justifier en considérant que la capacité calorifique est directement reliée au nombre de degrés de liberté disponibles et donc, dans un sel, au nombre d'ions par unité de masse.

A.2.2.a Sel combustible

La capacité molaire du sel combustible $C_{p_{sel}}^{mol}$ se calcule donc à partir des données sur chaque composant du sel, listées dans le tableau A.9, en supposant une proportion y NaCl, $(1-y)$ MgCl₂ pour la composition du solvant et une teneur x en PuCl₃.

TABLEAU A.9 – Capacité calorifique individuelle des composants du NaCl-MgCl₂-PuCl₃ exprimée en J/(K · mol) [102]

$C_p = a+b \cdot T_K$	a	b
NaCl	77.7638	-7.53E-3
MgCl ₂	92.048	
PuCl ₃	144	

Ainsi, la capacité calorifique molaire du solvant $C_{p_{solvant}}^{mol}$ s'écrit selon l'équation A.5.

$$C_{p_{solvant}}^{mol} = y \cdot C_{p_{NaCl}}^{mol} + (1 - y) \cdot C_{p_{MgCl_2}}^{mol} \quad (\text{A.5})$$

$$= [77.7638 - 0.00753T_K] \cdot y + 92.048 \cdot [1 - y]$$

$$= 92.048 - [14.2842 + 0.00753T_K] \cdot y \quad (\text{A.6})$$

Pour une proportion de plutonium x et en reprenant l'équation précédente,

$$C_{P_{sel}}^{mol} = [92.048 - (14.2842 + 0.00753 \cdot T_K) \cdot y] \cdot (1 - x) + 144 \cdot x \quad (A.7)$$

$$= 92.048 + 51.952 \cdot x - (14.2842 + 0.00753 \cdot T_K) \cdot y \cdot (1 - x) \quad (A.8)$$

En considérant des masses molaires de 23 g/mol pour Na, 24.3 g/mol pour Mg et 37 g/mol pour Cl qui est supposé enrichi à 100% en ^{37}Cl , la masse molaire moyenne du solvant est de $98.3 - 38.3y$ g/mol. En supposant une masse molaire du plutonium de 239.9 g/mol, la masse molaire moyenne M_{sel} s'écrit selon l'équation A.9.

$$M_{sel} = 9.83E-2 + 2.526E-1 \cdot x - 3.83E-2 \cdot (1 - x) \cdot y \text{ kg/mol} \quad (A.9)$$

En combinant les équations A.8 et A.9, il vient l'expression de la capacité calorifique $C_{P_{sel}}$ en J/(kg · K) en l'équation A.10.

$$C_{P_{sel}} = \frac{92.048 + 51.952 \cdot x - (14.2842 + 0.00753 \cdot T_K) \cdot y \cdot (1 - x)}{9.83E-2 + 2.526E-1 \cdot x - 3.83E-2 \cdot (1 - x) \cdot y} \text{ J/(kg} \cdot \text{K)} \quad (A.10)$$

On peut donner l'expression de la capacité calorifique pour quelques compositions remarquables dans le tableau A.10.

TABLEAU A.10 – Estimation de la capacité calorifique pour quelques compositions de sel combustible

Sel combustible	C_p à $T_K = 800 \text{ K}$ [J/(kg · K)]
38.5 PuCl ₃ - 61.5 NaCl	579
11.5PuCl ₃ - 58.2NaCl- 30.3MgCl ₂	821
4PuCl ₃ -57.5NaCl-38.5MgCl ₂	954

À l'instar de la masse volumique, on considérera que cette relation est la même lorsque x est une proportion de transuraniens plutôt qu'une proportion de plutonium.

A.2.2.b Sel intermédiaire

D'après [137], les valeurs de C_p molaire pour les composés LiCl et KCl sont sous la forme

$$\begin{cases} C_{p_{LiCl}} &= 73.3832 - 9.4726E-3T_K \\ C_{p_{KCl}} &= 73.6956 \end{cases}$$

La capacité calorifique molaire du sel intermédiaire est donc donnée par l'équation A.11.

$$\begin{aligned} C_{p_{mol}} &= 0.5153 \cdot C_{p_{LiCl}} + 0.1387 \cdot C_{p_{NaCl}} + 0.346 \cdot C_{p_{KCl}} \\ &= 74.1 - 5.93E-3 \cdot T_K \end{aligned} \quad (A.11)$$

En considérant une masse molaire de 6.9 g/mol pour Li, 23 g/mol pour Na, 39.1 g/mol pour K et 35.5 g/mol pour Cl, on obtient le C_p massique du sel intermédiaire en l'équation A.12.

$$C_p = 1328.9 - 0.1063 \cdot T_K \quad (\text{A.12})$$

A.2.3 La conduction thermique

Pour des sels simples, la conductivité thermique est connue et est de la forme $\lambda = a + b \cdot T_K$, avec a et b listés dans le tableau A.11.

TABLEAU A.11 – Conductivité thermique de chaque composant des sels combustible et intermédiaire [138]

Sel	a	b (×E4)
LiCl	0.9323	-2.33
NaCl	0.7204	-2.11
KCl	0.6064	-2.00
MgCl ₂	0.2237	-2.00

A.2.3.a Sel combustible

À défaut de connaître la conductivité thermique des chlorures d'actinides, on utilisera la combinaison linéaire des données de la référence [138]. On obtient alors l'expression générale donnée par l'équation A.13. Le tableau A.12 présente des valeurs particulières de conductivité thermique selon la composition du sel.

$$\begin{aligned} \lambda &= (0.7204 - 2.33E-4 \cdot T_K) \cdot y + (1 - y) \cdot (0.2237 - 2E-4 \cdot T_K) \\ &= 0.2237 - 2E-4 \cdot T_K + y \cdot (0.4967 - 0.331E-4 \cdot T_K) \end{aligned} \quad (\text{A.13})$$

TABLEAU A.12 – Conductivité thermique de sel combustible pour trois teneurs en plutonium

Sel combustible	λ à $T_K = 800$ K [W/(m · K)]
38.5 PuCl ₃ - 61.5 NaCl	0.534
11.5 PuCl ₃ - 58.2 NaCl - 30.3 MgCl ₂	0.373
4 PuCl ₃ - 57.5 NaCl - 38.5 MgCl ₂	0.345

A.2.3.b Sel intermédiaire

Des résultats de calcul de dynamique moléculaire en fonction de la fraction de NaCl dans un mélange de 3LiCl–2KCl donne la conductivité thermique du sel bien que le rapport des concentrations entre LiCl et KCl n'est pas le bon [133]. En fixant 13.87 % de NaCl, la conductivité thermique peut être extraite des données et est indiquée en équation A.14.

$$\lambda = 0.7428 - 1.852E-4 \cdot T_K \quad (A.14)$$

Si l'on utilise les données de la référence [138] pour obtenir une estimation de λ par combinaison linéaire, il vient l'équation A.15.

$$\lambda = 0.7901 - 2.185E-4 \cdot T_K \quad (A.15)$$

L'estimation de l'équation A.15 étant très proche de l'estimation faite dans l'équation A.14, on utilisera donc l'équation A.15.

A.2.4 La viscosité dynamique

A.2.4.a Sel combustible

Des données sur la viscosité cinématique et la masse volumique de $NaCl-UCl_3$ en fonction de la température et de la proportion molaire d'uranium permettent de déterminer la viscosité dynamique [139]. Le tableau A.13 liste les différentes viscosités dynamiques calculées.

TABLEAU A.13 – Viscosité dynamique du sel $NaCl-UCl_3$ selon la teneur d'uranium [$mPa \cdot s$] [139]

%mol U \ T [°C]	450	500	550	600	650	700	750	800	850
	[K]	723	773	823	873	923	973	1023	1073
0	5.1881	3.7670	2.8376	2.2034	1.7550	1.4281	1.1835	0.9962	0.8500
10	1.2718	1.0004	0.8087	0.6686	0.5633	0.4822	0.4183	0.3672	0.3255
20	3.1110	2.4005	1.9081	1.5544	1.2925	1.0935	0.9389	0.8164	0.7176
30	9.7548	7.1933	5.4946	4.3213	3.4824	2.8647	2.3983	2.0383	1.7550
40	22.3774	16.0061	11.9039	9.1432	7.2148	5.8243	4.7939	4.0122	3.4066
50	42.5686	29.7285	21.6514	16.3261	12.6736	10.0827	8.1910	6.7749	5.6914
60	54.3562	37.6648	27.2419	20.4146	15.7591	12.4741	10.0870	8.3077	6.9516
70	82.5956	56.3671	40.2316	29.8004	22.7699	17.8605	14.3264	11.7145	9.7392
80	125.0828	84.1690	59.3394	43.4793	32.9031	25.5879	20.3671	16.5386	13.6638
90	56.7620	39.4458	28.6035	21.4846	16.6197	13.1804	10.6767	8.8076	7.3810
100	2.9167	2.2917	1.8506	1.5285	1.2865	1.1002	0.9537	0.8363	0.7408

Avec les données de la viscosité dynamique du mélange $NaCl-MgCl_2$ pour trois températures en fonction de la concentration molaire en $NaCl$ (tableau A.14) [135], on constate un accord à mieux que 10% entre les deux jeux de données pour 0% d'uranium et pour une teneur en $NaCl$ autour de 60 - 70% ($NaCl | NaCl-MgCl_2$). L'ajout d'un peu de magnésium ne semble pas changer significativement la viscosité.

TABLEAU A.14 – Viscosité dynamique du sel $NaCl-MgCl_2$ selon la teneur de $NaCl$ [cP] [135]

%mol $NaCl$	T [K]		
	973	1023	1073
0		2.05	1.80
10		1.87	1.66
20	1.99	1.69	1.52
30	1.80	1.53	1.40
40	1.60	1.38	1.24
50	1.40	1.22	1.08
60	1.22	1.06	0.95
70	1.38	1.24	1.08
80	1.45	1.34	1.16
90			1.19
100			1.20

On constate que l'ajout d'uranium réduit fortement la viscosité dynamique pour de faibles concentrations (<10%) avant de l'augmenter (<80%) puis finalement de la diminuer à nouveau. Ce comportement n'est pas modélisable aisément par une loi simple. En revanche, pour chaque concentration en uranium x_U , la loi avec la température est de la forme de l'équation A.16.

$$\mu(x_U) = e^{A(x_U) + \frac{B(x_U)}{T_K}} \quad (A.16)$$

avec μ la viscosité dynamique en $mPa \cdot s$, T_K la température en K, A et B suivant les équations A.17 et A.18 et le tableau A.15, et x_U en pourcentage molaire. Le développement polynomial à l'ordre 5 permet un accord à mieux que 6% sur l'estimation des viscosités dynamiques. On supposera que l'équation A.16 peut également être appliquée aux autres actinides pour le calcul de la viscosité dynamique.

$$A(x_U) = A_0 + A_1 \cdot x_U + A_2 \cdot x_U^2 + A_3 \cdot x_U^3 + A_4 \cdot x_U^4 + A_5 \cdot x_U^5 \quad (A.17)$$

$$B(x_U) = B_0 + B_1 \cdot x_U + B_2 \cdot x_U^2 + B_3 \cdot x_U^3 + B_4 \cdot x_U^4 + B_5 \cdot x_U^5 \quad (A.18)$$

TABLEAU A.15 – Coefficients déterminés par régression polynomiale d'ordre 5 pour l'estimation des viscosités dynamiques

i	0	1	2	3	4	5
A_i	-3.436	-6.385E-2	7.238E-3	-1.939E-4	2.189E-6	-9.037E-9
B_i	3666	-184.9	12.17	-2.889E-1	3.056E-3	-1.208E-5

Le tableau A.16 indique l'estimation de la viscosité dynamique pour les sels combustibles considérés. Les fortes fluctuations observées sont dues à l'utilisation des données de l'uranium.

TABLEAU A.16 – Viscosité dynamique du sel combustible évaluée pour trois teneurs en plutonium

Sel combustible	μ à $T_K = 800$ K [mPa · s]
38.5 PuCl ₃ - 61.5 NaCl	12.9
11.5 PuCl ₃ - 58.2 NaCl - 30.3 MgCl ₂	0.98
4 PuCl ₃ - 57.5 NaCl - 38.5 MgCl ₂	1.34

A.2.4.b Sel intermédiaire

Le tableau A.17 présente la viscosité dynamique du sel *3LiCl-2KCl* selon la teneur en *NaCl* incorporée [133].

TABLEAU A.17 – Viscosité dynamique du sel intermédiaire selon la teneur en *NaCl*

%mol <i>NaCl</i>	T [K]							
	900	950	1000	1050	1100	1150	1200	
0	1.47	1.30	1.17	1.07	0.90	0.84	0.76	
20	1.62	1.40	1.20	1.07	1.00	0.87	0.85	
40	1.59	1.43	1.24	1.12	0.98	0.88	0.86	
60	1.65	1.51	1.38	1.24	1.09	0.96	0.92	
80	1.78	1.58	1.46	1.28	1.18	1.04	0.94	
100	1.98	1.76	1.59	1.36	1.21	1.11	1.01	

L'interpolation de ces données pour une concentration en *NaCl* de 14.533% résulte en l'équation A.19 et sera utilisée malgré un rapport *LiCl/KCl* différent du sel choisi.

$$\mu(T_K) = e^{-2.190 + \frac{2357}{T_K}} \quad (\text{A.19})$$

A.3 Matériau de structure

On considère l'acier 316H comme matériau de structure de référence du circuit combustible et dont les caractéristiques proviennent de [111].

A.3.1 Composition

Le tableau A.18 présente la composition nominale massique de l'acier 316H donnée par le constructeur. À partir de cette composition, une composition molaire a été choisie et est présentée dans le tableau A.19.

TABLEAU A.18 – Composition massique nominale de l'acier 316H en [%]

	C	Mn	Si	P	S	Cr	Mo	Ni	Fe
Min	0.04	-	-	-	-	16.0	2.00	10.0	Équilibrage
Max	0.10	2.0	0.75	0.045	0.030	18.0	3.00	14.0	Équilibrage

TABLEAU A.19 – Composition molaire de l'acier 316H utilisé dans les études. L'abondance naturelle des isotopes de chaque élément constituant doit être prise en compte

Élément	Teneur molaire [%]
C	0.46
Si	1.48
P	0.08
Si	0.05
Cr	18.11
Mn	0.10
Fe	66.94
Ni	11.33
Mo	1.44

A.3.2 Masse volumique

La masse volumique est de 8000 kg/m³.

A.3.3 Capacité calorifique

La capacité calorifique est indiquée à 500 J/(kg · K) entre 0°C et 100°C. On suppose qu'elle est indépendante de la température.

A.3.4 Conductivité thermique

La conductivité thermique évolue de 16.3 W/(m · K) à 100°C, à 21.5 W/(m · K) à 500°C. On considère que la conductivité thermique évolue selon l'équation A.20.

$$\lambda(T_K) = 11.451 + 0.013 \cdot T_K \quad (\text{A.20})$$

A.4 Synthèse

Le tableau A.20 résume l'ensemble des paramètres physico-chimiques déterminés dans cette annexe.

TABLEAU A.20 – Paramètres physico-chimiques estimées pour trois teneurs de plutonium dans le sel combustible, ainsi que pour le sel intermédiaire et l'acier des structures

Matériau	Type	Unité	Évaluation à 800 K		
			38.5%Pu	11.5%Pu	4%Pu
Sel combustible	Masse volumique	kg/m ³	2978	2166	1864
	Viscosité dynamique	mPa · s	12.9	0.98	1.34
	Capacité calorifique	J/(kg · K)	579	821	954
	Conductivité thermique	W/(m · K)	0.534	0.373	0.345
Sel intermédiaire	Masse volumique	kg/m ³		1605	
	Viscosité dynamique	mPa · s		1.04	
	Capacité calorifique	J/(kg · K)		1244	
	Conductivité thermique	W/(m · K)		0.615	
Réflecteur	Masse volumique	kg/m ³		8800	
	Capacité calorifique	J/(kg · K)		500	
	Conductivité thermique	W/(m · K)		21.9	

A.5 Perspectives

Les incertitudes sur les paramètres physico-chimiques des sels chlorures sont très importantes. De nouvelles évaluations expérimentales et numériques sont nécessaires afin de mieux modéliser les réacteurs à sels chlorures. Des programmes en ce sens ont été démarrés aux États-Unis et en Europe notamment. L'ORNL prévoit de réévaluer les propriétés présentées ici pour de nombreux sels dont certains sels chlorures ([140]) dans les années à venir. Côté européen et français, les projets MIMOSA et ISAC considérant des sels chlorures dans la conception, certaines propriétés vont également être réévaluées expérimentalement et numériquement.

La méthode de détermination de la conductivité thermique des sels combustible et intermédiaire pourrait être remplacée par l'utilisation de la corrélation de Rao-Turnbull présentée par l'équation A.21 [141, 142], comparée et validée pour plusieurs compositions de sels quasi exclusivement fluorures. L'utilisation de cette corrélation semble améliorer l'estimation de la conductivité thermique cependant les plages de validité, l'évolution avec la température et la validité pour des sels ternaires avec des actinides sont inconnues.

$$\lambda(T_m) = \frac{0.119 \cdot T_m^{1/2} \cdot \rho^{2/3}}{(M/n)^{7/6}} \quad (\text{A.21})$$

Avec λ la conductivité thermique en $\text{W}/(\text{m} \cdot \text{K})$, T_m la température de fusion du sel en Kelvin, ρ le volume molaire du sel en cm^3/mol , M la masse moyenne en gramme des éléments du sel ($= \sum_i X_i \cdot M_i$) et n le nombre d'ions différents.

B

Géométrie du réacteur pour la thermohydraulique

La description d'une géométrie simple adaptée aux optimisations neutronique - thermohydraulique du circuit combustible est faite dans cette annexe. Les méthodes de calculs de différents paramètres géométriques du circuit combustible sont ensuite détaillées et résumées.

Sommaire

B.1	Présentation générale de la géométrie	331
B.2	Description des composants du circuit combustible	331
B.2.1	Général	331
B.2.2	Cœur	332
B.2.3	Pompe	332
B.2.4	Niveau libre	332
B.2.5	Protection neutronique	332
B.2.6	Disque de jonction entre la pompe et les échangeurs de chaleur	333
B.2.7	Réflecteur radial	334
B.2.8	Tubes échangeurs de chaleur	334
B.2.9	Retour	335
B.3	Liste des paramètres	337

B.1 Présentation générale de la géométrie

La figure B.1 présente la géométrie du réacteur développée pour les calculs d'optimisations du circuit combustible avec le code SONGe. Cette géométrie est pensée pour des réacteurs de petite taille (AMR) avec l'utilisation d'une unique pompe centrale. Le réflecteur radial est refroidi avec le sel intermédiaire en proche parois du cœur.

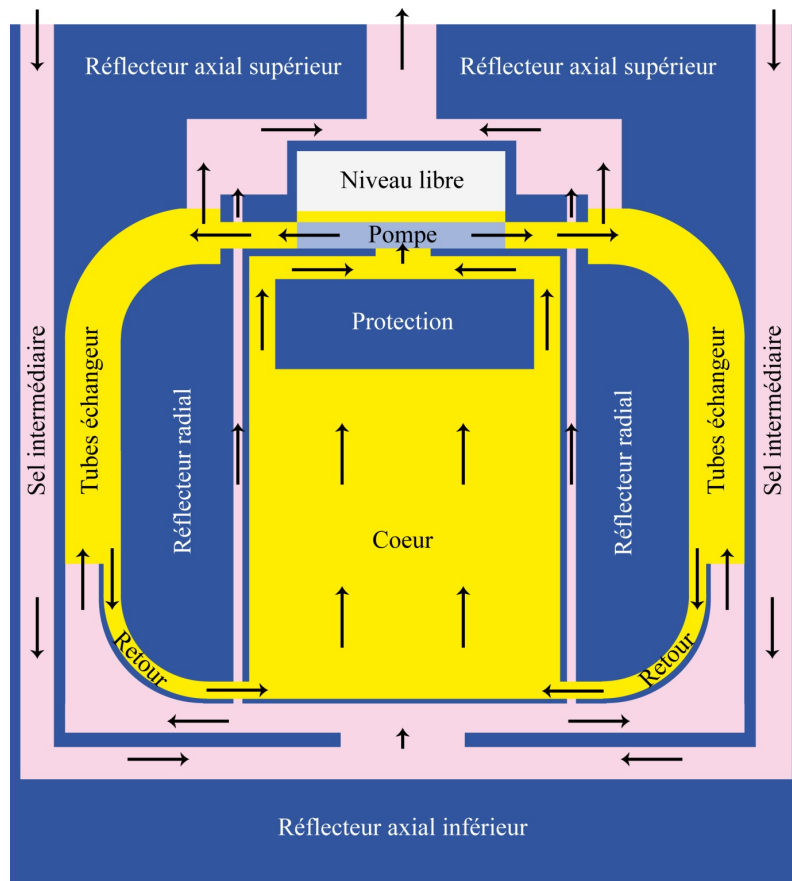


FIGURE B.1 – Coupe longitudinale du réacteur incinérateur passant par une veine de sel combustible dans les échangeurs de chaleur

B.2 Description des composants du circuit combustible

B.2.1 Général

On considère un débit volumique nominal de sel combustible D_{sc_0} en m^3/s et une vitesse optimale pour ce sel V_{sc_0} en m/s . Afin de minimiser le volume de sel combustible hors cœur, on fera en sorte que la vitesse du sel combustible soit constante dans toutes les canalisations et fixée à V_{sc_0} en fonctionnement nominal. Ceci définit une section de passage nominale

$$S_n = D_{sc_0}/V_{sc_0}$$

B.2.2 Cœur

Egalement appelée zone critique, il s'agit de la zone de flux neutronique et donc de production de puissance de fission. Sa forme est adaptée pour permettre un écoulement sans recirculation mais il est représenté ici par un simple cylindre de hauteur H_c et de rayon R_c . Les paramètres de base sont toutefois le volume du cœur V_c et le rapport de forme du cœur F_c défini par $F_c = H_c/R_c$, on utilisera

$$R_c = \left(\frac{V_c}{\pi F_c} \right)^{1/3}$$

$$H_c = F_c \cdot R_c$$

B.2.3 Pompe

La pompe aspire le sel combustible dans un cylindre intérieur de rayon R_{pin} pour le rejeter à un rayon R_{pout} , le tout sur une hauteur H_p . Cette hauteur est telle, qu'à débit nominal, la vitesse du sel combustible en sortie est égale à V_{sc_0} . On a donc

$$H_p = \frac{S_n}{2\pi \cdot R_{pout}}$$

En négligeant le volume des matériaux, le volume de sel combustible contenu dans la pompe V_p est donc

$$V_p = \pi R_{pout}^2 \cdot \frac{S_n}{2\pi \cdot R_{pout}}$$

B.2.4 Niveau libre

La pompe est surmontée d'un niveau libre, qui peut accommoder les variations de densité et de volume du sel combustible, d'épaisseur E_{nl} et de même diamètre que la pompe. Son volume de sel combustible V_{nl} est donc

$$V_{nl} = \pi R_{pout}^2 \cdot E_{nl}$$

B.2.5 Protection neutronique

Une protection neutronique est placée entre le cœur et la pompe pour, d'une part protéger cette dernière, mais aussi pour assurer l'efficacité de contre-réaction liée au niveau libre. Cette protection neutronique est d'épaisseur verticale E_{pn} et de rayon $R_{pn} < R_c$. Elle laisse passer le sel combustible en périphérie. Ce passage doit être tel que la vitesse du sel combustible soit égale à V_{sc_0} , ce qui implique que

$$\pi \cdot [R_c^2 - R_{pn}^2] = S_n$$

Soit

$$R_{pn} = \sqrt{R_c^2 - \frac{S_n}{\pi}}$$

Cette relation est possible seulement si $S_n \leq \pi R_c^2$, ce qui correspond à la condition d'une vitesse du sel combustible dans le cœur plus faible que la vitesse nominale V_{sc_0} .

