



HAL
open science

Conception et optimisation d'un réacteur de type MSFR en sels chlorures et en cycle uranium

Hugo Pitois

► **To cite this version:**

Hugo Pitois. Conception et optimisation d'un réacteur de type MSFR en sels chlorures et en cycle uranium. Génie civil nucléaire. Université Grenoble Alpes [2020-..], 2023. Français. NNT : 2023GRALI081 . tel-04414907

HAL Id: tel-04414907

<https://theses.hal.science/tel-04414907>

Submitted on 24 Jan 2024

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

**Conception et optimisation d'un réacteur de type MSFR
en sels chlorures et en cycle uranium**

**Design and optimisation of a Molten Salt Fast Reactor using
chloride salts and uranium cycle**

Présentée par :

Hugo PITOIS

Thèse soutenue publiquement le **12 octobre 2023**, devant le jury composé de :

Éric Dumonteil Directeur de recherches, CEA Saclay	Rapporteur
Alain Hébert Professeur, Ecole Polytechnique de Montréal	Rapporteur
Frédéric Bertrand Directeur de recherches, CEA Cadarache	Examineur
Laurent Derôme Professeur des universités, Université Grenoble Alpes	Président
Lydie Giot Maître-assistant, IMT Atlantique	Examinatrice
Daniel Heuer Directeur de recherches émérite, CNRS	Co-directeur de thèse
Axel Laureau Chargé de recherches, CNRS	Co-encadrant de thèse
David Lecarpentier Ingénieur docteur, EDF R&D	Examineur
Elsa Merle Professeure des universités, Institut Polytechnique de Grenoble	Directrice de thèse
Léa Tillard Ingénieure docteur, Orano	Examinatrice



Remerciements

Amusante section que celle des remerciements pour une thèse : à la fois la plus inutile scientifiquement, et paradoxalement, peut-être la plus importante.

Je commencerai par remercier Elsa Merle, ma co-directrice de thèse, et véritable coeur biologique de l'équipe MSFR : qui travaille sans relâche à toute heure et nous apporte les ressources indispensables pour avancer (du serveur de calcul au gâteau au chocolat maison). Merci Elsa pour tout : pour m'avoir donné une chance en stage puis en thèse (puis en post-doc, et qui sait jusqu'où!), pour avoir été là pour corriger les articles et le manuscrit à des heures indues, et pour permettre à tes doctorants d'aller en conférence dans des beaux pays. Merci de t'occuper de toutes les démarches à chaque fois. Merci pour ta pédagogie et tes qualités humaines. Et pour tout le reste.

Merci beaucoup à Daniel Heuer, mon co-directeur de thèse, pour m'avoir également accepté en stage puis en thèse, et pour beaucoup d'autres choses : les discussions sur tous les sujets qui me laissent avec des étoiles dans les yeux, le temps que tu as pris pour m'expliquer les codes de calcul, et pour cette super balade au lac du Crozet. Et pour tout le reste.

Vient ensuite Axel Laureau, que je tiens à remercier chaleureusement. Merci Axel pour tes conseils, pour ton aide et tes explications quand j'en ai eu besoin (mais si, c'est logique que le flux sous Serpent2 soit en cm.src^{-1} !). Merci pour tes scripts python qui catalysent notre recherche. J'ai grandement apprécié passer cette dernière année dans le même bureau que toi, et j'aurais donné beaucoup pour que tu y atterrisses plus tôt. Je te remercie d'être resté au labo aussi longtemps pendant la période de rédaction (j'ai perdu le compte des heures avec des musiques toutes plus iconiques les unes que les autres en fond), et d'avoir pris le temps pour toutes les répétitions avant la soutenance. Et que le lecteur sache que sans tes suggestions, les graphes seraient beaucoup moins beaux (xmgrace ou pas xmgrace, il faut Python!).

Merci à mes collègues de l'équipe MSFR avec qui j'ai eu la chance de travailler pendant ces (un peu plus de) trois ans. Thibault, j'ai pris beaucoup de plaisir à échanger avec toi sur tous les sujets, et je pense en être ressorti un peu meilleur en tant qu'être humain. Merci aussi d'avoir assuré pour la visioconférence pendant la soutenance. Laura, respect pour ta persévérance dans le cadre de ta propre thèse, et merci pour le RAPTOR à qui j'ai proposé une couverture pour lui tenir chaud l'hiver;). Louiliam, tu m'as impressionné à plus d'un titre, le plus mémorable sera sans doute ta capacité à t'appropriier les codes de calcul (la spéléologie a perdu un de ses plus éminents talents le jour où tu t'es épris de physique nucléaire). Tu feras un excellent docteur et tu apercevras le seul qui en doutera devant le miroir. Michel qui, chaque année, fait face à la nouvelle bleussaille en chimie, j'ai beaucoup aimé parler de tout avec toi. Thomas, force et courage pour ta dernière année, et merci de nous avoir mené à bon port sur les terres de Dante. Max, merci pour ton super travail pendant ton stage, et bonne chance pour la suite. Et bonne continuation à tous les autres avec qui j'ai moins interagi mais avec qui j'ai pris plaisir à discuter : Anna, Juliette, ... Mention spéciale pour Johann qui saura prendre sa revanche sur les circonstances et obtenir le titre.

Merci à Lydie Giot, qui a réussi son pari de soutenir avant moi;) Merci de m'avoir accueilli en stage M1 et à nouveau en thèse quelques semaines, c'est toujours agréable d'échanger avec toi.

Merci à Frédéric Bertrand. J'ai apprécié chacun de nos échanges, formels (merci d'ailleurs à toi et à Lydie pour le CSI!) comme informels (je m'arrangerai pour être dans ton équipe au babyfoot plutôt qu'en face la prochaine fois!).

Merci à Sylvie Delpech, pour ton temps et ta franchise que j'aime beaucoup.

Merci à Jérôme Serp et Gérald Senentz à qui j'ai tendu des traquenards pour qu'ils contribuent avec Sylvie et Michel au schéma de traitement des sels chlorures.

Merci aux membres du jury qui m'ont fait l'honneur de leur présence et que je n'ai pas déjà cités. Eric Dumonteil et Alain Hébert qui ont accepté d'être rapporteurs, merci pour vos retours bienveillants; Laurent Derôme en tant que président, merci pour ta gentillesse; David LeCarpentier, pionnier sur la reprise des RSF en France avec Amster; et enfin Léa Tillard, merci pour tous tes retours sur le manuscrit, j'ai été touché par ton implication et nul doute que la version finale du papier s'en porte mieux :).

J'en profite aussi pour faire un clin d'oeil à nos collègues des bureaux d'à côté : Franco, Martin, Jonas, et les permanents de l'équipe Physique des réacteurs. Un autre pour les collègues du CEA au jour où j'écris ces lignes : Camille, Nathan, Martin...

Merci également à l'équipe administrative qui nous aide dans nos démarches et qui n'ont pas toujours la tâche facile, avec un mot en particulier pour Agnès Lucas, toujours là pour nous.

Merci à Matthieu pour avoir fait office de psychologue dans mes moments de perplexité, et merci à Alexandre pour nos échanges pendant les pauses cafés.

Et enfin, merci à mes parents qui m'ont offert deux choses qui n'ont pas de prix : une éducation que j'estime davantage chaque année (quoi que j'en fasse aujourd'hui), et un soutien pour pouvoir faire des études longues dans de très bonnes conditions.

Dans l'effort constructif, la dignité.

Table des matières

Introduction	7
1 Notions de base des réacteurs nucléaires à sels fondus	10
1.1 Neutronique	11
1.1.1 Réactions principales	11
1.1.2 Sections efficaces	11
1.1.3 Réaction en chaîne	12
1.1.4 Contrôle de la réaction en chaîne	13
1.1.5 Équation de Boltzmann	16
1.1.6 Cycles, régénération, incinération, spectres	16
1.1.7 Evolution du combustible et chaleur résiduelle	18
1.2 Thermique et thermohydraulique	19
1.2.1 Transferts de chaleur	19
1.2.2 Convection naturelle	20
1.2.3 Pertes de charge	21
1.3 Chimie	22
1.3.1 Liaison ionique et sels	22
1.3.2 Stabilité des espèces en solution et potentiel d'oxydo-réduction	22
1.3.3 Mélange eutectique, diagrammes binaire et ternaire	23
1.3.4 Corrosion	24
1.3.5 Méthodes d'extraction	25
1.4 Sûreté et prolifération	25
1.4.1 Éléments de sûreté	25
1.4.2 Prolifération	26
2 Programmes et projets de Réacteurs à Sels Fondus	27
2.1 Modèles historiques des États-Unis d'Amérique	28
2.1.1 Programme ARE	28
2.1.2 Programme MSRE	28
2.1.3 Projet MSBR	29
2.2 Histoire récente des RSF	30
2.2.1 Réacteurs à sels fluorures	30
2.2.2 Motivations pour un MSFR en sels chlorures	34
2.2.3 Projets de RSF en sels chlorures	35
2.2.4 Émergence de nouveaux acteurs	39
2.3 Bilan sur l'état de l'art	39
3 Présentation des outils	40
3.1 Codes de transport neutronique	41
3.1.1 Codes déterministes	41
3.1.2 Codes stochastiques	42
3.2 Évolution des matières et scénarios	43
3.2.1 Code d'évolution REM	43
3.2.2 Code de scénario SDF/ISF	44
3.3 Thermohydraulique et couplage avec neutronique	46
3.3.1 SONGe	46
3.3.2 LiCore	48
3.3.3 SNCF	50

4	Optimisation d'une configuration de référence du MSFR-CI	52
4.1	Présentation du concept MSFR	53
4.2	Cahier des charges du MSFR-CI	54
4.3	Choix généraux	54
4.3.1	Composition du sel combustible	54
4.3.2	Géométrie du circuit combustible	58
4.4	Optimisation du circuit combustible	59
4.4.1	Sel combustible	59
4.4.2	Matériau de structure	67
4.4.3	Sel fertile	70
4.4.4	Protection neutronique	74
4.4.5	Configuration standard et paramètres neutroniques	80
4.5	Conclusion de l'optimisation de la configuration initiale standard	81
5	MSFR-CI : calculs neutroniques en évolution	83
5.1	Calculs sans contrôle	84
5.2	Stratégie de traitement	84
5.3	Couverture fertile et résistance à la prolifération	87
5.4	Traitement du combustible	90
5.4.1	Effets des différents contrôles	90
5.4.2	Choix des débits de traitement pour la configuration de référence	95
5.5	Bilans massiques	97
5.5.1	MSFR-CI en configuration standard	97
5.5.2	Comparaison avec le MSFR de référence	99
5.5.3	Distribution des produits de fission	100
5.6	Évaluation de la puissance résiduelle	102
5.6.1	Méthode de calcul	102
5.6.2	Comparaison des puissances résiduelles entre deux concepts MSFR	104
5.7	Études de sensibilité	105
5.7.1	Étude préliminaire sur l'impact du vase d'expansion sur l'évolution	105
5.7.2	Étude préliminaire sur l'impact du chargement initial	107
5.7.3	Étude préliminaire sur l'impact de la librairie de données nucléaires	107
5.8	Conclusion sur les calculs neutroniques en évolution	109
6	Comportement du MSFR-CI en transitoires	111
6.1	Transitoires sur temps courts	112
6.1.1	Modélisation du MSFR-CI avec le code système LiCore	112
6.1.2	Insertions de réactivité	113
6.1.3	Suivis de charge	116
6.1.4	Accident de sur-refroidissement à basse puissance	117
6.2	Transitoires sur des temps longs calculés avec le code SNCF	119
6.2.1	Définition du scénario considéré	119
6.2.2	Résultats	121
6.3	Conclusion sur les études de transitoires	124
7	Scénarios d'insertion du réacteur MSFR-CI dans des parcs de type français	126
7.1	Demande électrique considérée	127
7.2	Scénario de référence : REP utilisant du combustible UOX et MOX	127
7.3	Scénarios avec MSFR	129
7.4	Conclusion sur les études de scénarios	133
8	Modèle alternatif : le SyRE	135
8.1	Contexte	136
8.2	Choix principaux	136
8.3	Dimensionnement et optimisation de la couverture fertile	136
8.4	Conception du circuit contenant le sel combustible	139
8.4.1	Définition des critères pour un incinérateur	139
8.4.2	Impact de la puissance volumique	140
8.4.3	Dimensionnement des protections neutroniques des échangeurs de chaleur	144
8.4.4	Utilisation du B ₄ C comme piège à neutrons thermiques	144
8.4.5	Dimensionnement du vase d'expansion	146

8.4.6	Utilisation du combustible UOX usé	148
8.5	Scénarios pour un parc de type français	149
8.5.1	Déploiement des SyRE sans MSFR	149
8.5.2	Déploiement des SyRE puis des MSFR de référence	150
8.5.3	Arrêt anticipé de la production de MOX	150
8.6	Conclusion des études préliminaires	150
Conclusions et perspectives		153
Acronymes		158
Bibliographie		159
Table des figures		165
Liste des tableaux		169
A Aide-mémoire : les différents réacteurs étudiés		171
B Fichiers d'entrée pour une simulation simple (sphère de ^{239}Pu de 5cm de rayon) avec les codes MCNP, Serpent2 et OpenMC		172
B.1	Fichier d'entrée – code MCNP	172
B.2	Fichier d'entrée – code Serpent2	172
B.3	Fichier d'entrée – code OpenMC	173
C Prédimensionnement des boucles EPuR - cartes complètes		174
C.1	Optimisation pour le MSFR de référence	174
C.2	Optimisation pour le MSFR-Cl (60m ³ de sel combustible)	175
D Scénarios avec le code SDF/ISF		176
D.1	Scénarios mondiaux	176
D.1.1	Scénarios mondiaux de référence : déploiement de REP avec ou sans combustible MOx	176
D.1.2	Scénarios mondiaux avec déploiement des MSFR de référence	178
D.1.3	Scénarios mondiaux avec déploiement des MSFR-Cl	179
E Inventaires des scénarios avec le concept SyRE		183
E.1	Evolution des inventaires pour le scénario avec déploiements des SyRE sans MSFR	183
E.2	Evolution des inventaires pour le scénario avec déploiement des SyRE et des MSFR	183
E.3	Evolution des inventaires pour le scénario avec déploiement des SyRE pour les combustibles UOX usés et MOX usés, et des MSFR	184

Introduction

L'accès à l'énergie est une composante vitale au développement et à la prospérité des sociétés. Jusqu'au début du XIX^{ème} siècle, l'énergie utilisée par l'humanité provient presque exclusivement de la biomasse, de la combustion du bois en particulier. A partir de 1850, la révolution industrielle s'accompagne de l'utilisation de plus en plus importante du charbon. Le XX^{ème} siècle voit l'explosion de l'utilisation du pétrole, puis du gaz. A ce jour, ces énergies fossiles dominent toujours le mix énergétique mondial : en 2018, la consommation mondiale d'énergie primaire était assurée à 32% par le pétrole, 27% par le charbon, 23% par le gaz (les 18% restants regroupant les énergies dites renouvelables et le nucléaire)[1]. Ces sources d'énergie sont autant exploitées pour les raisons suivantes. Premièrement, elles sont concentrées et pilotables. La combustion d'une tonne de pétrole libère environ 42 GJ (15 GJ pour une tonne de bois), et la disponibilité de cette énergie n'est pas conditionnée aux conditions météorologiques. Deuxièmement, les énergies fossiles ont été facilement accessibles par le passé (gisements proches de la surface) et peu chères. L'abondance énergétique a rendu possible une élévation du niveau de vie sans précédent pour le monde occidental (déplacement des emplois du secteur primaire au secondaire puis tertiaire, prospérité économique, acquis sociaux).

Cependant, la combustion d'hydrocarbures fait apparaître des sous-produits, en particulier du CO₂. Ce gaz, une fois dans l'atmosphère, capture une partie de la lumière solaire ré-émise par la surface de la Terre (le rayonnement infrarouge en particulier) et dissipe cette énergie en chaleur. Ce phénomène appelé effet de serre est à l'origine du dérèglement climatique [2].

Il n'existe pas à ce jour de scénario réaliste de limitation du réchauffement climatique sans réduction massive de l'utilisation des énergies fossiles dont les sources s'épuisent par ailleurs [3]. Se pose alors la question de leur substitution. Il n'y a actuellement que deux sources d'énergie bas carbone suffisamment concentrées et pilotables pouvant leur faire concurrence : les barrages hydrauliques, et les réacteurs nucléaires.

L'énergie nucléaire a connu un développement extrêmement rapide. Le neutron est découvert en 1932 par James Chadwick. L'année suivante, Léo Szilárd théorise la réaction en chaîne. En 1939, Lise Meitner définit le principe de fission nucléaire permettant d'expliquer la formation de baryum suite au bombardement d'uranium par des neutrons, expérience réalisée par Otto Hahn et Fritz Strassmann. En 1942, la première réaction en chaîne contrôlée a lieu dans la pile atomique Chicago Pile 1. Un tel développement a été possible pour une raison simple. La densité énergétique de la matière nucléaire est supérieure de plusieurs ordres de grandeur aux énergies précédemment évoquées. La fission d'une tonne d'uranium 235 libère environ $8.2 \cdot 10^{16}$ J soit 2 millions de fois plus d'énergie que la combustion d'une tonne de pétrole. Dans le contexte de la seconde guerre mondiale, il apparut rapidement que le premier pays à posséder une arme exploitant cette propriété obtiendrait un avantage stratégique sans équivalent. De cette conclusion résulte le projet Manhattan, qui mena à la conception des premières bombes nucléaires.

La guerre froide succède à la seconde guerre mondiale, et les militaires recherchent d'autres applications de l'énergie nucléaire. La marine américaine, représentée par l'amiral Hyman Rickover, montre de l'intérêt pour le concept du Réacteur à Eau Pressurisée (REP) qui serait suffisamment compact pour être placé dans un sous-marin. Puisque la fission ne requiert pas d'oxygène et utilise un combustible très concentré sans besoin d'un moteur mécanique bruyant, la durée d'immersion du sous-marin augmente largement et il gagne en discrétion. Le projet aboutit avec la construction de l'USS Nautilus (mis en service en 1955), premier bâtiment naval à propulsion nucléaire. Lorsqu'ensuite des applications civiles sont envisagées pour la production d'électricité, Rickover va promouvoir cette technologie auprès des industriels [4]. La technologie des REP va progressivement s'imposer pour les réacteurs commerciaux grâce à son retour d'expérience toujours plus important.

En France, l'industrie nucléaire commence avec la création du Commissariat à l'Energie Atomique (CEA) en 1945. Il est chargé de mener des recherches sur les applications de l'énergie nucléaire, tant civiles que militaires. Le CEA développe la filière des réacteurs UNGG (Uranium Naturel Graphite Gaz), avec le premier réacteur G1 construit en 1956. En 1973, le premier choc pétrolier pousse les dirigeants français au développement du nucléaire civil pour diminuer la dépendance du pays aux importations d'hydrocarbures. Il faut alors choisir une

technologie parmi les deux seules suffisamment matures du point de vue industriel et accessibles : les UNGG et les REP. Les UNGG ayant montré certaines difficultés techniques, EDF se tourne vers la technologie REP proposée par Framatome (licence américaine de Westinghouse pour les premières unités, puis licence française). L'électricien français met en service 58 REP entre 1977 et 2000. Ces réacteurs ont fourni une électricité abondante, décarbonée, et stable à un prix compétitif pendant plus de trois décennies.

A ce jour, l'industrie nucléaire fait face à un changement de paradigme illustrant des priorités différentes. De nouveaux défis techniques émergent suite aux nouvelles normes de sûreté entraînant des coûts et délais des nouveaux projets plus importants que dans le passé ; le soutien politique fluctue et l'usage de l'énergie nucléaire ne fait pas consensus au sein des populations. Le Forum International Generation IV (appelé par son acronyme anglais GIF) fondé en 2000, a mis en place des critères de sélection pour retenir les concepts de réacteurs les plus prometteurs, à même de faire face à ces difficultés. Parmi les 6 concepts retenus à l'issue du processus de sélection figurent les réacteurs à sels fondus. Depuis 2008, le MSFR (Molten Salt Fast Reactor, ou réacteur à neutrons rapides à sels fondus) est le concept de référence des réacteurs à sels fondus.

Les réacteurs à sels fondus, à l'image du REP, trouvent leur origine dans un programme de recherche militaire. En 1946, l'armée de l'air des États-Unis entreprend l'étude de faisabilité d'un avion à propulsion nucléaire, un bombardier dont l'atout principal serait une très grande autonomie. Les turboréacteurs d'avions nécessitent des températures élevées, le réacteur doit avoir un volume très restreint, et un temps de réponse très rapide pour pouvoir satisfaire les exigences du pilote. Ces contraintes étant très fortes pour les réacteurs à combustible solide, le concept de réacteurs à sels fondus fut finalement retenu. Les réacteurs à sels fondus (RSF) ont un combustible sous forme liquide, fonctionnent à haute température (entre 500°C et 800°C) et à basse pression. La matière fissile (uranium, plutonium) est dissoute dans des sels fondus (à base fluorure ou chlorure) qui jouent le double rôle de combustible et caloporteur. Cette caractéristique unique aux RSF leur confère certains avantages comme une grande tolérance aux variations de puissance.

Le MSFR de référence est un réacteur de puissance surrégénérateur de 3 GW_{th} qui fonctionne sur le cycle thorium en sels fluorures. Étudié et optimisé depuis une quinzaine d'années par l'équipe MSFR du CNRS de Grenoble, il se montre très prometteur en termes de sûreté et de performances. Néanmoins, il est également intéressant d'étudier un concept alternatif pour le seul autre cycle du nucléaire exploitable à l'échelle industrielle, le cycle uranium actuellement mis en œuvre dans les réacteurs commerciaux. La mise en place de ce cycle est facilitée dans les sels chlorures permettant la dissolution importante d'uranium et de transuraniens (TRU). Les TRU sont des éléments que l'on retrouve dans les combustibles usés. Il s'agit du plutonium, et des actinides dits mineurs car produits en faible quantité. Ces actinides mineurs représentent actuellement la plus grande partie des déchets à haute activité à vie longue issus des réacteurs actuellement en fonctionnement, mais ils pourraient servir de combustible pour les MSFR. Ces éléments seraient valorisés et incinérés du même coup. Les MSFR représentent ainsi une option attractive qui pourrait permettre la fermeture du cycle du combustible.

Cette thèse porte sur la conception et l'optimisation du réacteur MSFR en cycle $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ en sels chlorures, le MSFR-Cl, et sa comparaison avec le MSFR de référence. Elle est financée par le projet européen SAMOSAFER [5] qui porte principalement sur l'analyse de sûreté des réacteurs à sels fondus. L'un des travaux de ce projet consiste à identifier la dépendance technologique des outils développés pour le MSFR de référence, qui seront réutilisés pour le MSFR-Cl. Ce dernier pourra également être utilisé comme objet de référence pour tester de nouveaux outils comme MOSAICS [6], ou servir de point de départ pour d'autres versions de réacteurs à sels chlorures [7].

Ce manuscrit commence par la présentation des notions requises pour l'étude des RSF réalisée ici. Cela inclut la neutronique, la thermohydraulique mais aussi la chimie, très importante du fait de la forme liquide du combustible. Les questions de sûreté et de prolifération seront abordées du point de vue de la neutronique et de la chimie.

Un deuxième chapitre est dédié à l'état de l'art, en décrivant les réacteurs historiques exploités, ainsi que les concepts étudiés qui n'ont pas été construits. Les retours d'expérience pour la conception sont listés.

Un troisième chapitre porte sur les outils utilisés dans le cadre de cette thèse. Il s'agit d'abord des codes de transport neutroniques (Monte-Carlo), et des codes dédiés à l'évolution des matières. Puis les codes permettant l'étude de la thermique, avec ou sans couplage avec la neutronique, sont présentés.

Ces outils sont d'abord appliqués dans le quatrième chapitre, où l'état statique du MSFR-Cl est défini. Le cahier des charges est présenté, les choix généraux de conception sont expliqués, puis l'optimisation du MSFR-Cl des points de vue neutronique, chimique, thermique, dans son état initial est effectuée. Cela concerne le sel combustible mais également le sel fertile, les protections neutroniques et les structures.

Le cinquième chapitre présente l'évolution du MSFR-Cl lors de son exploitation. Un calcul sans contrôle met en évidence les besoins de traitement et d'alimentation du système, organisés dans un schéma de traitement

réalisé en collaboration avec des experts en chimie de plusieurs organisations. Puis les calculs d'évolution avec contrôles, réalisés avec le code REM, illustrent l'impact des différentes alimentations et la sensibilité du réacteur aux débits d'extraction, pour le sel combustible comme pour le sel fertile.

Le comportement du MSFR-CI lors de différents transitoires est analysé dans le sixième chapitre. Sa réponse à des initiateurs d'incidents ou d'accidents ainsi qu'au suivi de charge est testée puis comparée à celle du MSFR de référence.

Le septième chapitre s'intéresse à l'impact du réacteur à l'échelle d'un parc, français ou mondial, sur les inventaires. Sont comparés les cas avec ou sans MSFRs, et les aspects positifs ou négatifs du MSFR-CI par rapport au MSFR de référence sur le cycle.

Finalement, le huitième et dernier chapitre se base sur les conclusions des précédents et propose l'ébauche d'une version alternative du MSFR-CI, un réacteur de plus basse puissance conçu pour le gestionnaire du combustible. L'objectif est de compléter l'offre de gestion des matières usées actuellement envisagée [8] par une offre de combustible sur le cycle thorium (^{233}U), permettant une transition vers de nouveaux réacteurs ou l'accès à de nouveaux partenaires, dans un contexte où l'appel à l'énergie nucléaire pourrait augmenter considérablement au niveau mondial.

Chapitre 1

Notions de base des réacteurs nucléaires à sels fondus

Ce chapitre regroupe l'essentiel des notions utilisées dans ces travaux pour l'étude des réacteurs à sels fondus. Il est divisé en quatre parties. La première traite des notions de neutronique, des sections efficaces à la cinétique. La seconde détaille les notions de base de thermo-hydraulique. La troisième porte sur la chimie. Enfin, une quatrième partie s'intéresse brièvement à la sûreté et à la prolifération.

Sommaire

1.1 Neutronique	11
1.1.1 Réactions principales	11
1.1.2 Sections efficaces	11
1.1.3 Réaction en chaîne	12
1.1.3.1 Concept	12
1.1.3.2 Conséquences sur la conception d'un réacteur	12
1.1.4 Contrôle de la réaction en chaîne	13
1.1.4.1 Rôle des neutrons retardés	13
1.1.4.2 Contre-réactions	15
1.1.5 Équation de Boltzmann	16
1.1.6 Cycles, régénération, incinération, spectres	16
1.1.7 Evolution du combustible et chaleur résiduelle	18
1.1.7.1 Equation de Bateman	18
1.1.7.2 Chaleur résiduelle	19
1.2 Thermique et thermohydraulique	19
1.2.1 Transferts de chaleur	19
1.2.2 Convection naturelle	20
1.2.3 Pertes de charge	21
1.3 Chimie	22
1.3.1 Liaison ionique et sels	22
1.3.2 Stabilité des espèces en solution et potentiel d'oxydo-réduction	22
1.3.3 Mélange eutectique, diagrammes binaire et ternaire	23
1.3.4 Corrosion	24
1.3.5 Méthodes d'extraction	25
1.4 Sûreté et prolifération	25
1.4.1 Éléments de sûreté	25
1.4.2 Prolifération	26

1.1 Neutronique

1.1.1 Réactions principales

Le neutron est une particule électriquement neutre. De ce fait, il est nettement moins susceptible d'interagir avec les électrons des atomes qu'avec leur noyau, et les interactions neutron/neutron sont négligeables. Lorsqu'un neutron rencontre un noyau, de nombreuses réactions sont possibles, dont les principales sont décrites ici.

La diffusion élastique notée (n, n_{el}) , peut être assimilée à un choc de sphères solides au cours duquel l'énergie cinétique totale du système est conservée mais celle des constituants évolue. Lorsqu'un neutron perd une partie de sa vitesse par ce processus, on dit qu'il est modéré. On peut démontrer [9] que, pour des énergies de neutron incident grandes devant l'énergie de liaison des atomes constituant les molécules du milieu modérateur, l'énergie cinétique conservée par le neutron après choc est proportionnelle au ratio $\frac{A}{A+1}$, avec A le nombre de masse (représentant la masse du noyau en unité de masse du neutron) du noyau cible. Ceci a pour conséquence que les noyaux légers (hydrogène, béryllium, carbone) sont bien plus efficaces que les noyaux lourds pour thermaliser les neutrons.

La diffusion inélastique notée (n, n') consiste en un choc au cours duquel une partie de l'énergie cinétique du système est convertie en énergie interne pour le noyau, qui passe alors dans un état dit excité ou métastable.

La capture radiative (ou capture stérile) notée (n, γ) consiste à l'absorption du neutron par le noyau. Le noyau passe dans un état excité, et dissipe ce surplus d'énergie par émission d'un rayonnement gamma.

La fission est un processus en deux temps. Premièrement, le noyau absorbe le neutron incident. L'énergie apportée (énergie de liaison + énergie cinétique) le rend instable, et le déforme au point que la répulsion coulombienne prend le pas sur la force nucléaire liant neutrons et protons. Deux à trois neutrons sont émis et les fragments du noyau se repoussent violemment, une partie de l'énergie interne étant convertie en énergie cinétique. Les neutrons émis sont qualifiés de prompts car ils apparaissent lors de ce processus quasi-instantané. La fission d'un noyau lourd produit le plus souvent deux noyaux légers radioactifs, qui vont décroître principalement par rayonnement β^- et γ . Ces noyaux légers et leurs descendants forment les produits de fission (PF).

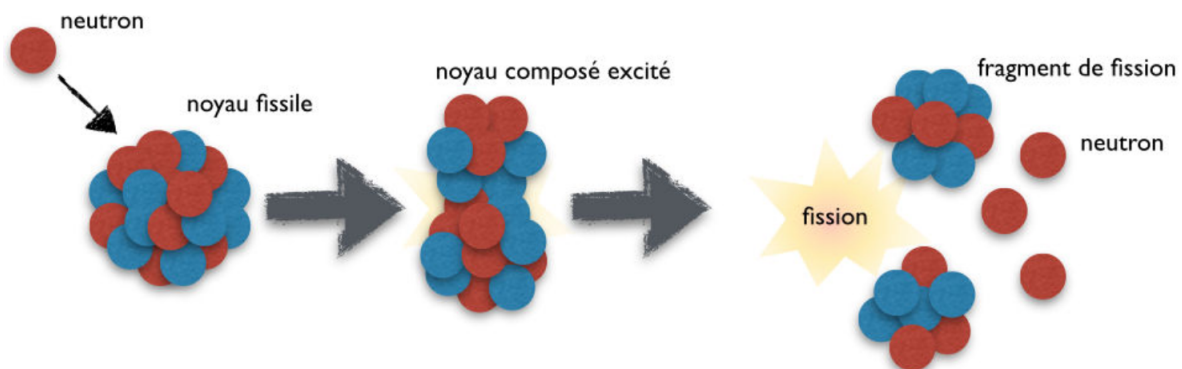


FIGURE 1.1 – Réaction de fission [10]

1.1.2 Sections efficaces

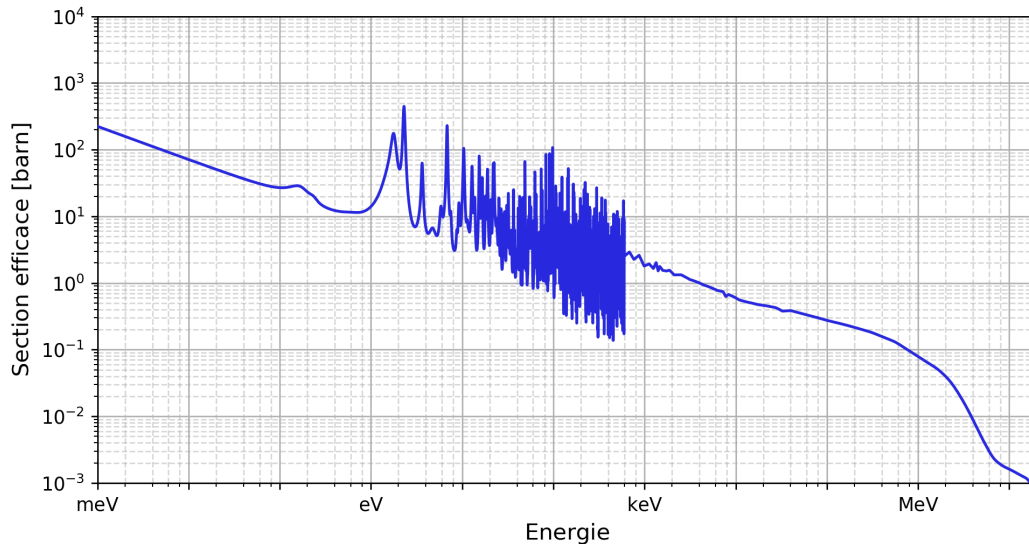
La section efficace microscopique d'un noyau est sa surface apparente par rapport au neutron incident, pour une réaction donnée. Elle est traditionnellement exprimée en barn (b), 1 barn valant 10^{-24}cm^2 , et notée σ . Elle dépend de l'énergie incidente du neutron, comme illustré par la figure 1.2 représentant la section efficace microscopique de capture de l'uranium 238.

Dans la zone de basse énergie ($E < 1$ eV) aussi appelée domaine thermique, la probabilité d'interaction du neutron est directement reliée à sa longueur d'onde définie par la relation de De Broglie : $\lambda = \frac{h}{p} = \frac{h}{mv} = \frac{h}{\sqrt{2Em}}$ [9]. Ainsi σ évolue selon l'inverse de la racine carrée de l'énergie.

Pour des énergies comprises entre ~ 1 eV et ~ 100 keV, appelé domaine épithermique, σ peut voir beaucoup de variations brutales. Ces pics, d'autant plus denses que l'énergie est élevée, sont appelés résonances et correspondent à des niveaux d'énergie du noyau favorisant l'intégration du neutron incident pour ces énergies spécifiques. Tant que les résonances peuvent être mesurées, elles sont dites résolues (jusqu'à 20keV ici) ; sinon elles sont dites non résolues.

Pour des énergies supérieures à ~ 100 keV, appelé domaine rapide, les résonances ne sont plus distinguables en vertu du principe d'incertitude et forment un continuum.

La section efficace microscopique totale σ_{tot} , qui est la somme des σ_r pour toutes les réactions r possibles, peut être assimilée à une probabilité d'interaction neutron/cible qui tend à être d'autant plus élevée que l'énergie du

FIGURE 1.2 – Section efficace microscopique de capture de l' ^{238}U (base de données ENDFB-7.1)

neutron incident est faible. Chaque réaction r a une probabilité d'occurrence valant $\frac{\sigma_r}{\sigma_{tot}}$.

De ce constat, on peut définir les notions de noyaux fissile, fertile, et fissionable. Un noyau fissile, comme le ^{239}Pu , est un noyau qui pourra fissionner quelle que soit l'énergie du neutron incident. Un noyau fertile, comme l' ^{238}U se transformera en noyau fissile après capture d'un neutron (et décroissances radioactives). Un noyau fissionable est un noyau pouvant fissionner, mais qui requiert un neutron incident de suffisamment haute énergie (on parle de réaction à seuil).

On définit également la section efficace macroscopique, notée Σ comme le produit entre la densité de noyaux cibles et la section efficace microscopique : $\Sigma = N \cdot \sigma$. N s'exprime en cm^{-3} , Σ a donc pour unité le cm^{-1} . L'analogie du tir classique s'applique très bien pour ce cas de figure : dans un volume élémentaire quelconque constitué de noyaux identiques, N représente le nombre de cibles et σ_{tot} la taille des cibles. De ce fait, la grandeur $\frac{1}{\Sigma_{tot}}$ s'interprète comme la distance moyenne parcourue par le projectile avant collision, i.e. son libre parcours moyen.

1.1.3 Réaction en chaîne

1.1.3.1 Concept

Puisque la fission est à la fois engendrée par un neutron et source de neutrons, on conçoit qu'une fission puisse résulter in fine en une ou plusieurs nouvelle(s) fission(s) d'où le nom de réaction en chaîne. Plusieurs conditions sont nécessaires pour que cette réaction en chaîne s'auto-entretienne :

- une quantité suffisante de noyaux fissiles pour que les neutrons nouvellement créés rencontrent à leur tour une cible de fission ;
- une probabilité d'interaction neutron/cible suffisamment élevée pour l'avènement de la réaction ;
- des probabilités de fuite hors du matériau ou d'interactions indésirables suffisamment faibles.

Ces critères correspondent respectivement à des exigences sur la densité de matière fissile, l'énergie moyenne des neutrons et la géométrie du système. De cela découle la notion de masse critique, soit la masse de matière fissionnante minimale requise pour qu'une fission s'y produisant engendre en moyenne une autre fission, pour une configuration donnée. Ce rapport "fission sur fission" est appelé facteur de multiplication des neutrons, noté k (qui correspond, dans ces travaux, au k_{eff} , la notion de k_{∞} n'étant pas utilisée ici). Un système au k étant respectivement inférieur à 1, égal à 1, supérieur à 1 sera qualifié de sous-critique, critique, sur-critique.

1.1.3.2 Conséquences sur la conception d'un réacteur

Un concepteur de réacteurs a plusieurs leviers pour obtenir un réacteur critique. Le premier est de choisir une géométrie adaptée. Pour minimiser l'inventaire initial, il faut choisir celle présentant le rapport volume/surface maximum, soit une sphère. Cependant, pour faciliter la fabrication des éléments, les cœurs de réacteurs sont généralement ortho-cylindriques. Le second est la proportion de matière fissile dans le combustible (soit la grandeur N). Un Réacteur à Eau Pressurisée (REP) ne peut pas utiliser l'uranium naturel (0.72% d' ^{235}U fissile) directement comme combustible (l'eau légère absorbe trop de neutrons pour cela), d'où son besoin en uranium

enrichi (à fraction ^{235}U artificiellement élevée à 3-5%). Le troisième est l'énergie moyenne des neutrons, qui va être très dépendante des matériaux composant le cœur. L'eau est un modérateur, elle déplace donc l'énergie des neutrons vers la zone thermique, ce qui augmente les probabilités d'interactions. La figure 1.3 illustre ceci en montrant le spectre (voir section 1.1.6) d'un assemblage de REP comparé au même système sans eau, fictif.

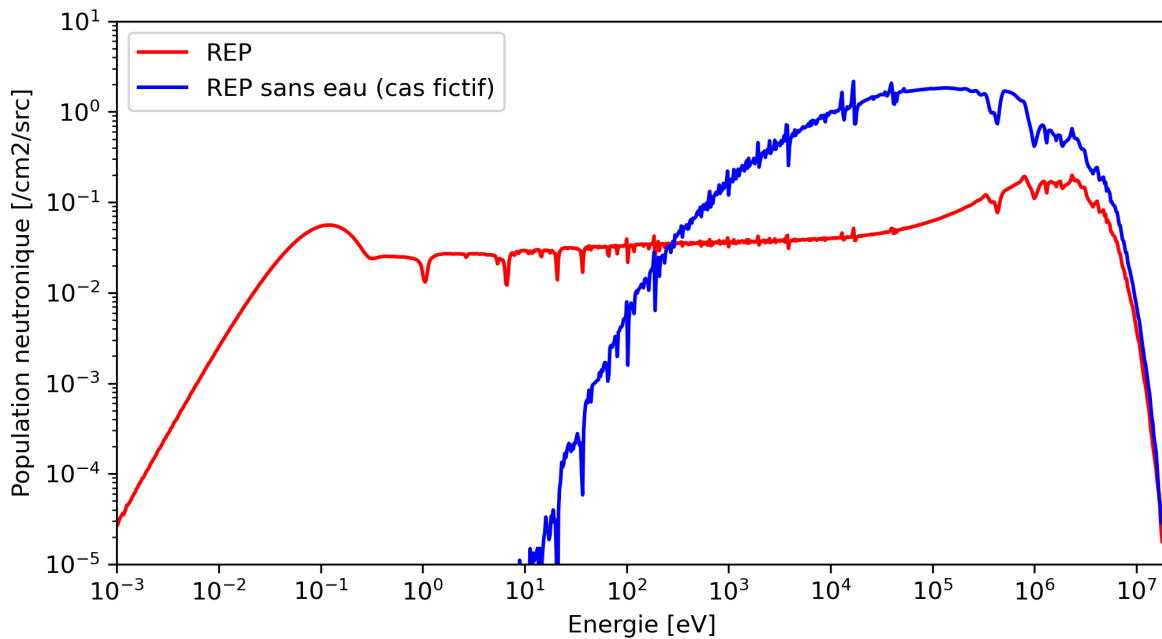


FIGURE 1.3 – Effet du modérateur sur l'énergie moyenne des neutrons

Inversement, un réacteur à neutrons rapides va devoir utiliser un combustible plus enrichi et/ou un cœur plus gros.

1.1.4 Contrôle de la réaction en chaîne

1.1.4.1 Rôle des neutrons retardés

La réactivité est la grandeur caractérisant l'écart à la criticité. Elle est notée ρ et est définie par $\rho = \frac{k-1}{k}$. Elle est exprimée en pcm : $1 \text{ pcm} = 10^{-5}$.

Supposons dans un premier temps que la seule source de neutrons dans le réacteur soit les neutrons prompts générés lors des fissions. On définit les grandeurs suivantes :

- $n(t)$ la quantité de neutrons à l'instant t ;
- l la durée de vie des neutrons (de la naissance par fission à la disparition par absorption ou fuite);
- $\Lambda = \frac{l}{k}$ le temps de génération, que l'on peut interpréter comme le temps de réapparition moyenné d'un neutron : si $k=2$ à l'instant t , pour chaque neutron, 2 neutrons apparaîtront en moyenne à $t+l$ après absorption ou fuite du premier, d'où un temps de réapparition moyen par neutron de $l/2$.

L'évolution de la population neutronique dans ce cas de figure est donnée par l'équation (1.1) :

$$\frac{dn(t)}{dt} = \frac{k-1}{l} n(t) = \frac{\rho}{\Lambda} n(t) \Leftrightarrow \frac{n(t)}{n(t=0)} = \exp\left(\frac{\rho}{\Lambda} t\right) \quad (1.1)$$

Dans ce cas de figure, la réponse du système est exponentielle avec le temps. En prenant $\Lambda=10^{-5}\text{s}$ (un entre-deux entre $\Lambda \simeq 10^{-4}\text{s}$ des REP et $\Lambda \simeq 10^{-6}\text{s}$ des réacteurs à neutrons rapides) et $\rho=10\text{pcm}$, on obtient une augmentation d'un facteur 22000 de la population neutronique en 1s. La puissance thermique émise étant directement fonction de la population neutronique, il serait impossible en pratique d'exploiter un système soumis à de tels phénomènes. Il se trouve qu'un réacteur possède une deuxième source de neutrons, qui sont issus de la décroissance de certains produits de fission. Lorsque l'on observe la courbe de stabilité des noyaux figure 1.4, on remarque que les noyaux lourds présentent un ratio neutrons/protons de l'ordre de 1.5, alors que les noyaux légers sont plus proches de 1.

Les noyaux légers formés par fission conservent le ratio N/Z du noyau lourd (soustraction faite des neutrons prompts) et présentent donc un surplus de neutrons par rapport aux protons les écartant de la courbe de stabilité. Beaucoup de PF font des décroissances β^- pour gagner en stabilité : un neutron se convertit en proton

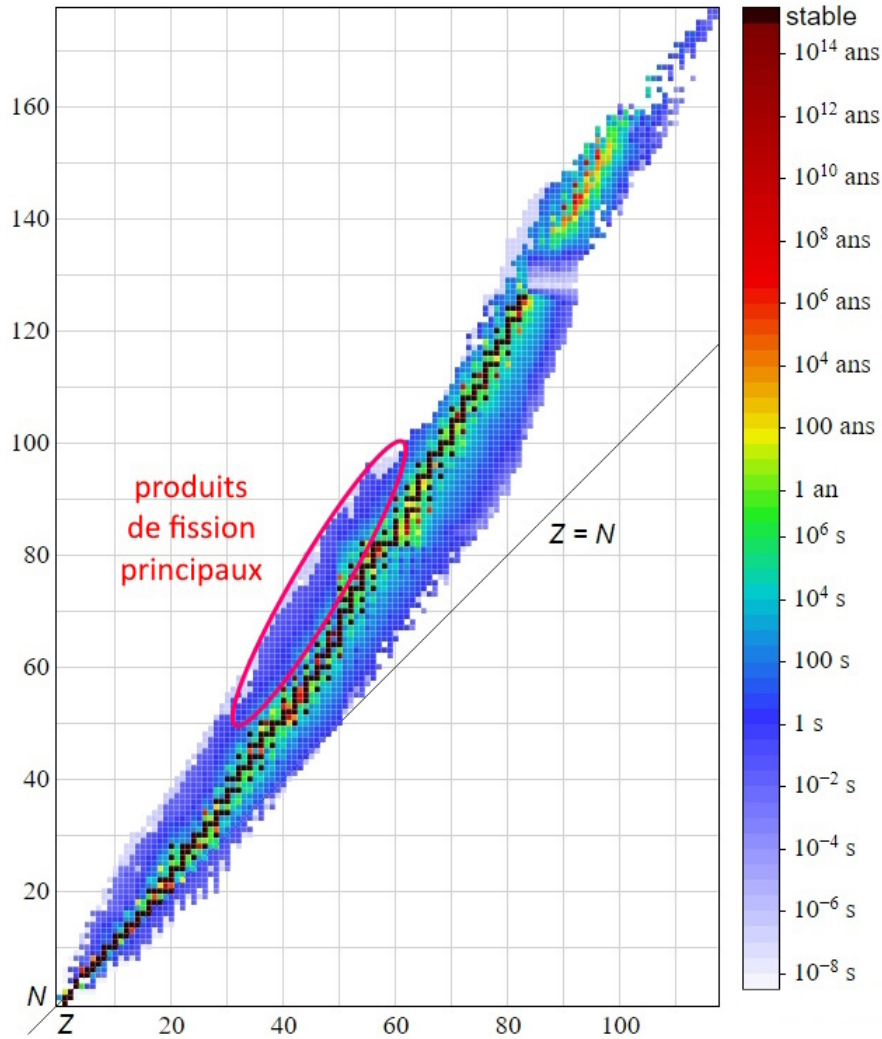


FIGURE 1.4 – Diagramme de Segré [11]

par émission d'un électron. Mais certains PF décroissent par réaction (β^-n), c'est-à-dire par décroissance β^- accompagnée de l'émission d'un neutron, avec un temps de décroissance compris entre 0.1s et quelques minutes. Ces PF sont appelés précurseurs et émettent donc des neutrons avec un certain délai, d'où le terme neutron retardé (delayed neutrons), notés n_d en opposition aux neutrons prompts, notés n_p . Ils sont regroupés en familles f selon leur temps de décroissance moyen. Même s'ils ne représentent qu'une fraction très faible notée β (quelques centaines de pcm) de la population neutronique, les neutrons retardés augmentent significativement le temps de génération réel. Par ailleurs, ils sont émis avec un spectre en énergie χ_d différent de celui des neutrons prompts χ_p , comme illustré par la figure 1.5.

Du fait de cet écart de spectres, la contribution effective à la réaction en chaîne d'un neutron retardé diffère de celle d'un neutron prompt. Pour en tenir compte, on définit β_{eff} comme la fraction effective de neutrons retardés.

On peut alors réécrire les équations de la cinétique de la façon suivante :

$$\begin{aligned} \frac{dn(t)}{dt} &= \frac{\rho - \beta_{\text{eff}}}{\Lambda} n(t) + \sum_f \lambda_f p_f(t) \\ \frac{dp_f(t)}{dt} &= \frac{\beta_{\text{eff}}}{\Lambda} n(t) - \lambda_f p_f(t) \end{aligned} \quad (1.2)$$

Cette formule montre que si $\rho - \beta_{\text{eff}}$ est négatif, alors la contribution seule des neutrons prompts est insuffisante pour maintenir la criticité, et la réaction est pilotée par les neutrons retardés. En revanche, si $\rho - \beta_{\text{eff}}$ est

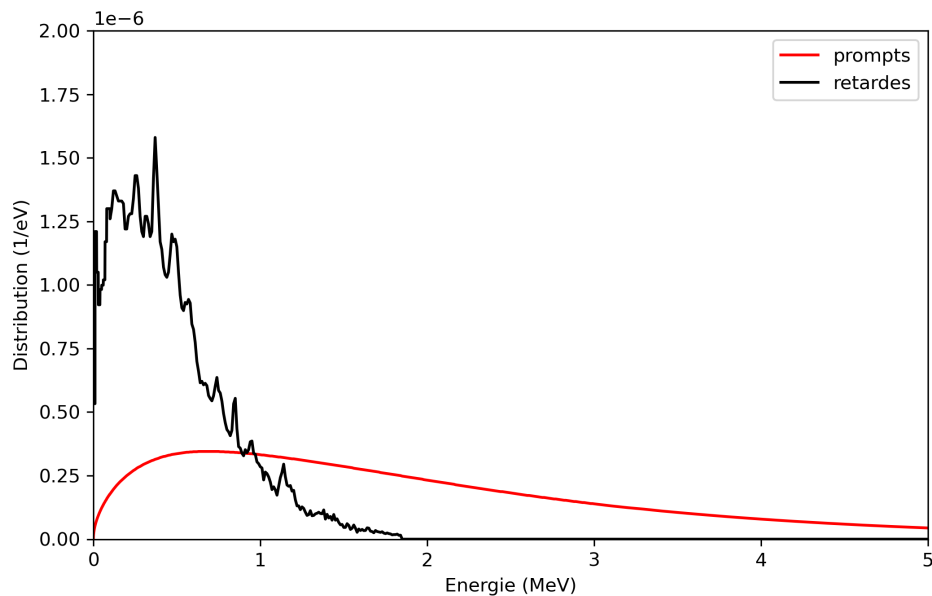


FIGURE 1.5 – Spectre d'émission des neutrons prompts et retardés par fission du ^{239}Pu (base de données ENDFB-7.1)[12]

positif, i.e. si la réactivité excède β_{eff} , alors les neutrons prompts sont suffisants pour entretenir la réaction en chaîne. On parle de surcriticité prompte, et la population neutronique croît exponentiellement.

1.1.4.2 Contre-réactions

On appelle contre-réaction la réponse d'un système soumis à une perturbation. Si cette réponse conduit à amplifier la perturbation, alors on considère la contre-réaction positive. A contrario, si le système revient spontanément à son état initial, on considère la contre-réaction négative. Plusieurs phénomènes peuvent contribuer à la contre-réaction, on associe à chacun un coefficient. Une des conditions nécessaires pour que le réacteur soit utilisable est que sa contre-réaction totale soit négative à chaque instant et pour toutes les perturbations ayant une chance d'occurrence significative. Dans le cas d'un MSFR (Molten Salt Fast Reactor), deux effets constituent l'essentiel de la contre-réaction thermique : l'effet Doppler et la dilatation du sel combustible. Pour rappel, la probabilité d'interaction d'un neutron avec le milieu est fonction de la section efficace macroscopique, elle-même étant le produit $N \sigma$.

Dans le cas de l'effet Doppler, σ va évoluer avec la température. Lorsque la réactivité augmente, le nombre de fissions augmente donc le combustible s'échauffe. De ce fait, l'agitation thermique des atomes le constituant augmente. Ceci se traduit dans les noyaux par des niveaux d'énergie plus "flous", et in fine en une dilatation des résonances telle qu'illustrée par la figure 1.6. L'aire de la résonance est approximativement conservée, sa valeur maximale diminue mais la gamme d'énergies sur laquelle σ augmente s'élargit. C'est ce dernier phénomène qui l'emporte du point de vue de l'importance de la résonance sur la population neutronique.

Pour toutes les réactions dont la section efficace contient des résonances, le taux de réaction augmente. Sauf à avoir un combustible très enrichi en matière fissile, cela se traduit en pratique par une augmentation de la proportion de captures par rapport aux fissions, et donc une diminution du facteur de multiplication. La quantité de fissions va diminuer, et le combustible revient à sa puissance de départ.

La dilatation du combustible consiste en une baisse de la masse volumique lorsque la température augmente, et réciproquement. Dans le cas du MSFR, la dilatation entraîne une augmentation du volume du sel et équivaut à déplacer le volume excédentaire dans un endroit éloigné du flux neutronique du cœur (le vase d'expansion notamment). Plus le combustible se dilate, plus les noyaux sont éloignés les uns des autres : le facteur N diminue, augmentant la probabilité du neutron de fuir hors du système. Ce faisant, la réactivité diminue, le nombre de fissions également et le combustible revient à sa température initiale. Ce coefficient est appelé indifféremment coefficient de densité ou coefficient de dilatation.

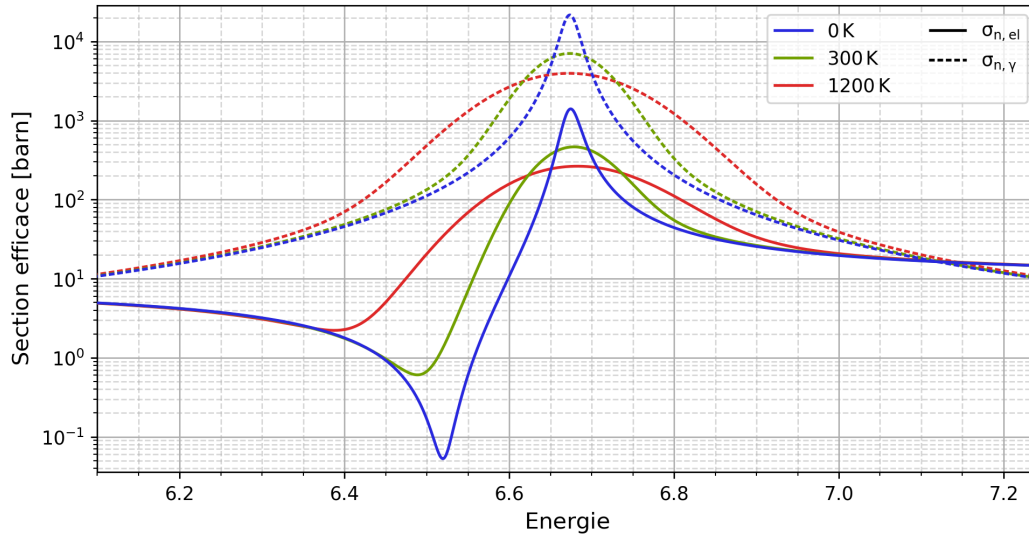


FIGURE 1.6 – Effet de la température sur des résonances de capture et de diffusion élastique de l' ^{238}U

1.1.5 Équation de Boltzmann

L'évolution des neutrons dans un réacteur est régie par l'équation de Boltzmann (1.3).

$$\begin{aligned}
 \frac{1}{v} \frac{\partial \psi(r, \Omega, E, t)}{\partial t} = & -\Omega \cdot \nabla (\psi(r, \Omega, E, t)) - \Sigma_t(r, E) \psi(r, \Omega, E, t) \\
 & + \int_0^\infty \int_0^{4\pi} \Sigma_s(E' \rightarrow E, \Omega' \rightarrow \Omega) \psi(r, \Omega', E', t) d\Omega' dE' \\
 & + \frac{1}{4\pi} \int_0^\infty \nu_p(r) \Sigma_f(r, E') \sum_{j=1}^{J^{fiss}} \chi_{j,p}(E' \rightarrow E) \phi(r, E', t) dE' \\
 & + \sum_f \frac{1}{4\pi} \lambda_f P_f(r, t) \chi_{d_f}(E)
 \end{aligned} \tag{1.3}$$

avec :

- v la vitesse des neutrons ;
- $\psi(r, \Omega, E, t)$ le flux angulaire dépendant de la position r , de l'angle solide Ω , de l'énergie E et du temps ;
- $\phi(r, E, t) = \int_0^{4\pi} \psi(r, \Omega, E, t) d\Omega$ le flux intégré sur l'angle solide.
- J^{fiss} le nombre d'isotopes fissiles.

Cette équation suppose que les neutrons n'interagissent pas entre eux et qu'il n'y a pas d'autres sources de neutrons (fission spontanée ou source externe).

En pratique et en faisant un certain nombre d'hypothèses, elle peut être résolue numériquement par les codes de calcul appelés codes de transport déterministes (voir section 3.1.1), comme DRAGON [13].

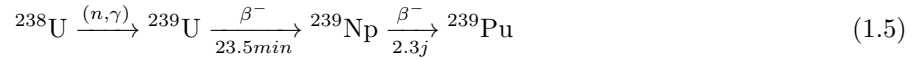
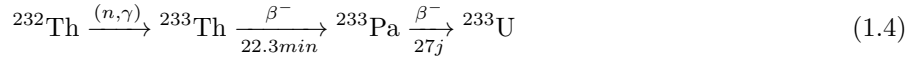
Une autre approche consiste à partir du comportement des neutrons et à suivre leur histoire de leur production (fission) à leur disparition (absorption ou fuite). Les interactions de chaque neutron sont aléatoirement choisies en suivant les probabilités fournies par les sections efficaces. Cette méthode s'affranchit de la résolution directe de l'équation de Boltzmann et des hypothèses simplificatrices utilisées dans les codes de transport déterministes, mais requiert la modélisation d'un grand nombre d'histoires pour obtenir les valeurs recherchées avec une erreur statistique suffisamment faible. Les codes utilisant ce processus sont appelés codes de transport stochastiques ou codes Monte-Carlo. Ils ont été largement utilisés pour ce travail, et seront davantage détaillés dans la section 3.1.2.