Le sel combustible continue au dessus de la protection neutronique dans un collecteur permettant l'injection dans la pompe. La forme supérieure du collecteur doit être telle que la vitesse du sel combustible continue à être égale à V_{sc_0} quel que soit le rayon. On en déduit que la hauteur $h_c(r)$ du collecteur en fonction du rayon est donnée par

$$h_c(r) = \frac{S_n}{2\pi r}$$

Autrement dit, contrairement au schéma de la figure B.1, le collecteur doit avoir une forme hyperbolique et sa hauteur maximum, qui définit la hauteur de placement de la pompe, est

$$h_{c_0} = \frac{S_n}{2\pi R_p}$$

Le volume de sel combustible V_{pn} lié à la protection neutronique est donc composé de trois zones :

- un cylindre de rayon extérieur R_c , de rayon intérieur R_{pn} et de hauteur E_{pn}

$$V_{pn1} = \pi \cdot [R_c^2 - R_{pn}^2] \cdot E_{pn} = S_n \cdot E_{pn}$$

- un hyperboloïde de rayon extérieur R_c , de rayon intérieur R_p et de hauteur $h_c(r)$

$$V_{pn2} = 2\pi \int_{R_{pin}}^{R_c} \frac{S_n}{2\pi \cdot r} r dr = S_n \cdot [R_c - R_{pin}]$$

- un cylindre de rayon R_p et de hauteur h_{c_0}

$$V_{pn3} = \pi \cdot R_{pin}^2 \frac{S_n}{2\pi R_{pin}} = \frac{R_{pin} \cdot S_n}{2}$$

Le volume total de sel combustible lié à la protection neutronique est donc

$$V_{pn} = S_n \cdot \left[E_{pn} + R_c - \frac{R_{pin}}{2} \right]$$

B.2.6 Disque de jonction entre la pompe et les échangeurs de chaleur

Après la sortie de la pompe, le sel combustible est amené vers l'entrée des échangeurs de chaleur à travers un disque de rayon intérieur R_{pout} et de rayon extérieur R_{jpe} , placé à la jonction avec les échangeurs de chaleur. Pour conserver une vitesse constante quel que soit le rayon, l'épaisseur de ce disque a pour valeur $S_n/(2\pi \cdot r)$. Le volume de sel combustible dans cette jonction entre la pompe et les échangeurs de chaleur est donc

$$V_{jpe} = 2\pi \int_{R_{pout}}^{R_{jpe}} \frac{S_n}{2\pi r} \cdot r dr = S_n \cdot [R_{jpe} - R_{pout}]$$

L'épaisseur du disque de sortie de pompe E_{jpe} à la jonction avec les échangeurs de chaleur est

$$E_{jpe} = \frac{S_n}{2\pi \cdot R_{jpe}}$$

B.2.7 Réflecteur radial

Un réflecteur radial entoure entièrement le cœur sur une épaisseur E_{rr} . Ce réflecteur est contourné par les échangeurs de chaleur ce qui lui donne une forme arrondie en haut et en bas et il est refroidi, côté intérieur, par une circulation de sel intermédiaire. Ce réflecteur radial comprend une partie droite côté intérieur d'épaisseur E_{rrd} et une partie arrondie côté extérieur d'épaisseur R_{rr} correspondant au rayon de l'arrondi. On a bien évidemment

$$E_{rr} = E_{rrd} + R_{rr}$$

La partie droite du réflecteur radial a un rayon intérieur R_c et un rayon extérieur à l'aplomb de l'extrémité du disque de jonction R_{jpe} , soit

$$E_{rrd} = R_{pout} + R_{jpe} - R_c$$

La hauteur la plus grande H_{rr} du réflecteur radial au niveau de la jonction entre les parties droite et arrondie est donnée par

$$H_{rr} = H_c + E_{pn} + h_{c_o} - \frac{l_t - E_{jpe} + E_{rdh_{in}}}{2}$$

Où l_t est la largeur des tubes échangeurs de chaleur décrits ci-dessous et $E_{rdh_{in}}$ est l'épaisseur à l'entrée de la partie droite horizontale du retour de sel qui est aussi décrit ensuite.

B.2.8 Tubes échangeurs de chaleur

Les échangeurs de chaleur sont des tubes aplatis d'épaisseur de sel combustible E_t , de largeur l_t et d'épaisseur de matériau d'échange E_m . Ils sont espacés, au niveau de la jonction entre la pompe et les échangeurs de chaleur, d'une épaisseur de sel intermédiaire égale à l'épaisseur de sel combustible E_t . Ces tubes sont disposés tout autour du disque de jonction sur une longueur $2\pi \cdot R_{jpe}$. Le nombre de tubes N_t est donc

$$N_t = \frac{\pi R_{jpe}}{E_t + E_m}$$

Le rayon R_{jpe} étant un paramètre libre, on le modifiera de manière à ce que N_t soit un entier. Au niveau de la jonction, la section d'entrée de l'ensemble des tubes échangeurs de chaleur doit être égale à la section de sortie du disque de jonction. On a donc $N_t \cdot E_t l_t = 2\pi \cdot R_{jpe} E_{jpe} = S_n$ ce qui permet de déterminer la largeur l_t des tubes échangeurs de chaleur

$$l_t = \frac{S_n}{N_t E_t}$$

Les tubes commencent à la fin de la section droite du réflecteur radial et comprennent un quart de cercle de rayon R_{rr} puis une section droite de longueur $L_{td} \leq H_{rr} - 2R_{rr}$. En supposant $E_m \ll l_t$ et $E_m \ll R_{rr}$, la surface d'échange unitaire S_{eu} est donnée par

$$S_{eu} = \pi[(R_{rr} + l_t)^2 - R_{rr}^2] + L_{td} \cdot l_t = l_t \cdot [\pi[2R_{rr} + l_t] + L_{td}]$$

La surface totale d'échange S_e est donc

$$S_e = 2 \cdot N_t \cdot S_{eu}$$

Le volume de sel combustible V_t dans les tubes d'échange de chaleur est

$$V_t = N_t \cdot S_{eu} \cdot N_t = \frac{S_{eu}}{l_t} \cdot S_n$$

Pour les pertes de charge, on approximera la longueur des tubes par $L_t = S_{eu}/l_t$ et le diamètre hydraulique D_t par

$$D_t = \frac{2 \cdot E_t \cdot l_t}{E_t + l_t} \approx 2E_t$$

B.2.9 Retour

Après le passage dans les tubes échangeur, le sel combustible est redirigé vers le cœur par un retour constitué d'une forme cylindrique. Cette forme est telle que la vitesse du sel combustible est constante. Elle est constituée d'un cylindre droit vertical suivi d'un cylindre généré par un quart de cercle de rayon intérieur R_{rr} et d'épaisseur variable puis une section droite horizontale.

B.2.9.a Section droite verticale

La longueur de la section droite verticale est approximativement $L_{rdv} = H_{rr} - 2R_{rr} - L_{td}$. Son épaisseur E_{rdv} est telle que

$$\pi \left[[R_c + E_{rr} + E_{rdv}]^2 - [R_c + E_{rr}]^2 \right] = S_n$$

Ce qui fournit

$$E_{rdv}^2 + 2E_{rdv} \cdot [R_c + E_{rr}] - \frac{S_n}{\pi} = S_n$$

En ne conservant que la solution positive, il vient

$$E_{rdv} = [R_c + E_{rr}] \cdot \left[\sqrt{1 + \frac{S_n}{\pi[R_c + E_{rr}]^2}} - 1 \right]$$

Si $E_{rdv} \ll R_c + E_{rr}$, il est possible de développer la racine au premier ordre pour obtenir

$$E_{rdv} = \frac{S_n}{2\pi[R_c + E_{rr}]}$$

Le volume V_{rdv} de cette section droite vertical est donné par le produit de la section de passage par sa longueur ce qui donne

$$V_{rdv} = S_n \cdot L_{rdv}$$

B.2.9.b Section droite horizontale

La longueur de la section droite horizontale est identique à l'épaisseur de la partie droite du réflecteur radial E_{rrd} . Son épaisseur E_{rdh} est variable et telle que

$$E_{rdh}(r) = \frac{S_n}{2\pi \cdot r}$$

En particulier on a en entrée et en sortie

$$E_{rdh_{in}} = \frac{S_n}{2\pi[R_c + E_{rrd}]}$$

$$E_{rdh_{out}} = \frac{S_n}{2\pi \cdot R_c}$$

Le volume de cette section droite horizontale est

$$V_{rdh} = 2\pi \int_{R_c}^{R_c+E_{rrd}} \frac{D_{sc_0}}{2\pi \cdot V_{sc_0}} r dr = S_n \cdot E_{rrd}$$

La partie courbe du retour de sel combustible est plus complexe. Son épaisseur grandit pour conserver un débit volumique constant. La figure B.2 permet de visualiser le rayon $R_x(x, \theta)$ qui va servir à déterminer l'épaisseur du retour courbe $E_{rc}(\theta)$. On choisit de placer la forme en quart de cercle sur la ligne pointillée ce qui simplifie grandement les calculs mais modifie la forme de la partie courbe inférieure du réflecteur radial qui s'avère ne plus être exactement un arc de cercle.

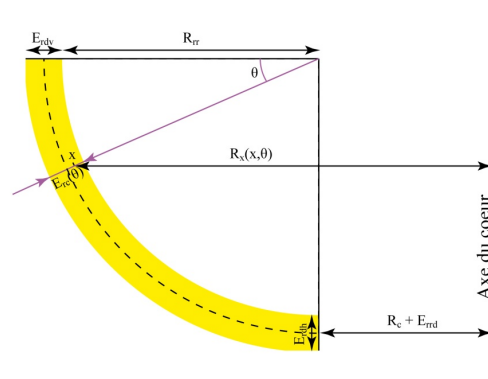


FIGURE B.2 – Définition du rayon $R_x(x, \theta)$ pour la détermination de l'épaisseur du retour de sel combustible

Le rayon $R_x(x, \theta)$ a pour valeur

$$R_x(x, \theta) = \left[R_{rr} + \frac{E_{rdv}}{2} + x \right] \cdot \cos(\theta) + R_c + E_{rrd}$$

À un angle θ donné, on peut déterminer la section de passage S_n du sel combustible par l'expression

$$S_n = 2\pi \int_{-E_{rc}(\theta)/2}^{E_{rc}(\theta)/2} R_x(x, \theta) dx = 2\pi \left[\left[R_{rr} + \frac{E_{rdv}}{2} \right] \cos \theta + R_c + E_{rrd} \right] \cdot E_{rc}(\theta)$$

On a donc

$$E_{rc}(\theta) = \frac{S_n}{2\pi \left[\left[R_{rr} + \frac{E_{rdv}}{2} \right] \cos \theta + R_c + E_{rrd} \right]}$$

Concernant le volume V_{rc} contenu dans cette section, l'élément de volume à intégrer est de la forme $dV_{rc} = S_n \cdot r d\theta$. Puisque cet élément de volume est trapézoïdal, la variable r doit être prise au centre de l'élément de volume, soit $r = R_{rr} + E_{rdv}/2$. Le volume V_{rc} est alors donné par

$$V_{rc} = \frac{\pi}{2} \cdot S_n \cdot \left[R_{rr} + \frac{E_{rdv}}{2} \right]$$

B.3 Liste des paramètres

Le tableau B.1 liste les différents paramètres présentés dans cette annexe avec leur méthode de calcul implémentée dans le code SONGe.

TABLEAU B.1 – Paramètres décrivant la géométrie pour l'optimisation neutronique - thermohydraulique avec le code SONGe

Nom	Équation	Description
D_{sc_0}		Débit volumique nominal de sel combustible
V_{sc_0}		Vitesse maximale pour le sel combustible
S_n	D_{sc_0}/V_{sc_0}	Section de passage nominale du sel combustible
V_c		Volume du cœur
F_c		Rapport de forme du cœur
R_c	$[V_c/(\pi \cdot F_c)]^{1/3}$	Rayon du cœur
H_c	$F_c \cdot R_c$	Hauteur du cœur
R_{pin}		Rayon intérieur de la pompe

Suite à la page suivante

TABLEAU B.1 – Paramètres décrivant la géométrie pour l'optimisation neutronique - thermohydraulique avec le code SONGe (Suite)

R_{pout}		Rayon de sortie de la pompe
H_p	$S_n/[2\pi \cdot R_{pout}]$	Hauteur de la pompe
V_p	$R_{pout} \cdot S_n/2$	Volume de sel combustible contenu dans la pompe
E_{nl}		Épaisseur de sel combustible dans le niveau libre
V_{nl}	$\pi R_{pout}^2 \cdot E_{nl}$	Volume de sel combustible dans le niveau libre
E_{pn}		Épaisseur de la protection neutronique
R_{pn}	$\sqrt{R_c^2 - S_n/\pi}$	Rayon de la protection neutronique
h_{c_o}	$S_n/[2\pi \cdot R_{p_{in}}]$	Hauteur maximum du collecteur vers la pompe
V_{pn}	$S_n[\pi E_{pn} + R_c - R_{p_{in}}/2]$	Volume de sel combustible lié à la protection neutronique
R_{jpe}		Rayon de la jonction entre la pompe et les échangeurs de chaleur
V_{jpe}	$[R_{jpe} - R_{pout}] \cdot S_n$	Volume de sel combustible dans la jonction entre la pompe et les échangeurs de chaleur
E_{jpe}	$S_n/[2\pi R_{jpe}]$	Épaisseur de sel combustible à la jonction entre la pompe et les échangeurs de chaleur
R_{rr}		Rayon de courbure de la section courbe du réflecteur radial
E_{rrd}	$R_{pout} + R_{jpe} - R_c$	Épaisseur de la partie droite du réflecteur radial
E_{rr}	$E_{rrd} + R_{rr}$	Épaisseur du réflecteur radial

Suite à la page suivante

TABLEAU B.1 – Paramètres décrivant la géométrie pour l'optimisation neutronique - thermohydraulique avec le code SONGe (Suite)

H_{rr}	$H_c + E_{pn} + h_{c_0} - \frac{l_t - E_{jpe} + E_{rdh_{in}}}{2}$	Hauteur la plus grande du réflecteur radial
E_t		Épaisseur de sel combustible dans les tubes échangeurs de chaleur
E_m		Épaisseur de matériau composant les tubes échangeurs de chaleur
N_t	$\pi R_{jpe} / [E_t + E_m]$	Nombre de tubes échangeurs de chaleur
l_t	$S_n / [N_t \cdot E_t]$	Largeur des tubes échangeurs de chaleur
L_{td}	$L_{td} \leq H_{rr} - 2E_{rr}$	Longueur droite des tubes échangeurs de chaleur
S_{eu}	$l_t [\pi [2E_{rr} + l_t] + L_{td}]$	Surface unitaire des tubes échangeurs de chaleur
S_e	$2N_t \cdot S_{eu}$	Surface totale d'échange de chaleur
V_t	$S_n \cdot S_{eu} / l_t$	Volume de sel combustible dans les tubes échangeurs de chaleur
L_t	S_{eu} / l_t	Longueur des tubes échangeurs de chaleur
D_t	$2E_t \cdot l_t / [E_t + l_t] \approx 2E_t$	Diamètre hydraulique des tubes échangeurs de chaleur
L_{rdv}	$H_{rr} - 2E_{rr} - L_{td}$	Longueur de la section droite verticale du retour de sel combustible
E_{rdv}	$S_n n / [2\pi [R_c + E_{rr}]]$	Épaisseur de la section droite verticale du retour de sel combustible
V_{rdv}	$L_{rdv} \cdot S_n$	Volume de la section droite verticale du retour de sel combustible

Suite à la page suivante

TABLEAU B.1 – Paramètres décrivant la géométrie pour l’optimisation neutronique - thermohydraulique avec le code SONGe (Suite)

$E_{rdh_{in}}$	$S_n/[2\pi[R_c + E_{rrd}]]$	Épaisseur en entrée de la section droite horizontale du retour de sel combustible
$E_{rdh_{out}}$	$S_n/[2\pi \cdot R_c]$	Épaisseur en sortie de la section droite horizontale du retour de sel combustible
V_{rdhh}	$E_{rd} \cdot S_n$	Volume de la section droite horizontale du retour de sel combustible
V_{rc}	$\pi S_n[R_{rr} + E_{rdv}/2]/2$	Volume de la section courbe du retour de sel combustible



Évolution de composition du réflecteur radial en NiCrW sous flux neutronique à haute énergie

Cette annexe s'intéresse à l'évolution du réflecteur radial en NiCrW, alliage acier utilisé dans les études du MSFR de référence. La forte teneur massique de tungstène, associée à une forte interaction avec les neutrons, conduit à une perte en tungstène importante dans le réflecteur radial, pouvant conduire à sa fragilisation.

Sommaire

C.1	Configuration du réacteur	343
C.2	Évolution du réflecteur radial	344

C.1 Configuration du réacteur

Le réflecteur radial est composé d'acier NiCrW, un alliage principalement composé de nickel, de chrome et de tungstène. La composition utilisée dans l'étude est présentée en tableau C.1 et correspond à l'alliage *Ni-W 10-Cr 10* préparé au cours de la thèse de Rafael Curry [117].

TABLEAU C.1 – Compositions molaire et massique de l'acier NiCrW

Élément	Teneur molaire [%]	Teneur massique [%]
B	3.27E-2	4.99E-3
C	2.94E-1	5.08E-2
Al	5.23E-2	2.00E-2
Si	2.51E-1	1.00E-1
P	2.28E-2	1.00E-2
S	4.40E-3	2.00E-3
Ti	2.95E-1	2.00E-1
Cr	8.01	5.90
Mn	2.57E-1	2.00E-1
Fe	6.32E-1	5.00E-1
Ni	79.4	66.0
Mo	7.36E-1	1.00
W	9.97	26.0

Les configurations choisies pour cette étude sont les teneurs extrêmes en plutonium, à savoir 38.5% et 4%, avec utilisation de plutonium ex-UOX. Le tableau C.2 résume les caractéristiques principales des configurations du réacteur avec réflecteur NiCrW et 316H pour comparaison. Les caractéristiques de simulation sont identiques à celles du chapitre 4 (tableau 4.6).

TABLEAU C.2 – Volumes et puissance thermique des quatre configurations étudiées en évolution

Teneur	Vecteur	Réflecteur	Volume du cœur [m ³]	Rayon du réacteur [cm]	Puissance thermique [MW]
38.5%	UOX	316H	0.08	23.3	12
		Hastelloy N	0.08	30.0	12.7
		NiCrW	0.09	31	13.5

Suite à la page suivante

TABLEAU C.2 – Volumes et puissance thermique des quatre configurations étudiées en évolution (Suite)

Teneur	Vecteur	Réflecteur	Volume du cœur [m ³]	Rayon du réacteur [cm]	Puissance thermique [MW]
4%	UOX	316H	6.76	102.5	1014
		Hastelloy N	8.16	137.5	1224
		NiCrW	8.18	137.6	1226

Les volumes et les rayons critiques sont proches puisque la composition des deux aciers est similaire. La proportion de fission est similaire entre les aciers (Hastelloy N, 316H et NiCrW), comme illustré par la figure C.1. Il est à noter que le volume critique d’une configuration avec réflecteur en NiCrW est un peu plus élevée qu’avec un réflecteur en 316H (+20%) car les éléments constitutants sont plus lourds, amenant à moins de diffusion des neutrons.