1.1.6 Cycles, régénération, incinération, spectres

La fission libère un nombre moyen de neutrons ν dépendant du noyau et de l'énergie du neutron incident. En général, ν est compris entre 2 et 3. Pour maintenir la réaction en chaîne, un de ces nouveaux neutrons sera utilisé pour une nouvelle fission. L'excédent disparaîtra majoritairement par capture et par fuite, une petite fraction sera à l'origine de réactions minoritaires (exemples : (n, p) : capture suivi d'une émission d'un proton ;

(n,α) : capture suivie de l'émission d'un noyau d'hélium).

La régénération consiste à faire usage de cet excès de neutrons, en favorisant la capture sur les noyaux fertiles pour recréer de la matière fissile pendant le fonctionnement même du réacteur. Un tel processus forme un cycle. Il n'existe que deux isotopes fissiles disponibles en grande quantité sur Terre, le ^{232}Th et l' ^{238}U , permettant chacun un cycle du nucléaire exploitable à l'échelle industrielle : le cycle thorium (ou $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$) et le cycle uranium (ou $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$), dont les chaînes de production de noyaux fissiles sont données ci-dessous.



Un réacteur peut consommer plus, autant ou moins de matière fissile qu'il n'en produit. Il est alors qualifié respectivement de sous-générateur, iso-générateur ou surrégénérateur. La régénération possible dépend du noyau fissile et de l'énergie moyenne des neutrons.

Pour faire une fission, la quantité moyenne de noyaux fissiles utilisés vaut $\frac{\sigma_a(E)}{\sigma_f(E)}$. Pour être régénérateur, il faut donc reproduire au minimum cette quantité de noyaux fissiles par fission. On quantifie alors la régénération par la grandeur $\nu(E) - 2\left(\frac{\sigma_a(E)}{\sigma_f(E)}\right) = \nu(E) - 2\left(1 + \frac{\sigma_c(E)}{\sigma_f(E)}\right)$ qui est la différence entre la production ν , et la quantité requise pour d'une part maintenir la réaction en chaîne, d'autre part reproduire les noyaux fissiles. Pour un réacteur iso-générateur, cette grandeur vaut 0. La figure 1.7 la représente pour les deux noyaux fissiles principaux.

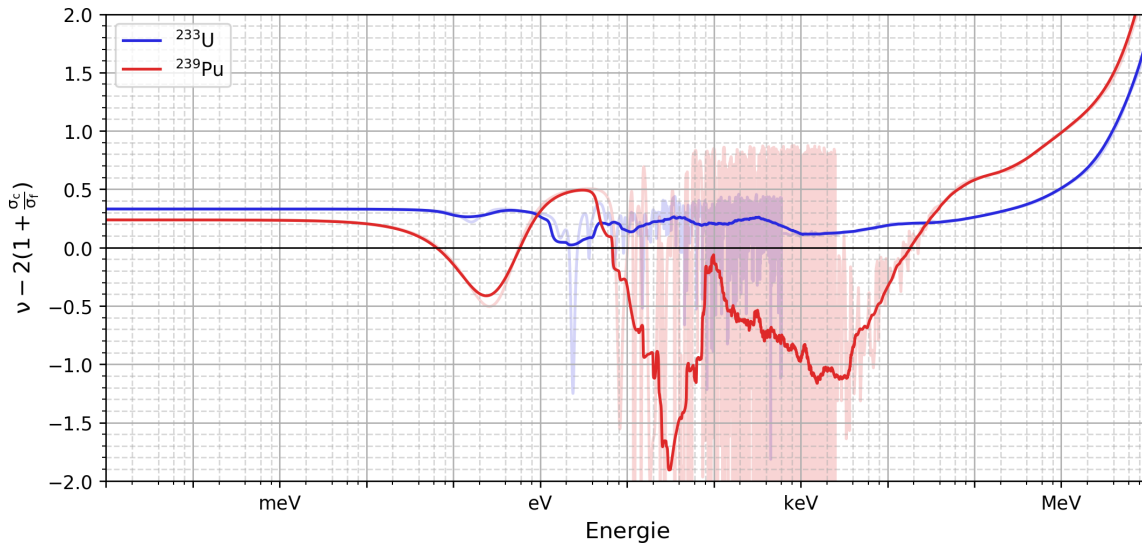


FIGURE 1.7 – Régénération théorique pour ^{233}U et le ^{239}Pu

Sachant qu'une quantité non nulle de neutrons sera toujours perdue par fuite hors du système ou captures parasites, en pratique le cycle plutonium ne sera surrégénérateur que pour des neutrons rapides, alors que le cycle thorium peut théoriquement être régénérateur quelle que soit l'énergie moyenne des neutrons.

Du fait des sections efficaces microscopiques de capture non nulles des noyaux fissiles, une partie des absorptions sur ces noyaux forme des noyaux plus lourds (qui peuvent également capturer à leur tour). Les noyaux lourds créés de cette façon sont appelés actinides mineurs. Pour ces noyaux lourds, un isotope sur deux environ n'est pas fissile : il présente un faible rapport fission/absorption pour les neutrons thermiques, comme l' ^{241}Am dont les σ_c et σ_f sont présentées figure 1.8. En revanche, ce rapport devient plus favorable à la fission dans les hautes énergies.

Il est donc important de connaître la distribution en énergie des neutrons dans le réacteur, appelée spectre neutronique, car cela peut changer le rôle des noyaux considérés. La figure 1.9 présente les spectres neutroniques d'un REP et du MSFR de référence. Actuellement, les réacteurs commerciaux sont (presque) tous des réacteurs à neutrons thermiques. Le rapport fission/absorption des actinides mineurs comme l' ^{241}Am est tel que leur production excède leur disparition dans ces réacteurs, ils s'accumulent dans les combustibles et induisent certaines difficultés (captures parasites et diminution de la fraction de neutrons retardés, complexité de fabrication en combustible solide.) En revanche, dans un réacteur à neutrons rapides, la proportion de fission augmente suffisamment pour que la disparition excède la production, les actinides mineurs peuvent donc être éliminés, ou "incinérés". Un réacteur dédié à la fission des actinides mineurs est appelé incinérateur.

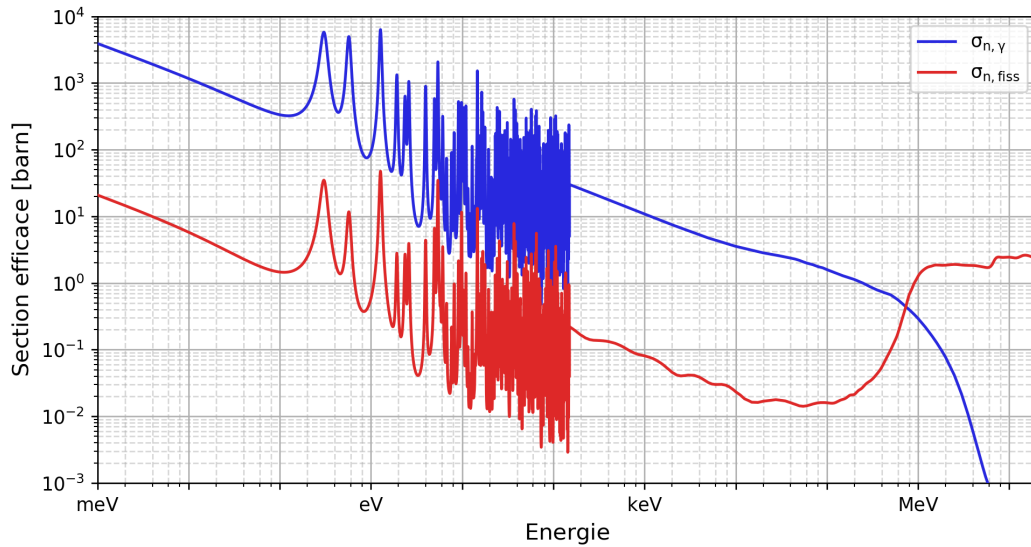
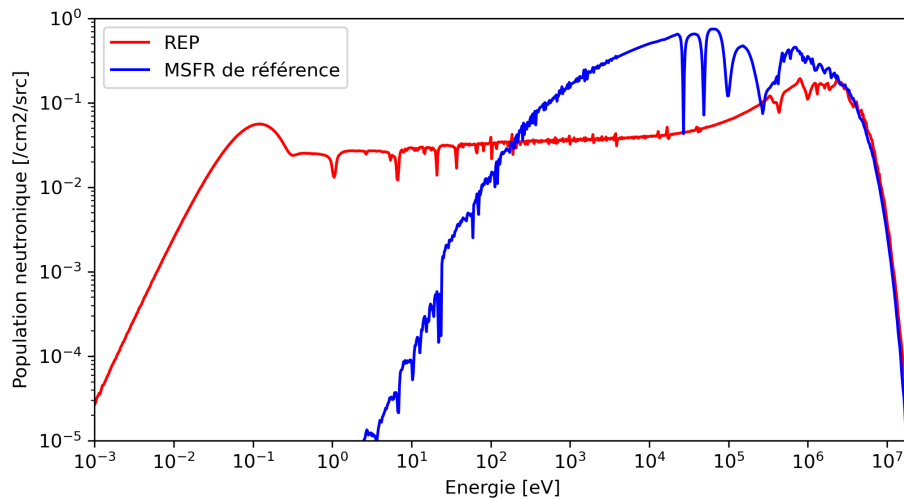
FIGURE 1.8 – Sections efficaces de capture et de fission de l'²⁴¹Am (base de données ENDF-B7.1)

FIGURE 1.9 – Spectres neutroniques d'un REP et du MSFR de référence

Chaque réacteur a ses avantages et ses inconvénients, et la conception doit être orientée autour des besoins. Par exemple, si l'on souhaite un réacteur avec l'inventaire fissile le plus réduit possible, il sera intéressant d'avoir des neutrons thermiques et un couple caloporteur/modérateur le moins capturant possible. Les UNGG en sont un exemple. Si l'objectif est l'incinération de noyaux peu fissiles, alors un spectre neutronique rapide sera préféré. Pour la surrégénération de matière fissile, le nombre de neutrons disponible par fission sera le plus important, et le couple spectre/matière fissile sera adapté. Les réacteurs caloportés sodium comme Phénix en sont un exemple. Pour le MSFR de référence, le choix du spectre rapide permet de diminuer le taux de capture des produits de fission (différentiel énorme aux basses énergies sur les sections efficaces de capture par rapport à la section efficace de fission du combustible) et d'ainsi réduire les contraintes de nettoyage du sel combustible imposées par la neutronique.

1.1.7 Evolution du combustible et chaleur résiduelle

1.1.7.1 Equation de Bateman

Pour décrire correctement l'évolution du combustible nucléaire, la modélisation des réactions dues aux neutrons n'est pas suffisante. Il faut également tenir compte des décroissances spontanées des noyaux instables. La quantité N au cours du temps d'un isotope radioactif i isolé de demi-vie $t_{i,\frac{1}{2}}$ suit la loi suivante :

$$\frac{dN_i(t)}{dt} = -\lambda_i N_i(t) \quad \text{avec} \quad \lambda_i = \frac{\ln(2)}{t_{i,\frac{1}{2}}} \quad (1.6)$$

Cet élément i peut être produit par la décroissance d'un autre isotope radioactif $i-1$, qui lui-même résulte de la décroissance de $i-2$: on appelle ceci la chaîne de décroissance. La résolution formelle de toute la chaîne de décroissance est fournie par l'équation de Bateman. Appliquée à une chaîne simple $i-1 \rightarrow i \rightarrow i+1$, alors la quantité de noyaux i évolue selon l'équation (1.7).

$$\frac{dN_i(t)}{dt} = -\lambda_i N_i(t) + \lambda_{i-1} N_{i-1} \quad (1.7)$$

Un élément i pouvant être produit par la décroissance de j noyaux différents, on peut généraliser l'équation (1.7) et obtenir l'équation (1.8).

$$\frac{dN_i(t)}{dt} = -\lambda_i N_i(t) + \sum_{j \rightarrow i} \lambda_j N_j(t) \quad (1.8)$$

En ajoutant à cela les réactions se produisant en réacteur, la quantité N_i est obtenue par l'équation (1.9).

$$\frac{dN_i(t)}{dt} = -\lambda_i N_i(t) + \sum_{j \rightarrow i} \lambda_j N_j(t) - N_i(t) \sigma_{i,abs} \phi + \sum_l N_l(t) \sigma_{l \rightarrow i} \phi \quad (1.9)$$

avec ϕ le flux auquel est soumis le milieu, l les noyaux formant i par réaction de section efficace microscopique $\sigma_{l \rightarrow i}$.

Cette équation pourra être complétée (voir section 3.2.1) pour tenir compte des spécificités d'un système particulier comme le MSFR, réacteur à combustible liquide circulant.

1.1.7.2 Chaleur résiduelle

A cause des décroissances radioactives, un réacteur nucléaire a une caractéristique unique comparé aux autres moyens de production d'électricité ou de chaleur conventionnels : il continue à émettre de la chaleur même après arrêt du système. Dans un REP, cette chaleur correspond à environ 1.5% de sa puissance 1 heure après l'arrêt de la réaction en chaîne [14]. Du fait de l'importante puissance totale des réacteurs, cette chaleur doit être extraite pour prévenir la fusion du cœur. Les éléments dédiés à cette fonction forment le système EPuR (Evacuation de la Puissance Résiduelle). Dans un RSF, la température du sel combustible va progressivement monter ce qui assurera la sous-criticité. Néanmoins, cette hausse de température peut endommager les matériaux et, à terme, si elle n'est pas maîtrisée, provoquer la fonte des structures (les alliages métalliques type Hastelloy ou acier 316 ont une température de fusion très inférieure à la température d'ébullition du sel). Pour pouvoir calculer la puissance résiduelle il est indispensable de connaître les bilans de matière, ce qui fait l'objet de travaux dédiés [15].

1.2 Thermique et thermohydraulique

Cette partie rappelle les notions de base sur les transferts thermiques et décrit le mécanisme de convection naturelle. Les aspects plus complexes comme la circulation des fluides en convection forcée et la résolution numérique des équations de Navier-Stokes par les codes de CFD (Computational Fluid Dynamics) n'ont pas fait l'objet de travaux lors de cette thèse et ne seront donc pas détaillés ici.

N.B. : dans cette partie, la lettre ρ désignera la masse volumique.

1.2.1 Transferts de chaleur

Un transfert de chaleur a lieu principalement par trois mécanismes : la conduction, la convection et le rayonnement.

L'énergie transmise par rayonnement par unité de surface se calcule avec la loi de Stefan-Boltzmann (1.10) en faisant l'hypothèse du corps noir sur l'objet rayonnant.

$$\phi_{\text{rayonnement}} = \sigma \cdot T^4 \quad [W.m^{-2}] \quad (1.10)$$

avec σ la constante de Stefan-Boltzmann ($5.67 \cdot 10^{-8} \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-4}$).

En pratique ce mécanisme est rarement mis à contribution de manière significative pour le cas d'un réacteur nucléaire. On peut citer comme exemple le cas d'un réacteur pour le spatial où le puits de chaleur ultime est le vide, ou le cas de la cuve du réacteur qui peut se refroidir en partie par rayonnement. Il n'a pas été étudié dans le cadre de ces travaux.

Le transfert thermique par conduction au sein d'une paroi dont les deux surfaces sont aux températures respectives T_1 et T_2 se calcule avec l'équation (1.11).

$$\Phi_{\text{conduction}} = \frac{\lambda}{e} S (T_2 - T_1) \quad [W] \quad (1.11)$$

avec e l'épaisseur (m) de la paroi, λ la conductivité thermique du matériau ($\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$) et S la surface des plaques (m^2).

Dans les zones à fort gradient de température comme les échangeurs de chaleur, on discrétise la paroi selon la précision souhaitée, puisque T_1 et T_2 sont très dépendantes de la position.

Dans le cas d'un fluide en contact avec une paroi, l'échange fait intervenir les mécanismes de conduction et de convection d'où le nom d'échange conducto-convectif. On résout le transfert de chaleur par l'équation (1.12).

$$\Phi_{\text{conducto-convection}} = h S \Delta T \quad [W] \quad (1.12)$$

avec h le coefficient de conducto-convection thermique ($\text{W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$) (pour le cas spécifique de la conduction, $h = \frac{\lambda}{e}$).

Ce coefficient est souvent utilisé comme une boîte noire cachant la complexité des mécanismes de l'échange thermique. Pour les cas simples, on utilise des valeurs tabulées dépendant du matériau et de la gamme de températures. Dans le cas des échangeurs de chaleur et lorsque ces valeurs ne sont pas disponibles, on peut calculer h par l'équation (1.13).

$$h = \frac{\lambda \text{Nu}}{D_h} \quad \text{avec} \quad D_h = \frac{4S}{P} \quad (1.13)$$

avec D_h le diamètre hydraulique (m) du canal de l'échangeur, S la section de passage du canal (m^2), P le périmètre (m) du canal et Nu le nombre de Nusselt (adimensionnel), calculé avec des corrélations à partir des nombres de Reynolds et de Prandtl.

Le nombre de Reynolds permet de caractériser la nature de l'écoulement (turbulent, laminaire ou en transition entre les deux) et se calcule avec l'équation (1.14).

$$\text{Re} = \frac{\rho u D_h}{\mu} \quad (1.14)$$

avec u la vitesse du fluide (m.s^{-1}) et μ sa viscosité dynamique ($\text{kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}$).

Le nombre de Prandtl se calcule avec l'équation (1.15).

$$\text{Pr} = \frac{\mu c_p}{\lambda} \quad (1.15)$$

avec c_p la chaleur spécifique ($\text{J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$) du fluide.

Les corrélations utilisées pour déterminer la valeur de Nu seront détaillées dans la partie 3.3.1.

1.2.2 Convection naturelle

La convection naturelle est un phénomène se produisant spontanément pour un fluide soumis à un gradient de température dans certaines configurations. La variation de température entraîne une variation de la masse volumique, en général l'augmentation de la première conduit à une diminution de la seconde. En analysant le fluide comme un ensemble de volumes élémentaires, une diminution de la densité entraîne une diminution de la masse pour un même volume, et donc du poids associé. Les volumes de fluide moins denses vont subir la poussée d'Archimède et remonter le champ de pesanteur, alors que les volumes de fluide plus denses vont suivre la direction du champ.

Remarque : de ce fait, chauffer un liquide à coefficient de dilatation positif depuis son niveau libre est inefficace pour provoquer un brassage : la source de chaleur doit être placée le plus bas possible pour maximiser le mouvement.

Lorsqu'un fluide est contenu dans un circuit fermé, chauffé en un point et refroidi en un autre, on parle de thermosiphon, illustré figure 1.10 (HX = échangeur de chaleur).

La convection naturelle peut être décrite par plusieurs modèles. Pour pouvoir résoudre les équations de Navier-Stokes, il est usuel de faire un certain nombre d'hypothèses dont l'incompressibilité du fluide : ρ est supposé constante. Cette hypothèse est en opposition avec le principe même de la convection naturelle, mais il est possible de la conserver en utilisant l'approximation de Boussinesq. Elle consiste à ajouter une force de flottabilité dans l'équation bilan de la quantité de mouvement, exprimée ainsi :

$$f_{\text{flottabilité}} = g \left(1 + \frac{\rho - \rho_0}{\rho_0} \right) \simeq g(1 + \beta(T - T_0)) \quad [N] \quad (1.16)$$

avec ρ_0 la masse volumique du fluide prise à une température T_0 de référence, T la température locale, et β le coefficient de compressibilité du fluide (K^{-1}).

Pour une résolution numérique simple sur une description macroscopique du phénomène (à l'échelle du circuit et de ses composants) on peut décrire la convection naturelle comme une contribution au bilan des pressions. Cette contribution, appelée dans ce manuscrit Pression Motrice de Convection Naturelle, ou PMCN, est décrite par l'équation (1.17).

$$\text{PMCN} = \sum_{\text{element } i}^n \rho h \frac{\vec{g} \cdot \vec{u}_i}{\|\vec{u}_i\|} \quad [Pa] \quad (1.17)$$

avec n le nombre d'éléments du circuit, h la hauteur de l'élément (m), g la constante de gravitation 9.81 m.s^{-2} et \vec{u} la vitesse du fluide (m.s^{-1}) dans l'élément de circuit. Le produit scalaire $\vec{g} \cdot \vec{u}_i$ pondère la contribution de la pression induite par l'élément de circuit en fonction de son angle par rapport au champ de gravité : un tuyau vertical contribue à 100%, un tuyau horizontal n'apporte aucune contribution.

Cette expression met en évidence l'importance de la hauteur dans le système : plus l'écart de hauteur entre les échangeurs de chaleur sera importante, plus la PMCN sera conséquente, plus la mise en place de la convection naturelle sera facilitée.

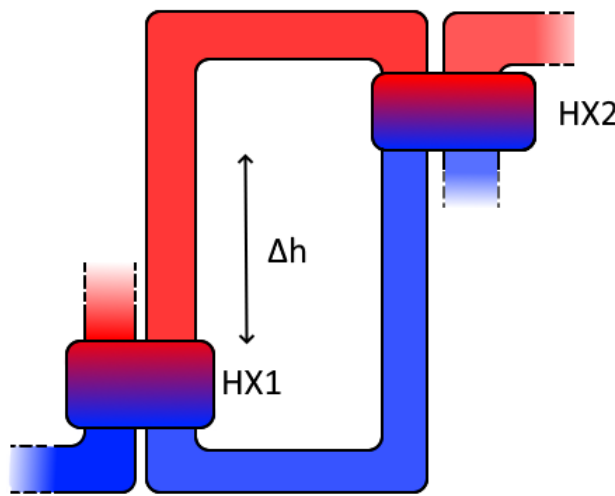


FIGURE 1.10 – Illustration d'un thermosiphon

Dans le cas d'un thermosiphon où il n'y a pas de circulation forcée (pas de pompe), la PMCN est uniquement opposée aux pertes de charge.

1.2.3 Pertes de charge

Les pertes de charge expriment la dissipation d'une partie de l'énergie cinétique du fluide sous forme de chaleur due au frottement sur les parois. On distingue les pertes de charge régulières le long d'une conduite, des pertes de charge singulières dues à un changement local de géométrie.

Les pertes de charge régulières sont décrites par l'équation de Darcy-Weisbach (équation (1.18)) exprimée ici en pressions.

$$\Delta P_{\text{reg}} = f_{\text{Darcy}} \frac{L}{D_h} \frac{\rho u^2}{2} \quad [Pa] \quad (1.18)$$

avec f_{Darcy} le coefficient de Darcy (adimensionnel), L la longueur (m) de la conduite.

Le coefficient de Darcy dépend de la nature de l'écoulement. Il est obtenu à partir de corrélations valides dans certains domaines, généralement des intervalles de valeurs du nombre de Reynolds et du nombre de Prandtl. Les corrélations utilisées dans le cadre de ces travaux seront fournies dans la section 3.3.1.

Les pertes de charge singulières sont décrites par l'équation (1.19).

$$\Delta P_{\text{sing}} = f \frac{\rho u^2}{2} \quad [Pa] \quad (1.19)$$

avec f le coefficient de pertes de charge singulières (adimensionnel) dépendant de la géométrie. Les valeurs de ce coefficient sont disponibles dans des abaques [16].

1.3 Chimie

Du fait de la forme liquide du combustible et du fonctionnement d'un réacteur nucléaire provoquant l'apparition de beaucoup d'éléments différents pendant son exploitation, la chimie joue un rôle prépondérant dans les réacteurs à sels fondus. Cette section fait l'inventaire des notions-clés pour pouvoir aborder les problématiques de composition des sels combustible et fertile et de leur traitement. On commence par la définition même d'un sel, puis on introduit les notions d'oxydants et de réducteurs. Ceci permet d'explicitier les conditions de stabilité des espèces en solution, et de définir le potentiel d'oxydo-réduction. On s'intéresse ensuite aux mélanges, et à la notion de composition eutectique. Puis on détaillera la notion de corrosion. La section se conclut sur les méthodes de séparation d'espèces chimiques (ensemble d'un ou plusieurs atomes au même comportement chimique) au sein d'un mélange, que l'on pourra plus tard utiliser pour la conception du schéma de traitement.

1.3.1 Liaison ionique et sels

Il existe différents types de liaisons pouvant lier les atomes selon leur nature chimique. Parmi celles-ci on retrouve :

- la liaison covalente, qui permet le lien entre deux non-métaux (comme deux atomes d'oxygène formant le dioxygène) par mise en commun d'un ou de plusieurs doublets d'électrons ;
- la liaison métallique, où les ions métalliques partagent un ensemble d'électrons délocalisés ;
- la liaison ionique, qui lie les éléments fortement électronégatifs (= "attracteur" d'électrons, comme les halogènes) aux éléments plus faiblement électronégatifs comme les métaux.

Les sels sont des solides ioniques, donc formés d'éléments liés entre eux par la liaison ionique. Les sels fondus sont des liquides ioniques, dont les éléments constitutifs, cations chargés positivement et anions chargés négativement, sont dissociés et mobiles. Ils sont d'autant plus mobiles que la température est élevée. L'ensemble est globalement stable du fait de l'attraction entre charges opposées. En choisissant des anions et cations aux sections efficaces de capture faibles, on peut obtenir un solvant à la tenue à l'irradiation excellente : les éléments constitutifs ne vont pas (ou très peu) se transmuter, et la forme liquide permet à un élément (cation ou anion) déplacé par collision avec un neutron de se réarranger avec ses voisins sans conséquence sur les propriétés macroscopiques du fluide. Par ailleurs, la température assurant une grande mobilité aux électrons anormalement redistribués par l'irradiation, les anomalies de valence des éléments sont rapidement éliminées.

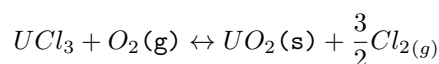
1.3.2 Stabilité des espèces en solution et potentiel d'oxydo-réduction

On définit les notions d'oxydants et de réducteurs au sein d'un couple d'espèces de la manière suivante :

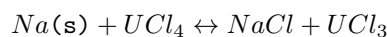
- un oxydant est capable de capter facilement des électrons ;
- un réducteur est capable de céder facilement des électrons.

Un même élément peut être oxydant ou réducteur selon le couple d'espèces considérées. Supposons un sel NaCl-UCl₃ avec une faible quantité d'oxygène, à l'équilibre. On peut avoir les réactions suivantes :

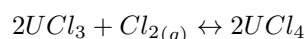
- Ajout d'oxygène, jouant le rôle d'oxydant :



- Ajout de sodium métal, jouant le rôle de réducteur :



- Ajout de chlore gazeux, jouant le rôle d'oxydant :



Même si cela ne conduit pas à une réaction exogène violente, la précipitation des actinides sous forme d'oxydes est la raison pour laquelle il faut prévenir l'introduction d'oxygène dans un réacteur à sels fondus, que ce soit par de l'air ou de l'eau. Par ailleurs on observe que l'on peut maintenir un équilibre des formes prises par certaines espèces en solution, comme l'uranium qui peut être de valence 3 (UCl₃) ou de valence 4 (UCl₄), en ajoutant des espèces oxydantes ou réductrices. Le maintien de cet équilibre forme un "tampon redox" permettant de fixer le potentiel d'oxydo-réduction du sel. On définit le potentiel d'oxydo-réduction du sel comme le potentiel, en volts, comparé à une référence. Il dépend de la composition du sel, et renseigne sur la forme préférentielle prise par les différentes espèces chimiques en présence. A titre d'exemple, un diagramme de prédominance de certaines espèces chimiques en sel fluor extrait de la thèse de Xavier Doligez [17] est présenté figure 1.11. La bande rose représente la zone où le ratio $\frac{U^{3+}}{U^{4+}}$ est compris entre $\frac{1}{100}$ et 1, considérée comme la zone de fonctionnement acceptable du point de vue du potentiel électro-chimique.

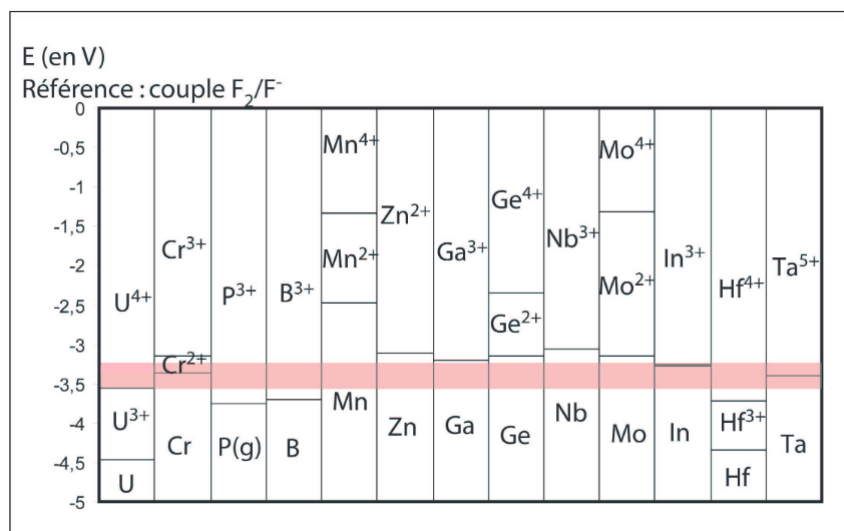
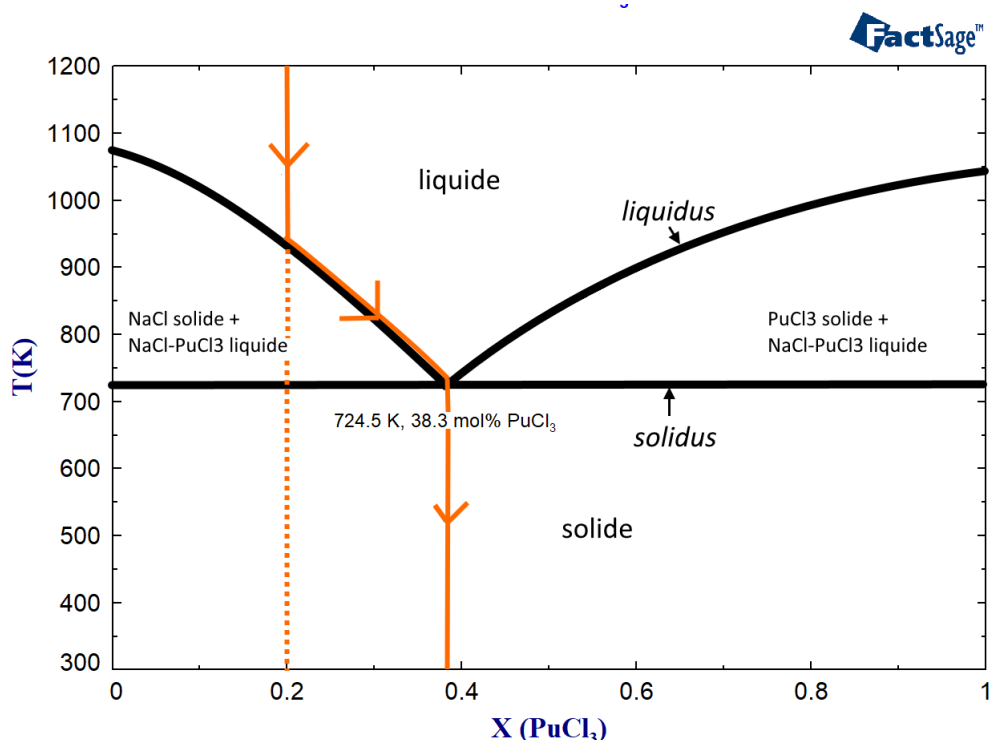


FIGURE 1.11 – Diagramme de prédominance de quelques éléments en sel fluor [17]

1.3.3 Mélange eutectique, diagrammes binaire et ternaire

Lorsque l'on additionne plusieurs corps purs, le mélange qui en résulte possède des propriétés différentes des constituants pris séparément. L'une d'entre elles est le fait de présenter des transitions liquide-solide différentes des corps purs. Pour visualiser ce phénomène, on utilise un diagramme de phases. La figure 1.12 montre l'exemple du diagramme binaire NaCl-PuCl₃ [18].

FIGURE 1.12 – Diagramme binaire NaCl-PuCl₃ [18]

Les corps purs (NaCl et PuCl₃ pris indépendamment) se liquéfient à une température fixée (respectivement 1074K et 1040K) avec une évolution continue de la proportion solide-liquide. En revanche, le mélange peut fondre à une température plus basse dépendant des proportions des constituants. Le point de fusion le plus bas est appelé eutectique (ici ~725K), et le mélange associé est appelé composition eutectique (ici 61.7mol% NaCl, 38.3mol% PuCl₃).

Un mélange non eutectique, lorsqu'il change d'état, voit l'apparition d'une phase (liquide ou solide) dont la composition va s'écarter de celle d'origine. Supposons un mélange (80mol%)NaCl-(20mol%)PuCl₃ à 1000K qui se refroidit rapidement (hors équilibre), montré par la courbe orange sur la figure 1.12. En atteignant 950K, le

premier cristal apparaît. Ce cristal est du NaCl pur. La composition du liquide va suivre le liquidus et s'enrichir de plus en plus en PuCl_3 alors que NaCl continue à précipiter, jusqu'à atteindre la température eutectique. Le liquide restant, de composition eutectique, va alors se solidifier. Pour éviter des précipitations préférentielles qui peuvent être des initiateurs d'incidents voire d'accidents, on s'attachera à choisir des sels de composition proche de l'eutectique.

Le raisonnement est le même pour un mélange de trois composés. On utilise alors un diagramme ternaire pour visualiser la ou les lignes eutectiques. La figure 1.13 présente l'exemple du sel $\text{NaCl-MgCl}_2\text{-PuCl}_3$, sel de référence utilisé pour les réacteurs incinérateurs.

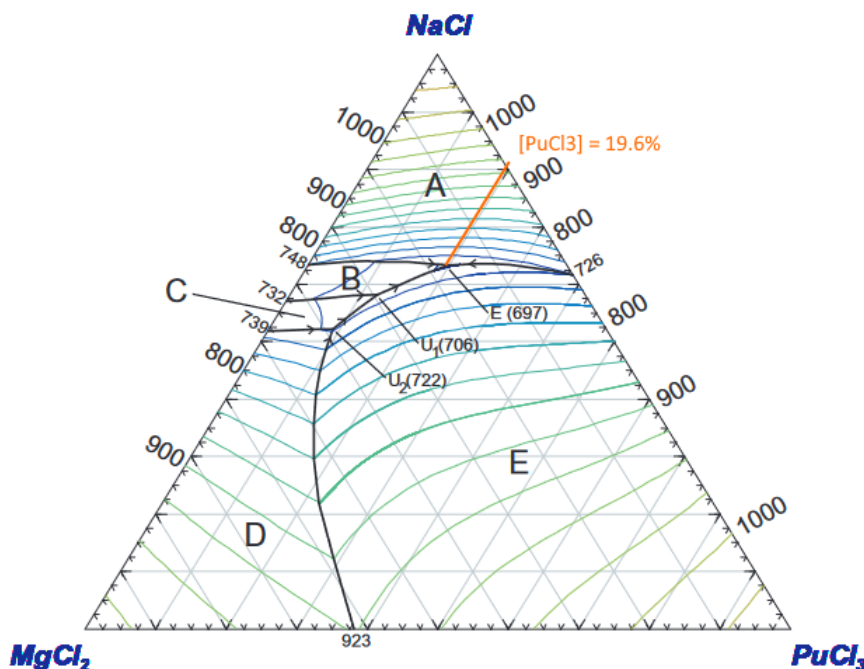


FIGURE 1.13 – Diagramme ternaire $\text{NaCl-MgCl}_2\text{-PuCl}_3$ [18]

La composition en élément A se lit à l'intersection de la parallèle au côté B-C. Sur cet exemple, l'eutectique E à 697K a pour composition (63.2%)NaCl-(17.1%)MgCl₂-(19.6%)PuCl₃, et la lecture de la quantité de PuCl₃ est indiquée par la droite orange. On retrouve sur la ligne binaire NaCl-PuCl₃ à ~725K l'eutectique précédemment évoqué.

Les propriétés thermodynamiques des sels doivent être calculées pour chaque composition différente du sel, ce point est détaillé dans la section 3.3.1.

1.3.4 Corrosion

La corrosion est définie comme “une dégradation ou transformation irréversible du matériau et de ses propriétés par réaction physico-chimique avec l'environnement” [19]. L'exemple le plus connu de la corrosion est la rouille, c'est-à-dire l'oxydation du fer en présence d'air. Les sels fondus non-purs sont considérés comme des milieux très corrosifs pour deux raisons :

- la présence d'oxydants forts comme les halogènes, l'oxygène en cas de contamination du sel ;
- la température élevée, qui accélère les réactions chimiques.

Par ailleurs, les réactions nucléaires ajoutent les contraintes supplémentaires suivantes.

- La formation de produits de fission complexifie grandement la composition du sel. Ils peuvent être oxydants ou réducteurs, peuvent précipiter ou se volatiliser ou même migrer dans les structures (solution solide), et modifient les propriétés chimiques du sel.
- L'irradiation endommage les matériaux de structure par transmutation de ses atomes d'une part, et par déplacement des atomes au sein de leur réseau cristallin d'autre part, d'où l'utilisation des DPA (Déplacements Par Atome) comme unité des dégâts d'irradiation.
- La circulation du sel induit de la corrosion-érosion des surfaces en contact direct.
- Les écarts de pression dans le circuit sont susceptibles de faire apparaître de la corrosion sous contrainte.

Plusieurs mesures doivent être prises pour prévenir la corrosion autant que possible.

- Le ou les matériaux de structure doivent être résistants à l’irradiation à haute température et présenter une faible corrosion au sel de base.
- Le potentiel redox du sel doit être contrôlé [20, 21].
- Il faut éviter la production d’éléments susceptibles d’accélérer la corrosion (e.g. : réduction de la production de soufre par enrichissement en ^{37}Cl), ou les extraire (e.g. : extraction du tellure).

1.3.5 Méthodes d’extraction

Il existe plusieurs méthodes de séparation d’espèces chimiques. Le tableau 1.1 recense les principales méthodes envisagées pour le traitement des sels fondus.

TABLE 1.1 – Méthodes d’extraction

Méthode	Description Avantage principal Inconvénient principal Exemple
Précipitation	Passage d’un élément d’une forme soluble à une forme insoluble dans la solution Extraction mécanique simple par filtrage ou balayage Peut requérir l’ajout d’un intrant supplémentaire difficile à extraire ensuite Ex : précipitation des actinides passant d’une forme saline à une forme oxyde en présence d’oxygène
Distillation	Vaporisation d’une espèce par augmentation de la température de la solution Pas d’intrant supplémentaire Energivore pour les sels fondus à ρc_p élevé Ex : distillation de ZrCl_4 (le zirconium étant un PF)
Electrolyse	Dépôt d’une espèce sur une électrode par circulation d’un courant électrique entre le sel, une anode et une cathode Contrôle très sélectif du potentiel permettant une séparation efficace des éléments à extraire Processus long et potentiellement énergivore Ex : électro-déposition de l’uranium sur cathode métallique
Extraction réductrice liquide-liquide	Ajout d’un liquide non miscible à la solution, et passage d’une espèce de la solution au liquide à l’interface Facilité d’extraction par séparation de liquides non-miscibles Nécessite un liquide d’extraction parfois complexe à trouver et à efficacité variable Ex : Extraction de PF métalliques par contact sel - métal liquide

Dans le cas d’un traitement direct des sels fondus, la chimie à base aqueuse n’est pas utilisable à cause des températures élevées et du risque d’hydrolyse (rupture des molécules d’eau) par irradiation. On utilise donc la pyrochimie, c’est-à-dire l’ensemble des traitements effectués à haute température.

1.4 Sûreté et prolifération

L’analyse de sûreté et celle de la résistance à la prolifération regroupent beaucoup d’études différentes, une fraction seulement a fait l’objet de travaux dans le cadre de cette thèse. La sûreté a été abordée à travers les calculs de coefficients de contre-réaction et l’étude de certains transitoires. La prolifération a été observée sous l’angle de l’isolement des matières fissiles et du vecteur isotopique du plutonium.

1.4.1 Éléments de sûreté

Dans la réglementation française, la sûreté nucléaire est déclinée en quatre fonctions : maîtrise de la réactivité, refroidissement, confinement, protection contre les rayonnements ionisants. Le confinement, c’est-à-dire le fait d’éviter la dispersion de matière radioactive dans l’environnement, est un point central. Le refroidissement sert à prévenir la fusion des structures, en particulier la fonte du cœur pour les réacteurs à combustible solide, qui menacerait le confinement. La maîtrise de la réactivité sert à éviter une production de chaleur inextractible qui in fine menacerait également le confinement. Ces quatre fonctions doivent être assurées en permanence, mais sont obtenues différemment suivant le régime de fonctionnement du réacteur.

Pour le concept MSFR, tant que le sel combustible est dans le circuit combustible, la réactivité est maîtrisée

grâce aux coefficients de sûreté négatifs (Doppler, densité) qui permettent passivement un fonctionnement à la puissance souhaitée, définie par l'extraction de chaleur (d'autres concepts de RSF utilisent des moyens actifs comme des barres de contrôle pour cette tâche). Le refroidissement est assuré activement (i. e. avec des pompes) par le circuit intermédiaire tant que cela est possible. Il doit être assuré passivement par convection naturelle si possible. Si le sel est déplacé, la sous-criticité est obtenue par géométrie : la probabilité de fuite des neutrons hors système ne permet plus la réaction en chaîne. Le confinement et la protection contre les rayonnements ionisants sont assurés par plusieurs barrières dont la définition fait toujours l'objet de travaux [22].

1.4.2 Prolifération

La résistance à la prolifération est définie par la NRC (Nuclear Regulatory Commission, le régulateur des États-Unis d'Amérique) comme "la prévention :

- de la diffusion d'armes nucléaires aux entités (Etats ou groupes terroristes) qui n'en possèdent pas (diffusion horizontale) ;
- de l'augmentation de l'arsenal des pays possédant déjà des armes nucléaires (diffusion verticale)" [23].

L'analyse de la résistance à la prolifération d'un système est un travail conséquent impliquant de nombreux spécialistes et des disciplines très différentes. La résistance à la prolifération peut par exemple être favorisée par des mesures de sécurité hors du cadre de cette thèse (personnel de sécurité, caméras, inspections des régulateurs) mais aussi par des mesures techniques, dont une partie sera regardée ici. Ces dernières ont vocation à compliquer la conception de bombes à partir des matières utilisées par le réacteur. Les règles concernant les normes pour la prolifération ne sont pas détaillées explicitement pour éviter des tentatives de contournement. Même sans connaître ces règles dans le détail, le concepteur dispose de plusieurs leviers d'action pour renforcer la résistance de son système à la prolifération, c'est l'angle considéré dans ces travaux.

Premièrement, il faut éviter les cas où une matière fissile est facilement isolable des autres. Toute activité de traitement du combustible contenant cette matière représente dès lors une menace potentielle. En France, l'usine de la Hague (au sein de laquelle le combustible usé des REP est traité) est extrêmement surveillée. Chaque gramme de matière fissile est tracé, et les processus sont automatisés le plus possible. Pour le cas des MSFR connectés à une usine de traitement, la question est complexe.

Deuxièmement, il faut éviter que les éléments chimiques contenant un ou des isotopes fissiles aient un vecteur isotopique jugé trop dangereux. Par exemple, la réglementation internationale fixe le seuil maximal d'enrichissement de l'uranium à usage civil à 20%.

La question de la prolifération pour le MSFR de référence est abordée dans la section 2.2.1.4, celle pour le MSFR-CI sera développée dans la section 5.3.

Chapitre 2

Programmes et projets de Réacteurs à Sels Fondus

Ce chapitre débute par la présentation des programmes de réacteurs à sels fondus construits et exploités aux États-Unis d'Amérique entre les années 1950 et 1970. Différents projets de RSF étudiés depuis les années 1970 mais non construits sont ensuite présentés. Le concept du MSFR de référence est davantage détaillé car il constitue un point de départ pour la conception du MSFR-CI. Les différents réacteurs utilisant des sels chlorures sont examinés à la recherche de consensus sur les différents aspects de conception. Le chapitre se conclut sur un bilan de l'état de l'art.

Sommaire

2.1	Modèles historiques des États-Unis d'Amérique	28
2.1.1	Programme ARE	28
2.1.2	Programme MSRE	28
2.1.3	Projet MSBR	29
2.2	Histoire récente des RSF	30
2.2.1	Réacteurs à sels fluorures	30
2.2.1.1	Japon	30
2.2.1.2	Chine	30
2.2.1.3	URSS-Russie	31
2.2.1.4	France	31
2.2.2	Motivations pour un MSFR en sels chlorures	34
2.2.3	Projets de RSF en sels chlorures	35
2.2.3.1	Etats-Unis d'Amérique	35
2.2.3.2	Pologne et Suisse	37
2.2.3.3	France	38
2.2.4	Émergence de nouveaux acteurs	39
2.3	Bilan sur l'état de l'art	39

2.1 Modèles historiques des États-Unis d'Amérique

2.1.1 Programme ARE

L'Aircraft Reactor Experiment, ou ARE, fut le premier prototype de réacteur à sels fondus [24]. Il fut issu du projet Aircraft Nuclear Propulsion mené au laboratoire d'Oak Ridge (ORNL) aux États-Unis, à partir de 1949. Le réacteur fonctionna pendant environ 200h comme prévu, entre le 30 octobre et le 12 novembre 1954. La figure 2.1 représente le système.

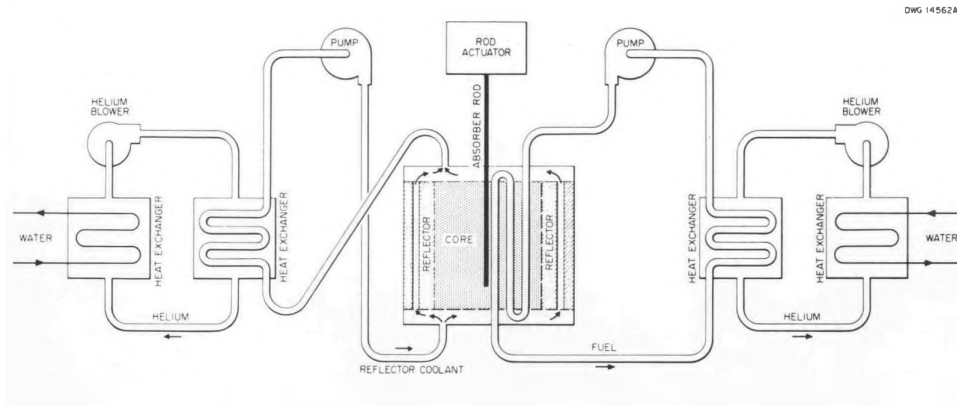


FIGURE 2.1 – Schéma du fonctionnement de l'ARE [24]

Le sel combustible eu pour composition $(53.09\text{mol}\%)\text{NaF}-(40.73\text{mol}\%)\text{ZrF}_4-(6.18\text{mol}\%)\text{UF}_4$, avec un uranium enrichi à 93.4% en ^{235}U . Il circula à une température moyenne de 980K dans des tubes en Inconel traversant plusieurs fois une matrice constituée de blocs hexagonaux en BeO. Le béryllium joua le rôle de modérateur. La matrice de BeO fut refroidie par du sodium liquide, et ce sodium ainsi que le sel combustible déposèrent leur chaleur dans des échangeurs à hélium. 3 barres de contrôle en carbure de bore (B_4C) et acier traversaient le cœur.

Le retour d'expérience de l'ARE fut conséquent. Il démontra la faisabilité du concept de réacteur à sels fondus, le bon comportement sous irradiation des sels fluorures, ainsi que l'excellente sûreté intrinsèque grâce à un coefficient de contre-réaction total du combustible d'environ -8 pcm/K ($6.0 \cdot 10^{-5} \Delta k / ^\circ\text{F}$). Il mit en évidence la problématique de la corrosion sous irradiation des structures, menant à la mise au point d'un matériau adapté à ces sels (voir section 2.1.2). Il démontra la possibilité d'extraire les produits de fission gazeux (le brassage du sel libérait plus de 95% du xénon notamment, réduisant considérablement l'empoisonnement du réacteur [25]) pendant l'opération.

2.1.2 Programme MSRE

Suite à l'expérience réussie de l'ARE, l'ORNL s'attaqua au projet d'un démonstrateur de taille plus conséquente : le Molten Salt Reactor Experiment, d'une puissance effective de 8 MW_{th} [26]. Le réacteur fut conçu et construit entre 1961 et 1964, et divergea (il mit en place la réaction en chaîne) en 1965. Il fonctionna avec succès pendant 5 ans jusqu'en décembre 1969. La figure 2.2 représente le réacteur [27].

Le MSRE a testé 2 combustibles (ordre chronologique) :

- uranium enrichi : $(65\text{mol}\%)\text{LiF}-(29.1\text{mol}\%)\text{BeF}_2-(5\text{mol}\%)\text{ZrF}_4-(0.9\text{mol}\%)\text{UF}_4$ ($\text{enr}(\text{U}) = 33\% \text{ } ^{235}\text{U}$)
- ^{233}U : $(70\text{mol}\%)\text{LiF}-(23.6\text{mol}\%)\text{BeF}_2-(5\text{mol}\%)\text{ZrF}_4-(1\text{mol}\%)\text{ThF}_4-(0.4\text{mol}\%)\text{}^{233}\text{UF}_4$

Le sel combustible circula à une température de 650°C dans des tuyaux en INOR-8, aussi connu sous le nom d'Hastelloy N. Cet alliage à base nickel fut développé suite au retour d'expérience de l'ARE et est spécialement conçu pour résister à la corrosion à haute température, sous irradiation, dans les sels fondus à base fluor. Le sel combustible traversa en coeur une matrice de graphite, puis alla déposer sa chaleur dans des échangeurs sel/sel. Ce second sel eu une composition $(66\text{mol}\%)\text{LiF}-(33\text{mol}\%)\text{BeF}_2$ (aussi appelé FLiBe) et une température moyenne de 570°C .

Pour éviter l'intrusion d'oxygène, le sel combustible fut inerté à l'hélium. De l'hélium fut continuellement injecté à un rythme de 6m^3 par jour environ, et les produits de fission gazeux ainsi qu'une part de l'hélium furent extraits et envoyés dans des charbons actifs.

Le MSRE fournit un retour d'expérience très riche. Il a démontré la très bonne tenue de l'Hastelloy N en sels fondus, bien que son comportement ductile puisse être affecté par l'irradiation. Il a confirmé la grande stabilité de

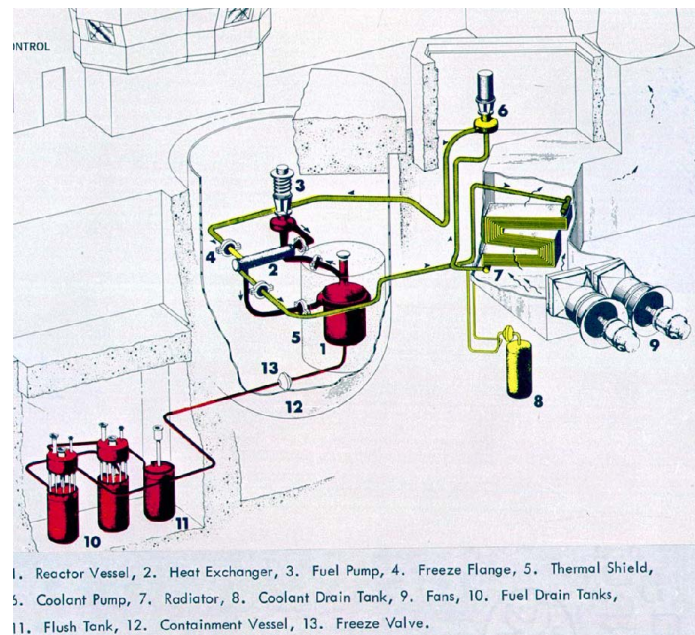


FIGURE 2.2 – Schéma du MSRE [27]

fonctionnement à puissance nominale du réacteur, avec un facteur de charge atteignant 80%, ce qui est excellent pour un démonstrateur. Il a montré la souplesse d'utilisation en terme de combustible. En devenant le premier réacteur à fonctionner avec de l' ^{233}U , il a permis la mesure des caractéristiques neutroniques de cet isotope. Lors des derniers mois de fonctionnement, l'ajout de ^{239}Pu au sel combustible a démontré l'utilisation possible du plutonium dans les sels fondus. Enfin, il a permis une forte montée en compétences dans l'instrumentation et le pilotage de ce type de réacteurs [28], et dans la gestion et le traitement du sel combustible [29].

2.1.3 Projet MSBR

Compte tenu des résultats très prometteurs du MSRE, l'ORNL commença la conception d'un réacteur régénérateur commercial, le Molten Salt Breeder Reactor (MSBR). L'objectif était d'apporter une solution optimale d'utilisation des ressources pour le nucléaire civil, dans le contexte des années 70 où un déploiement massif de réacteurs était pressenti. La figure 2.3 montre un schéma de fonctionnement du système [30].

D'une puissance comprise entre 1000 et 2000MW_e, le réacteur devait utiliser un sel (72mol%)⁷LiF-(16mol%)BeF₂-(12mol%)ThF₄-(0.3mol%)UF₄. Le sel devait être contenu dans un alliage de type Hastelloy N amélioré (ajout de titane) suite au retour d'expérience du MSRE. Le traitement chimique du sel prévu devait permettre 3 choses : l'extraction des produits de fission et autres impuretés, l'isolement du ^{233}Pa (élément précurseur de l' ^{233}U obtenu par capture sur le ^{232}Th) et l'ajustement de la quantité de ^{233}U dans le sel. La fluoration devait conduire à l'extraction de l'uranium, et l'utilisation de bismuth liquide devait permettre l'extraction d'une partie des PF (essentiellement les lanthanides) et du ^{233}Pa . Un nouveau sel intermédiaire était prévu pour l'extraction de la chaleur, un mélange NaF-NaBF₄ qui devait permettre de réduire les coûts en se passant du béryllium, tout en ayant une température de fusion plus basse (donc une plus grande plage de fonctionnement). Quelques difficultés notamment liées au graphite avaient été identifiées, et les expériences susceptibles d'y apporter une solution avaient été prévues à Oak Ridge.

En dépit de ce programme attractif, le projet ne verra jamais le jour et son budget sera annulé, pour diverses raisons. Premièrement, le projet RSF n'a plus le soutien politique et financier de l'Air Force, la création de missiles balistiques intercontinentaux rendant obsolète un bombardier à propulsion nucléaire. Deuxièmement, il est en compétition avec les projets de réacteurs rapides à métaux liquides qui bénéficient d'un plus large soutien : ils sont développés dans plusieurs laboratoires à travers les Etats-Unis, alors que les RSF ne sont connus qu'à Oak Ridge. Pour finir, les prises de position du directeur de l'ORNL de l'époque et promoteur du projet MSBR, Alvin Weinberg, qui demande à ce que la sûreté des REP soit renforcée, agacent l'administration américaine au point qu'il soit démis de ses fonctions en 1973 [31].

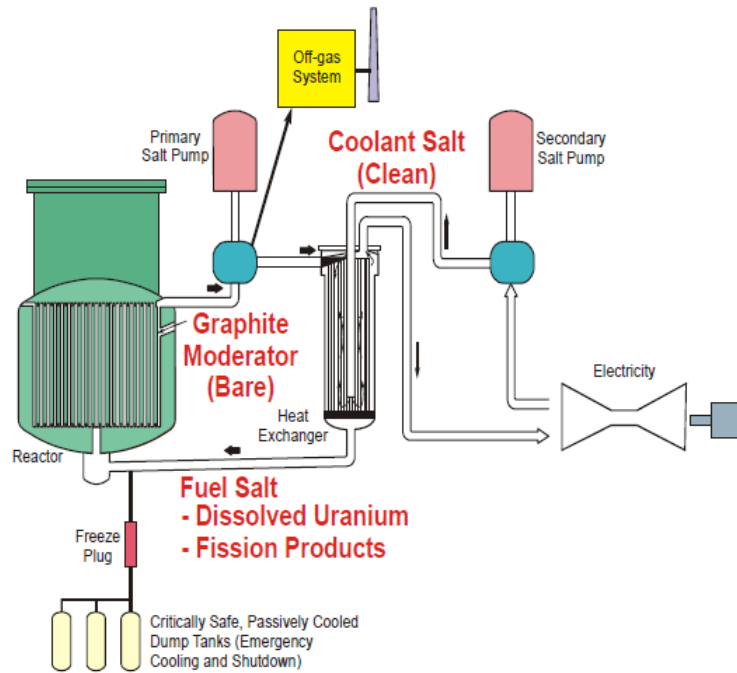


FIGURE 2.3 – Schéma fonctionnel d'un MSBR [30]

2.2 Histoire récente des RSF

Des projets de recherches ont émergé dans plusieurs pays suite aux premiers programmes américains. Dans cette section, les projets de réacteurs à sels fluorures sont passés en revue, puis les réacteurs à sels chlorures sont examinés, et pour finir les projets récents de nouveaux acteurs privés sont évoqués.

2.2.1 Réacteurs à sels fluorures

Au XXe siècle, au moins quatre pays ont menés des recherches sur les réacteurs à sels fondus : le Japon, la Chine, l'URSS puis la Russie, et la France.