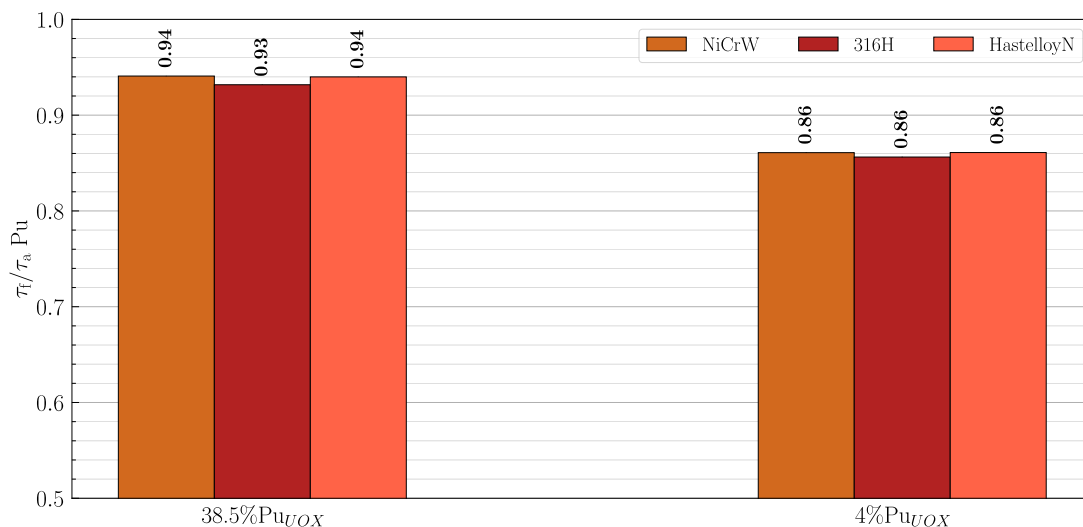


FIGURE C.1 – Proportion de fission du plutonium ex-UOX au démarrage selon le matériau du réflecteur

C.2 Évolution du réflecteur radial

Les réflecteurs ont pour rôle de renvoyer les neutrons vers la zone critique pour limiter les fuites et donc le volume et la masse critiques. Ces interactions ne sont pas neutres pour le réflecteur puisque de l’énergie peut y être déposée ou bien les neutrons

peuvent y rester par captures. La figure C.2 montre l'évolution de la masse du réflecteur radial en NiCrW des configurations 38.5% et 4%, en comparaison avec les configurations utilisant un réflecteur en acier 316H.

On constate une augmentation globale de la masse du réflecteur au fur et à mesure de l'irradiation, puisque des neutrons sont capturés et pas seulement diffusés. Les réflecteurs en NiCrW sont ceux qui vont voir leur masse évoluer le plus, avec une augmentation de $2E-2\%$ (38.5%Pu) et 0.12% (4%Pu) à 50 ans de fonctionnement contre $1E-2\%$ et 0.1% respectivement pour le 316H.

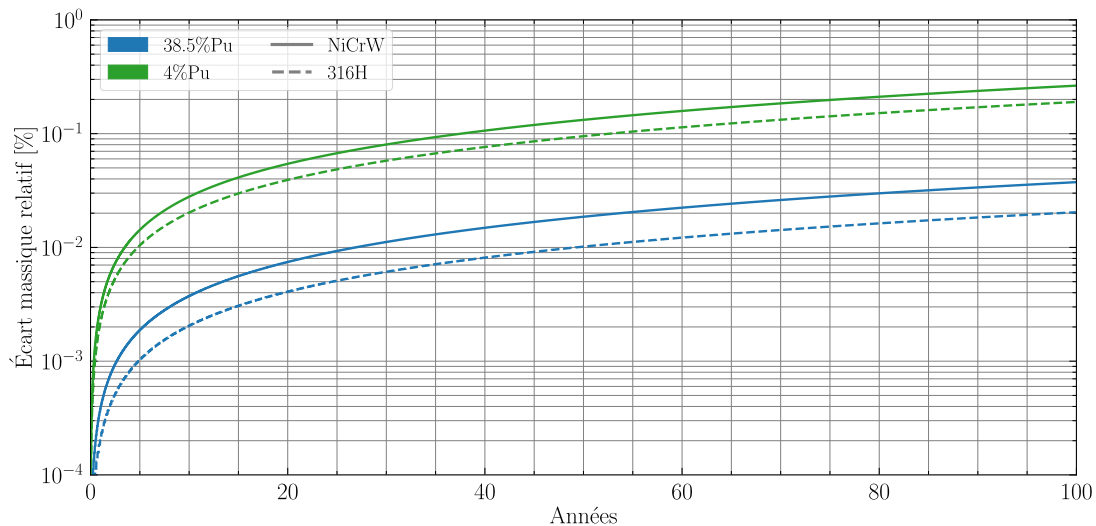


FIGURE C.2 – Évolution relative de la masse du réflecteur radial selon la teneur initiale de plutonium ex-UOX et le matériau du réflecteur

Cette augmentation de la masse du réflecteur radiale est en partie expliquée par les fortes interactions du tungstène avec les neutrons, qui vont être capturés et transformer petit à petit le tungstène présent initialement à hauteur de 26% massique en rhénium puis en osmium. La figure C.3 présente l'évolution de la masse de tungstène dans le réflecteur radial en NiCrW, où cet élément va diminuer de 18% (4%Pu) à 2.9% (38.5%Pu) en 50 ans de fonctionnement.

Ce tungstène va donc se transformer en éléments plus lourds (rhénium et osmium) par captures et décroissances successives. La figure C.4 présente la masse normalisée par la puissance thermique de ces deux éléments dans le réflecteur radial. La production normalisée est plus élevée pour la configuration compacte que pour le réacteur de grand volume. Dans la configuration à 4% de plutonium initial, la quantité de rhénium se stabilise en 40 ans environ à $0.5 \text{ kg/MW}_{\text{th}}$, alors que dans la configuration à 38.5%Pu, aucune stabilisation n'est observée sur les 100 ans de fonctionnement ($1 \text{ kg/MW}_{\text{th}}$ tous les 30 ans). Les productions d'osmium suivent à peu près la même vitesse de production ($0.5 \text{ kg/MW}_{\text{th}}$ tous les 20/25 ans).

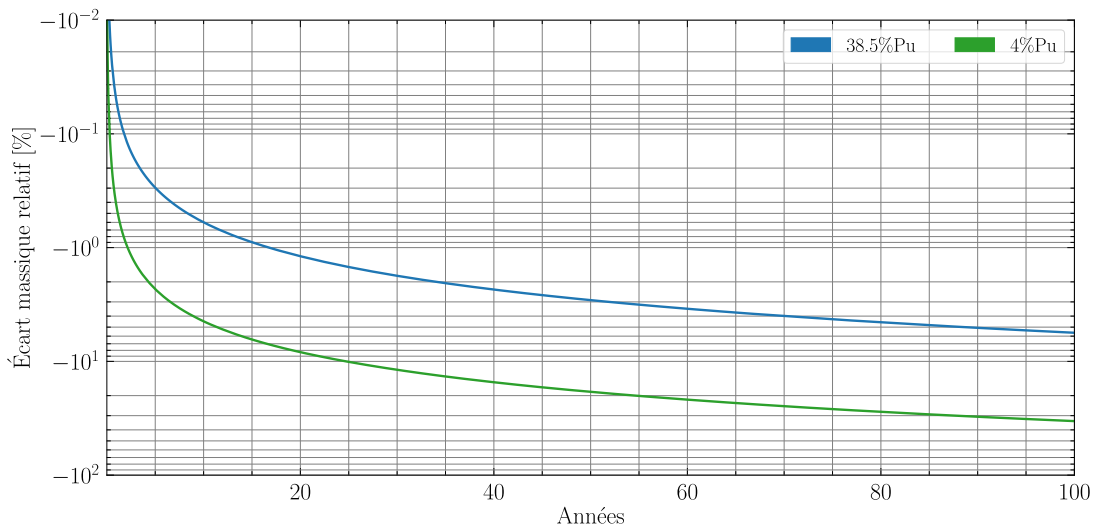


FIGURE C.3 – Évolution relative de la masse de tungstène dans le réflecteur radial selon la teneur initiale de plutonium ex-UOX

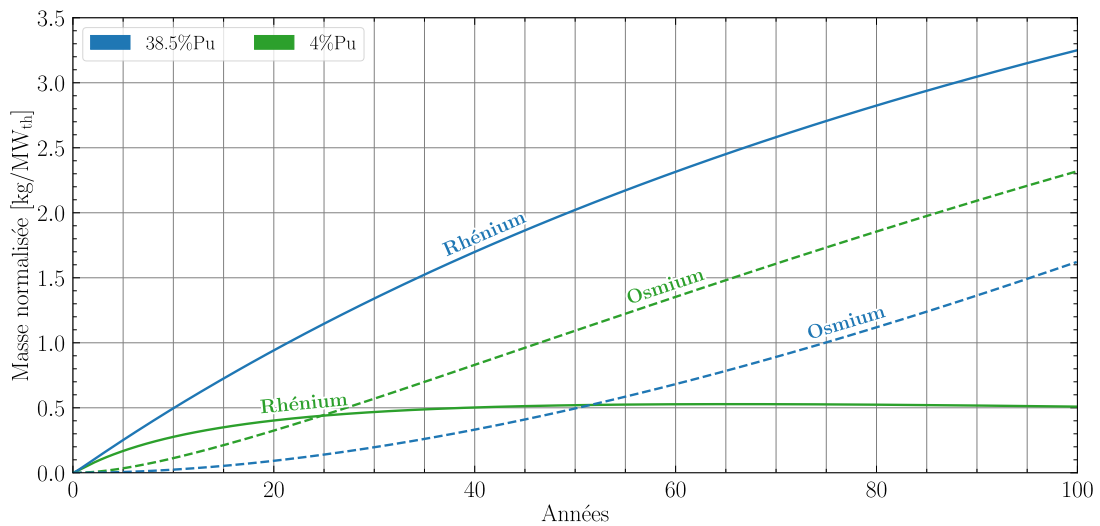


FIGURE C.4 – Évolution de la masse de rhénium et d'osmium dans le réflecteur radial selon la teneur initiale de plutonium ex-UOX

D

Impact du remplacement du graphite par du MgO dans les géométries modifiées pour la consommation des neutrons peu énergiques

Cette annexe compare l'utilisation de MgO et du graphite pour la consommation de neutrons peu énergiques afin de durcir le spectre et limiter les captures radiatives. Les caractéristiques au démarrage sont d'abord présentées, avant d'étudier quelques aspects clefs de l'évolution temporelle, comme le bilan de consommation des transuraniens et des contre-réactions de température.

Sommaire

D.1	Configurations avec le MgO	349
D.2	Caractéristiques au démarrage	349
D.3	Évolution temporelle	351
D.3.1	Évolution de la composition du sel combustible	351
D.3.2	Bilan de consommation	351
D.3.3	Contre-réactions de température	354
D.4	Conclusion	355

D.1 Configurations avec le MgO

Le MgO (communément appelé magnésie) est une céramique résistant aux hautes températures et possédant de très bonnes propriétés mécaniques. La section 4.2.3 a montré que ce matériau possède des propriétés neutroniques proches du graphite, ce qui pourrait en faire une alternative. Les figures D.1 et D.2 rappellent les géométries développées pour la consommation des neutrons thermiques. Les configurations avec du graphite sont appelées GB et GBB, celles avec du MgO sont appelées MgB et MgBB.

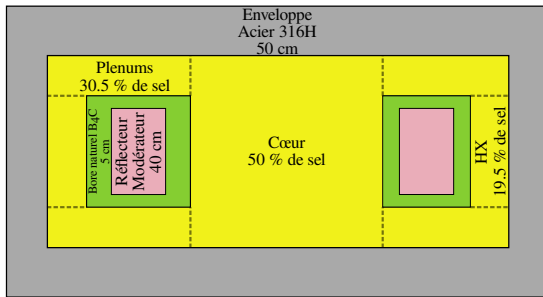


FIGURE D.1 – Vue schématique de la géométrie de la configuration MB [Modérateur + B₄C] : réflecteur radial modérateur (graphite ou MgO) de 40 cm, entouré de 5 cm de B₄C + enveloppe de 50 cm d'acier 316H

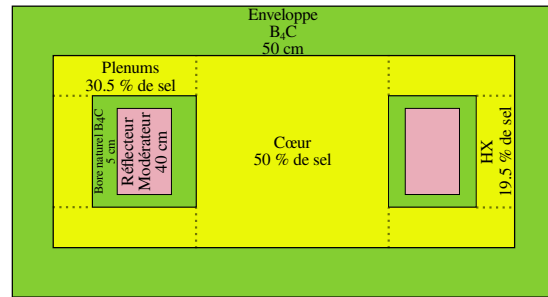


FIGURE D.2 – Vue schématique de la géométrie de la configuration MBB [Modérateur + protection et enveloppe B₄C] : réflecteur radial modérateur (graphite ou MgO) de 40 cm, entouré de 5 cm de B₄C + enveloppe de 50 cm de B₄C

D.2 Caractéristiques au démarrage

La figure D.3 présente les volumes critiques au démarrage des différentes configurations (acier 316H, géométries à réflecteurs graphite ou MgO) pour différentes teneurs et qualités de plutonium. L'utilisation de MgO ou de graphite implique une augmentation du volume critique d'un facteur 2 (MB) à 3 (MBB). Le remplacement du graphite en MgO n'influe donc que très peu sur le volume critique. Le tableau D.1 liste les masses critiques au démarrage.

Annexe D. Impact du remplacement du graphite par du MgO dans les géométries modifiées pour la consommation des neutrons peu énergiques

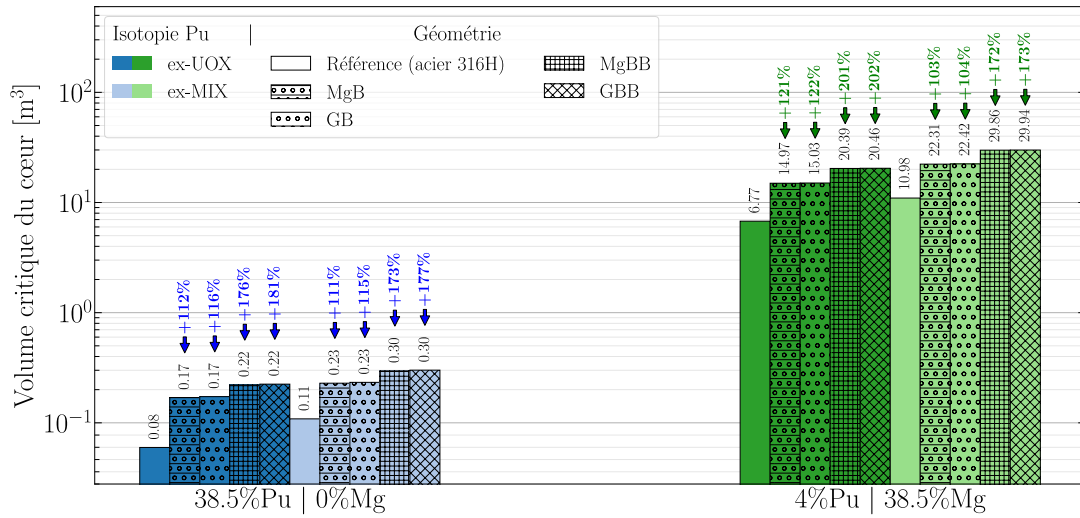


FIGURE D.3 – Volumes critiques au démarrage des différentes configurations avec du graphite et du MgO pour un sel à 38.5% et 4% de Pu_{UOX} et Pu_{MIX}

TABLEAU D.1 – Masse critique de plutonium pour le démarrage selon la configuration de matériaux et l'isotopie du plutonium [kg]

Teneur	Vecteur	m _{Référence}	m _{MgB}	Δm_{MgB} [%]	m _{GB}	Δm_{GB} [%]	m _{MgBB}	Δm_{MgBB} [%]	m _{GGB}	Δm_{GGB} [%]
38.5%	UOX	255.0	540.0	111.8	552.0	116.5	705.0	176.5	717.0	181.2
	MIX	347.0	732.0	111.0	745.0	114.7	946.0	172.6	961.0	176.9
4%	UOX	2794.0	6179.0	121.2	6207.0	122.2	8416.0	201.2	8448.0	202.4
	MIX	4537.0	9221.0	103.2	9267.0	104.3	12341.0	172.0	12378.0	172.8

La figure D.4 compare les spectres neutroniques en cœur au démarrage des différentes configurations avec un sel combustible à 38.5% de Pu_{UOX}. À l'instar des volumes et masses critiques, presque aucune différence n'est visible entre les matériaux de réflecteur radial.

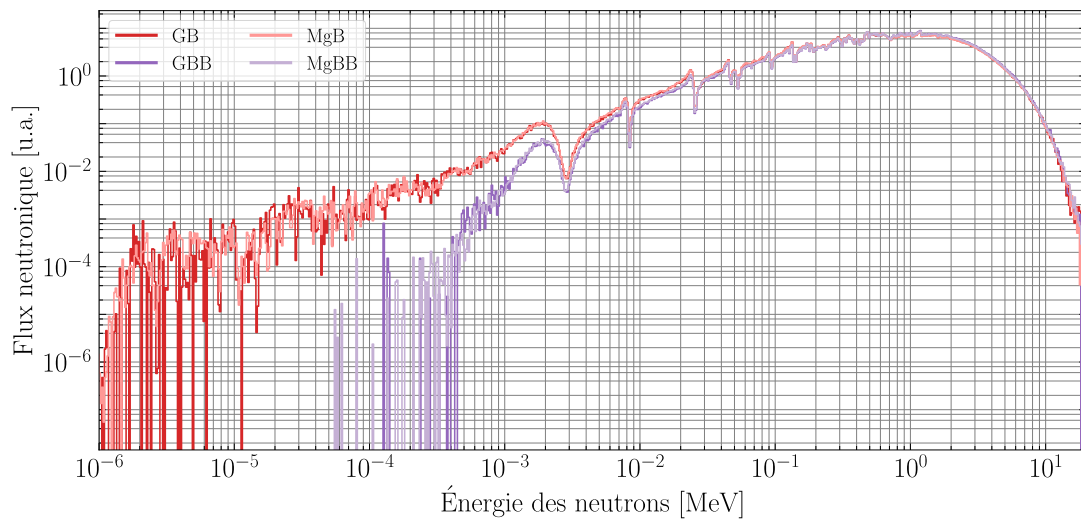


FIGURE D.4 – Spectres neutroniques dans le sel combustible des différentes configurations avec du graphite et du MgO pour un sel à 38.5% de Pu_{UOX}

D.3 Évolution temporelle

D.3.1 Évolution de la composition du sel combustible

L'évolution de la teneur en actinides dans le sel combustible est également peu influencée par le matériau du réflecteur radial choisi (tableau D.2), les écarts sur les teneurs en actinides sont inférieurs au pourcent en relatif.

TABLEAU D.2 – Évolution temporelle de la teneur molaire en actinides pour deux teneurs initiales et deux vecteurs extrêmes de plutonium avec l'évolution relative entre le démarrage et à 50 ans selon la géométrie considérée

Teneur initiale [%]	Isotopie	MgB			GB			MgBB					
		20 ans	50 ans	Δx [%]	20 ans	50 ans	Δx [%]	20 ans	50 ans	Δx [%]	20 ans	50 ans	Δx [%]
38.5	UOX	38.8	39.8	3.5	38.8	39.7	3.2	38.5	39.2	1.9	38.5	39.2	1.8
	MIX	39.7	41.0	6.5	39.7	40.9	6.2	39.3	40.2	4.5	39.3	40.4	4.9
4	UOX	6.5	6.9	73.1	6.5	6.9	72.8	6.3	6.7	66.3	6.3	6.7	67.3
	MIX	7.1	7.3	83.7	7.1	7.3	83.5	7.0	7.2	80.2	7.0	7.2	81.2

D.3.2 Bilan de consommation

On s'intéresse ici au bilan de consommation/production des différents transuraniens d'intérêt lorsque les réacteurs sont alimentés en plutonium ex-MIX. Les figures D.5, D.6, D.7 et D.8 montrent encore une fois l'interchangeabilité du graphite et du MgO.