2.2.1.1 Japon

S'inspirant grandement des travaux de l'ORNL, le Japon a conduit des recherches sur les sels fondus pour aboutir dans les années 1980 à deux types de réacteurs : le concept FUJI qui est une évolution du MSBR, et le AMSB (Accelerator Molten Salt Breeder) qui est un réacteur sous-critique piloté par un accélérateur (ce dernier système ne sera pas détaillé ici, voir références [32, 33] pour plus de détails). Les deux concepts associés forment le THORIMS-NES (THORIum Molten Salt Nuclear Energy System). La conception de l'AMSB a été prévue pour répondre au problème de la ressource fissile : s'inquiétant d'une éventuelle indisponibilité de matière fissile en cas de fort déploiement du nucléaire, l'AMSB permettrait une production accélérée d' ^{233}U pour le démarrage des réacteurs FUJI.

Les sels fondus ont l'avantage d'offrir une grande souplesse sur le type de matière fissile utilisable, il y a donc autant de réacteurs FUJI que de sources de matière fissile envisagée par les Japonais pour le démarrage. Le projet de réacteur FUJI- ^{233}U est détaillé ici, la figure 2.4 présente une vue du système.

Il s'agit d'un réacteur de puissance intermédiaire : 450MWth pour 200MWe. Le sel combustible a pour composition initiale (71.75)LiF-(16)BeF₂-(12)ThF₄-(0.25) $^{233}\text{UF}_4$ (fractions en mol%). Le cœur du réacteur, de volume 21.1m³, contient 166t de graphite modérateur et utilise comme matériau de structure un alliage Hastelloy-N modifié. Un important travail a été fait sur le retraitement chimique, l'économie du réacteur et ses applications mais le système n'a jamais été construit.

2.2.1.2 Chine

La Chine a démarré des études sur les sels fondus dans les années 1970. Il s'agit du seul pays autre que les États-Unis d'Amérique à avoir construit un prototype. C'était une maquette critique à puissance nulle appelée Critical Experiment Device [36], qui avait la particularité d'utiliser un combustible solide sous forme de poudre,

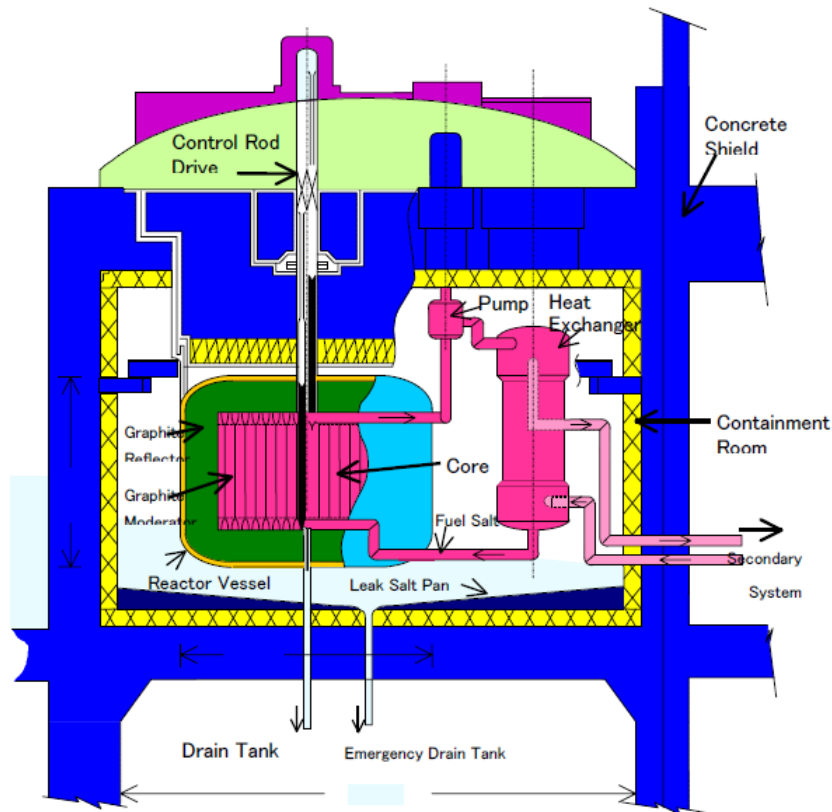


FIGURE 2.4 – Schéma du système FUJI [34, 35]

un mélange BeF_2 UF_4 ThF_4 . Les conclusions de cette expérience suggérant que des efforts importants de R&D étaient à prévoir avant d'envisager un déploiement de réacteurs à sels fondus, le pays a cessé d'investir dans cette technologie pendant un certain temps et consacré ses efforts à la construction de REP.

Plus récemment, le pays a repris le développement des réacteurs à sels fondus au SINAP (Shanghai Institute of Applied Physics). En se basant sur la conception du MSRE, le réacteur TMSR-LF1, d'une puissance de 2MW_{th}, a été développé et construit à partir de 2018 jusqu'en 2021. Le combustible utilisé est un mélange LiF - BeF_2 - UF_4 fonctionnant à l'uranium enrichi à 19.75%. La figure 2.5 montre un schéma du réacteur [37]. En juin 2023, il a obtenu un permis d'exploitation de 10 ans de la part du régulateur chinois, et devrait démarrer dans la deuxième moitié de l'année 2023.

2.2.1.3 URSS-Russie

L'URSS entreprend des études sur les sels fondus avec pour objectifs la transmutation d'actinides et la surrégénération de matière fissile. Ces travaux conduisent au concept MOSART (Molten Salt Actinide Recycler and Transmuter), décliné en plusieurs versions : incinérateur, iso-générateur, surrégénérateur. La figure 2.6 présente une vue du réacteur. La version surrégénérateur détaillée ici est un réacteur de 2.4GW_{th} utilisant pour combustible un sel (75) LiF -(16.5) BeF_2 -(6) ThF_4 -(2.5) TRUF_3 (fractions en mol%), TRU désigne les TRansUra-niens (éléments plus lourds que l'uranium). La surrégénération est assurée par une couverture fertile avec un sel de composition (75) LiF -(5) BeF_2 -(20) ThF_4 .

L'URSS/Russie a acquis de l'expérience dans la manipulation des sels fondus, notamment en exploitant des boucles de test. Elle a testé un certain nombre de matériaux et développé un alliage à base nickel, le HN80MTY, pressenti comme matériau de structure [39].

2.2.1.4 France

Depuis 1991, la loi Bataille permet le financement en France de la recherche sur les moyens permettant la gestion des matières radioactives. Le pays a d'abord montré de l'intérêt pour les sels fondus pour l'incinération d'actinides dans un réacteur à sels chlorures sous-critique piloté par accélérateur, à travers le concept TASSE porté par le CEA [40]. La voie de la transmutation est ensuite étudiée dans des réacteurs à sels fluorures avec le projet AMSTER d'EDF, avec en autres les travaux de thèse de David Lecarpentier. Une façon de gérer les déchets étant de concevoir des réacteurs qui en produisent le moins possible, le concept des RSF est ensuite repris par des chercheurs du LPSC (CNRS). Cela commence par la ré-appropriation de la physique associée aux RSF,

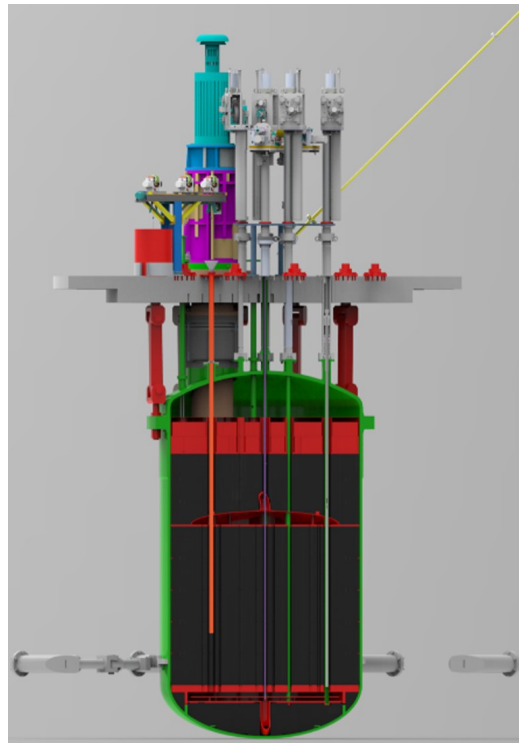


FIGURE 2.5 – Schéma du réacteur TMSR-LF1 [37]

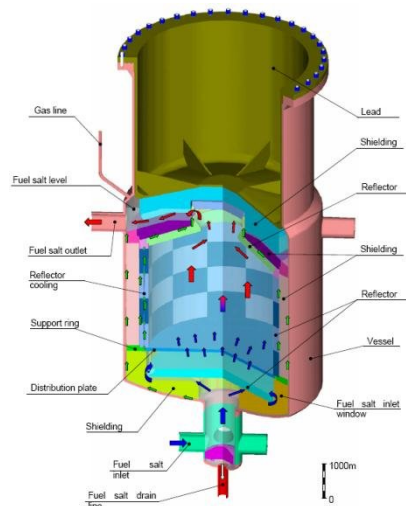


FIGURE 2.6 – Schéma du réacteur MOSART [38]

la définition de critères pour les nouveaux réacteurs et la conception d'outils appropriés à leur étude à travers la thèse d'Alexis Nuttin (LPSC) [41]. Cette thèse permet la réévaluation du MSBR et la mise en évidence de faiblesses dans la conception, notamment autour du graphite et de la production d'éléments indésirables comme le tritium. Puis, l'exploration des possibles en termes de spectres neutroniques dans le cadre de la thèse de Ludovic Mathieu [42] met en évidence l'intérêt du spectre rapide qui présente beaucoup d'avantages pour très peu d'inconvénients, donnant naissance au concept NM-TMSR (Non Moderated Thorium Molten Salt Reactor). Les travaux successifs de l'équipe MSFR [17, 15, 10] permettent la conception du MSFR en cycle thorium et sels fluorures tel qu'il existe actuellement. Ce MSFR est considéré depuis 2008 comme le concept de référence des RSF par le Forum International de Génération IV [43, 44]. Au delà de la France, il fait l'objet d'études dans le cadre de projets européens : projet EVOL (2011-2013), suivi du projet SAMOFAR (2015-2019), et du projet SAMOSAFER (2019-2024) finançant ces travaux.

MSFR de référence

Le MSFR de référence est conçu pour être un réacteur de puissance surrégénérateur de 3 GW_{th} en cycle $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$. La figure 2.7 représente le schéma de principe de son circuit combustible [10].

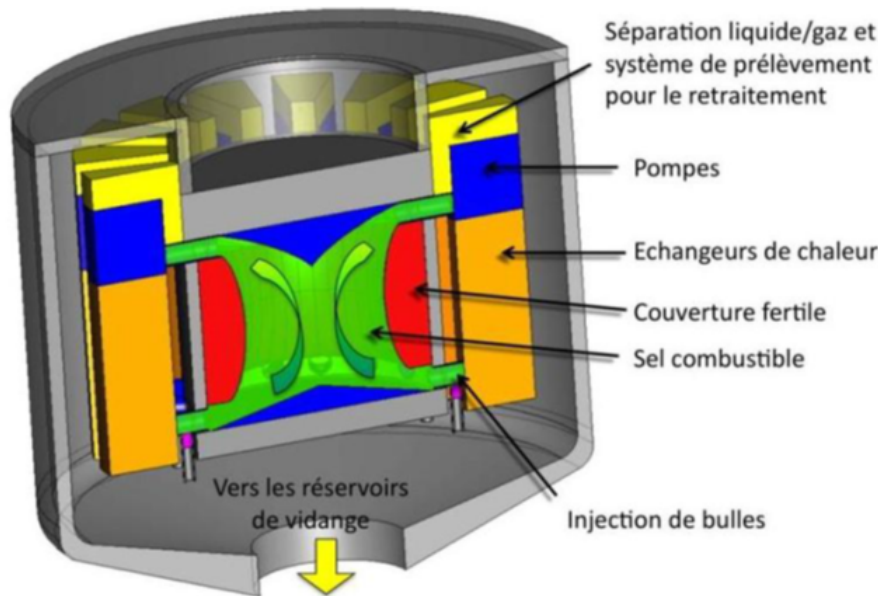
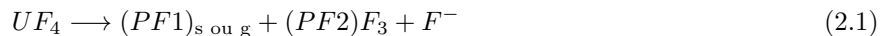


FIGURE 2.7 – Schéma de principe du circuit combustible du MSFR [10]

Le sel combustible de référence utilisé est $\text{LiF-ThF}_4\text{-}^{233}\text{UF}_4$. Un deuxième sel $\text{LiF-ThF}_4\text{-(TRU)F}_4$ est considéré pour le démarrage si l'on souhaite faire usage des combustibles usés. Le lithium est enrichi en ^7Li à hauteur de 99.995% pour éviter la formation de tritium par réaction (n,α) sur le ^6Li (cet enrichissement correspond à la valeur à l'équilibre lorsque l'on simule l'évolution du réacteur sur plusieurs décennies). Le sel combustible occupe un volume de 18 m^3 distribué pour moitié dans le cœur (orthocylindre de 2.25 m de diamètre), l'autre moitié étant dans les boucles de recirculation où se situent les échangeurs de chaleur. Les deux sont séparés par une couverture fertile de 50 cm d'épaisseur (7.3 m^3) contenant un sel LiF-ThF_4 , servant à augmenter le facteur de régénération en collectant une part des neutrons de fuite. On place ensuite une protection neutronique ($\sim 10\text{ cm}$ de B_4C ou 20 cm d'Hastelloy N)[15] pour réduire les dégâts d'irradiation subis par les échangeurs de chaleur. Le matériau de structure considéré est l'Hastelloy N. L'uranium est aussi présent en faible quantité sous forme UF_3 pour permettre le contrôle du potentiel redox du sel. L'équilibre UF_3/UF_4 ($1/60$) fixe le potentiel, et est modifié par la fission sur l'uranium qui va principalement suivre ce bilan [17].



La majorité des fissions entraîne la formation d'un élément léger sous forme métallique ou gazeuse, et d'un élément plus lourd sous forme saline mais trivalent. L'ion fluor restant va alors contribuer à oxyder UF_3 en UF_4 . Pour éviter la disparition de ce tampon redox, on ajoute de l'uranium sous forme métallique. Il va se dissoudre suivant la réaction suivante.



Le traitement chimique envisagé pour ce réacteur est présenté figure 2.8 [17, 45].

D'une part, le bullage à l'hélium est supposé emporter les particules métalliques. L'extraction des gaz permet de les extraire, ainsi qu'une partie des gaz de fission correspondant à la production quotidienne (le reste est réinjecté). D'autre part, le traitement chimique du sel se fait en 3 étapes principales. Tout d'abord, la fluoration permet l'extraction des uranium, neptunium, plutonium. Ensuite, une première extraction réductrice en présence de métal liquide permet l'extraction des actinides résiduels. Enfin, une deuxième extraction réductrice permet de retirer les lanthanides qui sont ensuite précipités sous forme d'oxydes. Le traitement de la couverture fertile est similaire, il s'affranchit simplement de la première extraction réductrice car la teneur en actinides mineurs de la couverture est très faible.

La résistance à la prolifération du MSFR de référence a fait l'objet de premiers travaux [46] mettant en évidence deux points. Premièrement, le sel combustible du réacteur est très difficile à détourner à cause de la production inévitable d'une faible quantité d' ^{232}U lors de la production d' ^{233}U par conversion du ^{232}Th . ^{232}U possède dans sa chaîne de décroissance des noyaux fils dont la décroissance s'accompagne de l'émission de rayon gamma très énergétique. En particulier le ^{208}Tl décroît avec émission d'un photon de 2.6 MeV . Ce rayonnement difficile à bloquer rend la matière facilement repérable, et difficilement manipulable à des fins malveillantes du fait du risque d'irradiation du personnel.

Deuxièmement, la principale vulnérabilité du système pour la prolifération vient de la séparation du ^{233}Pa

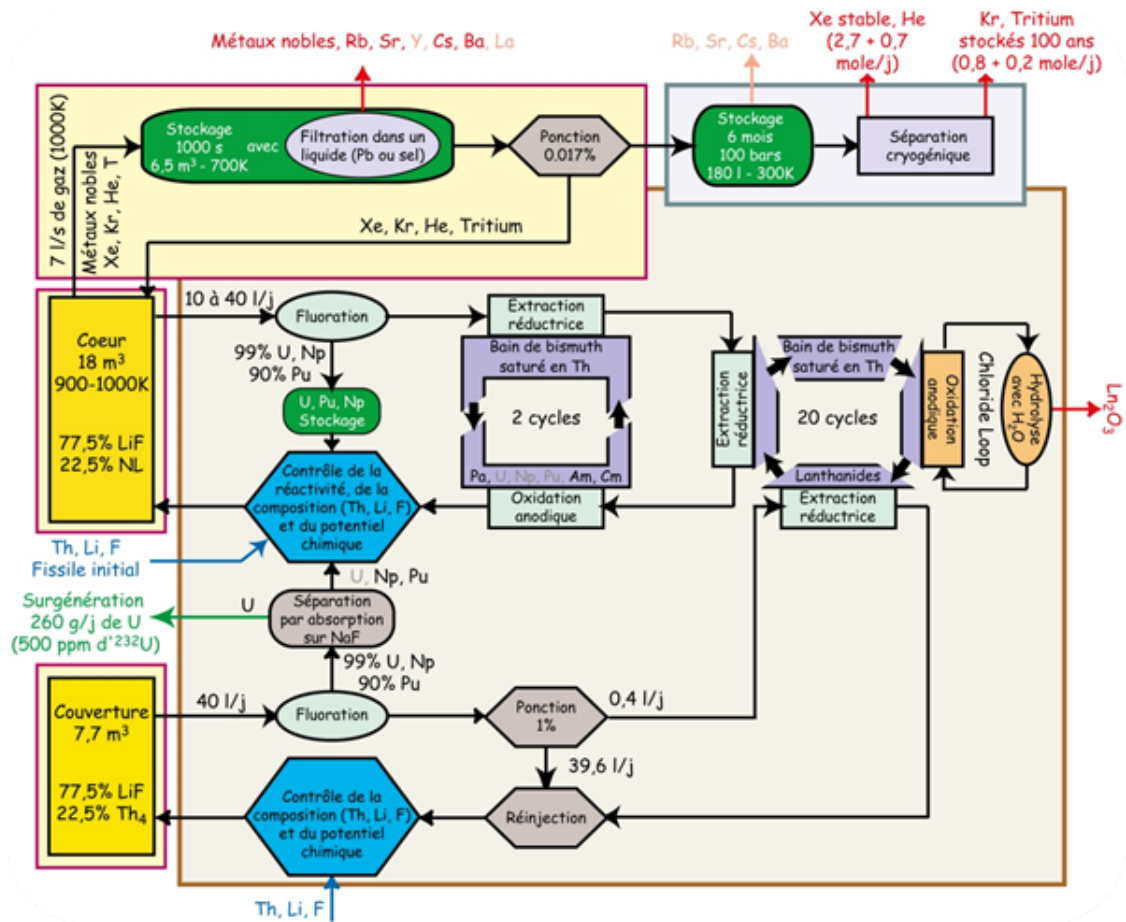


FIGURE 2.8 – Schéma de principe du retraitement du MSFR de référence [17]

généralisé dans la couverture fertile qui pourrait conduire à la production d'²³³U pur. Pour cela, plusieurs solutions sont proposées pour compliquer cette tâche au niveau des procédés de séparation, mais également en concevant l'unité de traitement pour permettre un contrôle efficace sur les flux de matières et repérer plus facilement une tentative de détournement. Pour ces raisons, le MSFR de référence est un système qui est concevable avec une bonne résistance contre la prolifération du point de vue de la matière fissile détournable.

Un autre aspect est lié à ²³³U en comparaison des autres matières fissiles, en particulier son nombre moyen d'émission de neutrons par fission rapide en comparaison du ²³⁹Pu. Pour un neutron incident d'énergie 2 MeV, la fission d'²³³U libère 2.7 neutrons environ (2.65 pour ²³⁵U). Celle du ²³⁹Pu libère environ 3.2 neutrons. Toute chose égale par ailleurs, pour une matière fissile, plus la quantité de neutrons par fission augmente, plus le nombre de fissions possibles augmente, plus la masse critique requise pour faire une arme diminue, et plus l'arme est puissante à masse fixée. À ce titre ²³³U est une matière peu attractive en comparaison des autres pour une utilisation militaire.

2.2.2 Motivations pour un MSFR en sels chlorures

Le MSFR de référence présente des performances intéressantes et peut, au moins en partie, s'appuyer sur le retour d'expérience du MSRE. Il s'agit d'un avantage non négligeable car aucun RSF à sels chlorures n'a jamais été construit. À ce titre, aucun matériau de structure n'a été validé pour un usage en sels chlorures par exemple, quand l'Hastelloy N a démontré une bonne tenue dans les sels fluorés.

Historiquement, les motivations pour l'étude des RSF à sels chlorures ont été la surrégénération de plutonium dans un contexte où la matière fissile est peu abondante. La production d'électricité en réacteur de puissance puis la production de chaleur industrielle ont été envisagées. L'utilisation du spectre neutronique très rapide permis par le solvant NaCl a été imaginée pour la conception d'un réacteur de recherches à haut flux [47]. Désormais, ils sont également jugés attractifs pour l'incinération des actinides mineurs [8].

Les motivations pour cette thèse sont principalement la conception d'un réacteur électrogène sur mesure en complément à un parc de réacteurs à eau, en faisant usage des combustibles usés non recyclés actuellement (les combustibles MOX usés dans le cadre français) et du stock important d'uranium appauvri, sous-produit de l'enrichissement de l'uranium. Pour le seul inventaire français, fin 2021, l'uranium appauvri représentait

324 000 tonnes, et les MOX usés comptaient pour 2550 tonnes [48]. La surregénération de matière fissile est une contrainte à intégrer si l'on souhaite pouvoir réaliser un déploiement massif. Dans un contexte où 80% de l'énergie primaire [1] utilisée dans le monde est fournie par des combustibles fossiles à substituer, elle peut être capitale. L'utilisation du cycle uranium, exploité à l'échelle industrielle, permet de bénéficier en partie de son large retour d'expérience. Finalement, le choix d'un réacteur de puissance de 3GW_{th} permet l'étude de la configuration la plus contraignante en termes d'inventaires et de puissance résiduelle à gérer et permet la comparaison avec le MSFR de référence.

2.2.3 Projets de RSF en sels chlorures

Un important travail de bibliographie a été fait par Mausolff et al. [47], les lignes suivantes s'appuient sur cet article et quelques éléments plus récents sont ajoutés.

2.2.3.1 Etats-Unis d'Amérique

Les réacteurs à sels chlorures commencent à être étudiés en 1952 par le MIT [49]. Quelques conclusions générales sont déjà tirées : la dureté du spectre neutronique, l'intérêt du sodium comme alcalin associé au chlore, l'ajout d'une couverture fertile pour augmenter le facteur de régénération, la possibilité d'ajouter un réflecteur. La sensibilité des résultats aux données nucléaires est également mise en avant.

En 1956, l'ORNL publie un rapport sur la faisabilité d'un réacteur de 700MW_{th} dédié à un usage civil, la production de chaleur [50]. La figure 2.9 présente un schéma du système. Il aurait pour sel combustible le mélange (50mol%)NaCl-(33mol%)MgCl₂-(11mol%)²³⁸UCl₃-(6mol%)²³⁹PuCl₃ dans un coeur sphérique de 3.27m³ (température de sortie de coeur : 1000K). Ce coeur serait entouré d'un réflecteur en plomb liquide de 2.5cm suivi d'une couverture fertile contenant une pâte UO₂ + Na. Le choix d'une pâte plutôt que d'un solide ou d'un sel fondu résultait surtout d'un calcul économique (pas de fabrication des pastilles) avec comme deuxième contrainte la maximisation de la concentration en matière fertile. Le sodium servirait à améliorer le transfert de chaleur. La corrosion était présentée comme un problème important, interdisant certaines configurations (par exemple, un sel fertile UCl₄ était rejeté car trop corrosif sur la structure). La structure en contact avec le sel combustible serait faite en alliage nickel-molybdène, le sel fertile serait contenu dans de l'acier inoxydable. On note également la présence de graphite dans la couverture fertile, qui augmenterait le taux de capture sur l'²³⁸U. Le résumé mentionne que l'étude n'a pas tenu compte des captures sur le ³⁵Cl dans le cas du chlore naturel, qui auraient pu être suffisamment problématiques pour abandonner le concept sauf à utiliser du ³⁷Cl.

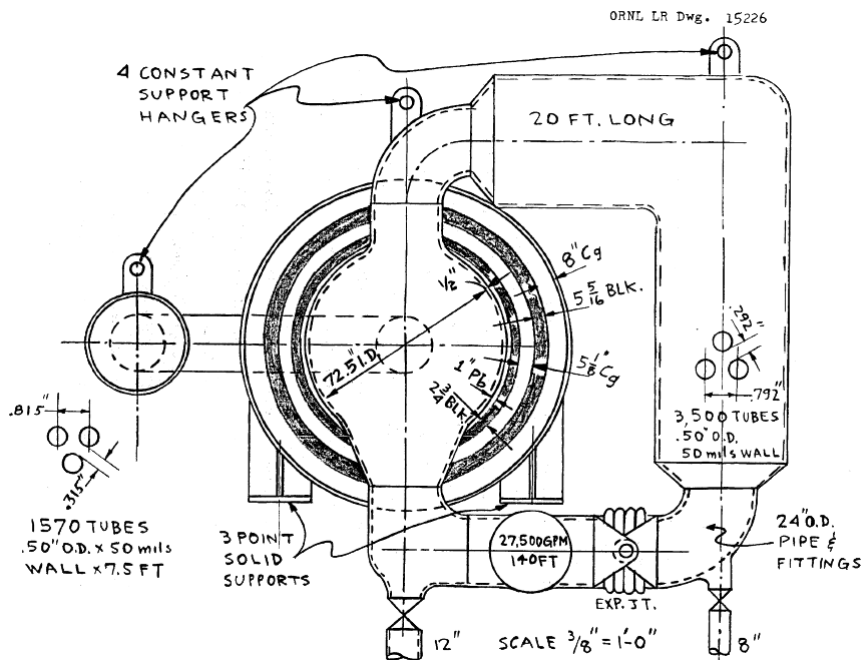


FIGURE 2.9 – Schéma du circuit combustible du réacteur de l'ORNL (1956) [50]

L'Argonne National Laboratory présente des études papier de concepts de RSF à sels chlorures en 1966 [51]. D'une puissance de 2.5GW_{th} , ils utiliseraient pour combustible un sel (35mol%)NaCl-(35mol%)MgCl₂-(29.4mol%)²³⁸UCl₃-(0.6mol%)²³⁹PuCl₃. Pour le modèle dit homogène dont un schéma est proposé figure 2.10,

le cœur sphérique aurait une dimension de 10m^3 , pour 15m^3 de boucles de recirculation. Une couverture fertile de 120 cm (60m^3) serait associée, contenant un sel ($35\text{mol}\%$) NaCl -($35\text{mol}\%$) MgCl_2 -($30\text{mol}\%$) $^{238}\text{UCl}_3$.

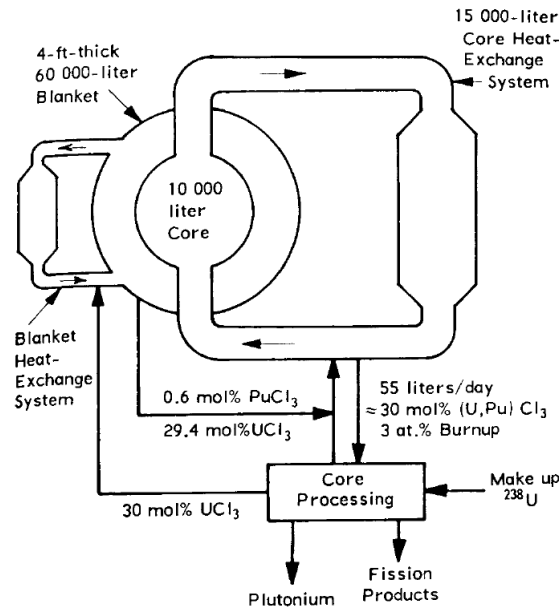


FIGURE 2.10 – Schéma du circuit combustible du réacteur d'Argonne (1966) [51]

Un débit de traitement du combustible a été proposé, avec 55 L/j . La couverture ne serait pas retraitée, et le sel fertile pourrait directement être injecté dans le sel combustible une fois qu'il aurait accumulé $0.6\text{mol}\%$ $^{239}\text{PuCl}_3$. Le matériau de structure considéré serait un alliage de composition $(60\%)\text{Ni}$ - $(30\%)\text{Fe}$ - $(10\%)\text{Mo}$ (pourcentages massiques). Le système affichait le facteur de régénération très élevé de 1.48 . Du chlore naturel serait utilisé; la question de l'enrichissement du chlore fut évoquée, mais il ne fut pas considéré comme impactant sur les performances neutroniques, ce qui contraste avec les autres publications.

En 1992, Eric H. Ottewitte publie un rapport [52] sur l'intérêt d'un réacteur rapide à sels chlorures pour un réacteur à haut flux aux applications suivantes : tests d'irradiation sur divers matériaux ; production d'isotopes ; tests pour un concept de réacteur spatial ; recherche médicale ; tests sur la fusion ; générateur de positrons ; transmutation. Le sel combustible pressenti serait un mélange $\text{NaCl-UCl}_3\text{-PuCl}_3$. Les avantages et inconvénients habituels sont mis en avant (spectre neutronique dur, corrosion ...). Il n'y a pas de géométrie présentée, mais un travail important est fait sur la chimie et le retraitement du sel. Différentes méthodes (distillation, électrolyse, pyrométallurgie) sont évoquées, et une discussion est menée sur les éléments à extraire et à contrôler (soufre notamment). Le contrôle du potentiel redox du sel est envisagé par l'utilisation d'uranium métal pour contrebalancer l'oxydation provoquée par la disponibilité excessive de chlore due aux produits de fission métalliques.

Plus récemment, en 2021, Z. Mausolf et al. [47] ont proposé leur propre modèle. Il s'agit d'un réacteur de 3GW_{th} dont le schéma du cœur est présenté figure 2.11.

Le combustible prévu est un binaire eutectique $(66\text{mol}\%)\text{NaCl}$ - $(34\text{mol}\%)\text{UCl}_3$ avec de l'uranium enrichi en ^{235}U à 15.5% . Les proportions de sel en cœur et hors cœur sont respectivement de 24% et 76% , avec des volumes de 22.5m^3 (cuboïde de base $2.5\text{m}\times 2.5\text{m}$ et de 3.6m de hauteur) et 70m^3 pour l'échangeur de chaleur. Les températures d'entrée et de sortie de cœur sont respectivement de 850K et 950K . Les matériaux envisagés sont l'acier 316 pour le réflecteur et le B_4C pour la protection. L'acier HT9 est également évoqué, mais n'est pas retenu dans l'étude car sa tenue à ces températures et sous irradiation est incertaine. L'enrichissement du chlore est évoqué, avec une recommandation pour un enrichissement au delà de 90% en ^{37}Cl pour réduire les captures parasites sur le ^{35}Cl et ainsi limiter l'enrichissement de l'uranium, ainsi que la production de ^{36}Cl radioactif à vie longue (demi-vie de $300\,000$ ans). Les contre-réactions estimées pour la composition initiale valent respectivement -0.67pcm/K pour le coefficient Doppler, et -8pcm/K pour le coefficient de densité.

Pour finir, de nouveaux projets ont démarrés à partir de 2020, notamment pour le réacteur expérimental MCRE (Molten Chloride Reactor Experiment) [53] soutenu entre autres par le DOE (Department of Energy) et l'acteur privé TerraPower (voir section 2.2.4).

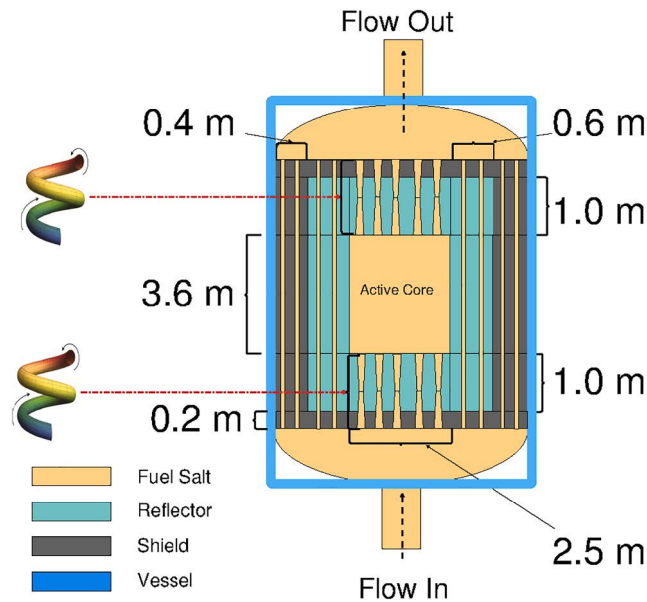


FIGURE 2.11 – Schéma du circuit combustible du MCFR de Mausolf et al. [47]

2.2.3.2 Pologne et Suisse

En 1974, M. Taube et J. Ligou proposent sur papier un surrégénérateur de 2GW_{th} nommé CHLOROPHIL [54] dont le schéma est présenté figure 2.12.

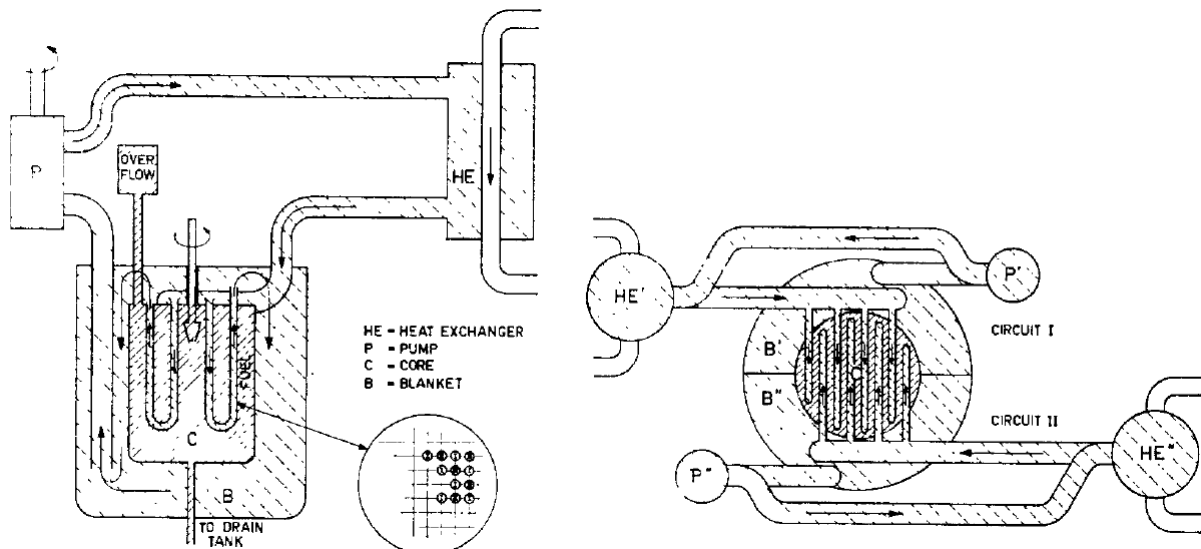
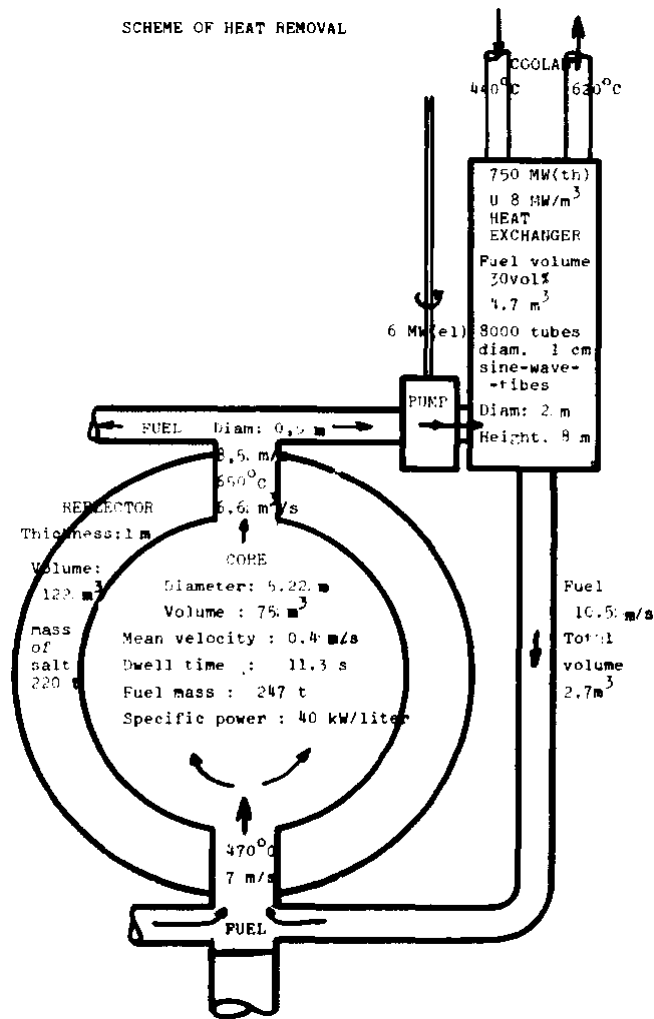


FIGURE 2.12 – Schéma du circuit combustible de CHLOROPHIL (1974) [54]

Le sel combustible serait un mélange binaire (84mol%)NaCl-(16mol%)PuCl₃, dans un cœur cylindrique de 8.75m^3 . Le combustible serait refroidi par le sel fertile, de composition (35mol%)NaCl-(65mol%)UCl₃. Le matériau de structure proposé serait un alliage de Molybdène (20% Mo- 80% Fe) dont la corrosion “pourrait être contrôlée in-situ par l’ajout d’une espèce volatile insérée par le système de bullage”. L’enrichissement du chlore ne fut pas jugé nécessaire, et les auteurs postulèrent que les données nucléaires utilisées dans les autres études auraient pu conduire à une conclusion trop pessimiste sur cette problématique.

Quelques années plus tard, M. Taube et W. Heer présentent le concept SOFT (Salt reactor Onsite reprocessing Fast converter Task) [55]. Ce serait un réacteur isogénérateur de 3GW_{th} axé autour de la réduction des conséquences des accidents graves, principalement par l’extraction des produits de fission en continu. Un schéma du circuit combustible envisagé est présenté figure 2.13.

Le cœur serait une sphère de 2.616 m de rayon, soit 75 m^3 . Les échangeurs de chaleur et tuyaux associés représenteraient un volume de 32 m^3 , soit 107 m^3 de sel de composition (53mol%)NaCl- (42mol%)UCl₃ - (5mol%)PuCl₃. Le plutonium utilisé aurait un vecteur riche en matière fissile (75% de ²³⁹Pu + 5% de ²⁴¹Pu)



vraisemblablement issu du retraitement d'un combustible UOX à très faible taux d'irradiation. Le cœur serait entouré d'un réflecteur en sel solide d'1 m d'épaisseur dont la composition n'est pas clairement spécifiée (chlorures d'alcalins / alcalino-terreux). La température du combustible en sortie de cœur serait de 650°C.

2.2.3.3 France

En 2006, A. Mourogov et P. M. Bokov d'EDF présentent le concept du réacteur REBUS-3700 [56], un surrégénérateur de combustible (55mol%)NaCl-(38mol%)UCl₃-(7mol%)TRUCl₃ (chlore naturel). Le cœur serait un cylindre de 3.8m de diamètre pour 3.25m de hauteur, soit 36.9m³, qui contiendrait 2/3 du sel combustible. Le sel intermédiaire serait celui considéré pour le MSBR : un mélange (92mol%)NaBF₄ + (8mol%)NaF. Le matériau de structure envisagé serait du titane ; l'Hastelloy F et un alliage appelé TZM contenant 99% de molybdène sont évoqués comme de bons candidats. Le système ne posséderait pas de couverture fertile mais fut annoncé avec un facteur de surrégénération de 1.03. Les coefficients de contre-réaction calculés seraient de -0.5 pcm/K pour le coefficient Doppler, et -6.0 pcm/K pour le coefficient de densité. Le débit de traitement chimique proposé serait de 35 L/j bien que le détail du traitement ne soit pas donné.

En 2022, Laura Mesthiviers décrit dans le cadre de sa thèse [8] en collaboration entre le CNRS et Orano des études de réacteurs incinérateurs à sels chlorures. Le combustible serait un mélange NaCl-MgCl₂-(TRU)Cl₃ dont les proportions varieraient en fonction du vecteur TRU à utiliser. Pour le concept nommé RAPTOR (Réacteur Alimenté en Plutonium et autres Transuraniens pour Orano), le réacteur aurait une puissance intermédiaire de 300MW_{th} pour un volume total de 4m³ dont 2m³ en cœur. Les matériaux utilisés seraient l'acier 316 pour la structure, et le B₄C pour la protection. Les coefficients de contre-réaction seraient compris entre -0.35pcm/K et -0.0pcm/K pour l'effet Doppler, et entre -18pcm/K et -11pcm/K pour le coefficient de densité.

En 2021, le CEA, en collaboration avec Orano, a commencé le développement d'un RSF incinérateur de

plutonium à sels chlorures, le concept ARAMIS-Pu (Advanced Reactor for Actinides Management In Salt). Dans le cadre du projet ISAC [57] incluant également le CNRS, EDF et Framatome, une autre version de ce concept, ARAMIS-A avec l'objectif d'incinérer l'américium et le plutonium. L'Union Européenne finance également certains projets comme le projet SAMOSAFER (Horizon 2020) ou le projet MIMOSA (Horizon Europe) [58].

2.2.4 Émergence de nouveaux acteurs

La lutte contre le dérèglement climatique impliquant une substitution massive des énergies fossiles, de plus en plus de structures privées s'intéressent au marché de l'énergie. Une partie d'entre elles montre de l'intérêt pour le développement de réacteurs nucléaires, en particulier de petits réacteurs modulaires (Small Modular Reactors, ou SMR) au modèle économique très différent de celui des réacteurs commerciaux actuels [59]. Les SMR sont également une voie de développement pour les technologies de quatrième génération, on parle alors d'AMR pour Advanced Modular Reactors. Certains de ces AMR sont des concepts de réacteurs à sels fondus, utilisant des sels chlorures ou fluorures.

Parmi les concepteurs de RSF AMR à sels fluorures on retrouve :

- Terrestrial Energy (Canada), et son concept de Integral Molten Salt Reactor (IMSR) [60, 61] ;
- Seaborg (Danemark), et son concept de Compact Molten Salt Reactor (CMSR) ayant pour particularité d'utiliser un sel combustible UF_4 -NaF-KF (FUNaK) [62].

Les nouveaux acteurs privés s'intéressant aux RSF AMR à sels chlorures regroupent par exemple :

- Terrapower (États-Unis d'Amérique) et son concept Molten Chloride Fast Reactor (MCFR) [63, 64] ;
- Moltex (Canada - États-Unis d'Amérique), et son concept Stable Salt Reactor – Wasteburner (SSR-W) et Waste To Stable Salt (WATSS) [65, 66] ;
- NAAREA (France), et son concept de micro-réacteur XAMR qui pourrait utiliser les sels chlorures pour son démarrage et effectuer une transition vers le cycle thorium et les sels fluorures ensuite [67].

Ces acteurs affichent souvent un calendrier ambitieux au regard des défis techniques, et une difficulté supplémentaire sera liée aux régulateurs pour pouvoir démarrer ces réacteurs.

2.3 Bilan sur l'état de l'art

L'idée d'un RSF utilisant les sels chlorures pour exploiter le cycle uranium émerge en 1952. Depuis, de nombreux concepts ont été proposés, à chaque fois adaptés à une utilisation précise. Ceci illustre la souplesse de cette technologie, néanmoins aucun modèle n'est parvenu au stade du prototype. A ce titre, les données expérimentales manquent pour confirmer les hypothèses faites, et la plupart des choix technologiques ne font pas consensus. On peut retenir les faits suivants.

Le solvant retenu pour le sel combustible est toujours basé sur NaCl, avec parfois le mélange NaCl-MgCl₂. Pour un surrégénérateur faisant usage de quantités importantes d'uranium, l'ajout de MgCl₂ ne semble pas indispensable. Les noyaux lourds sont sous forme trivalente, avec une exception envisagée pour l'uranium dans le cas où l'on souhaite s'en servir comme tampon redox, avec la coexistence d'UCl₃ et UCl₄. Cette option ne fait pas consensus car UCl₄ est pressenti comme trop corrosif pour les structures.

Les concepts récents de réacteur de puissance à sels chlorures présentent un volume important de sel combustible en comparaison du MSFR de référence à sels fluorures (18m³), allant de 50m³ à plus de 100m³.

Les évaluations des coefficients de contre-réaction indiquent tous un coefficient Doppler faiblement négatif et un coefficient de densité largement négatif.

Les informations sur les besoins d'enrichissement en ³⁷Cl sont contradictoires et aucun concepteur ne donne de critère permettant de déterminer des proportions optimales entre ³⁵Cl et ³⁷Cl. Il y également peu de données nucléaires concernant le chlore.

Le choix du matériau de structure ne fait pas non plus consensus. Sont envisagés des alliages à base de nickel et ou de molybdène, du titane, ou l'acier inoxydable 316H. Les critères de ces choix ne sont pas toujours explicites mais peuvent être expliqués de la manière suivante : les concepteurs les plus conservateurs n'envisagent pas l'acier inoxydable par crainte de la corrosion, et se tournent vers des solutions plus chères mais probablement plus sûres. L'usage de l'acier 316H ne semble envisageable que si le potentiel redox du sel peut être contrôlé et que les espèces corrosives peuvent être extraites. Des expériences sont nécessaires pour valider l'usage des différents matériaux, certaines sont déjà en cours comme par exemple à l'IJCLab dans le cadre de la thèse d'Alexandre Chmakoff [68].

Chapitre 3

Présentation des outils

Ce chapitre est dédié à la présentation des différents codes de calculs utilisés dans le cadre de cette thèse. Premièrement, la théorie des codes de transport neutronique est introduite, avec la présentation des méthodes déterministes et stochastiques de résolution de l'équation de Boltzmann. Deuxièmement, les codes dédiés à l'évolution des matières pour un réacteur (code REM) et pour un parc de réacteurs (code SDF/ISF) sont exposés. Troisièmement, les codes d'optimisation de thermohydraulique (SONGe) et systèmes (LiCore, SNCF) sont présentés.

Sommaire

3.1 Codes de transport neutronique	41
3.1.1 Codes déterministes	41
3.1.2 Codes stochastiques	42
3.1.2.1 Calcul source	42
3.1.2.2 Calcul "kcode"	42
3.1.2.3 Codes Monte-Carlo utilisés dans ces travaux	43
3.2 Évolution des matières et scénarios	43
3.2.1 Code d'évolution REM	43
3.2.2 Code de scénario SDF/ISF	44
3.3 Thermohydraulique et couplage avec neutronique	46
3.3.1 SONGe	46
3.3.2 LiCore	48
3.3.3 SNCF	50

3.1 Codes de transport neutronique

Résoudre l'équation de Boltzmann (ou équation de transport des neutrons) dans un système permet de déterminer le flux neutronique en tout point du système, en fonction du temps, de l'énergie et de la direction. Cette équation déjà présentée dans la section 1.1.5 est redonnée ci-dessous.

$$\begin{aligned} \frac{1}{v} \frac{\partial \psi(r, \Omega, E, t)}{\partial t} = & -\Omega \cdot \nabla(\psi(r, \Omega, E, t)) - \Sigma_t(r, E)\psi(r, \Omega, E, t) \\ & + \int_0^\infty \int_0^{4\pi} \Sigma_s(E' \rightarrow E, \Omega' \rightarrow \Omega) \psi(r, \Omega', E', t) d\Omega' dE' \\ & + \frac{1}{4\pi} \int_0^\infty \nu_p(r) \Sigma_f(r, E') \sum_{j=1}^{J^{fiss}} \chi_{j,p}(E' \rightarrow E) \phi(r, E', t) dE' \\ & + \sum_f \frac{1}{4\pi} \lambda_f P_f(r, t) \chi_{d_f}(E) \end{aligned}$$

Le flux neutronique est une grandeur primordiale pour l'étude des réacteurs nucléaires, elle permet par exemple de calculer les taux de réaction sur les différents noyaux, ou de connaître le facteur de multiplication k . Cependant, la résolution exacte de cette équation est impossible en pratique à cause du nombre trop élevé de paramètres, qu'il s'agisse de la complexité de la géométrie, ou de la description des sections efficaces microscopiques en fonction de l'énergie. Il reste possible d'obtenir une valeur approchée du flux, et pour cela deux méthodes très différentes ont été développées : la méthode dite déterministe, et la méthode dite stochastique ou de Monte-Carlo (en référence aux jeux de hasard du casino de Monte-Carlo). Quelle que soit la méthode employée, les codes de transport s'appuient sur une ou des bibliothèques de données nucléaires telles que ENDFB-7.1 [69] ou JEFF3.3 [70] contenant, entre autres, les valeurs des sections efficaces microscopiques, des constantes de décroissance radioactives et des rendements de fission. Les deux types de méthodes sont présentés ci-dessous, le second de façon plus détaillée car le seul utilisé dans le cadre de cette thèse.

3.1.1 Codes déterministes

Un code de transport déterministe procède à la discrétisation spatiale et énergétique (position r et direction Ω , énergie E pour le flux angulaire $\psi(r, \Omega, E)$) du système considéré. Le processus est effectué sur toutes les échelles de taille pertinentes de façon successive (multi-échelle), de façon à réduire la complexité en énergie (diminution du nombre de groupes) en augmentant progressivement les dimensions du système simulé. En prenant l'exemple d'un REP, ces calculs de sections efficaces moyennées peuvent être effectués d'abord pour un crayon de combustible, puis pour un assemblage, et enfin sur un cœur complet, permettant la résolution de l'équation de Boltzmann sur tout le système comme illustré sur la figure 3.1.

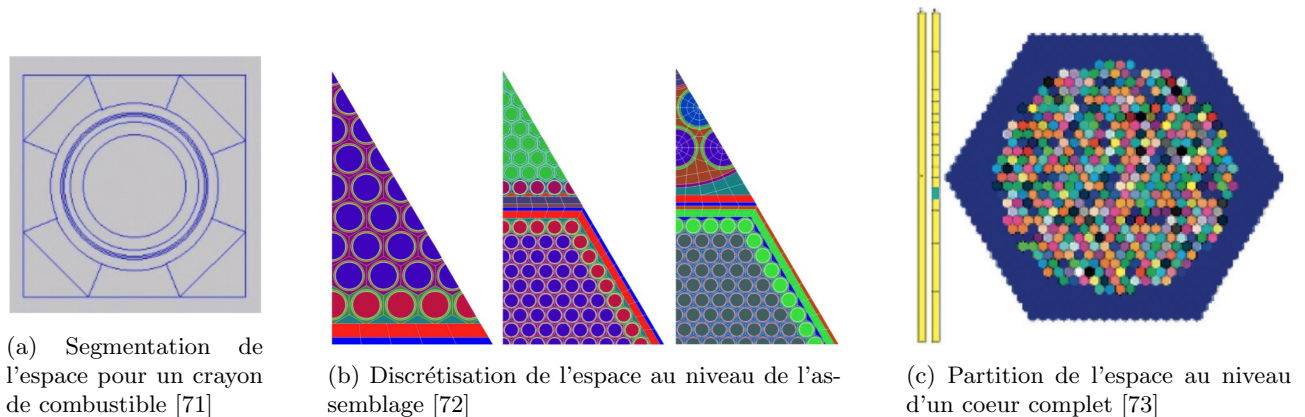


FIGURE 3.1 – Exemples de discrétisation multi-échelle de la géométrie d'un REP pour un code déterministe

Les valeurs obtenues (le flux par exemple) n'ont pas d'incertitude statistique (pour une configuration donnée, le code fournira toujours le même résultat), mais un biais du schéma de calcul lié à la discrétisation de la géométrie et à la discrétisation énergétique. Les codes déterministes tels que DRAGON [74] (open source) ou APOLLO2 [75] (propriété du CEA) ont l'avantage d'être rapides une fois les premières phases de calculs de sections efficaces moyennées effectuées et sauvegardées, en particulier sur de larges systèmes très hétérogènes

comme les REP. A ce titre, ils sont utilisés par exemple pour définir les plans de chargement des coeurs de réacteurs à combustible solide. Ils ont l'inconvénient de devoir être adaptés pour chaque type de systèmes (interactions entre assemblages par exemple). Des travaux sont en cours sur les schémas de calcul des codes déterministes pour des réacteurs à sels fondus [76]. Pour des études exploratoires telles que réalisées durant cette thèse, où l'on est amené à modifier le combustible et les réflecteurs et donc le spectre de façon importante, les codes Monte-Carlo présentés ci-dessous sont plus pratiques à utiliser.

3.1.2 Codes stochastiques

Comme évoqué dans la partie 1.1.5, un code de transport neutronique basé sur la méthode Monte-Carlo simule les comportements individuels de neutrons, de leur naissance (fission, décroissance d'un précurseur) à leur disparition (absorption ou fuite).

A partir des valeurs de sections efficaces microscopiques fournies par les bibliothèques de données, il est possible de déterminer la probabilité d'interaction et les probabilités respectives de chaque réaction à chaque interaction. En simulant un grand nombre d'"histoires" de neutrons, on peut estimer les valeurs de toutes les grandeurs d'intérêt (flux, taux de réaction, ...) sous forme de scores, ou tallies.

Cette méthode ne nécessite pas d'hypothèse simplificatrice comme celles utilisées par les codes déterministes (autre qu'un traitement des données nucléaires, pour modéliser les résonances par exemple), au prix d'une incertitude statistique sur les estimateurs. Le temps de calcul peut alors être significatif suivant la précision souhaitée. Les MSFR présentant une géométrie très simple pour un code Monte-Carlo (combustible homogène, peu de surfaces même si la forme est complexe), les calculs avec cette méthode peuvent être faits en un temps relativement court.

Les codes de transport Monte-Carlo s'utilisent selon deux modes principaux : le calcul source, et le calcul de criticité, ou "kcode", détaillés ci-après.

3.1.2.1 Calcul source

Le calcul source est lié à la notion de chaîne, ou de gerbe. Le principe est de suivre tous les événements engendrés par une particule, appelée particule source. En prenant le calcul associé à un neutron, si celui-ci est à l'origine d'une fission engendrant deux nouveaux neutrons, ces deux nouveaux neutrons forment une nouvelle génération et sont également suivis. Ceci se répète de génération en génération jusqu'à la fin complète des réactions (absorption ou fuite de toutes les particules secondaires), aussi appelée extinction de la gerbe. Dans un système multiplicateur, la gerbe est finie si le facteur de multiplication (donc le rapport entre une génération et la précédente) est strictement inférieur à 1 (sans quoi le nombre de neutrons générés diverge).

Il faut noter que si le k est inférieur mais proche de un, deux types de problèmes se posent. D'une part les gerbes peuvent avoir des tailles sensiblement différentes et génèrent des difficultés spécifiques pour les codes de calcul au niveau de la gestion des paquets (batch) de particules : dans le cas d'un calcul parallélisé, une seule chaîne qui devient plus longue que la moyenne force les autres CPU à attendre. D'autre part, si on s'intéresse par exemple aux premières générations uniquement, il peut être intéressant de décomposer le calcul tel que discuté dans la section 4.4.4.2, et de définir au préalable un certain nombre de générations à modéliser, au delà duquel le calcul s'arrête.

Pour finir, les particules sources sont définies avec une distribution spatiale et énergétique que l'utilisateur peut choisir librement. Cette fonctionnalité permet par exemple de choisir comme neutrons sources uniquement des neutrons thermiques, ou bien un ensemble de neutrons caractéristiques de la fission d'un noyau en particulier ; dans les études présentées en section 4.4.4.2, elle est employée pour modéliser une source de neutrons retardés.

3.1.2.2 Calcul "kcode"

Si le calcul source est associé à la notion de chaîne, le calcul "kcode" est lié à la notion de génération, ou de cycle. Il faut tout d'abord définir un nombre n de neutrons par cycle, invariant : un cycle représente n histoires individuelles de neutrons, depuis leur naissance jusqu'à leur absorption ou leur fuite du système. Pour chaque cycle, les positions des réactions générant de nouveaux neutrons sont notées. Quel que soit le facteur multiplicatif résultant du cycle i , n neutrons seront modélisés au cycle $i+1$ en utilisant les positions enregistrées du cycle i . Ce mode de calcul est beaucoup utilisé pour estimer le facteur de multiplication (calcul de criticité), mais également toutes les autres grandeurs d'intérêt pour l'utilisateur. Pour que la contribution aux estimateurs apportée par un cycle i soit représentative du système, il est impératif que la source, soit la distribution spatio-énergétique des neutrons récupérée à chaque fois du cycle précédent, soit convergée. Pour cette raison le calcul kcode commence par des cycles dits inactifs pendant lesquels les scores ne sont pas enregistrés, servant uniquement à obtenir une distribution spatio-énergétique correcte des neutrons. La convergence de cette distribution peut être quantifiée par l'entropie de Shannon [77]. Puis des cycles actifs sont réalisés, servant à l'estimation finale des grandeurs recherchées. En admettant une source convergée, la précision sur les estimateurs dépend du nombre de cycles actifs et du nombre de particules n .