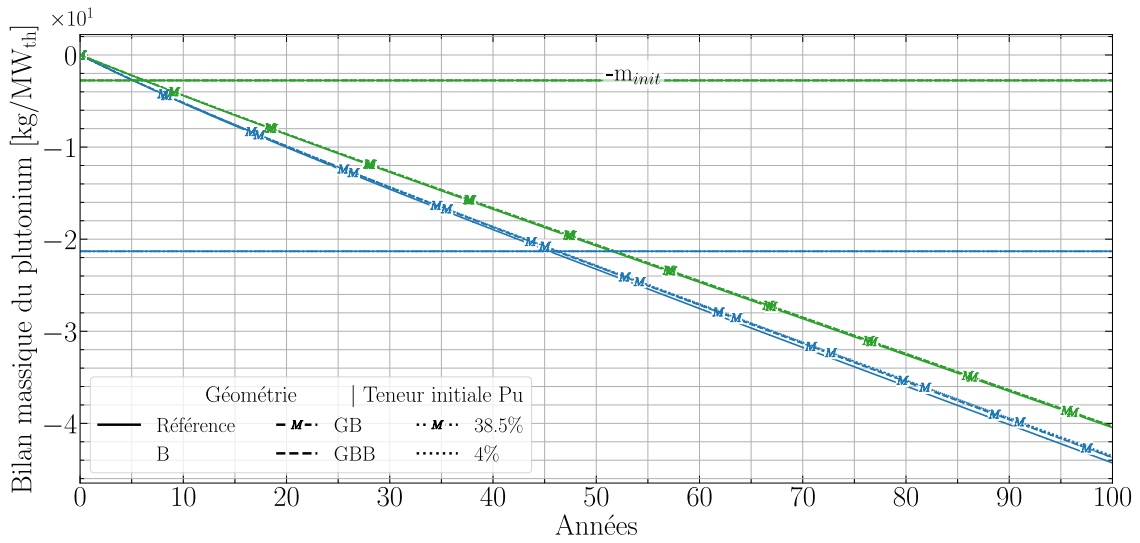


FIGURE D.5 – Bilan de consommation du plutonium normalisé par la puissance thermique pour les vecteurs Pu_{MIX} selon les différentes géométries

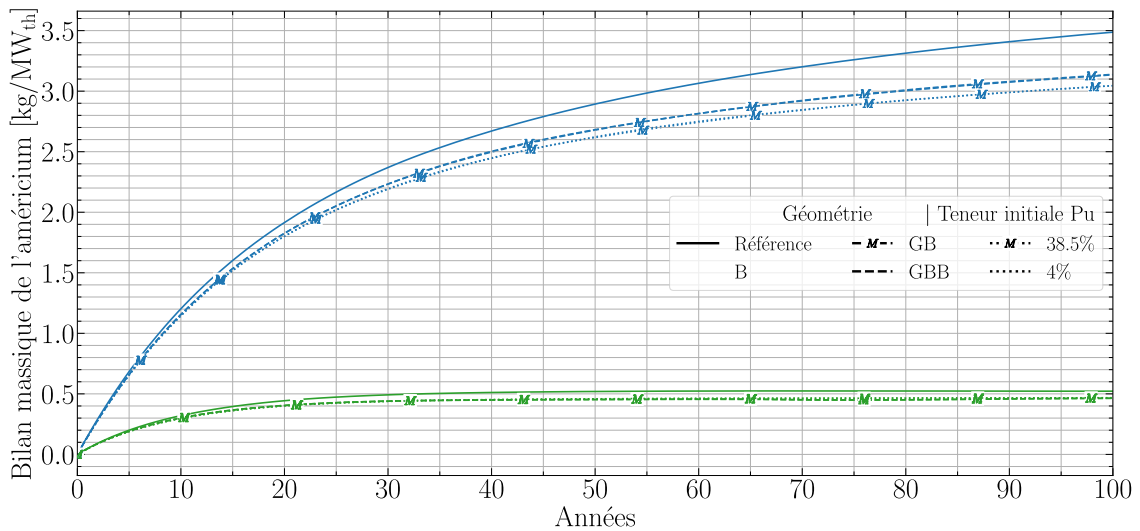


FIGURE D.6 – Bilan de consommation de l'américium normalisé par la puissance thermique pour les vecteurs Pu_{MIX} selon les différentes géométries

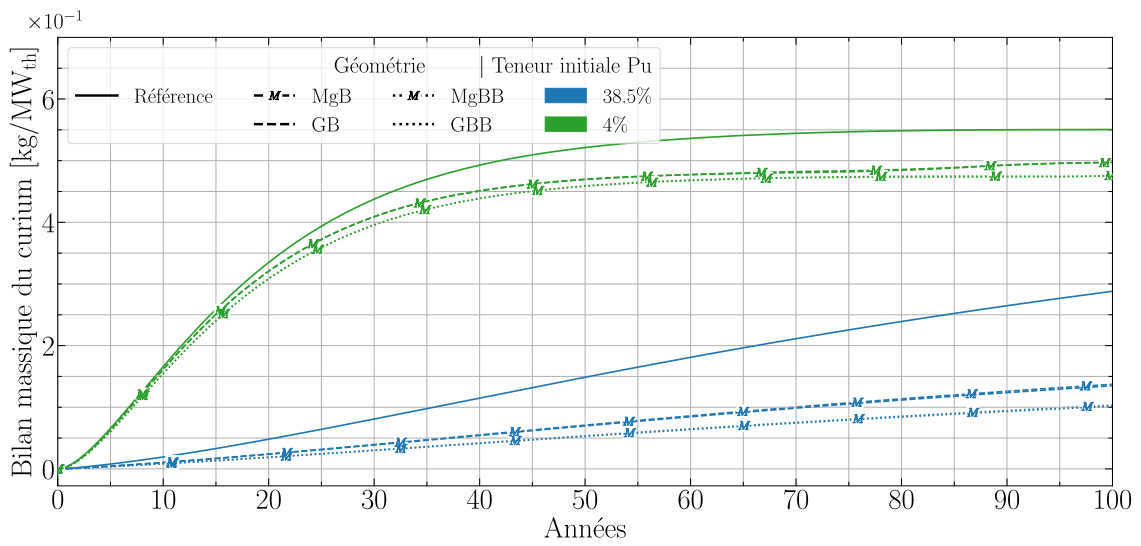


FIGURE D.7 – Bilan de consommation du curium normalisé par la puissance thermique pour les vecteurs Pu_{MIX} selon les différentes géométries

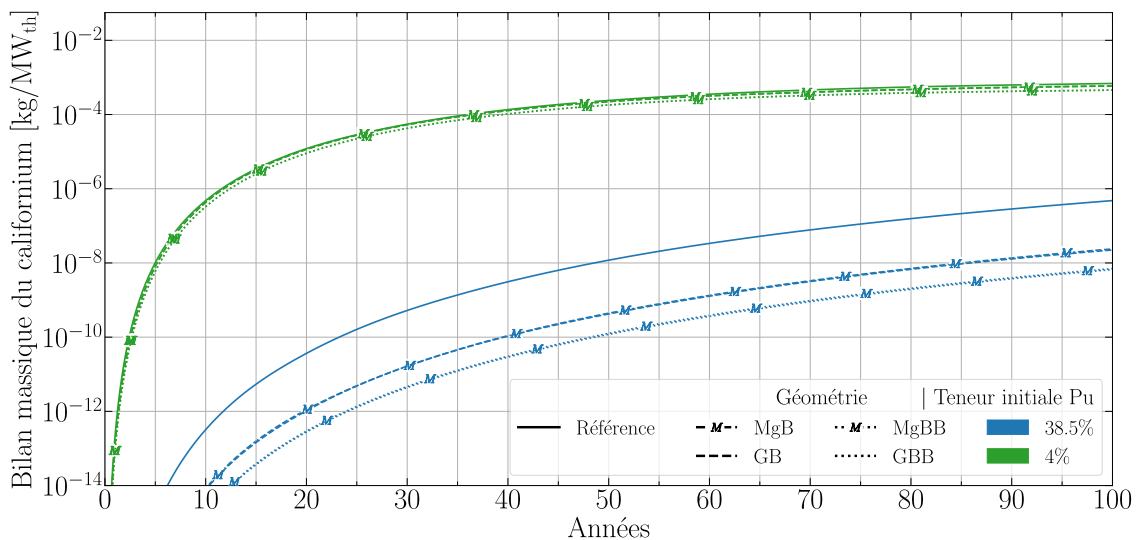


FIGURE D.8 – Bilan de consommation du californium normalisé par la puissance thermique pour les vecteurs Pu_{MIX} selon les différentes géométries

D.3.3 Contre-réactions de température

Les figures D.9 et D.10 comparent l'évolution des coefficients de contre-réactions de température pour les différentes configurations présentées. Au démarrage, les écarts sur le CCR de densité et sur le Doppler ne sont pas significatifs (points contenus dans l'erreur de calcul). Au bout de 50 ans de fonctionnement, la tendance d'évolution des CCR densité et Doppler est la même avec le graphite et le MgO. Ils se dégradent à cause du sel qui devient plus dense et moins transparent aux neutrons (effet de densité). L'effet Doppler se dégrade car la teneur en actinides augmentent et conduit à un spectre plus dur, laissant moins de neutrons dans la gamme d'énergie des résonnances d'absorption.

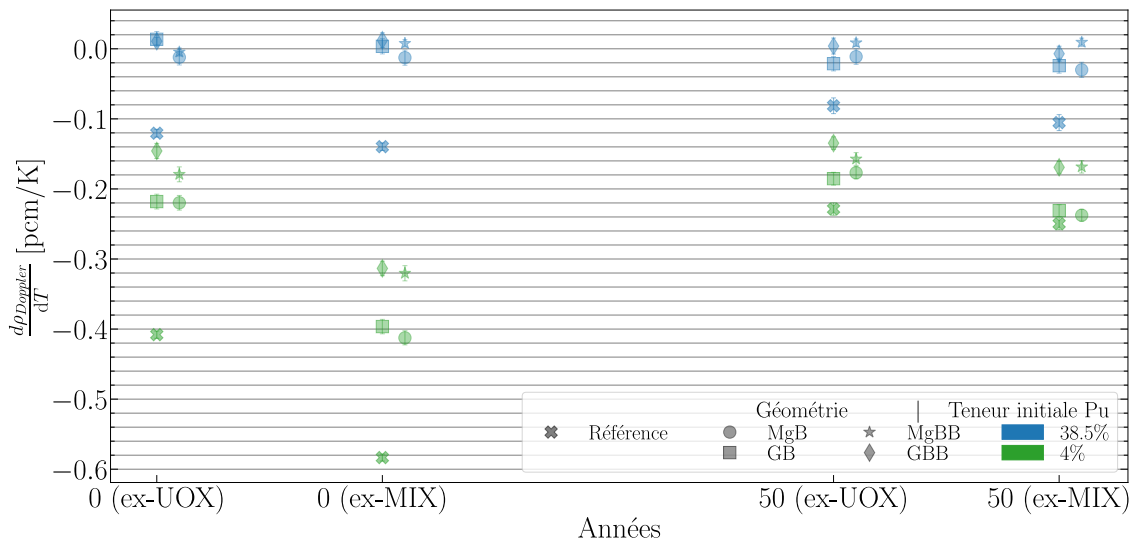


FIGURE D.9 – Estimation des coefficients de contre-réaction Doppler au démarrage et à 50 ans de fonctionnement pour différentes configurations de matériaux

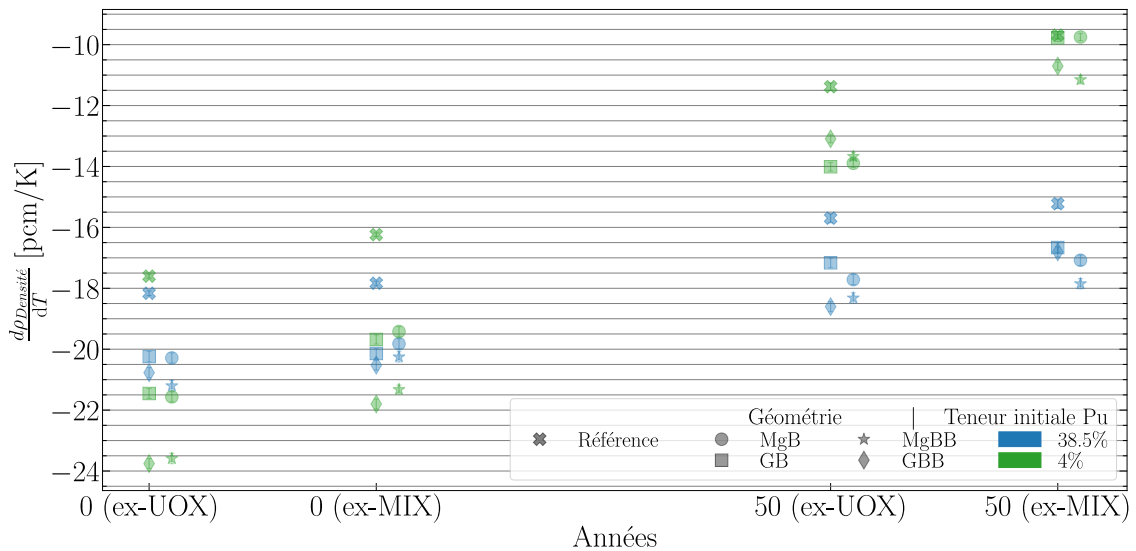


FIGURE D.10 – Estimation des coefficients de contre-réaction de densité au démarrage et à 50 ans de fonctionnement pour différentes configurations de matériaux

D.4 Conclusion

Vis-à-vis des éléments étudiés ici, les designs multicouches pour la consommation hors du sel des neutrons de basse énergie peuvent utiliser indifféremment du graphite ou du MgO, puisqu'aucune différence notable sur les points présentés n'est observée.

Bibliographie

- [1] HORE-LACY, I. *Nuclear Energy in the 21st Century* : World Nuclear University Press. Elsevier, 2010.
- [2] IAEA. *Base de Données PRIS (Power Reactor Information System)*. URL : <https://pris.iaea.org/pris/CountryStatistics/CountryDetails.aspx?current=FR>.
- [3] SERVICE DES DONNÉES ET ÉTUDES STATISTIQUES (SDES) - MINISTÈRE DE LA TRANSITION ÉCOLOGIQUE. *Chiffres Clefs de l'Énergie - Édition 2021*. 2022. URL : <https://www.statistiques.developpement-durable.gouv.fr/edition-numerique/chiffres-cles-energie-2021/11-international> (visité le 13/07/2022).
- [4] RTE. *Bilan Électrique 2021*. Fév. 2022. URL : https://bilan-electrique-2021.rte-france.com/production_nucleaire/# (visité le 02/06/2022).
- [5] GOUVERNEMENT FRANÇAIS. *Article L100-4 - Code de l'Énergie*. Août 2021. URL : https://www.legifrance.gouv.fr/codes/article_lc/LEGIARTI000031063168/2015-08-19/ (visité le 21/07/2022).
- [6] RTE. *Futurs Énergétiques 2050 - Principaux Résultats*. Rapp. tech. Oct. 2021. URL : <https://assets.rte-france.com/prod/public/2021-12/Futurs-Energetiques-2050-principaux-resultats.pdf> (visité le 21/07/2022).
- [7] PIERSON, P. "Increasing Returns, Path Dependence, and the Study of Politics". In : *American Political Science Review* 94.2 (juin 2000), p. 251-267. ISSN : 0003-0554, 1537-5943. DOI : [10.2307/2586011](https://doi.org/10.2307/2586011).
- [8] IRSN. *Baromètre 2022 - La Perception Des Risques et de La Sûreté Par Les Français - Les Graphiques*. Rapp. tech. 2022. URL : <http://barometre.irsnn.fr/graphiques2022/graphiques2022.pdf>.
- [9] POINSSOT, C. "Assessment of the Environmental Footprint of Nuclear Energy Systems. Comparison between Closed and Open Fuel Cycles". In : (2014), p. 13. DOI : [10.1016/j.energy.2014.02.069](https://doi.org/10.1016/j.energy.2014.02.069).
- [10] IPCC. *Annexe III - Technology-specific Cost and Performance Parameters*. Rapp. tech. 2014. URL : https://www.ipcc.ch/site/assets/uploads/2018/02/ipcc_wg3_ar5_annex-iii.pdf.
- [11] GREENPEACE. *Méthodologie de l'électricité Verte*. Rapp. tech. 2018. URL : <https://www.guide-electricite-verte.fr/wp-content/uploads/sites/9/2018/10/Guide-electricite-verte-2018-Methodologie-Greenpeace-France.pdf>.
- [12] MONOD, O. "CheckNews - Selon Greenpeace, Le Nucléaire Émet plus de CO2 Que Le Photovoltaïque : Est-Ce Vrai?" In : (mai 2018). URL : https://www.liberation.fr/checknews/2018/10/05/selon-greenpeace-le-nucleaire-emet-plus-de-co2-que-le-photovoltaique-est-ce-vrai_1682628/.

- [13] NAPY1KENOBI. *Table Des Isotopes Par Type de Désintégration Majoritaire, Convertie Depuis Les Données Du Programme Nucleus*. Mai 2008. URL : https://commons.wikimedia.org/wiki/File:Table_isotopes.svg.
- [14] LAUREAU, A. “Développement de Modèles Neutroniques Pour Le Couplage Thermohydraulique Du MSFR et Le Calcul de Paramètres Cinétiques Effectifs”. Thèse de Doctorat. Université Grenoble Alpes, 2015. URL : <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-01255350>.
- [15] PLOMPEN, A. J. M. et al. “The Joint Evaluated Fission and Fusion Nuclear Data Library, JEFF-3.3”. In : *The European Physical Journal A* 56.7 (juill. 2020), p. 181. ISSN : 1434-6001, 1434-601X. DOI : [10.1140/epja/s10050-020-00141-9](https://doi.org/10.1140/epja/s10050-020-00141-9).
- [16] X-5 MONTE CARLO TEAM. *MCNP - A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5*. LA-UR-03-1987. Los Alamos National Laboratory, avr. 2003.
- [17] LEPPÄNEN, J. et al. “The Serpent Monte Carlo Code : Status, Development and Applications in 2013”. In : *Annals of Nuclear Energy* 82 (août 2015), p. 142-150. ISSN : 03064549. DOI : [10.1016/j.anucene.2014.08.024](https://doi.org/10.1016/j.anucene.2014.08.024).
- [18] IAEA. *CONVENTION COMMUNE SUR LA SURETE DE LA GESTION DU COMBUSTIBLE USE ET SUR LA SURETE DE LA GESTION DES DECHETS RADIOACTIFS*. Déc. 1997. URL : https://www.iaea.org/sites/default/files/infcirc546_fr.pdf.
- [19] IAEA. *Règlement de Transport Des Matières Radioactives - Prescriptions de Sûreté Particulière N°SSR-6*. 2012. URL : http://www-pub.iaea.org/MTCD/Publications/PDF/Pub1570f_web.pdf.
- [20] IAEA. *Classification of Radioactive Waste*. 2009. URL : https://www-pub.iaea.org/MTCD/publications/PDF/Pub1419_web.pdf.
- [21] GOUVERNEMENT FRANÇAIS. *Loi N° 2006-739 Du 28 Juin 2006 de Programme Relative à La Gestion Durable Des Matières et Déchets Radioactifs (1)*. Juin 2006. URL : <https://www.legifrance.gouv.fr/jorf/id/JORFTEXT000000240700> (visité le 10/03/2022).
- [22] GOUVERNEMENT FRANÇAIS. *Article 542.1.1 - Chapitre II : Dispositions Particulières à La Gestion Durable Des Matières et Des Déchets Radioactifs*. Juin 2006. URL : https://www.legifrance.gouv.fr/codes/texte_lc/LEGITEXT000006074220/2022-10-09 (visité le 09/10/2022).
- [23] ANDRA. *Les Essentiels 2022*. 2022. URL : <https://inventaire.andra.fr/les-donnees/les-dechets-radioactifs/dechets-radioactifs-bilan-fin-2020> (visité le 12/07/2022).
- [24] ANDRA. *Déchets Radioactifs : Bilan à Fin 2020*. 2021. URL : <https://inventaire.andra.fr/les-donnees/les-dechets-radioactifs/dechets-radioactifs-bilan-fin-2020> (visité le 10/03/2022).
- [25] ORANO. *L’uranium de Recyclage Pour Produire Une Électricité Bas Carbone*. Oct. 2021. URL : <https://www.orano.group/fr/decodage/l-uranium-de-recyclage-une-matiere-energetique-pour-une-electricite-bas-carbone> (visité le 18/05/2022).
- [26] HCTISN. *Présentation Du « Cycle Du Combustible » Français En 2018*. Rapport. Haut Comité pour la Transparence et l’Information sur la Sécurité Nucléaire, juill. 2018.

-
- [27] PHAM, Q. *Nucléaire : La France Importe-t-Elle de l'uranium de Russie, Comme l'affirme Cécile Duflot ?* Juill. 2022. URL : https://www.francetvinfo.fr/societe/nucleaire/vrai-ou-fake-nucleaire-la-france-importe-t-elle-de-l-uranium-de-russie-comme-l-affirme-cecile-duflot_5398636.html.
- [28] NEA. *Le Cycle Du Combustible Nucléaire*. Développement de l'énergie Nucléaire. Editions de l'OCDE, 2002. ISBN : 92-64-29664-6. URL : <https://www.oecd-nea.org/upload/docs/application/pdf/2020-08/3031-cycle-combustible-nucleaire.pdf>.
- [29] LECOMTE, M. et BONIN, B. *Le Traitement-Recyclage Du Combustible Nucléaire Usé : La Séparation Des Actinides Application à La Gestion Des Déchets*. E-Den, Une Monographie de La Direction de l'énergie Nucléaire. Paris Gif-sur-Yvette : CEA Saclay ; Groupe Moniteur, 2008. ISBN : 978-2-281-11376-1. URL : <https://hal-cea.archives-ouvertes.fr/cea-01153306>.
- [30] IRSN. *Cycle Du Combustible Nucléaire En France, Dossier « Impact Cycle 2016 »*. Rapp. tech. Rapport n°2018-00007. 2018. URL : https://www.irsn.fr/FR/expertise/rapports_gp/Documents/Usines/IRSN_Rapport_GPU_Cycle-2016_25052018v21012020.pdf.
- [31] CEA. *Le Choix Stratégique Du Cycle Fermé*. Juill. 2021. URL : <https://www.cea.fr/Pages/domaines-recherche/energies/energie-nucleaire/dossier-cycle-du-combustible-nucleaire.aspx?Type=Chapitre&numero=1> (visité le 08/11/2022).
- [32] MARTIN, G. et al. "French Scenarios Toward Fast Plutonium Multi-Recycling In PWR". In : *ICAPP*. Charlotte, Etats-Unis, 2018, p. 11. URL : <https://hal-cea.archives-ouvertes.fr/cea-01908271>.
- [33] GUILLET, J.-L., GUÉRIN, Y. et BONIN, B. *Les Combustibles Nucléaires*. E-Den, Une Monographie de La Direction de l'énergie Nucléaire ISBN 978-2-281-11325-9. CEA Saclay ; Groupe Moniteur, juin 2008. URL : <https://hal-cea.archives-ouvertes.fr/cea-01153334>.
- [34] LEMONT, F. et GIROLD, C. *Le Conditionnement Des Déchets Nucléaires*. E-Den, Une Monographie de La Direction de l'énergie Nucléaire. Gif-sur-Yvette Paris : CEA Éd. "Le Moniteur", 2008. ISBN : 978-2-281-11379-2.
- [35] IAEA. *Status and Trends in Spent Fuel and Radioactive Waste Management*. Rapp. tech. W-T-1.14 (Rev. 1). 2022. URL : <https://www.iaea.org/fr/publications/14739/status-and-trends-in-spent-fuel-and-radioactive-waste-management>.
- [36] VASILE, A. et al. "Advanced Fuels for Plutonium Management in Pressurized Water Reactors". In : *Journal of Nuclear Materials* 319 (2003), p. 173-179. ISSN : 0022-3115. DOI : [10.1016/s0022-3115\(03\)00148-x](https://doi.org/10.1016/s0022-3115(03)00148-x).
- [37] COURTIN, F. "Étude de l'incinération Du Plutonium En REP MOX Sur Support d'uranium Enrichi Avec Le Code de Simulation Dynamique Du Cycle CLASS". Thèse de Doctorat. École nationale supérieure Mines-Télécom Atlantique, 2017. URL : <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-01668610>.
- [38] COURTIN, F. et al. "Pu Multi-Recycling Scenarios towards a PWR Fleet for a Stabilization of Spent Fuel Inventories in France". In : *EPJ Nuclear Sciences & Technologies* 7 (2021). Sous la dir. de COURTIN, F. et al., p. 23. ISSN : 2491-9292. DOI : [10/gpz3kb](https://doi.org/10/gpz3kb).
-

- [39] LINDLEY, B. A. et al. "The Effectiveness of Full Actinide Recycle as a Nuclear Waste Management Strategy When Implemented over a Limited Timeframe – Part I : Uranium Fuel Cycle". In : *Progress in Nuclear Energy* 85 (nov. 2015), p. 498-510. ISSN : 01491970. DOI : [10.1016/j.pnucene.2015.07.020](https://doi.org/10.1016/j.pnucene.2015.07.020).
- [40] OECD/NEA WORKING PARTY ON THE PHYSICS OF PLUTONIUM FUELS AND INNOVATIVE FUEL CYCLES (WPPR). *Plutonium Management in the Medium Term*. Rapport ISBN 92-64-02151-5. Nuclear Energy Agency, 2003.
- [41] SICARD, B. et ZAETTA, A. "Gestion Du Plutonium Civil". In : *Techniques de l'ingénieur Cycle du combustible nucléaire : de la mine à la fabrication du combustible* base documentaire : TIB201DUO.ref. article : bn3245 (2004). URL : <https://www.techniques-ingenieur.fr/base-documentaire/energies-th4/cycle-du-combustible-nucleaire-de-la-mine-a-la-fabrication-du-combustible-42201210/gestion-du-plutonium-civil-bn3245/>.
- [42] DUPLESSY, J.-C. et al. *Rapport d'Évaluation N° 12*. Rapport. Commission Nationale d'Évaluation des Recherches et Études Relatives à la Gestion des Matières et des Déchets Radioactifs, juin 2018. URL : https://cne2.fr/telechargements/RAPPORT_CNE2_12_2018.pdf.
- [43] YANG, M. S. et al. "The Status and Prospect of DUPIC Fuel Technology". In : *Nuclear Engineering and Technology* 38.4 (2004).
- [44] GULEVITCH, A. V. et al. "Feasibility Study Of Heterogeneous Transmutations Of Americium In Fast Reactors". In : *Proceedings of Fast Reactor 2022*. 2022.
- [45] HIROOKA, S., YOKOYAMA, K. et KATO, M. "Recent Studies On Fuel Properties And Irradiation Behaviors of Am/Np-Bearing MOX". In : *Proceedings of Fast Reactor 2022*. 2022.
- [46] IGNATIEV, V. V. et al. "Molten Salt Reactor For The Management Of Minor Actinides From VVER 1000/1200 Used Fuel". In : *Proceedings of an International Conference*. Vienne, Autriche : IAEA, 2020.
- [47] PEBBLE BED MODULAR REACTOR (SOC). *Status Report 70*. Rapp. tech. ARIS IAEA, août 2011. URL : <https://aris.iaea.org/pdf/pbmr.pdf>.
- [48] GIF. *Sodium-Cooled Fast Reactor (SFR)*. 2015. URL : https://www.gen-4.org/gif/jcms/c_42152/sodium-cooled-fast-reactor-sfr (visité le 13/07/2022).
- [49] CEA. *Rapport N°4 : Les Réacteurs à Neutrons Rapides de 4ème Génération à Caloporteur Gaz - Le Réacteur Expérimental ALLEGRO - Les Autres Filières à Neutrons Rapides de 4è Génération*. Rapp. tech. 2012. URL : <https://www.cea.fr/multimedia/Documents/publications/rapports/rapport-gestion-durable-matieres-nucleaires/Tome%204.pdf>.
- [50] CEA. *Avancées Des Recherches Sur La Séparation-Transmutation et Le Multirecyclage Du Plutonium Dans Les Réacteurs à Flux de Neutrons Rapides*. Rapport. Juin 2015.
- [51] DEVICTOR, N. *Les Réacteurs Nucléaires de 4ème Génération*. Avr. 2018.
- [52] CHODORGE, S. "Comment Le Gouvernement Justifie l'arrêt Du Projet Nucléaire Astrid". In : *L'Usine Nouvelle* (sept. 2019). URL : <https://www.usinenouvelle.com/article/comment-le-gouvernement-justifie-l-arret-du-projet-nucleaire-astrid.N879365>.

-
- [53] SESONSKE, S. et GLASSTON, A. *Nuclear Reactor Engineering, Reactor Design Basics*. Fourth Edition. T. 1. Chapman & Hall, 1994.
- [54] ANZIEU, P., BONIN, B. et PRADEL, P. *Les Réacteurs Nucléaires à Caloporteur Gaz. E-Den*, Une Monographie de La Direction de l'énergie Nucléaire ISBN 978-2-281-11317-5. CEA Saclay ; Groupe Moniteur, 2006. URL : <https://hal-cea.archives-ouvertes.fr/cea-01151588>.
- [55] BOULY, F. "Étude d'un Module Accélérateur Supraconducteur et de Ses Systèmes de Régulation Pour Le Projet MYRRHA". Thèse de Doctorat. Université Paris Sud - Paris XI, 2011. URL : <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00660392>.
- [56] MORI, Y. et al. "Intense Negative Muon Facility with MERIT Ring for Nuclear Transmutation". In : *Proceedings of the 14th International Conference on Muon Spin Rotation, Relaxation and Resonance (μSR2017)*. 2018. DOI : [10/gpz3j6](https://doi.org/10/gpz3j6).
- [57] GIL, L. "Découvrez Oklo, Le Seul Réacteur Nucléaire Naturel Connu Au Monde Vieux de Deux Milliards d'années". In : *Bulletin de l'AIEA 59.2* (juin 2018). URL : https://www.iaea.org/sites/default/files/publications/magazines/bulletin/bull/bull592_june2018_fr.pdf.
- [58] ANDRA. *L'histoire de La Radioactivité*. URL : <https://www.andra.fr/les-dechets-radioactifs/la-radioactivite/lhistoire-de-la-radioactivite> (visité le 26/07/2022).
- [59] MUSÉE CURIE. *Histoire de La Radioactivité En Quelques Dates*. URL : <https://musee.curie.fr/decouvrir/documentation/histoire-de-la-radioactivite> (visité le 26/07/2022).
- [60] ALLARDICE, C. et TRAPNEL, E. R. "La Première Pile". In : *Bulletin de l'AIEA* (1946). URL : https://www.iaea.org/sites/default/files/04005004147su_fr.pdf.
- [61] GOLDSCHMIDT, B. "L'été 1942 à Chicago". In : *Bulletin de l'AIEA 24.4* (déc. 1982). URL : https://www.iaea.org/sites/default/files/24404780306_fr.pdf.
- [62] CEA. *La Pile Zoé*. Jan. 2019. URL : <https://fontenay-aux-roses.cea.fr/far/Pages/Le-centre/La-pile-Zoe.aspx> (visité le 06/02/2022).
- [63] RADIO CANADA. *150 Ans de Science Au Canada : 1945 – L'émergence d'une Industrie Nucléaire*. Mars 2017. URL : <https://ici.radio-canada.ca/ohdio/premiere/emissions/les-annees-lumiere/segments/entrevue/18721/zeep-nucleaire-reacteur-marleau>.
- [64] SUBLETTE, C. *The World's Oldest Operating Reactor : The Russian F-1*. URL : <http://nuclearweaponarchive.org/Russia/Russreac.html> (visité le 27/07/2022).
- [65] THORNTON, G. et ROTHSTEIN, A. J. *Comprehensive Technical Report, General Electric Direct-Air-Cycle Aircraft Nuclear Propulsion Program, Program Summary and References*. Rapp. tech. APEX-901. 1962. URL : <https://www.osti.gov/servlets/purl/1048124>.
- [66] COMASSAR, S. *Aircraft Nuclear Propulsion Application Studies. Comprehensive Technical Report, General Electric Direct-Air-Cycle, Aircraft Nuclear Propulsion Program*. APEX910. Atomic Energy Commission, 1962. URL : <https://ntrl.ntis.gov/NTRL/dashboard/searchResults/titleDetail/APEX910.xhtml>.
- [67] WAID, J. *History in Two : Manned Nuclear Aircraft Program*. Juin 2021. URL : <https://www.afmc.af.mil/News/Article-Display/Article/2664365/history-in-two-manned-nuclear-aircraft-program/>.
-

- [68] BETTIS, E. S. et al. “The Aircraft Reactor Experiment-Design and Construction”. In : *Nuclear Science and Engineering* 2.6 (1957), p. 804-825. DOI : [10/ggmhtp](https://doi.org/10.13182/NT70-A28619).
- [69] BETTIS, E. S. et al. “The Aircraft Reactor Experiment-Operation”. In : *Nuclear Science and Engineering* 2.6 (1957), p. 841-853. DOI : [10/gpz3kf](https://doi.org/10.13182/NT70-A28619).
- [70] *Evaluation of the Molten Salt Breeder Reactor*. Rapp. tech. ORNL, 1972. URL : <https://doi.org/10.2172/4372873>.
- [71] IAEA. *Status of Molten Salt Reactor Technology*. 2021. URL : https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/52/090/52090830.pdf?r=1.
- [72] ROSENTHAL, M. W., KASTEN, P. R. et BRIGGS, R. B. “Molten-Salt Reactors—History, Status, and Potential”. In : *Nuclear Applications and Technology* 8.2 (1970), p. 107-117. DOI : [10.13182/NT70-A28619](https://doi.org/10.13182/NT70-A28619).
- [73] FORSBERG, C. *Molten Salt Reactor Experience Applicable to LS-VHTR Refueling*. Germantown, Maryland, États-unis, avr. 2006. URL : <https://technicalreports.ornl.gov/cppr/y2001/pres/124832.pdf>.
- [74] NUTTIN, A., HEUER, D. et BILLEBAUD, A. “Potential of Thorium Molten Salt Reactors, Detailed Calculations and Concept Evolution with a View to Large Scale Energy Production”. In : *Progress in Nuclear Energy* 46.1 (2005), p. 77-99. ISSN : 0149-1970. DOI : [10.1016/j.pnucene.2004.11.001](https://doi.org/10.1016/j.pnucene.2004.11.001).
- [75] MATHIEU, L. et al. “The Thorium Molten Salt Reactor : Moving on from the MSBR”. In : *Progress in Nuclear Energy* 48.7 (2006), p. 664-679. DOI : [10/b5vr3r](https://doi.org/10.1016/j.pnucene.2006.07.001).
- [76] MERLE-LUCOTTE, E. “Le Cycle Thorium En Réacteurs à Sels Fondus Peut-Il Être Une Solution Au Problème Énergétique Du XXI^e Siècle ? Le Concept de TMSR-NM”. Habilitation à Diriger Les Recherches (HDR). Grenoble INP / École Nationale Supérieure de Physique de Grenoble, 2008.
- [77] VERGNES, J. et LECARPENTIER, D. “The AMSTER Concept (Actinides Molten Salt transmUTER)”. In : *Nuclear Engineering and Design* 216.1-3 (juill. 2002), p. 43-67. ISSN : 00295493. DOI : [10.1016/S0029-5493\(02\)00026-2](https://doi.org/10.1016/S0029-5493(02)00026-2).
- [78] MOUROGOV, A. et BOKOV, P. “Potentialities of the Fast Spectrum Molten Salt Reactor Concept : REBUS-3700”. In : *Energy conversion and management* 47.17 (2006), p. 2761-2771. DOI : [10.1016/j.enconman.2006.02.013](https://doi.org/10.1016/j.enconman.2006.02.013).
- [79] GIF. *Generation IV Goals*. 2013. URL : https://www.gen-4.org/gif/jcms/c_40472/technology-goals (visité le 27/04/2022).
- [80] FORSBERG, C. W. et al. “Liquid Salt Applications and Molten Salt Reactors”. In : *Revue Générale Nucléaire* 4 (juill. 2007), p. 63-71. ISSN : 0335-5004. DOI : [10.1051/rgn/20074063](https://doi.org/10.1051/rgn/20074063).
- [81] IGNATIEV, V. *Historical MSR Programme in Russia*. Lecco, Italy, juill. 2017. URL : <http://samofar.eu/wp-content/uploads/2017/07/Victor-Ignatiev-MSR-history-in-Russia.pdf>.
- [82] TAUBE, M. et HEER, W. *Reactor with Very Low Fission Product Inventory*. Rapp. tech. EIR-411. Eidgenoessisches Inst. fuer Reaktorforschung, Wuerenlingen (Switzerland), juill. 1980. URL : https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/14/802/14802902.pdf?r=1.

-
- [83] FURUKAWA, K. et al. "A Road Map for the Realization of Global-Scale Thorium Breeding Fuel Cycle by Single Molten-Fluoride Flow". In : *Energy Conversion and Management* 49.7 (2008), p. 1832-1848. DOI : [10.1016/j.enconman.2007.09.027](https://doi.org/10.1016/j.enconman.2007.09.027).
- [84] LIU, Y. et al. "Criticality Properties and Control Rod Worth of the Critical Experiment Device for MSR Research". In : *Nuclear Technology* 204.2 (nov. 2018), p. 203-212. ISSN : 0029-5450, 1943-7471. DOI : [10.1080/00295450.2018.1474703](https://doi.org/10.1080/00295450.2018.1474703).
- [85] CEA et al. *Dossier De Candidature - Investissements D'avenir Solutions Innovantes Pour La Gestion Des Matieres Et Dechets Radioactifs, Et La Recherche D'alternatives Au Stockage Geologique Profond - Isac Innovative System for Actinides Conversion*. Nov. 2021.
- [86] PASCAL, V. et SERP, J. *Les Combustibles Pour La Transmutation - Les Combustibles Liquides*. Déc. 2021.
- [87] PITOIS, H. et al. "A Closed Fuel Cycle Option Using the MSFR Concept with Chloride Salts and the U/Pu Cycle". In : *GLOBAL 2022*. Reims, France, 2022.
- [88] DEPARTEMENT OF ENERGY (GOUVERNEMENT AMÉRICAIN). *INFOGRAPHIC : Advanced Reactor Development*. Déc. 2020. URL : <https://www.energy.gov/ne/articles/infographic-advanced-reactor-development> (visité le 08/04/2022).
- [89] CNL. *Le Premier PRM Du Canada*. URL : <https://www.cnl.ca/energie-propre/petits-reacteurs-modulaires/le-premier-prm-du-canada/?lang=fr> (visité le 08/08/2022).
- [90] DAI, Z. "Thorium Molten Salt Reactor Nuclear Energy System (TMSR)". In : *Molten Salt Reactors and Thorium Energy*. Elsevier, 2017, p. 531-540. ISBN : 978-0-08-101126-3. DOI : [10.1016/B978-0-08-101126-3.00017-8](https://doi.org/10.1016/B978-0-08-101126-3.00017-8).
- [91] VIJAYAN, P. K. et al. "Conceptual Design of Indian Molten Salt Breeder Reactor". In : *Pramana* 85.3 (sept. 2015), p. 539-554. ISSN : 0304-4289, 0973-7111. DOI : [10.1007/s12043-015-1070-0](https://doi.org/10.1007/s12043-015-1070-0).
- [92] FORSBERG, C. W., BOX, P. O. et PETERSON, P. F. "The Advanced High-Temperature Reactor (AHTR) for Producing Hydrogen to Manufacture Liquid Fuels". In : *Americas Nuclear Energy Symposium (ANES 2004)*. Miami, FL , États-Unis, oct. 2004, p. 13. URL : <https://www.osti.gov/biblio/840501>.
- [93] LIOU, J. *What Are Small Modular Reactors (SMRs) ?* Nov. 2021. URL : <https://www.iaea.org/newscenter/news/what-are-small-modular-reactors-smrs> (visité le 22/08/2022).
- [94] EDF. *NUWARD™, Le SMR Développé Par EDF Pour Un Monde Bas-Carbone*. URL : <https://www.edf.fr/groupe-edf/produire-une-energie-respectueuse-du-climat/lenergie-nucleaire/nous-preparons-le-nucleaire-de-demain/le-projet-smr-nuwardtm/le-projet> (visité le 02/08/2022).
- [95] IAEA. *Base de Données ARIS (Advanced Reactors Information System)*. URL : <https://aris.iaea.org/>.
- [96] HOLCOMB, D. et al. *Molten Salt Reactor Fundamental Safety Function PIRT*. Rapp. tech. ORNL/TM-2021/2176, 1824962. Sept. 2021, ORNL/TM-2021/2176, 1824962. DOI : [10.2172/1824962](https://doi.org/10.2172/1824962).
- [97] ALLIBERT, M. et al. *MSR : Rapport Scientifique des Journées des 22-23 mars 2018*. Rapp. tech. DEN/DANS/DM2S/DIR/AU/2018-62842. Massy, France, 2018, p. 88.
-

- [98] SCOTT, I. *Stable Salt Reactors - A New Platform Technology in Nuclear Fission*. En ligne, oct. 2020. URL : https://msrworkshop.ornl.gov/wp-content/uploads/2020/11/24_Scott_Moltex_SSR_ORNL1.pdf.
- [99] BFM BUSINESS. *Jean-Luc Alexandre (NAAREA) : NAAREA, La Start-up Qui Veut Renouveler Le Nucléaire Français*. Déc. 2021. URL : <https://www.youtube.com/watch?v=fgZcAKzbxIE>.
- [100] ORANO. *Contribution Orano Au Débat Public Sur Le Plan National de Gestion Des Matières et Déchets Radioactifs*. Rapp. tech. 2019. URL : <https://pngmdr.debatpublic.fr/images/contributions/contribution-15-orano.pdf>.
- [101] BJORKLUND, C. W. et al. "Phase Equilibria in the Binary Systems PuCl₃-NaCl and PuCl₃-LiCl". In : *The Journal of Physical Chemistry* 63.10 (1959), p. 1774-1777. DOI : [10/fh6rfj](https://doi.org/10/fh6rfj).
- [102] BENEŠ, O. et KONINGS, R. J. M. "Thermodynamic Evaluation of the NaCl-MgCl₂-UCl₃-PuCl₃ System". In : *Journal of Nuclear Materials* 375.202-208 (2008). DOI : [10/b3mx2s](https://doi.org/10/b3mx2s).
- [103] VIDAL, J.-M. et al. "CESAR5. 3 : An Industrial Tool for Nuclear Fuel and Waste Characterization with Associated Qualification". In : *WM2012 Conference*. 2012. URL : <http://archive.wmsym.org/2012/papers/12067.pdf>.
- [104] TILLARD, L. et al. "Estimation of the Vitrified Canister Production for PWR Fleets Integrating MSRs with Different Fuel Cycle Strategies". In : *GLOBAL 2022*. Reims, France, 2022.
- [105] HEUER, D. et al. "Simulation Tools and New Developments of the Molten Salt Fast Reactor". In : *Revue Générale Nucléaire* 6 (2010), p. 95-100. DOI : [10/gpz3kd](https://doi.org/10/gpz3kd).
- [106] DOLIGEZ, X. "Fuel Salt Reprocessing Influence on the MSFR Behavior and on Its Associated Reprocessing Unit". Thèse de Doctorat. Institut National Polytechnique de Grenoble - INPG, oct. 2010. URL : <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00553238>.
- [107] BROVCHENKO, M. et al. "Neutronic Benchmark of the Molten Salt Fast Reactor in the Frame of the EVOL and MARS Collaborative Projects". In : *EPJ Nuclear Sci. Technol.* 5 (2019), p. 2. DOI : [10/gndfsc](https://doi.org/10/gndfsc).
- [108] IRSN. *Avis IRSN 2019-00238 Du 21 Octobre 2019 - Déchets - Demande d'accord de Conditionnement d'Orano Selon La Spécification de Production de Colis Standard de Déchets Vitriifiés (CSD-V) En Pot de Fusion DIRP SP 16-00258*. Avis 2019-00238. 2019. URL : <https://www.irsn.fr/FR/expertise/avis/2019/Documents/octobre/Avis-IRSN-2019-00238.pdf> (visité le 14/10/2021).
- [109] TILLARD, L. et al. "Estimation of the Vitrified Canister Production for a PWR Fleet with the CLASS Code". In : *EPJ Nuclear Sciences & Technologies* 7 (2021). Sous la dir. de COURTIN, F. et al., p. 21. ISSN : 2491-9292. DOI : [10.1051/epjn/2021020](https://doi.org/10.1051/epjn/2021020).
- [110] TONG, L., HOU, L. et CAO, X. "Analysis of the Flow Distribution and Mixing Characteristics in the Reactor Pressure Vessel". In : *Nuclear Engineering and Technology* 53.1 (jan. 2021), p. 93-102. ISSN : 17385733. DOI : [10.1016/j.net.2020.07.002](https://doi.org/10.1016/j.net.2020.07.002).
- [111] ATLAS STEELS. *Grade Data Sheet - 316 316L 316H*. 2011. URL : https://www.atlassteels.com.au/documents/Atlas_Grade_datasheet_316_rev_Jan_2011.pdf.