3.1.2.3 Codes Monte-Carlo utilisés dans ces travaux

Dans le cadre de cette thèse, trois codes de transport Monte Carlo ont été utilisés : MCNP5, Serpent2, et OpenMC. MCNP, pour Monte-Carlo N-Particle, est le code stochastique historique de référence. Il est développé depuis 1946 par le Laboratoire National de Los Alamos (Etats-Unis). Sa version 5 a été écrite en FORTRAN90 et publiée en 2003 [78]. Il a pour avantage principal un nombre important de validations par comparaison avec des expériences [79]. Il a également un large champ d'applications (réacteurs, radioprotection, spatial, ...).

Serpent2 [80] est un code développé depuis 2004 par le VTT (Finlande). Écrit en C, il avait pour idée d'être "un code Monte-Carlo simplifié, dédié aux applications physiques utilisant des réseaux/maillages". Serpent2 est principalement utilisé dans le milieu académique bien que son utilisation dans l'industrie progresse, et son code source est accessible (mais non re-diffusable). Cette dernière qualité permet de le modifier et de le recompiler si nécessaire (sans diffuser les modifications), un cas de cette application sera présenté en section 4.4.4.

OpenMC est développé depuis 2011 par le MIT (Massachusetts Institute of Technology, Etats-Unis) et a pour première particularité d'être un code en open source. Il a été pensé pour être très performant sur l'aspect parallélisation par son algorithme, démontrant une "augmentation quasi-linéaire des performances jusqu'à 100 000 processeurs" [81]. Il est également fourni avec une librairie Python, permettant une prise en main rapide via l'écriture "automatisée" de ses fichiers d'entrée au format xml.

L'utilisation de ces trois codes a pour objectif d'accélérer les travaux en utilisant l'outil le plus adéquat suivant le problème, ou de comparer les résultats obtenus selon le code utilisé. Un exemple de fichier d'entrée pour la modélisation d'une sphère de ^{239}Pu de 5cm de rayon est disponible dans l'Annexe B. En pratique, les deux premiers codes ont été massivement employés, OpenMC a été ponctuellement utilisé à titre de comparaison pour des calculs de criticité.

3.2 Évolution des matières et scénarios

3.2.1 Code d'évolution REM

Un coeur à combustible solide fonctionne pendant un certain temps (appelé cycle) sans intervention extérieure sur le combustible lui-même. Une modification directe nécessite l'arrêt du réacteur et l'extraction d'un assemblage. Les réacteurs à combustibles liquides permettent une modification partielle de la composition du combustible au cours de son exploitation, sans requérir son arrêt. Les outils historiquement utilisés pour les réacteurs à combustible solide et à cycle de chargement ne sont pas appropriés pour modéliser un traitement continu. Dans ce contexte, l'équipe MSFR développe depuis 1998 le code d'évolution neutronique sous contraintes REM [41, 42, 28].

L'utilisation de ce code débute par la définition de la géométrie, des compositions initiales des matériaux, et de leurs traitements prévus. La maîtrise d'un paramètre s'accompagne systématiquement par un contrôle associé. Par exemple, la réactivité peut être maintenue à une valeur quasi-constante par le rechargement en noyaux fissiles venant compenser leur épuisement par fissions (ou autres réactions absorbantes). Une fois ces différents paramètres définis, le code va alterner les calculs statiques et les phases d'intégration. L'algorithme simplifié du processus est donné ci-dessous, une description complète est disponible dans la thèse d'Alexis Nuttin [41].

Un premier calcul statique est effectué par MCNP5 au temps t . Il permet l'obtention de toutes les grandeurs nécessaires (flux, sections efficaces moyennées) pour réaliser ensuite l'évolution de la composition des matériaux via la résolution des équations de Bateman modifiées (3.1) pour tenir compte des alimentations et extractions.

$$\frac{dN_i^B(t)}{dt} = -\lambda_i N_i^B(t) + \sum_{j \rightarrow i} \lambda_j N_j^B(t) - N_i^B(t) \sigma_{i,abs} \phi + \sum_l N_l^B(t) \sigma_{l \rightarrow i} \phi - \sum_{C \neq B} \lambda_{chim}^{B \rightarrow C} N_i^B + \sum_{C \neq B} \lambda_{chim}^{C \rightarrow B} N_i^B \quad (3.1)$$

avec B et C représentant des zones isolées du système, λ_{chim} la fréquence associée au temps de retraitement. L'extraction étant assimilée dans le code REM à une "pseudo-décroissance", λ_{chim} est sa constante associée.

Au bout d'un certain temps $t + \Delta t$ (contraint par l'utilisateur au début puis évolutif) on aboutit à une certaine composition $C_1(t + \Delta t)$ des matières, et un nouveau calcul statique est effectué pour recalculer les grandeurs d'intérêt. L'évolution du combustible est réalisée à nouveau depuis le temps t en utilisant les valeurs données par le deuxième calcul MCNP, aboutissant à une composition $C_2(t + \Delta t)$, et un test du χ^2 est effectué entre les deux compositions $C_1(t + \Delta t)$ et $C_2(t + \Delta t)$.

- Si le résultat du test du χ^2 est largement supérieur à un certain seuil de rejet, alors l'intervalle de temps Δt jusqu'au prochain calcul MCNP, appelé "pas MCNP", augmente.
- S'il est correct mais proche d'un seuil de rejet, le pas MCNP reste constant d'abord, mais est susceptible d'être diminué au pas suivant.
- Si le résultat du test du χ^2 est trop peu satisfaisant, le processus recommence avec un pas MCNP plus court.

Au début de la simulation d'évolution, les sections efficaces moyennes varient beaucoup du fait de l'apparition des produits de fission. Par la suite, la composition des sels évolue vers une composition stationnaire, l'amplitude des variations des sections efficaces s'atténue. Ainsi, dans la plupart des simulations le pas MCNP augmente progressivement au cours du temps.

Pour respecter les exigences de contrôle de la composition, des alimentations en continu sont nécessaires pour compenser la disparition de matière fissile et les extractions (retraitement). Si les extractions sont constantes, les différentes alimentations doivent être ajustées à cause de l'évolution de composition des matériaux. Ces ajustements réguliers forment un deuxième niveau du schéma de calcul, appelés pas d'ajustements.

Pour finir, l'intégration numérique des équations de Bateman est effectuée à l'aide de la méthode Runge-Kutta d'ordre 4. A chaque pas d'intégration, le flux est ajusté pour maintenir la puissance constante (ce qui est toujours demandé par l'utilisateur en pratique). La figure 3.2 résume le schéma de calcul.

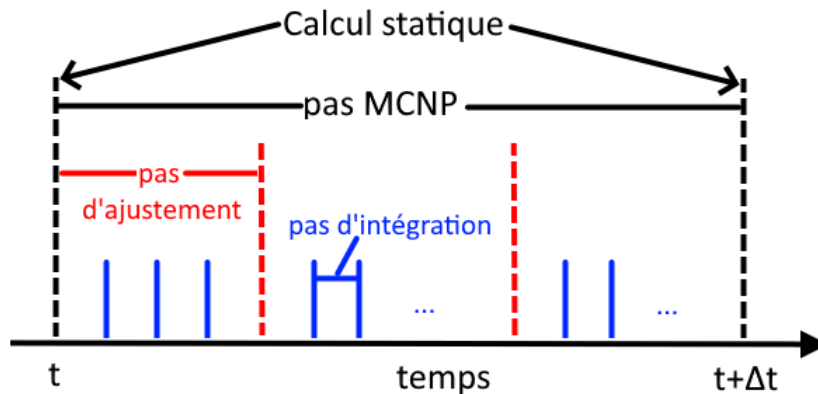


FIGURE 3.2 – Schéma de calcul du code REM [41]

Le calcul statique est effectué avec tallies sur toutes les réactions souhaitées (y compris les réactions moins importantes telles que la réaction à seuil ($n, 2n$)), sur tous les noyaux. Ceci devrait résulter en un temps de calcul très élevé lorsque l'inventaire est riche en produits de fission, mais la simplicité de la géométrie des MSFRs et la tolérance sur la précision requise sur l'inventaire permettent un calcul statique avec peu de neutrons (1 500 000 avec un k convergé à 80pcm avec 300 cycles actifs de 5000 neutrons, à comparer avec les 50 000 000+ pour un calcul de coefficient de contre-réaction avec k d'écart type inférieur à 15pcm). Une simulation sur 200 ans d'opération du réacteur pour atteindre un état stationnaire, avec des calculs statiques effectués sur 60 cœurs, l'intégration sur 1 seul cœur, et un traitement du sel (alimentations + extractions) standard, prend environ 48h.

Le code REM est particulièrement utile pour suivre l'évolution du vecteur actinide (dans le sel combustible comme dans le sel fertile), les besoins en alimentation du réacteur, la quantité de PF produits et permet un bilan des masses pour estimer le facteur de régénération du système. La figure 3.3 présente l'exemple de l'évolution des masses d'actinides sur 100 ans, pour une simulation du MSFR de référence démarré aux TRU et à l'uranium enrichi et alimenté en ^{233}U .

3.2.2 Code de scénario SDF/ISF

Le code SDF (Scénarios Du Futur) ou ISF (Innovative Scenarios for the Future) est dédié à l'étude de scénarios de déploiement sous contraintes. Une description simplifiée des réacteurs est fournie, ainsi que la demande en puissance au cours du temps. Les réacteurs sont classés par ordre de préférence pour le déploiement. Le code effectue un suivi des matières et renseigne ainsi sur les ordres de grandeur pertinents en terme de flux sur les matières fissiles et sur les inventaires finaux par exemple. La figure 3.4 réalisée par Louiliam Clot pendant son stage M1 [82] décrit le fonctionnement de l'algorithme pas à pas.

A titre d'exemple, supposons que l'on souhaite modéliser un parc électro-nucléaire simple d'une capacité de 50GW_e sur 200 ans (demande sur 150 ans). On admet avoir à disposition des REP de 1GW_e que l'on peut charger avec du combustible MOX à partir de l'année 20, déployables à hauteur d'une paire par an. On utilise

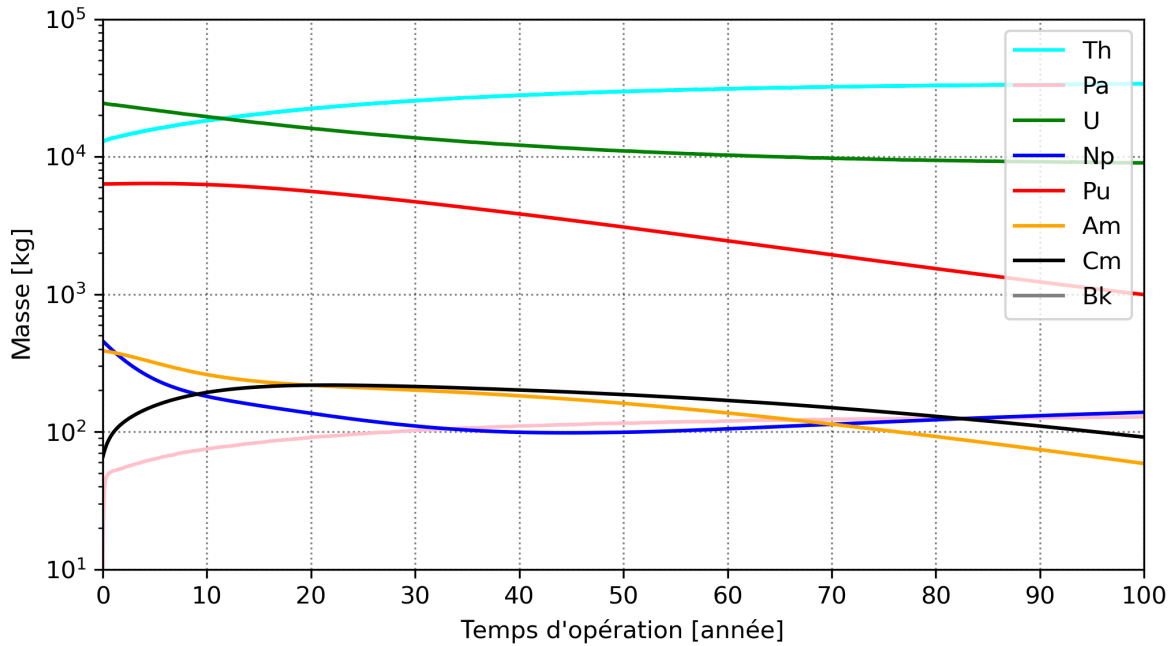


FIGURE 3.3 – Evolution des masses d'actinides dans le sel combustible pour une configuration du MSFR de référence démarré avec (TRU + ^{enr}U)

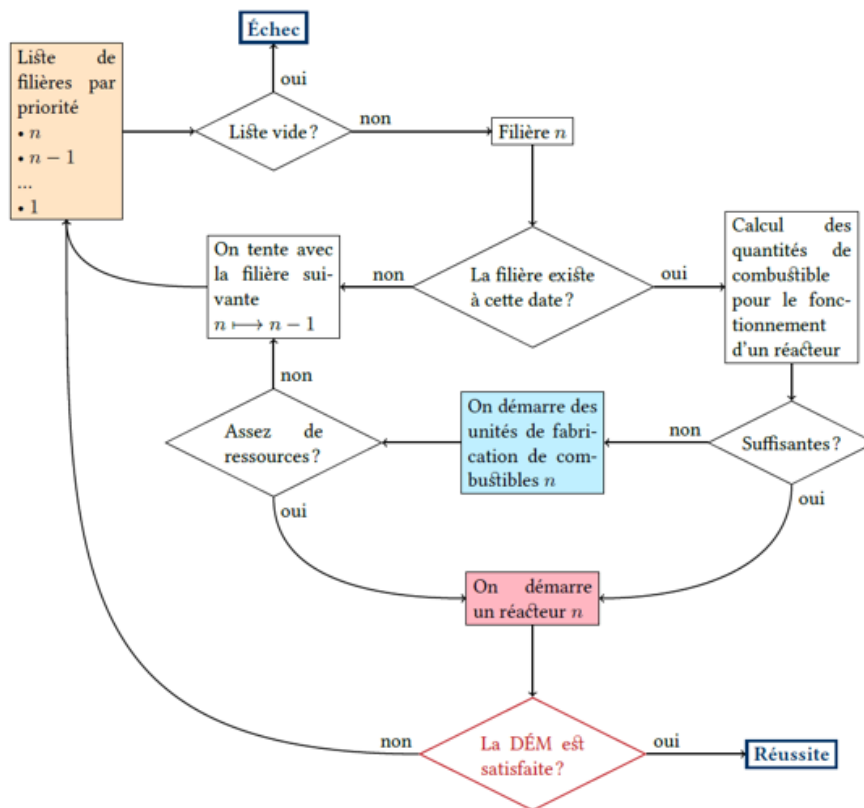


FIGURE 3.4 – Schéma de calcul du code SDF/ISF [82]

la description simplifiée des réacteurs fournie table 3.1 (voir section 7.2). Il n'est pas possible de changer les caractéristiques d'un réacteur une fois qu'il est démarré. Ainsi, pour ajouter de la flexibilité au code, on divise par 2 la durée de vie des réacteurs pour permettre un démarrage d'un réacteur MOXé (100% de combustible MOX) avant la fin de vie théorique de 60 ans des réacteurs à combustible UOX. On interprète ceci comme un changement de combustible dans le même réacteur, non comme la construction d'un nouveau réacteur suite à

l'arrêt du premier. L'URT-U correspond à l'uranium extrait des combustibles UOX usés, et URT-M correspond à l'uranium extrait des combustibles MOX usés. Actuellement les combustibles MOX usés ne sont pas retraités à l'échelle industrielle, il n'y a pas de stock d'URT-M. Cette façon de faire permet juste de mieux visualiser les inventaires d'uranium et de TRU. L'uranium enrichi provient exclusivement de l'uranium naturel ici ; le MOX est fabriqué à base du Pu issu des TRU UOX usé (le reste forme les AM UOX usé vitrifiés) et d'uranium appauvri.

TABLE 3.1 – Description des réacteurs simplifiés pour un scénario simple

Reacteur	Flux en entrée	Flux en sortie
REP UOX	UOX : 16.705 t/an	TRU UOX usé : 0.214 t/an ; URT-U : 15.636 t/an
REP 100% MOX	MOX : 16.706 t/an	TRU MOX usé : 1.252 t/an ; URT-M : 14.657 t/an

La figure 3.5 montre le parc ainsi obtenu au cours du temps, et la figure 3.6 fournit l'évolution des stocks de matières.

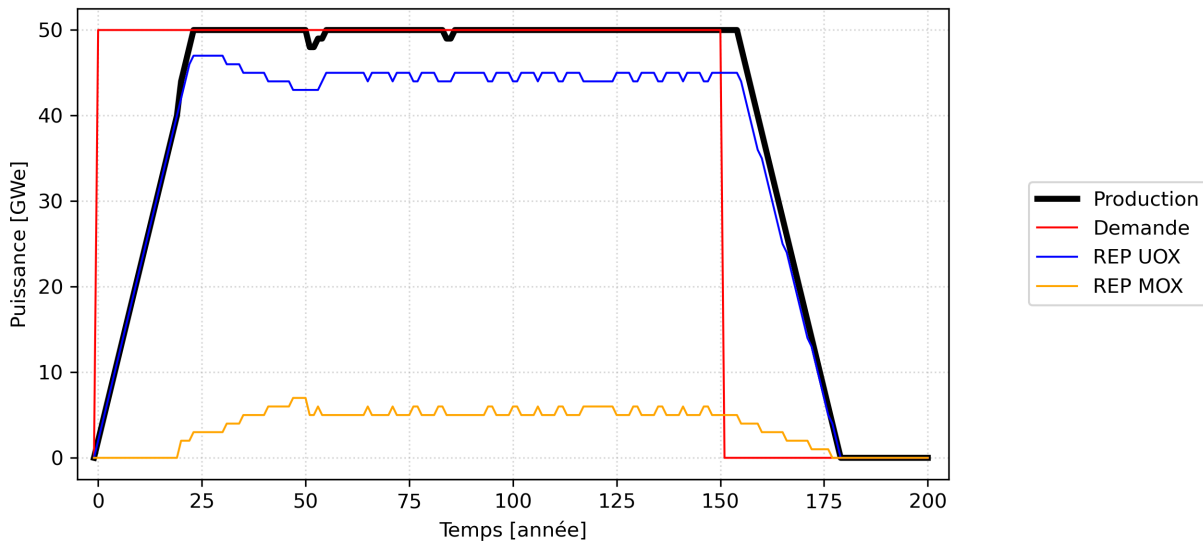


FIGURE 3.5 – Évolution du parc simple

On peut voir qu'avec les hypothèses considérées, le MOX constitue environ 10% du combustible utilisé à l'équilibre, ce qui correspond à sa part dans la production d'électricité en France.

Ce code a été utilisé pour quantifier l'impact de l'insertion des MSFR dans un parc électronucléaire national ou mondial à base de réacteurs à eau, et comparer la version de référence au MSFR-CI (voir chapitre 7).

3.3 Thermohydraulique et couplage avec neutronique

3.3.1 SONGe

Le code SONGe, pour Système d'Optimisation Numérique par algorithme Génétique, est un code d'optimisation sous contraintes écrit en Java par Daniel Heuer. Il est utilisé au sein de l'équipe MSFR pour optimiser le circuit combustible des réacteurs du point de vue de la thermohydraulique. L'utilisation d'un algorithme génétique est justifiée par le nombre élevé de paramètres (plus de 200, souvent corrélés entre eux). Le code intègre les corrélations nécessaires sur les échangeurs de chaleur et les propriétés thermodynamiques des matériaux utilisés. Suivant une liste de contraintes, il optimise le circuit en se basant sur un critère de minimisation des coûts, chaque paramètre modifiable (diamètre hydraulique des tubes, longueur totale de l'échangeur, ...) peut avoir un coût associé à sa valeur qui est l'exponentiel de l'écart à sa valeur de contrainte ramenée à une tolérance. Afin d'éviter en partie les minima locaux et pour accélérer le temps de calcul, on réalise l'optimisation de plusieurs systèmes (appelés peuples dans le code) en parallèle : on retient à la fin de l'optimisation celui au coût total le plus faible. Il peut arriver qu'un peuple stagne à un coût élevé en comparaison du plus performant de l'instant : dans ce cas, il est écarté et un nouveau est initialisé avec des valeurs de départ différentes.

Ce processus d'optimisation est complètement stochastique, il revient à l'utilisateur d'estimer si une configuration est acceptable et/ou suffisamment optimisée pour être utilisable car le processus n'a pas de fin à proprement

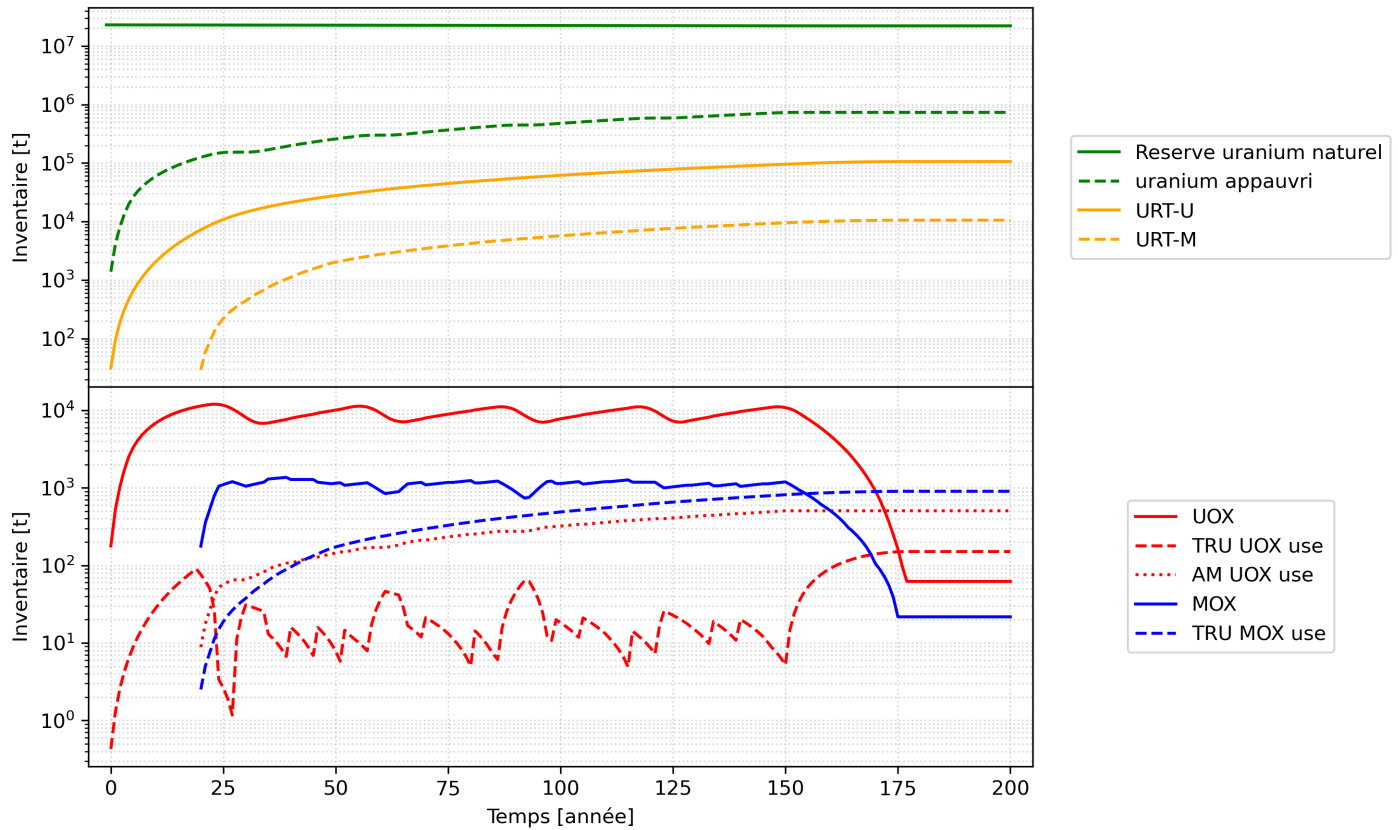


FIGURE 3.6 – Évolution de l'inventaire associé au parc simple

parler (pas de critère d'arrêt autre qu'un nombre de générations générées pour chaque peuple).

Etant donné que le MSFR-C1 a pour point de départ le MSFR de référence, la structure générale de la géométrie modélisée par SONGe peut être reprise sans modification particulière [83]. Cette géométrie est illustrée figure 3.7.

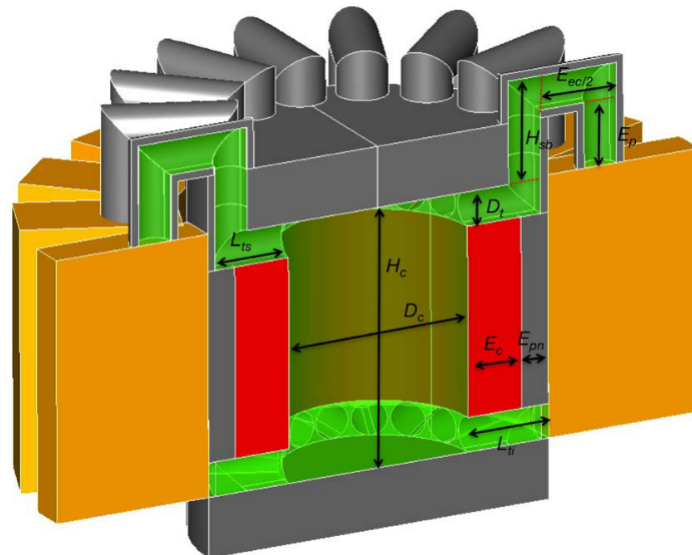


FIGURE 3.7 – Géométrie du circuit combustible des MSFR modélisés par SONGe [83] (sel combustible en vert, couverture fertile en rouge, protections neutroniques en gris, échangeurs de chaleur en orange)

Elle est différente de la géométrie modélisée dans les codes de transport neutronique, car l'écoulement du fluide est très dépendant de la forme des conduits là où la neutronique s'accommode d'une géométrie simplifiée. Il faut également renseigner les propriétés thermodynamiques des matériaux utilisés.

Les corrélations utilisées pour déterminer les pertes de charge et le nombre de Nusselt (la principale corrélation) pour les échangeurs à plaques corruguées sont données par les équations (3.2) et (3.3), en utilisant des tabulations sur a et b et une corrélation sur f dépendant du nombre de Reynolds. Cette dernière dépend elle aussi de paramètres tabulés disponibles dans la référence [84] avec un rapport [pas de corrugation] sur [hauteur de corrugation] de 3.33.

$$\Delta P = 4f\rho \frac{u^2}{2} \frac{L}{D_h} \quad (3.2)$$

$$\text{Nu} = a\text{Re}^b \text{Pr}^{\frac{1}{3}} \quad (3.3)$$

Les corrélations utilisées pour les échanges de chaleur sont davantage détaillées dans la section 3.3.3.

Les propriétés thermodynamiques utilisées pour le sel combustible du MSFR de référence sont fournies dans le tableau 3.2 [22].

TABLE 3.2 – Propriétés physiques du combustible LiF - ThF4 (78% - 22%)

Propriété	Valeur / Formule
Masse volumique [kg/m ³]	4983 - 0.882 · T[K]
Capacité calorifique [J.kg ⁻¹ .K ⁻¹]	(-1,111 + 0,00278 · T[K]) · 10 ³
Conductivité thermique [W.K ⁻¹ .m ⁻¹]	0.928 - 8.397 · 10 ⁻⁵ · T[K]
Viscosité dynamique [kg.m ⁻¹ .s ⁻¹]	$\rho(T) \cdot 5.55 \cdot 10^{-8} \cdot \exp 3689/T[K]$

Les propriétés thermodynamiques utilisées par défaut pour le sel combustible du Cl-MSFR sont fournies dans le tableau 3.3.