-
- [112] HEUER, D. et MERLE, E. *Programmes de Simulation Du Déploiement de l'électro-Nucléaire Dans l'environnement DALI : Module Scénarios Du Futur*. Note Interne. 2004.
- [113] CLOT, L. *Étude Des Contraintes Inhérentes Au Déploiement Massif de Réacteurs à Sels Fondus*. Rapport de Master 2, Grenoble-INP PHELMA. LPSC, 2021.
- [114] COQUELET-PASCAL, C. et al. "COSI6 : A Tool for Nuclear Transition Scenario Studies and Application to SFR Deployment Scenarios with Minor Actinide Transmutation". In : *Nuclear Technology* 192.2 (nov. 2015), p. 91-110. ISSN : 0029-5450, 1943-7471. DOI : [10.13182/NT15-20](https://doi.org/10.13182/NT15-20).
- [115] MOUGINOT, B. et al. *Core Library for Advanced Scenario Simulation, C.L.A.S.S. : Principle & Application*. International Conference "The Role of Reactor Physics toward a Sustainable Future" (PHYSOR 2014). Sept. 2014. URL : <http://hal.in2p3.fr/in2p3-01119778>.
- [116] MASSARA, S. et al. "Fast Breeder Reactor Scenarios of Nuclear Energy Evolution Over the World Scale". In : *The Proceedings of the 15th International Conference on Nuclear Engineering (ICONE)*. T. 2007.15. 2007, _ICONE1510-_ICONE1510. DOI : [10.1299/jsmeicone.2007.15._ICONE1510_131](https://doi.org/10.1299/jsmeicone.2007.15._ICONE1510_131).
- [117] CURY, R. "Étude Métallurgique Des Alliages Ni-W Et Ni-W-Cr : Relation Entre Ordre à Courte Distance et Durcissement". Thèse de doct. Université Paris-XII Val-de-Marne, 2007.
- [118] JU, K. et KIM, Y. "A Comparative Investigation of Doppler Broadening of Neutron Absorption and Photon- Induced Nuclear Resonance Fluorescence Reactions". In : *Transactions of the Korean Nuclear Society Autumn Meeting*. Gyeongju, Korea, oct. 2017, p. 4. URL : https://www.kns.org/files/pre_paper/38/17A-432%EC%A3%BC%EA%B4%91%ED%98%B8.pdf.
- [119] MARTIN, R. et al. "Mesure des vitesses hypersonores dans les sels fondus (KCl et NaCl). Application au calcul des grandeurs thermodynamiques". In : *Revue de Physique Appliquée* 13.3 (1978), p. 99-105. ISSN : 0035-1687. DOI : [10.1051/rphysap:0197800130309900](https://doi.org/10.1051/rphysap:0197800130309900).
- [120] NORGETT, M., ROBINSON, M. et TORRENS, I. "A Proposed Method of Calculating Displacement Dose Rates". In : *Nuclear Engineering and Design* 33.1 (août 1975), p. 50-54. ISSN : 00295493. DOI : [10.1016/0029-5493\(75\)90035-7](https://doi.org/10.1016/0029-5493(75)90035-7).
- [121] NORDLUND, K. et al. "Improving Atomic Displacement and Replacement Calculations with Physically Realistic Damage Models". In : *Nature Communications* 9.1 (déc. 2018), p. 1084. ISSN : 2041-1723. DOI : [10.1038/s41467-018-03415-5](https://doi.org/10.1038/s41467-018-03415-5).
- [122] VUIART, R. "Analyse du vieillissement sous irradiation neutronique des cuves des réacteurs nucléaires à eau sous pression". Thèse de doct. Université Paris-Saclay, 2021. URL : <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-03611356>.
- [123] MÉPLAN, O. *MURE 2 : SMURE, Serpent-MCNP Utility for Reactor Evolution User Guide*. 2021. URL : <http://lpsc.in2p3.fr/MURE/html/SMURE/UserGuide/UserGuide.html>.
- [124] VENARD, J. T. *Tensile and Creep Properties of INOR-8 - The Molten Salt Reactor Experiment*. Rapp. tech. TM-1017. ORNL, fév. 1965. URL : <http://www.thmfgrcs.com/ORNL-TM-1017.pdf>.
-

- [125] ULLMAIER, H. “3.2.1 (n,Alpha)-Reactions”. In : *Atomic Defects in Metals*. Sous la dir. d'ULLMAIER, H. T. 25. Berlin/Heidelberg : Springer-Verlag, 1991, p. 385-386. ISBN : 978-3-540-51435-0. DOI : [10.1007/10011948_109](https://doi.org/10.1007/10011948_109).
- [126] SCHROEDER, H. “High Temperature Embrittlement of Metals by Helium”. In : *Radiation Effects* 78.1-4 (jan. 1983), p. 297-314. ISSN : 0033-7579. DOI : [10.1080/00337578308207379](https://doi.org/10.1080/00337578308207379).
- [127] CEA, éd. *Les matériaux du nucléaire : modélisation et simulation des matériaux de structure*. E-den. Paris Gif-sur-Yvette : Éditions “Le Moniteur” CEA, 2016. ISBN : 978-2-281-14002-6.
- [128] HEUER, D. et al. “A Starting Procedure for the Msfr : Approach to Criticality and Incident Analysis”. In : *ICAPP 2017*. Fukui et Kyoto, Japon, 2017, p. 10. URL : https://lpsc.in2p3.fr/images/ActivitesScientifiques/Physique_des_Reacteurs/PDF/ICAPP2017_MSFRstartingProcedure.pdf.
- [129] GOSSET, D. et HERTER, P. “Matériaux absorbants neutroniques pour le pilotage des réacteurs”. In : *Génie nucléaire* (jan. 2007). DOI : [10.51257/a-v1-bn3720](https://doi.org/10.51257/a-v1-bn3720).
- [130] CEA. *Clefs CEA N°46 - Les Recherches Pour La Gestion Des Déchets Nucléaires*. 2002. URL : <https://www.cea.fr/multimedia/Documents/publications/clefs-cea/archives/fr/05-radionucleide.pdf>.
- [131] CEA, DIRECTION DE L'ÉNERGIE NUCLÉAIRE. *Séparation Transmutation Des Éléments Radioactifs à Vie Longue*. Rapp. tech. 2. Déc. 2012. URL : <https://www.cea.fr/multimedia/Documents/publications/rapports/rapport-gestion-durable-matieres-nucleaires/Tome%202.pdf>.
- [132] HARBOUR, R. M., MACMURDO, K. W. et McCROSSON, F. J. “Thermal-Neutron Capture Cross Sections and Capture Resonance Integrals of Americium-241”. In : *Nuclear Science and Engineering* 50.4 (avr. 1973), p. 364-369. ISSN : 0029-5639, 1943-748X. DOI : [10.13182/NSE73-A26571](https://doi.org/10.13182/NSE73-A26571).
- [133] WU, J. et al. “The Influence of NaCl Concentration on the (LiCl-KCl) Eutectic System and Temperature Dependence of the Ternary System”. In : *Journal of Molecular Liquids* 253 (2018), p. 96-112. ISSN : 0167-7322. DOI : [10.1016/j.molliq.2017.11.068](https://doi.org/10.1016/j.molliq.2017.11.068).
- [134] PERECK, S. *Rayons Ioniques*. URL : <https://www.elementschimiques.fr/?fr/proprietes/chimiques/rayon-ionique> (visité le 16/06/2022).
- [135] JANZ, G. J. et al. “Molten Salts : Volume 4, Part 2, Chlorides and Mixtures— Electrical Conductance, Density, Viscosity, and Surface Tension Data”. In : *Journal of Physical and Chemical Reference Data* 4.871 (1975).
- [136] FELLNER, P., VOTAVA, I. et CHRENKOVA-PAUCIROVA, M. “Density of the Molten System LiCl—NaCl—KCl”. In : *Chemical Papers* 34.3 (1980), p. 330-334.
- [137] CHARTRAND, P. et PELTON, A. D. “Thermodynamic Evaluation and Optimization of the LiCl-NaCl-KCl-RbCl-CsCl-MgCl₂-CaCl₂ System Using the Modified Quasi-chemical Model”. In : *Metallurgical and Materials transactions A* 32.6 (2001), p. 1361-1383.

- [138] GHERIBI, A. E., TORRES, J. A. et CHARTRAND, P. “Recommended Values for the Thermal Conductivity of Molten Salts between the Melting and Boiling Points”. In : *Solar Energy Materials & Solar Cells* 126 (2014), p. 11-25. DOI : [10.1016/j.solmat.2014.03.028](https://doi.org/10.1016/j.solmat.2014.03.028).
- [139] DESYATNIK, V. N. et al. “Density, Surface Tension and Viscosity of Uranium Trichloride-Sodium Chloride Melts”. In : *Atomnaya Energiya* 39.1 (juill. 1975), p. 70-72.
- [140] MCMURRAY, J. et al. *Roadmap for Thermal Property Measurements of Molten Salt Reactor Systems*. Rapp. tech. ORNL/SPR-2020/1865, 1778081. Mars 2021, ORNL/SPR-2020/1865, 1778081. DOI : [10.2172/1778081](https://doi.org/10.2172/1778081).
- [141] CORNWELL, K. “The Thermal Conductivity of Molten Salts”. In : *Journal of Physics D : Applied Physics* 4.3 (mars 1971), p. 441-445. ISSN : 00223727. DOI : [10.1088/0022-3727/4/3/313](https://doi.org/10.1088/0022-3727/4/3/313).
- [142] WILLIAMS, D. *Assessment of Candidate Molten Salt Coolants for the Advanced High Temperature Reactor (AHTR)*. Rapp. tech. ORNL/TM-2006/12, 885975. Mars 2006, ORNL/TM-2006/12, 885975. DOI : [10.2172/885975](https://doi.org/10.2172/885975).

Table des figures

1.1	Consommation mondiale d'énergie primaire par source d'énergie depuis 1971	3
1.2	Consommation d'énergie primaire par source d'énergie en France depuis 1970	4
1.3	Production nette d'électricité en France par source d'énergie depuis 1970	4
1.4	Évolution de la perception des avantages de l'énergie nucléaire en France. Réponse à la question "Quel est aujourd'hui, selon vous, l'argument le plus fort pour le nucléaire?"	5
1.5	Évolution de la perception des inconvénients ou risques de l'énergie nucléaire en France. Réponse à la question "Quel est aujourd'hui, selon vous, l'argument le plus fort contre le nucléaire?"	6
1.6	Charte des nucléides colorés selon leur mode de désintégration principal	7
1.7	Diagramme NZ de certains actinides avec le recensement des isotopes fissiles et naturellement présents.	8
1.8	Schéma des cycles de régénération du combustible avec les isotopes fertiles naturellement présents.	9
1.9	Probabilité d'interaction de fission pour l'uranium 235 (base de données JEFF 3.3)	10
1.10	Probabilité d'interaction de fission (traitillés) et capture (trait plein) pour différents actinides (base de données JEFF 3.3)	10
1.11	Rendements de fission de l' ²³⁵ U en fonction du nombre de nucléons et selon l'énergie du neutron incident (base de données JEFF 3.3)	11
1.12	Classification des matières radioactives selon leur activité et leur période radioactive avec leur solution de gestion en France [23]	14
1.13	Vue schématique du cycle du combustible français avec le transport des matières et déchets	16
1.14	Différents concepts d'assemblage pour le multirecyclage en REP (●/⊙ (Pu,Ce)Ox, ● crayons UOX, ● crayons MOX, ○ tube-guide pour les barres de contrôle) [37]	21
1.15	Évolution de l'inventaire français en plutonium pour différents scénarios pour un parc de 60 GW _e	24
1.16	Évolution temporelle du stock de combustible usagé pour le cycle ouvert «once-through» et le monorecyclage DUPIC	25
1.17	Coupe d'un boulet de combustible (TRISO) d'un réacteur HTR (type PBMR)	26
1.18	Coupe schématique d'un RNR-Na au design intégré	26
2.1	Dessin représentant la construction de la Chicago Pile-1	35
2.2	Faces Sud et Est de la pile ZOE	35

2.3	NB-36H en vol. Un marquage sur la queue de l'appareil indique la présence du réacteur nucléaire à bord.	35
2.4	Vue schématique de l'ARE avec le réflecteur en béryllium et son circuit de refroidissement ainsi que le circuit combustible	36
2.5	Vue schématique du réacteur MSRE avec le circuit combustible en bleu et le circuit intermédiaire en orange	37
2.6	Vue schématique du réacteur MSBR avec les circuit d'évacuation du sel, circuit intermédiaire et conversion d'électricité	38
2.7	Illustration du cœur du MSFR de référence avec ses éléments principaux	40
2.8	Vue schématique du cœur du réacteur MOSART avec l'écoulement du sel du plénum inférieur vers le plénum supérieur	40
2.9	Vue en coupe des cœurs FUJI et miniFUJI	41
2.10	Vues schématiques du CED avec coupes radiale et axiale.	42
2.11	Historique des projets français sur les sels fondus auxquels le CNRS a participé.	43
2.12	Design illustratif du circuit combustible du concept ARAMIS	43
2.13	Détail des projets européens sur les réacteurs à sels fondus	44
2.14	Vue schématique en coupe d'une unité flottante avec deux réacteurs KLT-40S à son bord	46
3.1	Spectres neutroniques de sels fluorure ($\text{LiF-ThF}_4\text{-UF}_4$) et chlorure ($\text{NaCl-UCl}_3\text{-PuCl}_3$)	54
3.2	Sections efficaces de capture et fission du ^{240}Pu . Croisement des sections efficaces vers 400 keV (base de données JEFF 3.3)	55
3.3	Diagramme de phase du sel NaCl-PuCl_3	55
3.4	Diagramme ternaire du sel combustible $\text{NaCl-MgCl}_2\text{-PuCl}_3$	56
3.5	Volume critique de cœur pour trois teneurs en plutonium ex-UOX selon le sel solvant utilisé	57
3.6	Spectres neutroniques du sel combustible $11.5\text{PuCl}_3\text{-}58.2\text{NaCl}\text{-}30.3\text{XCl}_{1,2}$ avec $\text{X} \in [\text{Mg}, \text{Sr}, \text{Cs}, \text{Ca ou Ba}]$ pour un plutonium ex-UOX	58
3.7	Proportion de fission du combustible selon le second solvant choisi $[\text{Mg}, \text{Sr}, \text{Cs}, \text{Ca ou Ba}]$ pour un plutonium ex-UOX	59
3.8	Taux de capture du second solvant $[\text{Mg}, \text{Sr}, \text{Cs}, \text{Ca ou Ba}]$ pour un plutonium ex-UOX. Normalisation par la puissance thermique	59
3.9	Exemple d'une histoire d'un neutron suivi par MCNP	61
3.10	Schéma de fonctionnement du calcul de l'évolution d'un réacteur par REM	63
3.11	Schéma du circuit combustible avec les matériaux et caractéristiques géométriques principales	64
3.12	Principe de calcul du nombre de CSD-V produits	66
3.13	Principe de calcul de la radiotoxicité des CSD-V	67
3.14	Schéma de la géométrie thermohydraulique utilisée dans SONGe pour l'optimisation multicritères	69
3.15	Schéma de principe du code ISF avec l'algorithme d'allumage des réacteurs à chaque pas de temps afin de satisfaire la demande énergétique	73
3.16	Sections efficaces microscopiques de production du ^{36}Cl à partir des isotopes naturels du chlore (^{35}Cl et ^{37}Cl) [JEFF 3.3]	77
3.17	Sections efficaces microscopiques de production de trois isotopes du soufre à partir des isotopes ^{35}Cl , ^{36}Cl et ^{37}Cl) [JEFF 3.3]	78

3.18	Élargissement Doppler de la résonance de capture neutronique de l' ^{238}U à 6.67 eV	79
3.19	Vues schématiques du réacteur avec le découpage des tranches et des couronnes des réflecteurs	82
4.1	Effet de l'enrichissement du chlore en ^{37}Cl sur le volume critique du cœur pour neuf configurations de sel combustible	88
4.2	Effet de l'enrichissement du chlore en ^{37}Cl sur la proportion de fission pour neuf configurations de sel combustible	89
4.3	Effet de l'enrichissement du chlore en ^{37}Cl sur le taux de capture au démarrage du ^{35}Cl par réaction (n, γ) pour neuf configurations de sel combustible	89
4.4	Volume critique du cœur pour des teneurs en plutonium variant de 38.5% à 2.5%, trois vecteurs isotopiques [UOX, MOX, MIX] et un solvant NaCl-MgCl_2 pour un chlore enrichi à 99% en ^{37}Cl	90
4.5	Spectre neutronique d'un sel ternaire $\text{NaCl-MgCl}_2\text{-Pu}_{\text{UOX}}\text{Cl}_3$ pour trois teneurs de plutonium [38.5%, 11.3% et 4%]	91
4.6	Proportion de fission selon la teneur en plutonium et le vecteur isotopique utilisé	91
4.7	Évolution du volume critique selon le matériau du réflecteur radial (aciers, céramiques et graphite)	93
4.8	Spectre neutronique du sel combustible $11.5\text{PuCl}_3\text{-}58.2\text{NaCl}\text{-}30.3\text{MgCl}_2$ en fonction du matériau du réflecteur radial pour un vecteur plutonium ex-UOX	94
4.9	Proportion de fission du combustible pour trois teneurs de plutonium ex-UOX et ex-MIX en fonction du matériau du réflecteur radial	94
4.10	Évolution du volume critique selon la fraction de sel en cœur pour trois teneurs en plutonium (38.5%, 11.5% et 4%) et trois vecteurs isotopiques de plutonium (ex-UOX, ex-MOX et ex-MIX) pour un réflecteur radial en acier 316H	95
4.11	Variation du volume critique pour une incertitude de 10% sur la densité du sel combustible dans le cas de trois teneurs en plutonium (38.5%, 11.5% et 4%) et trois vecteurs isotopiques de plutonium (ex-UOX, ex-MOX et ex-MIX)	96
4.12	Comparaison du volume critique du cœur pour trois compositions de sels combustibles utilisant le plutonium ex-MOX	99
4.13	Variation de réactivité pour une augmentation de 10% du volume critique estimé par OCTAV	100
4.14	Cas enveloppe des volumes critiques du cœur <i>au démarrage</i> pour différents vecteurs isotopiques et un réflecteur radial en acier 316H	101
4.15	Géométrie pour les calculs neutroniques d'évolution avec des structures en acier 316H	103
4.16	Évolution massique du plutonium et des principaux transuraniens pour le cas $38.5\text{Pu}_{\text{UOX}}\text{Cl}_3\text{-}61.5\text{NaCl}$	104
4.17	Évolution de la proportion molaire du plutonium et des principaux transuraniens selon la composition du sel (4%, 11.5% et 38.5%) pour un plutonium ex-UOX	105

4.18	Évolution de la proportion molaire du plutonium et des principaux transuraniens selon la composition du sel (4%, 11.5% et 38.5%) pour un plutonium ex-MOX	105
4.19	Évolution de la proportion molaire du plutonium et des principaux transuraniens selon la composition du sel (4%, 11.5% et 38.5%) pour un plutonium ex-MIX	106
4.20	Évolution de la réparation du taux de capture molaire entre les PF et les AM pour les configurations alimentées en plutonium ex-MOX	107
4.21	Évolution temporelle du vecteur isotopique de plutonium selon le vecteur d'alimentation pour une teneur initiale en plutonium de 38.5%	108
4.22	Évolution temporelle du vecteur isotopique de plutonium selon le vecteur d'alimentation pour une teneur initiale en plutonium de 11.5%	108
4.23	Évolution temporelle du vecteur isotopique de plutonium selon le vecteur d'alimentation pour une teneur initiale en plutonium de 4%	109
4.24	Évolution temporelle du vecteur isotopique d'américium selon le vecteur d'alimentation pour une teneur initiale en plutonium de 38.5%	109
4.25	Évolution temporelle du vecteur isotopique d'américium selon le vecteur d'alimentation pour une teneur initiale en plutonium de 11.5%	110
4.26	Évolution temporelle du vecteur isotopique d'américium selon le vecteur d'alimentation pour une teneur initiale en plutonium de 4%	110
4.27	Évolution temporelle du vecteur isotopique de curium selon le vecteur d'alimentation pour une teneur initiale en plutonium de 38.5%	111
4.28	Évolution temporelle du vecteur isotopique de curium selon le vecteur d'alimentation pour une teneur initiale en plutonium de 11.5%	111
4.29	Évolution temporelle du vecteur isotopique de curium selon le vecteur d'alimentation pour une teneur initiale en plutonium de 4%	112
4.30	Évolution temporelle du vecteur isotopique de californium selon le vecteur d'alimentation pour une teneur initiale en plutonium de 38.5%	112
4.31	Évolution temporelle du vecteur isotopique de californium selon le vecteur d'alimentation pour une teneur initiale en plutonium de 11.5%	113
4.32	Évolution temporelle du vecteur isotopique de californium selon le vecteur d'alimentation pour une teneur initiale en plutonium de 4%	113
4.33	Évolution temporelle du vecteur isotopique d'uranium selon le vecteur d'alimentation pour une teneur initiale en plutonium de 38.5%	114
4.34	Évolution temporelle du vecteur isotopique d'uranium selon le vecteur d'alimentation pour une teneur initiale en plutonium de 11.5%	114
4.35	Évolution temporelle du vecteur isotopique d'uranium selon le vecteur d'alimentation pour une teneur initiale en plutonium de 4%	115
4.36	Alimentation annuelle en plutonium selon la teneur en plutonium initiale et le vecteur d'alimentation	115
4.37	Moyenne glissante sur quatre ans de l'alimentation annuelle en plutonium normalisée en puissance thermique	116
4.38	Écart relatif du volume ionique au cours du temps pour les neuf configurations	117
4.39	Efficacité pour le critère de mobilisation de matière pour trois teneurs en plutonium ex-UOX, ex-MOX et ex-MIX	118

4.40	Évaluation de la proportion de fission pour chaque isotope du plutonium au démarrage du réacteur selon le vecteur isotopique de plutonium et la composition du sel combustible	119
4.41	Comparaison de la proportion de fission pour chaque isotope du plutonium au démarrage et à 50 ans de fonctionnement du réacteur selon le vecteur isotopique de plutonium et la composition du sel	119
4.42	Évolution du spectre neutronique en cœur entre le démarrage et 50 ans de fonctionnement du cas $4Pu_{MOX}Cl_3-38.5MgCl_2-57.5NaCl$, chlore enrichi à 99% en ^{37}Cl	120
4.43	Évaluation de la proportion de fission de certains actinides mineurs à 47 ans de fonctionnement du réacteur selon le vecteur isotopique de plutonium et la composition du sel	120
4.44	Bilan massique du plutonium au sein des neuf configurations avec l'image de la masse initiale de plutonium dans le sel combustible	121
4.45	Bilan massique de l'américium au sein des neuf configurations	122
4.46	Bilan massique du curium au sein des neuf configurations	122
4.47	Bilan massique du neptunium au sein des neuf configurations	123
4.48	Bilan massique du californium au sein des neuf configurations	123
4.49	Bilan massique de l'uranium au sein des neuf configurations	124
4.50	Bilan massique global des actinides principaux	124
4.51	Extraction annuelle normalisée des produits de fission des configurations $11.5PuCl_3-30.3MgCl_2-58.2NaCl$ selon les trois voies de retraitement	126
4.52	Extraction annuelle totale normalisée en puissance des produits de fission des neuf configurations	127
4.53	Extraction annuelle totale normalisée en puissance des produits de fission des neuf configurations sans prise en compte de l'uranium	127
4.54	Production normalisée de ^{36}Cl pour les neuf configurations présentées (trois teneurs de plutonium et trois vecteurs isotopiques)	128
4.55	Contributions à la production normalisée de ^{36}Cl pour six configurations (trois teneurs de plutonium et les deux vecteurs isotopiques ex-UOX et ex-MIX)	129
4.56	Production normalisée de soufre pour les neuf configurations présentées	130
4.57	Contributions à la production normalisée de soufre pour les neuf configurations présentées (trois teneurs de plutonium et vecteurs isotopiques ex-UOX et ex-MIX)	131
4.58	Vues schématiques du réacteur avec le découpage des tranches et des couronnes des réflecteurs	132
4.59	Évolution du taux de dpa dans les tranches du réflecteur radial du cas 11.5% Pu_{MOX}	133
4.60	Répartition du maximum de dpa dans les couronnes et tranches du réflecteur axial supérieur du cas 11.5% Pu_{MOX}	133
4.61	Évolution des dpa dans les couronnes de la tranche A du réflecteur axial supérieur du cas 11.5% Pu_{MOX}	134
4.62	Évaluation des dpa au démarrage dans le réflecteur radial de la configuration 11.5% Pu_{MOX}	135
4.63	Évaluation des dpa au démarrage dans la première tranche du réflecteur axial de la configuration 11.5% Pu_{MOX}	135

4.64	Répartition des dpa selon les couronnes dans la tranche A du réflecteur supérieur selon les différentes tailles de réacteur	136
4.65	Évolution du maximum de dpa dans le réflecteur supérieur selon le rayon du réacteur des différentes configurations	137
4.66	Inventaire après 50 ans de fonctionnement de la répartition des concentrations en hydrogène [haut] et en hélium [bas] dans le réflecteur axial supérieur pour un vecteur isotopique ex-MOX et trois teneurs en plutonium	138
4.67	Évolution de la réactivité par effet Doppler selon la température du combustible pour différentes précisions de calcul pour le cas 11.5% Pu _{MOX} [JEFF 3.3]	140
4.68	Comparaison des régressions logarithmiques pour l'estimation du CCR Doppler selon la précision et le nombre de températures considérées pour le cas 11.5% Pu _{MOX} [JEFF 3.3]	141
4.69	Évolution de la réactivité par effet de densité selon la température du combustible pour différentes précisions de calcul pour le cas 11.5% Pu _{MOX} [JEFF 3.3]	141
4.70	Comparaison des régressions polynomiales d'ordre 3 sur la réactivité pour l'estimation du CCR densité selon la précision et le nombre de températures considérées pour le cas 11.5% Pu _{MOX} [JEFF 3.3]	142
4.71	Évolution de la réactivité par effet Doppler au démarrage [JEFF 3.3] . . .	143
4.72	Contribution des isotopes à l'effet Doppler à l'état initial pour le cas 11.5% plutonium ex-MOX [JEFF 3.3]	143
4.73	Évolution temporelle des coefficients de contre-réaction Doppler estimés à 800 K [JEFF 3.3]	144
4.74	Évolution de la réactivité par effet de densité au démarrage [JEFF 3.3] . .	145
4.75	Évolution des coefficients de contre-réaction de densité [JEFF 3.3]	145
4.76	Évolution temporelle de la dilatabilité	146
4.77	Évolution des coefficients de contre-réaction de densité normalisés selon la dilatabilité [JEFF 3.3]	147
4.78	Évaluation des coefficients de contre-réaction Doppler pour le cas 11.5% Pu _{MOX} [JEFF 3.3 ENDF\B-VIII]	148
4.79	Évaluation des coefficients de contre-réaction de densité pour le cas 11.5% Pu _{MOX} [JEFF 3.3 ENDF\B-VIII]	148
4.80	Perte de réactivité en cœur pour les configurations alimentées en plutonium ex-MOX	150
4.81	Évolution de la production de colis totale sur 100 ans et critère limitant selon le temps de refroidissement des matières envoyées aux déchets pour une teneur initiale de 11.5%Pu	151
4.82	Nombre de CSD-V fabriqués selon la voie de retraitement des produits de fission en incluant un temps de refroidissement de 5 ans pour le fonctionnement d'un réacteur du cas 11.5% Pu _{MOX} pendant 100 ans et pour la masse de plutonium alimentée en 100 ans	152
4.83	Production totale de CSD-V normalisée en masse alimentée avec et sans vitrification du sel combustible déchargé pour les neuf configurations étudiées, ainsi que du plutonium alimenté, en incluant un temps de refroidissement de 5 ans	153

4.84	Évolution de la radiotoxicité des CSD-V produits et ses contributions pour un réacteur démarré et alimenté en Pu_{MOX} avec 11.5% de plutonium initialement dans le sel combustible en incluant un temps de refroidissement de 5 ans.	154
4.85	Évolution de la radiotoxicité des CSD-V produits pour les neuf configurations étudiées en incluant un temps de refroidissement de 5 ans sans la vitrification du cœur	155
4.86	Régression polynomiale d'ordre 3 sur le volume critique en fonction de la teneur en plutonium dans le sel	156
4.87	Coût total d'optimisation en fonction de la puissance spécifique en cœur selon la teneur en plutonium initiale	160
4.88	Coûts des contraintes d'optimisations en fonction de la puissance spécifique en cœur selon la teneur en plutonium initiale	161
5.1	Vue schématique de la géométrie de la configuration B	170
5.2	Vue schématique de la géométrie de la configuration MB	170
5.3	Vue schématique de la géométrie de la configuration MBB	170
5.4	Volume critique des dix-huit configurations modifiées (trois teneurs, trois géométries et deux vecteurs de plutonium) avec comparaison aux cas de référence en acier 316H [JEFF 3.3]	171
5.5	Spectres neutroniques initiaux des différentes géométries modifiées pour les cas 38.5% Pu_{UOX} avec comparaison au cas de référence en acier 316H .	172
5.6	Proportions de fissions du plutonium au démarrage pour les cas 38.5%, 11.5% et 4% Pu selon les trois géométries présentées en considérant les vecteurs ex-UOX et ex-MIX avec comparaison aux cas de référence . . .	173
5.7	Proportions de fissions des isotopes du plutonium au démarrage pour les cas 38.5%, 11.5% et 4% Pu selon les trois géométries présentées en considérant les vecteurs ex-UOX et ex-MIX avec comparaison aux cas de référence	173
5.8	Répartition molaire des actinides par éléments pour les configurations à 38.5% Pu_{UOX} avec comparaison au cas de référence	176
5.9	Répartition molaire des actinides par éléments pour les configurations à 38.5% Pu_{MIX} avec comparaison au cas de référence	176
5.10	Répartition molaire des actinides par éléments pour les configurations à 4% Pu_{UOX} avec comparaison au cas de référence	177
5.11	Répartition molaire des actinides par éléments pour les configurations à 4% Pu_{MIX} avec comparaison au cas de référence	177
5.12	Évolution du spectre neutronique du cas 38.5% GBI entre le démarrage et le fonctionnement à 50 ans	179
5.13	Évolution du spectre neutronique du cas 4% GBI entre le démarrage et le fonctionnement à 50 ans	179
5.14	Évolution de la répartition du taux de capture molaire entre les PF et les AM pour les configurations 4% initiaux de plutonium alimentées en plutonium ex-MIX	180
5.15	Évolution de l'isotopie du plutonium pour les simulations 38.5% Pu_{MIX} avec comparaison au cas de référence	180
5.16	Évolution de l'isotopie de l'américium pour les simulations 38.5% Pu_{MIX} avec comparaison au cas de référence	181

5.17	Évolution de l'isotopie du curium pour les simulations 38.5%Pu _{MIX} avec comparaison au cas de référence	181
5.18	Évolution de l'isotopie du plutonium pour les simulations 4%Pu _{MIX} avec comparaison au cas de référence	182
5.19	Évolution de l'isotopie de l'américium pour les simulations 4%Pu _{MIX} avec comparaison au cas de référence	182
5.20	Évolution de l'isotopie du curium pour les simulations 4%Pu _{MIX} avec comparaison au cas de référence	183
5.21	Évolution relative du volume ionique dans les neuf cas étudiés ici selon la géométrie, la teneur initiale de plutonium et le vecteur isotopique . . .	183
5.22	Production de ³⁶ Cl dans les configurations alimentées en plutonium ex-UOX avec comparaison aux cas de référence en acier 316H	184
5.23	Production de ³⁶ Cl dans les configurations alimentées en plutonium ex-MIX avec comparaison aux cas de référence en acier 316H	185
5.24	Contributions à la production de ³⁶ Cl dans les configurations alimentées en plutonium ex-MIX avec comparaison aux cas de référence en acier 316H	185
5.25	Production de soufre dans les configurations alimentées en plutonium ex-UOX avec comparaison aux cas de référence en acier 316H	186
5.26	Production de soufre dans les configurations alimentées en plutonium ex-MIX avec comparaison aux cas de référence en acier 316H	186
5.27	Contributions à la production de soufre dans les configurations alimentées en plutonium ex-UOX avec comparaison aux cas de référence en acier 316H	187
5.28	Mobilisation du plutonium des designs B/GB/GBB avec comparaison au cas de référence en acier pour le vecteur Pu _{UOX}	188
5.29	Mobilisation du plutonium des designs B/GB/GBB avec comparaison au cas de référence en acier pour le vecteur Pu _{MIX}	189
5.30	Proportions de fissions des designs B/GB/GBB à 47 ans de fonctionnement pour les différents isotopes du plutonium avec comparaison au cas de référence en acier	189
5.31	Proportions de fissions des designs B/GB/GBB à 47 ans de fonctionnement pour différents isotopes d'actinides mineurs avec comparaison au cas de référence en acier	190
5.32	Bilan de consommation du plutonium normalisé par la puissance thermique pour les vecteurs Pu _{UOX}	191
5.33	Bilan de consommation du plutonium normalisé par la puissance thermique pour les vecteurs Pu _{MIX}	191
5.34	Bilan de consommation de l'américium normalisé par la puissance thermique pour les vecteurs Pu _{UOX}	192
5.35	Bilan de consommation de l'américium normalisé par la puissance thermique pour les vecteurs Pu _{MIX}	192
5.36	Bilan de consommation du curium normalisé par la puissance thermique pour les vecteurs Pu _{UOX}	193
5.37	Bilan de consommation du curium normalisé par la puissance thermique pour les vecteurs Pu _{MIX}	193
5.38	Bilan massique global des actinides principaux pour les géométries modifiées	194
5.39	Estimation des coefficients de contre-réaction Doppler au démarrage et à 50 ans de fonctionnement	195

5.40	Estimation des coefficients de contre-réaction de densité au démarrage et à 50 ans de fonctionnement	196
5.41	Estimation des coefficients de contre-réaction de densité au démarrage et à 50 ans de fonctionnement normalisés par la dilatabilité	196
5.42	Impact du temps de refroidissement sur la production de CSD-V pour le cas 4%GBI avec comparaison au cas de référence	197
5.43	Production de colis vitrifiés pour les géométries modifiées avec et sans vitrification du sel combustible, et comparaison aux alimentations et cas de référence	198
5.44	Radiotoxicité de la configuration 4GBI avec la vitrification ou non du sel combustible et comparaison avec le vecteur d'alimentation Pu _{MIX}	198
5.45	Radiotoxicité des configurations alimentées en plutonium ex-UOX avec la vitrification ou non du sel combustible et comparaison au vecteur d'alimentation	199
5.46	Radiotoxicité des configurations alimentées en plutonium ex-MIX avec la vitrification ou non du sel combustible et comparaison au vecteur d'alimentation	199
6.1	Évolution au cours du temps de l'inventaire radiotoxique, exprimé en sievert par tonne de métal lourd initial (Sv/tmli), d'un combustible usé (oxyde d'uranium enrichi à 3.7% en uranium 235 déchargé à un taux de combustion de 45 GW · j/t et refroidi cinq ans)	204
6.2	Schéma du circuit de retraitement avec les deux séparations PF/(U+TRU), ainsi que les réservoirs pour simuler le refroidissement du sel combustible	208
6.3	Combustibles disponibles et utilisés dans les RAPTOR selon les scénarios du combustible considérés et le type de séparation	213
6.4	Répartition des teneurs en actinides nécessaires au démarrage des RAPTOR le long de la ligne eutectique	214
6.5	Spectres neutroniques en cœur pour les sept configurations de RAPTOR	215
6.6	Évaluation de la capacité de fission des RAPTOR au démarrage	215
6.7	Évolution massique des actinides principaux en cœur selon le retraitement du plutonium pour les simulations RAPTOR plutonium (PU, PM et PI)	216
6.8	Alimentation annuelle selon le retraitement du plutonium pour les simulations RAPTOR plutonium	217
6.9	Évolution temporelle du vecteur isotopique de plutonium selon la gestion du plutonium pour le cas PM	218
6.10	Évolution temporelle du vecteur isotopique de l'américium selon la gestion du plutonium pour le cas PM	218
6.11	Évolution temporelle du vecteur isotopique de curium selon la gestion du plutonium pour le cas PM	219
6.12	Évolution temporelle du vecteur isotopique d'uranium selon la gestion du plutonium pour le cas PM	219
6.13	Évolution massique des actinides principaux en cœur avec réinjection instantanée U+TRU pour les simulations RAPTOR plutonium + actinides mineurs	221
6.14	Alimentation annuelle pour les simulations RAPTOR plutonium + actinides mineurs avec réinjection instantanée des U+TRU	221
6.15	Cycle de production du ²³⁸ Pu à partir de l' ²⁴¹ Am	222

6.16	Évolution de la réactivité du sel combustible en regard de l'alimentation en actinides mineurs pour le cas PAI avec réinjection instantanée des TRU	223
6.17	Évolution de la réactivité du sel combustible en regard de de la masse de ^{242}Cm et de ^{238}Pu pour le cas PAI avec réinjection instantanée des U+TRU	223
6.18	Évolution de la réactivité du sel combustible en regard de de la masse de ^{242}Cm et de ^{238}Pu pour le cas PAI avec réinjection à 5 ans des U+TRU	223
6.19	Évolution de la masse des transuraniens dans le sel combustible selon le mode de contrôle pour le cas PAI à réinjection directe	224
6.20	Évolution de la masse des transuraniens dans le sel combustible selon le mode de contrôle pour le cas PAI à réinjection après 5 ans à l'extérieur	224
6.21	Évolution massique des actinides principaux en cœur selon le temps de refroidissement avant réinjection pour les simulations PAU	225
6.22	Évolution massique des actinides principaux en cœur selon le temps de refroidissement avant réinjection pour les simulations PAM	226
6.23	Évolution massique des actinides principaux en cœur selon le temps de refroidissement avant réinjection pour les simulations PAI	226
6.24	Évolution temporelle du vecteur isotopique de plutonium selon le temps de retraitement extérieur pour PAU	227
6.25	Évolution temporelle du vecteur isotopique de l'américium selon le temps de retraitement extérieur pour PAU	228
6.26	Évolution temporelle du vecteur isotopique de curium selon le temps de retraitement extérieur pour PAU	228
6.27	Évolution temporelle du vecteur isotopique d'uranium selon le temps de retraitement extérieur pour PAU	229
6.28	Évolution temporelle massique des principaux actinides dans le sel combustible du cas AI (100% actinides mineurs) pour deux temps de réinjection des U+TRU	230
6.29	Évolution temporelle de la réactivité du sel combustible du cas AI (100% actinides mineurs) pour deux temps de réinjection des U+TRU	231
6.30	Évolution temporelle de la réactivité du sel combustible du cas AI (100% actinides mineurs) avec réinjection des U+TRU à 5 ans selon la teneur en actinides fixée pour le contrôle	232
6.31	Production de ^{36}Cl pour les six configurations RAPTOR (cas Pu en cœur pour les RAPTOR plutonium et réinjection à 5 ans pour les RAPTOR plutonium + actinides mineurs)	232
6.32	Contributions à la production de ^{36}Cl pour les six configurations RAPTOR	233
6.33	Production de soufre pour les six configurations RAPTOR	233
6.34	Contributions à la production des principaux isotopes du soufre pour les six configurations RAPTOR	234
6.35	Efficacité selon le critère de mobilisation de matière pour les RAPTOR 100% plutonium	235
6.36	Efficacité selon le critère de mobilisation de matière pour les RAPTOR plutonium + actinides mineurs	236
6.37	Proportions de fission par isotopes principaux du plutonium après 50 ans de fonctionnement pour les six configurations RAPTOR	236
6.38	Proportions de fission par isotopes principaux des actinides mineurs après 50 ans de fonctionnement pour les six configurations RAPTOR	237
6.39	Bilan massique du plutonium pour les trois configurations RAPTOR Pu	238

6.40	Bilan massique du plutonium pour les trois configurations RAPTOR Pu+AM	238
6.41	Bilan massique de l'américium pour les trois configurations RAPTOR Pu	239
6.42	Bilan massique de l'américium pour les trois configurations RAPTOR Pu+AM	239
6.43	Bilan massique du neptunium pour les trois configurations RAPTOR Pu	240
6.44	Bilan massique du neptunium pour les trois configurations RAPTOR Pu+AM	240
6.45	Bilan massique du curium pour les trois configurations RAPTOR Pu	241
6.46	Bilan massique du curium pour les trois configurations RAPTOR Pu+AM	242
6.47	Bilan massique du californium pour les trois configurations RAPTOR Pu	242
6.48	Bilan massique du californium pour les trois configurations RAPTOR Pu+AM	243
6.49	Bilan massique global des actinides pour les six configurations RAPTOR	243
6.50	Maximum du taux de dpa dans la tranche 0 du réflecteur axial supérieur pour les configurations RAPTOR	244
6.51	Maximum du taux de dpa dans le réflecteur radial pour les configurations RAPTOR	245
6.52	Maximum du taux de dpa dans le réflecteur radial pour les configurations RAPTOR plutonium selon la méthode d'estimation des dpa	245
6.53	Évolution du taux de dpa dans le réflecteur radial pour les configurations RAPTOR	246
6.54	Inventaire après 50 ans de fonctionnement de la répartition des concentrations en hydrogène [haut] et en hélium [bas] dans le réflecteur axial supérieur pour les cas PAU, PAM et PAI	247
6.55	Évolution des coefficients de contre-réaction Doppler selon la température au démarrage pour les six configurations RAPTOR	248
6.56	Évolution des coefficients de contre-réaction de densité selon la température au démarrage pour les six configurations RAPTOR	249
6.57	Évolution des coefficients de contre-réaction Doppler au cours du fonctionnement pour les six configurations RAPTOR	250
6.58	Évolution des coefficients de contre-réaction de densité au cours du fonctionnement pour les six configurations RAPTOR	250
6.59	Évolution temporelle de la dilatabilité des six configurations RAPTOR	251
6.60	Évolution des coefficients de contre-réaction de densité normalisés par la dilatabilité au cours du fonctionnement pour les six configurations RAPTOR	252
6.61	Impact du temps de refroidissement sur la production de CSD-V des configurations RAPTOR	253
6.62	Production de CSD-V après six ans de refroidissement au cours du fonctionnement et avec vitrification du cœur des configurations RAPTOR, normalisée selon la masse alimentée	254
6.63	Radiotoxicité des CSD-V des RAPTOR plutonium avec réinjection du plutonium en cœur	254
6.64	Radiotoxicité des CSD-V des RAPTOR plutonium/actinides mineurs avec une réinjection en 5 ans	255
6.65	Production de CSD-V après six ans de refroidissement au cours du fonctionnement selon l'efficacité de séparation PF/(U+TRU) des configurations RAPTOR plutonium + actinides mineurs	256

6.66	Estimation de la radiotoxicité des CSD-V produits après six ans de refroidissement au cours du fonctionnement selon l'efficacité de séparation PF/(U+TRU) des configurations RAPTO _r plutonium + actinides mineurs <i>sans</i> vitrification du sel combustible déchargé	257
6.67	Estimation de la radiotoxicité des CSD-V produits après six ans de refroidissement au cours du fonctionnement selon l'efficacité de séparation PF/(U+TRU) des configurations RAPTO _r plutonium + actinides mineurs <i>avec</i> vitrification du sel combustible déchargé	257
7.1	Évolution de la production d'électricité nucléaire en France entre 1970 et 2020 et prévisions de la demande électrique française jusqu'en 2300 . . .	264
7.2	Évolution du nombre de réacteurs REP UOX dans le parc avec une gestion du combustible en cycle ouvert pour une énergie totale produite de 8.99E4 TWh _e	269
7.3	Évolution des réserves et stocks d'intérêt dans le parc avec une gestion du combustible en cycle ouvert	269
7.4	Évolution de la composition du parc électronucléaire lors de l'intégration de réacteurs incinérateurs PU dans le parc avec une gestion du combustible en cycle ouvert et une séparation classique de matières pour une énergie totale produite de 9.79E4 TWh _e	271
7.5	Évolution de la composition du parc électronucléaire lors de l'intégration de réacteurs incinérateurs PU/PUf dans le parc avec une gestion du combustible en cycle ouvert et une séparation classique de matières pour une énergie totale produite de 1.01E5 TWh _e	271
7.6	Répartition de la puissance produite lors du déploiement des RAPTO _r PU	272
7.7	Répartition de la puissance produite lors du déploiement des RAPTO _r PU et PUf	272
7.8	Évolution des inventaires en uranium naturel, plutonium et produits de fission/actinides mineurs selon le scénario de déploiement considéré en cycle ouvert et pour une séparation classique des matières	274
7.9	Évolution de la composition du parc électronucléaire lors de l'intégration de réacteurs incinérateurs PAU dans le parc avec une gestion du combustible en cycle ouvert et une séparation avancée de matières pour une énergie totale produite de 9.63E4 TWh _e	275
7.10	Évolution de la composition du parc électronucléaire lors de l'intégration de réacteurs incinérateurs PAU/PAUf dans le parc avec une gestion du combustible en cycle ouvert et une séparation avancée de matières pour une énergie totale produite de 9.92E4 TWh _e	275
7.11	Répartition de la puissance produite dans le parc lors du déploiement des RAPTO _r PAU	276
7.12	Répartition de la puissance produite dans le parc lors du déploiement des RAPTO _r PAU et PAUf	276
7.13	Évolution des inventaires en uranium naturel, plutonium, actinides mineurs et produits de fission selon le scénario de déploiement considéré en cycle ouvert et pour une séparation avancée des matières	278
7.14	Évolution du nombre de réacteurs REP UOX/MOX dans le parc avec une gestion du combustible en cycle semi-fermé	279

7.15	Évolution des réserves et stocks d'intérêt dans le parc avec une gestion du combustible en cycle semi-fermé	280
7.16	Évolution de la composition du parc électronucléaire lors de l'intégration de réacteurs incinérateurs PM dans le parc avec une gestion du combustible en cycle semi-fermé et une séparation classique de matières pour une énergie produite totale de 9.30 TWh _e	281
7.17	Évolution de la composition du parc électronucléaire lors de l'intégration de réacteurs incinérateurs PM/PMf dans le parc avec une gestion du combustible en cycle semi-fermé et une séparation classique de matières pour une énergie produite totale de 9.49E4 TWh _e	282
7.18	Répartition de la puissance produite lors du déploiement des RAPTO _r PU/PM	282
7.19	Répartition de la puissance produite lors du déploiement des RAPTO _r PU/PM/PUf/PMf	283
7.20	Évolution des inventaires en uranium naturel, plutonium et produits de fission/actinides mineurs selon le scénario de déploiement considéré en cycle semi-fermé et pour une séparation classique des matières	285
7.21	Évolution de la composition du parc électronucléaire lors de l'intégration de réacteurs incinérateurs PAM dans le parc avec une gestion du combustible en cycle semi-fermé et une séparation avancée de matières pour une énergie totale produite de 9.35E4 TWh _e	286
7.22	Évolution de la composition du parc électronucléaire lors de l'intégration de réacteurs incinérateurs PAM/PAMf dans le parc avec une gestion du combustible en cycle semi-fermé et une séparation avancée de matières pour une énergie totale produite de 9.57E4 TWh _e	286
7.23	Répartition de la puissance produite lors du déploiement des RAPTO _r PAM	287
7.24	Répartition de la puissance produite lors du déploiement des RAPTO _r PAM et PAMf	287
7.25	Évolution des inventaires en uranium naturel, plutonium, actinides mineurs et produits de fission selon le scénario de déploiement considéré en cycle semi-fermé et pour une séparation avancée des matières	290
7.26	Évolution du nombre de réacteurs REP UOX/MOX/MIX dans le parc avec une gestion du combustible en cycle semi-fermé ⁺	291
7.27	Répartition de la production de puissance électrique dans le parc avec une gestion du combustible en cycle semi-fermé ⁺	291
7.28	Évolution des réserves et stocks d'intérêt dans le parc avec une gestion du combustible en cycle semi-fermé ⁺	292
7.29	Évolution de la composition du parc électronucléaire lors de l'intégration de réacteurs incinérateurs PI dans le parc avec une gestion du combustible en cycle ouvert et une séparation classique de matière pour une production d'énergie totale de 9.03E4 TWh _e	294
7.30	Évolution de la composition du parc électronucléaire lors de l'intégration de réacteurs incinérateurs PI/PIf dans le parc avec une gestion du combustible en cycle ouvert et une séparation classique de matière pour une production d'énergie totale de 9.18E4 TWh _e	294
7.31	Répartition de la puissance produite lors du déploiement des RAPTO _r PI	295
7.32	Répartition de la puissance produite lors du déploiement des RAPTO _r PI et PI _f	295

7.33	Évolution des inventaires en uranium naturel, plutonium et produits de fission/actinides mineurs selon le scénario de déploiement considéré en cycle semi-fermé ⁺ et pour une séparation classique des matières	297
7.34	Évolution de la composition du parc électronucléaire lors de l'intégration de réacteurs incinérateurs PAI dans le parc avec une gestion du combustible en cycle semi-fermé ⁺ et une séparation avancée de matières pour une production d'énergie totale de 9.13E4 TWh _e	298
7.35	Évolution de la composition du parc électronucléaire lors de l'intégration de réacteurs incinérateurs PAI/PAIf dans le parc avec une gestion du combustible en cycle semi-fermé ⁺ et une séparation avancée de matières pour une production d'énergie totale de 9.29E4 TWh _e	298
7.36	Répartition de la puissance produite lors du déploiement des RAPTOR PAI	299
7.37	Répartition de la puissance produite lors du déploiement des RAPTOR PAI et PAIf	299
7.38	Évolution des inventaires en uranium naturel, plutonium, actinides mineurs et produits de fission selon le scénario de déploiement considéré en cycle semi-fermé ⁺ et pour une séparation avancée des matières	301
7.39	Estimation de la production de CSD-V total normalisée en énergie produite dans le parc avec une gestion du combustible en cycle ouvert	303
7.40	Estimation de la production de CSD-V total normalisée en énergie produite dans le parc avec une gestion du combustible en cycle semi-fermé	303
7.41	Estimation de la production de CSD-V total normalisée en énergie produite dans le parc avec une gestion du combustible en cycle semi-fermé ⁺	304
7.42	Impact du temps de fonctionnement d'un RAPTOR sur l'estimation de la production de CSD-V	305
A.1	Diagramme ternaire du sel combustible NaCl-MgCl ₂ -PuCl ₃	315
A.2	Diagramme ternaire du sel intermédiaire KCl-LiCl-NaCl	316
B.1	Coupe longitudinale du réacteur incinérateur passant par une veine de sel combustible dans les échangeurs de chaleur	331
B.2	Définition du rayon $R_x(x, \theta)$ pour la détermination de l'épaisseur du retour de sel combustible	336
C.1	Proportion de fission du plutonium ex-UOX au démarrage selon le matériau du réflecteur	344
C.2	Évolution relative de la masse du réflecteur radial selon la teneur initiale de plutonium ex-UOX et le matériau du réflecteur	345
C.3	Évolution relative de la masse de tungstène dans le réflecteur radial selon la teneur initiale de plutonium ex-UOX	346
C.4	Évolution de la masse de rhénium et d'osmium dans le réflecteur radial selon la teneur initiale de plutonium ex-UOX	346
D.1	Vue schématique de la géométrie de la configuration MB	349
D.2	Vue schématique de la géométrie de la configuration MBB	349
D.3	Volumes critiques au démarrage des différentes configurations avec du graphite et du MgO pour un sel à 38.5% et 4% de Pu _{UOX} et Pu _{MIX}	350
D.4	Spectres neutroniques dans le sel combustible des différentes configurations avec du graphite et du MgO pour un sel à 38.5% de Pu _{UOX}	351

D.5	Bilan de consommation du plutonium normalisé par la puissance thermique pour les vecteurs Pu_{MIX} selon les différentes géométries	352
D.6	Bilan de consommation de l'américium normalisé par la puissance thermique pour les vecteurs Pu_{MIX} selon les différentes géométries	352
D.7	Bilan de consommation du curium normalisé par la puissance thermique pour les vecteurs Pu_{MIX} selon les différentes géométries	353
D.8	Bilan de consommation du californium normalisé par la puissance thermique pour les vecteurs Pu_{MIX} selon les différentes géométries	353
D.9	Estimation des coefficients de contre-réaction Doppler au démarrage et à 50 ans de fonctionnement pour différentes configurations de matériaux .	354
D.10	Estimation des coefficients de contre-réaction de densité au démarrage et à 50 ans de fonctionnement pour différentes configurations de matériaux	354

Liste des tableaux

1.1	Synthèse du bilan matière des cycles ouverts LWR et HWR	16
1.2	Stratégies de cycle du combustible dans le monde	18
1.3	Inventaire des caractéristiques pour différents concepts d'assemblage en REP	23
1.4	Résumé des caractéristiques principales de chaque concept à l'équilibre	29
2.1	Caractéristiques principales de concepts notables de RSF	48
3.1	Vecteur isotopique molaire de plutonium ex-UOX	57
3.2	Synthèse des caractéristiques des solvants étudiés	60
3.3	Paramètres de configuration de REM communs aux simulations	65
3.4	Efficacité de séparation pré-colisage	67
3.5	Paramètres physico-chimiques estimés à 800 K pour les optimisations SONGe pour trois configurations, repérées ici par leur teneur de plutonium dans le sel combustible	69
3.6	Variation d'optimisation	71
3.7	Contraintes d'optimisation	71
3.8	Données de calcul de radiotoxicité du ^{36}Cl	78
4.1	Vecteurs isotopiques molaires du plutonium utilisé pour l'inventaire initial et l'alimentation dans REM	87
4.2	Énergies moyennes des neutrons du sel combustible et des neutrons induisant la fission selon la teneur en plutonium ex-UOX	90
4.3	Caractéristiques des matériaux de réflecteur (graphite, céramiques et aciers)	92
4.4	Effet de l'incertitude de la masse volumique sur la masse critique de plutonium au démarrage	97
4.5	Détails des bases de données utilisées pour les calculs de volume critique	97
4.6	Paramètres de configuration de REM pour les simulations des sels plutonium	102
4.7	Volumes et puissance thermique des neuf configurations étudiées en évolution	103
4.8	Évolution temporelle de la teneur molaire en actinides pour trois teneurs initiales de plutonium et trois vecteurs isotopiques (ex-UOX, ex-MOX et ex-MIX) avec l'évolution relative entre le démarrage et l'état stationnaire à 50 ans	107
4.9	Constantes de correction du nickel et du fer	134
4.10	Concentration maximale en hydrogène et hélium à 50 ans de fonctionnement pour les neuf configurations	139
4.11	Dilatabilité initiale pour les trois teneurs de plutonium	144

4.12	Coefficients de régression pour la détermination du volume de la zone critique à partir de la teneur en plutonium	156
4.13	Variables optimisées pour une puissance spécifique en cœur de $150 \text{ MW}_{\text{th}}/\text{m}^3$ selon la teneur initiale de plutonium dans le sel combustible	158
4.14	Contraintes optimisées pour une puissance spécifique en cœur de $150 \text{ MW}_{\text{th}}/\text{m}^3$ selon la teneur initiale de plutonium dans le sel combustible	159
5.1	Masse critique de plutonium pour le démarrage selon	171
5.2	Volumes en cœur et puissance thermique des neuf configurations étudiées en évolution	174
5.3	Paramètres de configuration de REM pour les études avec les géométries modifiées. Paramètres modifiés en gras	175
5.4	Évolution temporelle de la teneur molaire en actinides pour deux teneurs initiales et deux vecteurs extrêmes de plutonium avec l'évolution relative entre le démarrage et à 50 ans	178
6.1	Cas étudiés de valorisation des matières radioactives selon le cycle du combustible	210
6.2	Vecteurs de plutonium et plutonium + actinides mineurs pour les simulations RAPTOR	211
6.3	Composition de démarrage du sel combustible des configurations RAPTOR considérés	214
6.4	Évolution temporelle de la teneur molaire en actinides pour les trois configurations plutonium avec comparaison de la gestion du plutonium et avec l'évolution relative entre le démarrage et l'état stationnaire à 50 ans	220
6.5	Évolution temporelle de la teneur molaire en actinides pour les trois configurations plutonium + actinides mineurs avec comparaison du temps de retraitement extérieur et avec l'évolution relative entre le démarrage et à 50 ans	229
6.6	Concentration maximale en hydrogène et hélium à 50 ans de fonctionnement pour les configurations RAPTOR	246
6.7	Efficacités de séparation des éléments avant la réinjection des U+TRU dans le circuit combustible	256
7.1	Caractéristiques des réacteurs REP utilisés pour la simulation du déploiement des RAPTOR selon le cycle du combustible considéré	266
7.2	Caractéristiques des réacteurs RAPTOR pour l'intégration dans le cycle ouvert	270
7.3	Caractéristiques des réacteurs RAPTOR pour l'intégration dans le cycle semi-fermé	281
7.4	Caractéristiques des réacteurs RAPTOR pour l'intégration dans le cycle semi-fermé ⁺	293
A.1	Composition molaire de l'eutectique KCl-LiCl-NaCl	316
A.2	Rayons ioniques des ions des sels considérés	317
A.3	Coefficients dépendant de la teneur en MgCl_2 pour le calcul de la masse volumique du solvant	317
A.4	Valeurs des coefficients α , β et γ pour la correction de la masse volumique calculée avec les rayons ioniques selon la teneur en MgCl_2	318

A.5	Sous-coefficients k_1, k_2 pour le calcul de la masse volumique du sel combustible selon la teneur en magnésium	318
A.6	Coefficients pour la détermination des k_i pour le calcul de la masse volumique du sel combustible pour toute teneur de magnésium inférieure à 50%	318
A.7	Estimation de la capacité calorifique pour quelques compositions de sel combustible	319
A.8	Coefficients a et b pour le calcul de la masse volumique du sel intermédiaire $\rho = a + b \cdot T_K$ selon la composition du sel	319
A.9	Capacité calorifique individuelle des composants du $NaCl-MgCl_2-PuCl_3$ exprimée en $J/(K \cdot mol)$	320
A.10	Estimation de la capacité calorifique pour quelques compositions de sel combustible	321
A.11	Conductivité thermique de chaque composant des sels combustible et intermédiaire	322
A.12	Conductivité thermique de sel combustible pour trois teneurs en plutonium	322
A.13	Viscosité dynamique du sel $NaCl-UCl_3$ selon la teneur d'uranium [$mPa \cdot s$]	323
A.14	Viscosité dynamique du sel $NaCl-MgCl_2$ selon la teneur de $NaCl$ [cP]	324
A.15	Coefficients déterminés par régression polynomiale d'ordre 5 pour l'estimation des viscosités dynamiques	324
A.16	Viscosité dynamique du sel combustible évaluée pour trois teneurs en plutonium	325
A.17	Viscosité dynamique du sel intermédiaire selon la teneur en $NaCl$	325
A.18	Composition massique nominale de l'acier 316H	326
A.19	Composition molaire de l'acier 316H utilisé dans les études	326
A.20	Paramètres physico-chimiques estimées pour trois teneurs de plutonium dans le sel combustible, ainsi que pour le sel intermédiaire et l'acier des structures	327
B.1	Paramètres décrivant la géométrie pour l'optimisation neutronique - thermohydraulique avec le code SONGe	337
C.1	Compositions molaire et massique de l'acier NiCrW	343
C.2	Volumes et puissance thermique des quatre configurations étudiées en évolution	343
D.1	Masse critique de plutonium pour le démarrage selon la configuration de matériaux et l'isotopie du plutonium	350
D.2	Évolution temporelle de la teneur molaire en actinides pour deux teneurs initiales et deux vecteurs extrêmes de plutonium avec l'évolution relative entre le démarrage et à 50 ans selon la géométrie considérée	351

Acronymes

- ADS** Accelerator Driven System.
- AHTR** Advanced High-Temperature Reactor.
- AIEA** Agence Internationale de l'Énergie Atomique.
- AM** Actinides Mineurs.
- AMR** Advanced Modular Reactor.
- AMSTER** Actinide Molten Salt Transmuter.
- AN** Actinides.
- appm** atomic parts per million.
- ARAMIS** Advanced Reactor for Actinides Management in Salt.
- ARDP** Advanced Reactor Demonstration Program.
- ARE** Aircraft Reactor Experiment.
- CALCIFER** CALculer les Colls et Faire l'Évaluation de leur Radiotoxicité.
- CANDU** Canadian Deuterium Uranium.
- CCR** Coefficient de contre-réaction.
- CEA** Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives.
- CES** Critical Experimental Device.
- CESAR** Code d'Évolution Simplifié Appliqué au Retraitement.
- Cigéo** Centre industriel de stockage géologique.
- CNE2** Commission Nationale d'Évaluation 2 des recherches et études relatives à la gestion des matières et des déchets radioactifs.
- CNRS** Centre National de la Recherche Scientifique.
- CORAIL** COmbustible Recyclable A ILôt.
- CSD-C** Conteneur Standard de Déchets - Compactés.
- CSD-V** Conteneur Standard de Déchets - Vitriifiés.
- dpa** Déplacement Par Atome.
- DUPIC** Direct Use of spent PWR fuel In CANDU.
- ECI** Évolution d'une Composition Isotopique.
- EDF** Électricité de France.
- EIR** Swiss Federal Institute for Reactor Research.
- EPR** European/Evolutionary Pressurised Reactor.

- GIF** Generation IV International Forum.
- HA-VL** Haute Activité à Vie Longue.
- HTR** High Temperature Reactor.
- HTRE** Heat Transfert Reactor Experiment.
- HWR** Réacteur à Eau Lourde / Heavy Water Reactor.
- IMSBR** Integral Molten Salt Breeder Reactor.
- IRSN** Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire.
- ISAC** Innovative System for Actinide Conversion.
- ISF** Innovative Scenarios for the Future.
- LNC** Laboratoires Nucléaires Canadiens.
- LWR** Réacteur à Eau Légère / Light Water Reactor.
- MCFR** Molten Chloride Fast Reactor.
- MCNP** Monte-Carlo N Particles.
- MIMOSA** Multi-recycling strategies of LWR SNF focusing on Molten Salt technology.
- MOSART** Molten Salt Actinide Recycler and Transmuter.
- MOX** Mélanges d'Oxydes.
- MSBR** Molten Salt Breeder Reactor.
- MSFR** Molten Salt Fast Reactor.
- MSRE** Molten Salt Reactor Experiment.
- MSTW** Molten Salt Thermal Wasteburner.
- NEPA** Nuclear Energy for the Propulsion of Aircraft.
- OCTAV** Optimisation de la Criticité Actinides Volume.
- ORNL** Oak Ridge National Laboratory.
- PF** Produit de Fission.
- PFA** Produits de Fission et Actinides.
- PIA4** 4ème Programme Investissements d'Avenir.
- PIRT** Phenomena Identification and Ranking Table.
- PUREX** Plutonium Uranium Refining by EXtraction.
- RAPTOR** Réacteur Alimenté en Plutonium et autres Transuraniens pour Orano.
- REM** Réaliser une Évolution avec MCNP.
- REP** Réacteur à Eau Pressurisée.
- REX** Retour d'Expérience.
- RNR-Na** Réacteur à Neutrons Rapides à caloporteur sodium.
- RSF** Réacteur à Sels Fondus.
- RTE** Réseau de Transport Électrique.

SINAP Shanghai Institute for Applied Physics.

SMR Small Modular Reactor.

SOFT Salt reactor, On site reprocessing, Fast converter, Task.

SONGe Système d'Optimisation Numérique par Algorithme Génétique.

SSR-W Stable Salt Reactor - Wasteburner.

THORIMS-NES Thorium Molten-Salt Nuclear Energy Synergetic System.

tMLi tonne de métal lourd initial.

TMSR Thorium Molten Salt Reactor.

TMSR-LF Thorium Molten Salt Reactor - Liquid Fuel.

TMSR-NM Thorium Molten Salt Reactor - Non Modéré.

TMSR-SF Thorium Molten Salt Reactor - Solid Fuel.

TRU Transuraniens.

Uapp Uranium Appauvri.

UNE Uranium Naturel Enrichi.

UOX Oxydes d'Uranium.

URE Uranium de Retraitement Enrichi.

URT Uranium de Retraitement.

Capacité de conversion des transuraniens en Réacteurs à Sels Fondus (RSF)

Transuranic elements burning efficiency in Molten Salt Reactors (MSR)

Résumé

Ce travail de thèse a consisté en l'étude d'un réacteur rapide à sels chlorures (solvant NaCl-MgCl₂) fondus pour la conversion des transuraniens produits en réacteur à eau pressurisée. L'objectif d'un tel réacteur est de fermer le cycle du combustible et de réduire la production de déchets de haute activité à vie longue, rendant l'énergie nucléaire plus durable. Des études sur la composition du sel combustible ternaire ont d'abord été menées et ont montré qu'une haute teneur en actinides, et donc une faible teneur en magnésium, est nécessaire pour qu'un petit cœur soit critique. Elles ont également mis en exergue que concentrer les actinides est nécessaire lorsqu'un vecteur isotopique dégradé est utilisé pour un volume de cœur donné. L'irradiation neutronique des matériaux a été estimée en considérant une puissance spécifique fixée pour différentes tailles de réacteur. La production de dpa augmente avec la taille du cœur considéré à cause de l'augmentation rapide du flux neutronique avec la puissance thermique. Un calcul estimant les coefficients de contre-réaction au démarrage du réacteur pour différents volumes montre un effet de densité très fort, a contrario de l'effet Doppler presque négligeable. Cependant, il est amélioré dans les cœurs de grandes tailles par l'adoucissement du spectre. Des optimisations géométriques du circuit combustible à l'aide de corrélations neutroniques-thermohydrauliques ont permis de déduire une puissance spécifique limite pour les différentes configurations étudiées. Enfin, le déploiement de RSF dans une flotte électronucléaire en considérant différentes stratégies de retraitement ont permis d'estimer l'impact desdits réacteurs sur le cycle du combustible.

Mots-clés : Réacteur à Sels Fondus (RSF), incinérateur d'actinides, prototype, transuraniens

Abstract

This PhD work focuses on the design of a chloride-based salt fast spectrum molten salt reactor to convert transuranian elements produced in pressurised water reactors. The aim of such a reactor is to close the fuel cycle and to reduce the high-level waste production. First, studies on the ternary fuel salt composition have shown that a high concentration in actinides, and thus a small magnesium proportion, is needed for a small core to be critical. They also indicated the need to concentrate the actinides when using a degraded isotopic vector for a given core volume. Neutron damages to the materials have been estimated for an identical power density in different core sizes. dpa production increases with the size of the reactor due to the rapid growth of the neutron flux with the thermal power. An estimation of the feedback coefficients at the reactor start-up for different reactor sizes has been carried out resulting in a very negative density feedback value, whereas the Doppler feedback coefficient is almost null. However, it is slightly improved in larger cores, thanks to the softening of the neutron spectrum. Geometrical optimisations of the fuel circuit with thermalhydraulic-neutronics correlations allows to deduce the power density limit for the different configuration studies. Finally, MSR deployments in an electronuclear fleet with different fuel cycle strategies were considered to assess the impact of such reactors on the fuel cycle.

Keywords : Molten Salt Reactor (MSR), actinide burner, prototype, transuranic elements