TABLE 3.3 – Propriétés physiques du combustible NaCl - UCl₃ (67% - 33%)

Propriété	Valeur / Formule
Masse volumique [kg/m ³]	3 860 - 0.8371 · T [85]
Capacité calorifique [J.kg ⁻¹ .K ⁻¹]	627
Conductivité thermique [W.K ⁻¹ .m ⁻¹]	0.5
Viscosité dynamique [kg.m ⁻¹ .s ⁻¹]	5.77 10 ⁻³

Pour la masse volumique, lorsque les proportions correspondent à une mesure, les valeurs expérimentales sont utilisées [85]. Si ce n'est pas le cas, en partant d'un sel de référence connu, on substitue des atomes d'un élément par un autre et on corrige la masse volumique par le ratio des volumes ioniques entre les éléments. La capacité calorifique est calculée par combinaison linéaire de celle des constituants, en partant des valeurs de référence [18] qui sont ici les capacités calorifiques molaires. L'équation (3.4) résume le procédé pour obtenir la capacité calorifique massique du mélange $x\text{NaCl}-y\text{UCl}_3$.

$$c_{p_m} = 1000 \frac{x \cdot c_{p_{mol,NaCl}} + y \cdot c_{p_{mol,UCl3}}}{x \cdot (M_{Na} + M_{Cl}) + y \cdot (M_U + 3 \cdot M_{Cl})} \quad (3.4)$$

Avec c_{p_m} la capacité calorifique massique [J.kg⁻¹.K⁻¹], M la masse molaire [g.mol⁻¹], approximée par le nombre de masse.

La conductivité thermique n'est pas bien connue pour les sels considérés ici, les valeurs expérimentales disponibles sur les sels les plus proches sont utilisées [86]. La viscosité dynamique est tabulée dans cette référence [85], un traitement des données effectué par Daniel Heuer donne le tableau 3.4.

Pour les mélanges avec d'autres espèces, on considère que les actinides ont la même influence que l'uranium sur la viscosité dynamique.

Le code SONGe a été utilisé pour l'optimisation du circuit combustible dans sa configuration initiale, présentée dans la section 4.4.1.3.

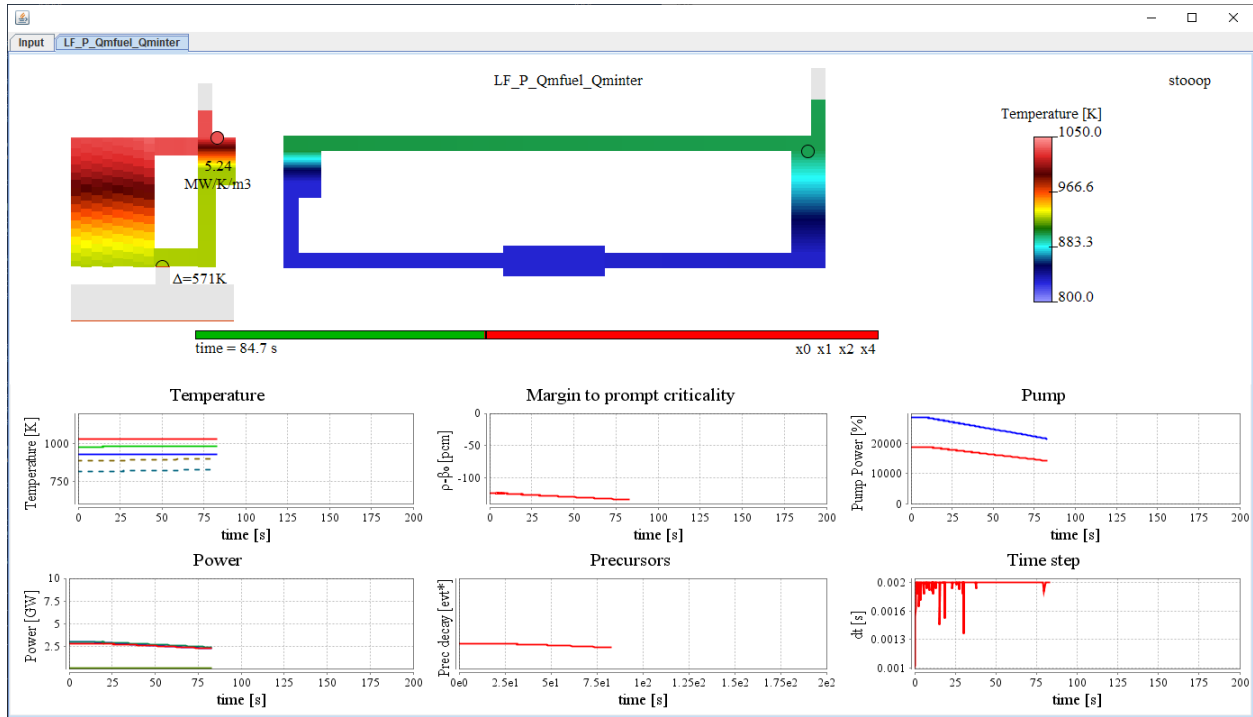
3.3.2 LiCore

LiCore [87] est un code système écrit en Java et développé par Axel Laureau depuis 2011. Il intègre un modèle neutronique appelé CPZ, pour Cinétique Point par Zone. Le modèle thermohydraulique est simplifié en un mouvement multi-1D piston. Les circuits combustible et intermédiaire sont discrétisés en mailles mobiles, on peut noter que la partie cœur est composée de plusieurs sections 1D juxtaposées avec des vitesses axiales différentes

TABLE 3.4 – Viscosité dynamique [mPa.s] du mélange NaCl-UCl₃ pour plusieurs températures et suivant la proportion de UCl₃

UCl ₃ [mol%]	T=723K	773K	823K	873K	923K	973K	1023K	1073K	1123K
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

afin de se rapprocher d'un calcul 3D et modéliser le mélange du combustible. Les équations de la cinétique neutronique (1.2) sont basées sur une modification des équations de la cinétique ponctuelle pour prendre en compte la distribution spatiale de décroissance des précurseurs de neutrons retardés et leur importance sur la réaction en chaîne. La figure 3.8 représente l'interface de LiCore pendant la simulation d'un suivi de charge (passage de 3 à 2 GW_e) après une phase de mise à l'équilibre (quelques secondes en temps réel).

FIGURE 3.8 – Interface du code LiCore, suivi de charge de 3 GW_{th} à 2 GW_{th} [87]

Malgré sa simplicité apparente, le code LiCore permet de modéliser les transitoires courants en exploitation de réacteurs (suivis de charge, incidents type pertes de débit, ...) en temps réel, en tenant compte du déplacement des précurseurs et avec une précision tout à fait acceptable après comparaison avec des modèles plus complexes [10]. Il peut également être utilisé avec la plateforme ALICES développée par CORYS (filiale de Framatome) afin de simuler le réacteur du circuit combustible jusqu'au système de conversion. La figure 3.9 illustre ceci, le code LiCore est masqué derrière le réacteur en haut à gauche.

Le code LiCore nécessite en données d'entrée la géométrie du système et un certain nombre de paramètres neutroniques. Ces paramètres (coefficients de contre-réaction, données sur les précurseurs, ...) peuvent être obtenus à l'aide des codes de transport neutroniques tels que Serpent2 précédemment présentés.

Le code LiCore a été utilisé pour une partie des transitoires présentés dans le chapitre 6.

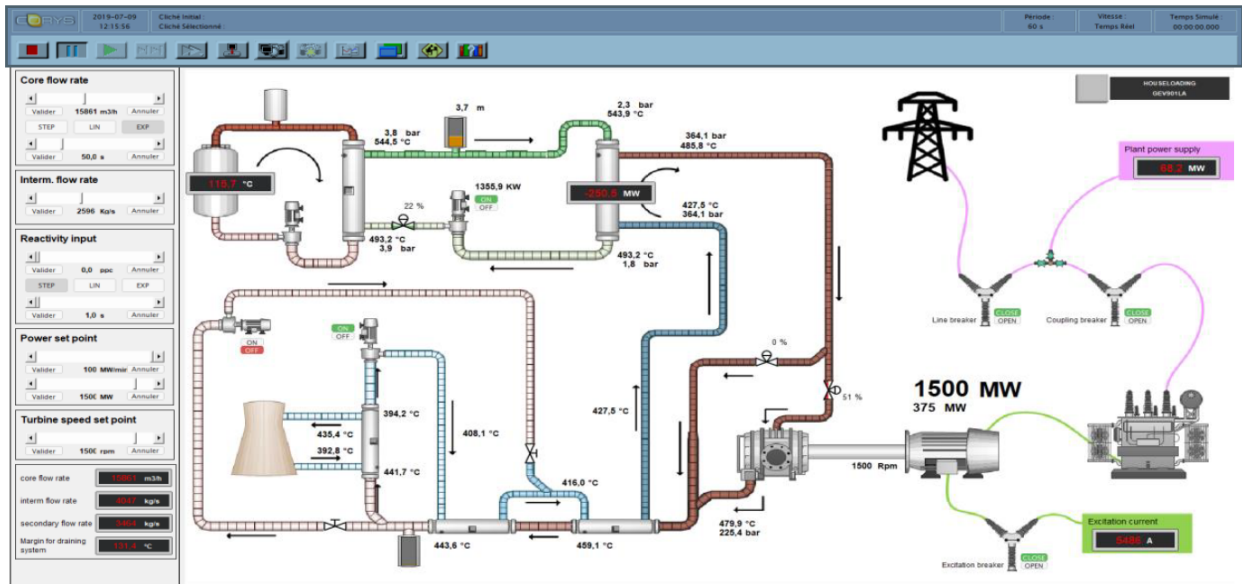


FIGURE 3.9 – Simulation dynamique du MSFR de référence par ALICES [87]

3.3.3 SNCF

Le code SNCF, pour Simulateur Numérique de Circulation de Fluides, est un code simplifié de thermohydraulique écrit en Java et développé par Daniel Heuer depuis 2020. Il permet de modéliser plusieurs boucles de fluides reliées entre elles par des échangeurs de chaleur, et est utilisé au sein de l'équipe MSFR pour étudier la mise en place de la convection naturelle dans les réacteurs de type MSFR. La figure 3.10 montre les différentes boucles que l'on souhaite modéliser : le combustible (jaune), le circuit intermédiaire (vert), la boucle en air du réacteur (mauve) et la cheminée d'air extérieur (bleu clair).

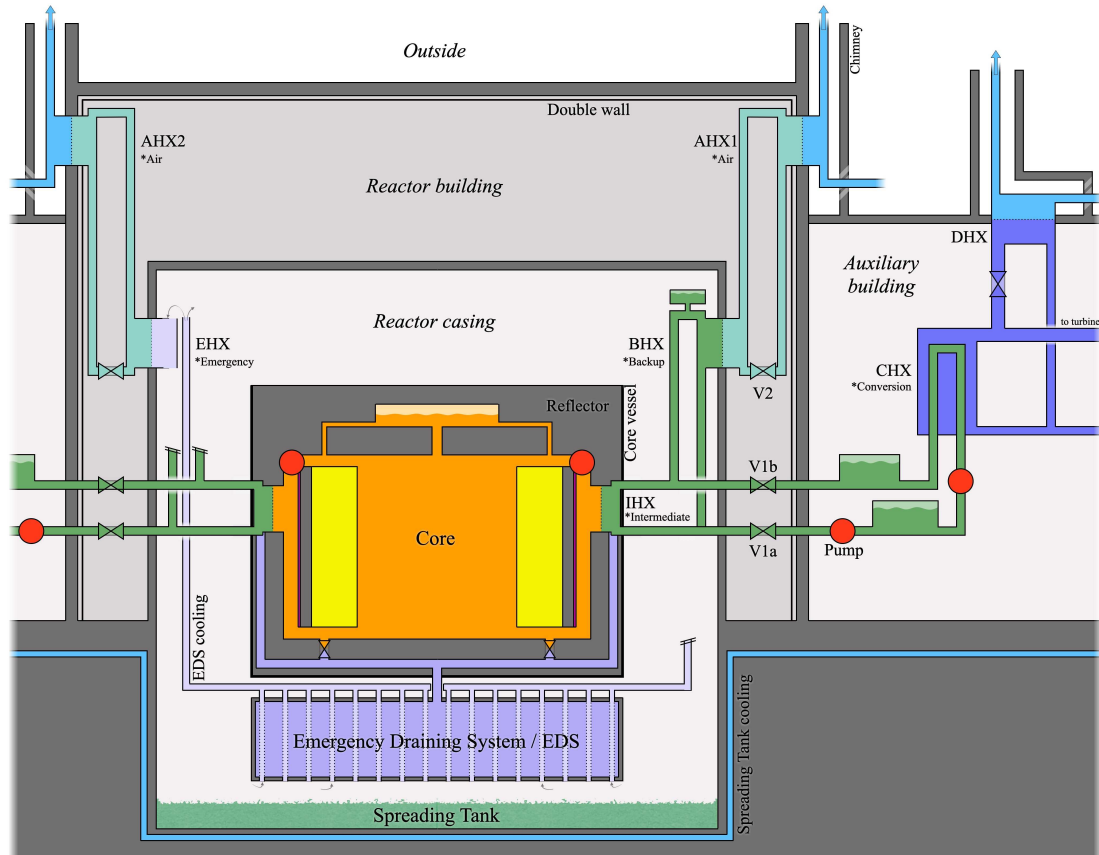


FIGURE 3.10 – Les différentes boucles de fluide utiles pour la convection naturelle

Le code SNCF sert à dimensionner les différentes boucles pour permettre l'évacuation de la chaleur résiduelle

par convection naturelle, avec pour objectif de ne pas recourir à la vidange d'urgence si le combustible peut être maintenu dans son circuit. Dans les scénarios basiques, on admet que le circuit intermédiaire est toujours disponible, on ferme les vannes V1a et V1b et on ouvre la vanne V2 pour se déconnecter du circuit de conversion et passer sur les boucles de convection naturelle.

Les transitoires modélisés par SNCF débutent par une mise à l'équilibre en convection forcée via des pompes avec un écoulement en régime turbulent, pour ensuite effectuer la transition vers la convection naturelle et un écoulement laminaire. Au cours de cette transition, la corrélation utilisée pour déterminer le nombre de Nusselt nécessaire pour le calcul du coefficient d'échange h peut varier plusieurs fois, car chaque corrélation a un domaine de validité dépendant de l'écoulement dont la nature évolue. Les premières corrélations ajoutées au cours de mon stage M2 [88] sont résumées par la figure 3.11 avec :
la corrélation (0) :

$$Nu = [(0.00205458 \cdot Pr + 0.00863736) \cdot Pr + 0.01602813] \cdot Re^{(0.057952 \cdot Pr + 0.843448)} \quad (3.5)$$

la corrélation de Gnielinski :

$$Nu = \frac{f}{8} (Re - 1000) \frac{Pr}{(1 + 12.7 \cdot \sqrt{\frac{f}{8}} \cdot (Pr^{2/3} - 1))} \quad (3.6)$$

$$f = \frac{1}{(0.76 \ln(Re) - 1.64)^2}$$

la corrélation de Dittus et Boelter :

$$Nu = 0.0243 \cdot Re^{0.8} \cdot Pr^a \left(\frac{\mu_s}{\mu} \right)^{a-0.8} \quad (3.7)$$

avec $a = 0.3$ pour le fluide chaud, $a = 0.4$ pour le fluide froid, μ_s la viscosité dynamique à la surface et μ la viscosité dynamique "loin" de la surface.

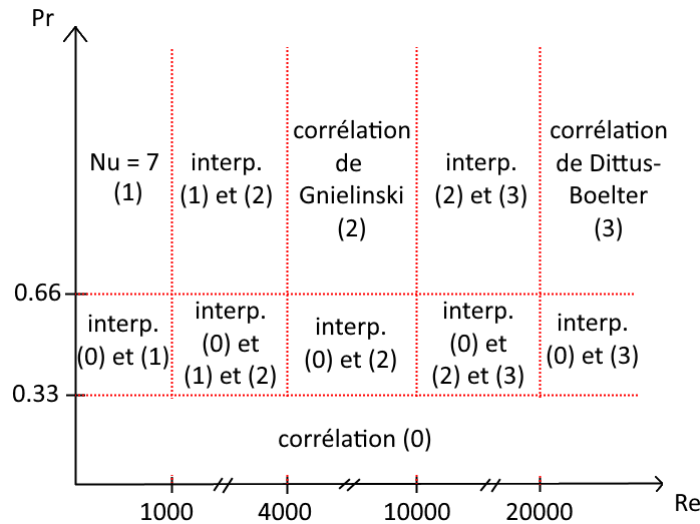


FIGURE 3.11 – Corrélations utilisées selon les valeurs de Re et Pr

Suite aux travaux de Max Begue [89] que j'ai encadré pendant son stage M1, les corrélations ont été mises à jour. En particulier les deux corrélations suivantes ont été ajoutées pour mieux décrire l'écoulement dans les échangeurs en distinguant davantage de situations :

- $Re > 2800$: $Nu = 0.023 Re^{0.8} Pr^{1/3}$
- $Re < 2000$ et $RePr \frac{D_h}{L} > 10$: $Nu = (RePr \frac{D_h}{L})^{0.33}$

Lorsque l'on se trouve dans une situation qui ne respecte pas ces critères, on effectue des interpolations linéaires entre les cas de référence qui l'entourent.

Chapitre 4

Optimisation d'une configuration de référence du MSFR-CI

Ce chapitre porte sur la définition de l'état initial du réacteur en terme de géométrie et de composition des matériaux. Après la présentation du cahier des charges et une discussion sur les choix principaux (solvant, forme générale du réacteur), différents éléments du système sont optimisés des points de vue neutronique, thermique et chimique. Cela débute par le circuit contenant le sel combustible : le coeur, les boucles de recirculation et le vase d'expansion. Puis la couverture fertile et le réflecteur axial sont optimisés pour maximiser la régénération tout en respectant les contraintes neutroniques de sûreté, et le dimensionnement des protections neutroniques est adapté à la configuration choisie. Pour finir, les coefficients de contre-réaction sont évalués pour s'assurer de la stabilité du système du point de vue neutronique.

Note : sauf mention explicite du contraire, les calculs neutroniques statiques sont effectués avec le code Serpent2 (version 2.1.32) et la librairie de données nucléaires sera ENDF-B7.1. Les sections efficaces microscopiques présentées sont récupérées depuis les fichiers ACE, générés avec NJOY [90] depuis les fichiers ENDF-6.

Sommaire

4.1	Présentation du concept MSFR	53
4.2	Cahier des charges du MSFR-CI	54
4.3	Choix généraux	54
4.3.1	Composition du sel combustible	54
4.3.2	Géométrie du circuit combustible	58
4.4	Optimisation du circuit combustible	59
4.4.1	Sel combustible	59
4.4.1.1	Criticité & mélange eutectique	59
4.4.1.2	Régénération - combustible seul	60
4.4.1.3	Extraction de la chaleur	60
4.4.1.4	Dimensionnement et placement du vase d'expansion	64
4.4.1.5	Enrichissement du chlore	66
4.4.2	Matériau de structure	67
4.4.3	Sel fertile	70
4.4.3.1	Calcul du facteur de régénération	71
4.4.3.2	Efficacité de l'utilisation de l' ^{238}U en tant que matière fertile	71
4.4.3.3	Optimisation par étude systématique	72
4.4.3.4	Le dessous des cartes	73
4.4.4	Protection neutronique	74
4.4.4.1	Méthodes de dimensionnement	75
4.4.4.1.1	Approche par gerbe	75
4.4.4.1.2	Repositionnement direct des neutrons retardés pendant le calcul de criticité	76
4.4.4.2	Dimensionnement de la protection	79
4.4.5	Configuration standard et paramètres neutroniques	80
4.5	Conclusion de l'optimisation de la configuration initiale standard	81

4.1 Présentation du concept MSFR

Le concept MSFR, avec son sel combustible liquide circulant qui joue également le rôle de caloporteur, a une conception très différente des réacteurs à combustible solide. La figure 4.1 présente une vue isométrique du réacteur centrée sur le circuit combustible [91].

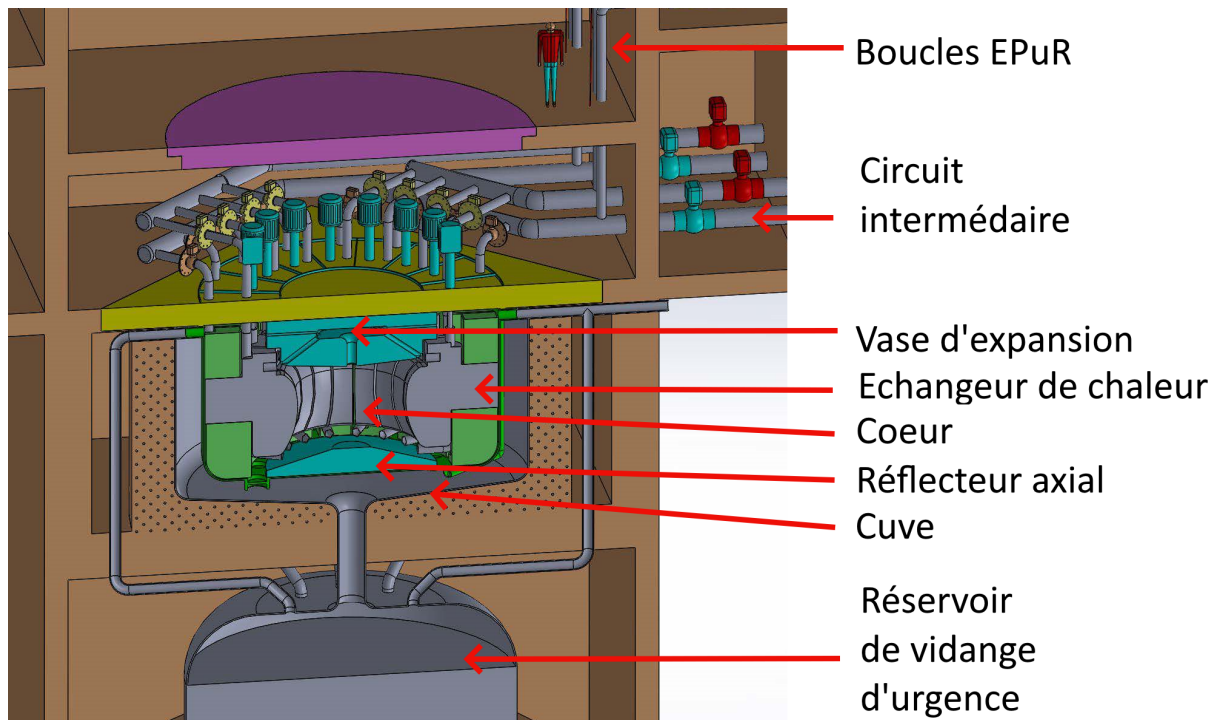


FIGURE 4.1 – Vue isométrique du MSFR de référence centrée sur le circuit combustible [91]

Le sel combustible est contenu dans un circuit appelé circuit combustible et composé du cœur, de boucles de recirculation situées autour contenant les échangeurs de chaleur, et du vase d'expansion au-dessus du cœur, dans le réflecteur axial supérieur (en cyan sur l'image). Le vase sert à accueillir l'augmentation de volume du sel qui se dilate lors d'une augmentation de sa température. Ces différents éléments sont contenus dans une cuve. Le choix de plonger les secteurs dans la cuve permet d'éviter de transporter le sel combustible dans des tuyaux susceptibles de fuir [15].

Sous le cœur se trouve le réservoir de vidange d'urgence. La forme liquide du combustible permet sa reconfiguration passive dans ce réservoir sous l'effet de la gravité en cas d'accident. Dans cette zone où la sous-criticité est assurée par la géométrie, le sel peut se refroidir passivement. En fonctionnement normal, ce réservoir est isolé du reste du circuit combustible par un système passif (conception encore à l'étude, fusible thermique par exemple).

Le sel combustible, injecté par le bas, s'échauffe en cœur par les réactions de fission et va déposer sa chaleur dans les échangeurs de chaleur connectés au circuit intermédiaire. Ce circuit est lui-même connecté par un échangeur du chaleur au circuit de conversion en fonctionnement normal. En cas de perte du circuit de conversion, il est envisagé d'isoler une partie du circuit intermédiaire avec le circuit combustible (vannes en rouge et cyan en haut à droite), et d'évacuer la chaleur via les boucles EPuR (Évacuation de la Puissance Résiduelle) dont la base de l'une d'entre elles est représentée en haut de la figure.

Le circuit combustible est également connecté à des réservoirs de stockage non représentés sur la figure 4.1 pour remplir ou vider le circuit combustible en cas d'arrêt ou de démarrage. Pour finir, il est prévu qu'il soit connecté à une unité de traitement permettant de nettoyer (en continu ou par batch) le sel sans interrompre le fonctionnement normal.

A l'intérieur des secteurs, entre le cœur et les échangeurs de chaleur, se trouvent le sel fertile et les protections neutroniques telles qu'illustrés sur la figure 2.7 dans la section 2.2.1.4.

Cette structure générale est conservée pour le MSFR-CI, mais le dimensionnement a été adapté aux nouveaux sels combustible et fertile envisagés, comme détaillé dans la suite de ce chapitre.

4.2 Cahier des charges du MSFR-Cl

Le MSFR-Cl doit, à l'image du MSFR de référence, respecter au mieux les critères de la génération IV définis par le GIF et qui sont les suivants [92] :

- Pérérité (1) : le système doit pouvoir produire de l'énergie sur le long terme et faire un usage efficient de la ressource naturelle sans entraîner de pollution atmosphérique ;
- Pérérité (2) : le système doit réduire la production de déchets, en particulier les déchets à longue durée de vie pour limiter leur impact sur la vie et l'environnement ;
- Économie (1) : le système doit avoir un avantage net en terme de coûts liés à son cycle de vie ;
- Économie (2) : le système doit avoir un risque financier comparable aux projets équivalents ;
- Sécurité et fiabilité (1) : le système doit présenter une sûreté et une fiabilité excellentes ;
- Sécurité et fiabilité (2) : le système doit présenter une probabilité d'endommagement du cœur très faible ;
- Sécurité et fiabilité (3) : le système doit éliminer le besoin d'une intervention hors site ;
- Résistance à la prolifération et protection physique : le système doit montrer qu'il ne présente pas d'intérêt pour une utilisation détournée de ses matières, et présenter une protection physique améliorée contre les actes de terrorisme.

Le risque financier et la protection physique n'ont pas fait l'objet de travaux dans le cadre de cette thèse.

Indépendamment et/ou en complément de ces critères, le MSFR-Cl doit faire usage des matières disponibles et, s'il le peut, utiliser les matières actuellement peu ou pas valorisées et/ou pour qu'elles ne soient plus considérées comme des déchets. Sont concernés en particulier les combustibles MOX usés, et l'uranium appauvri. Pour finir, le réacteur doit être comparable au MSFR de référence puisqu'un des objectifs de la thèse est de confronter les deux modèles. A ce titre, on impose la puissance totale à 3GW_{th} , on conserve un spectre neutronique rapide et la stratégie de pilotage du réacteur de référence, c'est-à-dire par la puissance extraite (pas de barre de contrôle). Le système doit aussi être surrégénérateur pour être déployable.

Il faut maintenant traduire ces exigences en critères physiques. Le tableau 4.1 désigne le ou les critères observés en priorité. On vérifiera ces critères à toute étape de la conception.

TABLE 4.1 – Critères et solutions techniques associées pour la conception du MSFR-Cl

Critère	Solution technique principale
Pérérité (1)	Iso/Surrégénération sur 1^{238}U
Pérérité (2)	Incinération des actinides mineurs (bilan massique net négatif)
Economie (1)	Valorisation des matières actuellement inexploitées ou sous exploitées
Sûreté et fiabilité (1)	Coefficients de contre-réaction strictement négatifs
Sûreté et fiabilité (2)	Faible probabilité d'excursion de puissance Évacuation passive de la chaleur résiduelle
Sûreté et fiabilité (3)	Risque de rupture du confinement extrêmement improbable
Résistance à la prolifération	Éviter l'isolement des matières fissiles

4.3 Choix généraux

4.3.1 Composition du sel combustible

Comme mentionné ci-dessus, on souhaite que le réacteur utilise comme matière fissile les TRU des combustibles UOX usés et MOX usés, et l'uranium appauvri comme matière fertile. Les actinides sont des métaux, il faut les associer à un ou des halogènes pour en faire des sels. Cependant, tous les éléments ne sont pas propices à être employés pour le solvant. Ils doivent être stables, le plus transparent possible aux neutrons pour éviter de produire des isotopes radioactifs et ne pas dégrader l'économie neutronique. Ils ne doivent pas trop modérer le spectre neutronique : pour la régénération du cycle uranium, un spectre rapide est nécessaire. On vise un spectre plus rapide que celui du MSFR de référence si possible, tel que celui d'un réacteur à neutrons rapides caloporté sodium, présenté sur la figure 4.2 [93, 94]. Pour finir, il est préférable qu'ils ne se retrouvent pas parmi les produits de fission radioactifs produits en quantités significatives, car ils ne pourront alors pas être extraits par traitement chimique.

L'analyse suivante s'appuie en partie sur le document de travail interne à l'équipe MSFR "Choix d'un sel combustible" écrit par Johann Martinet en 2018.

Du plus lourd au plus léger pour les halogènes, on trouve le Tennessee ($Z=117$), l'Astate ($Z=85$), l'Iode ($Z=53$),

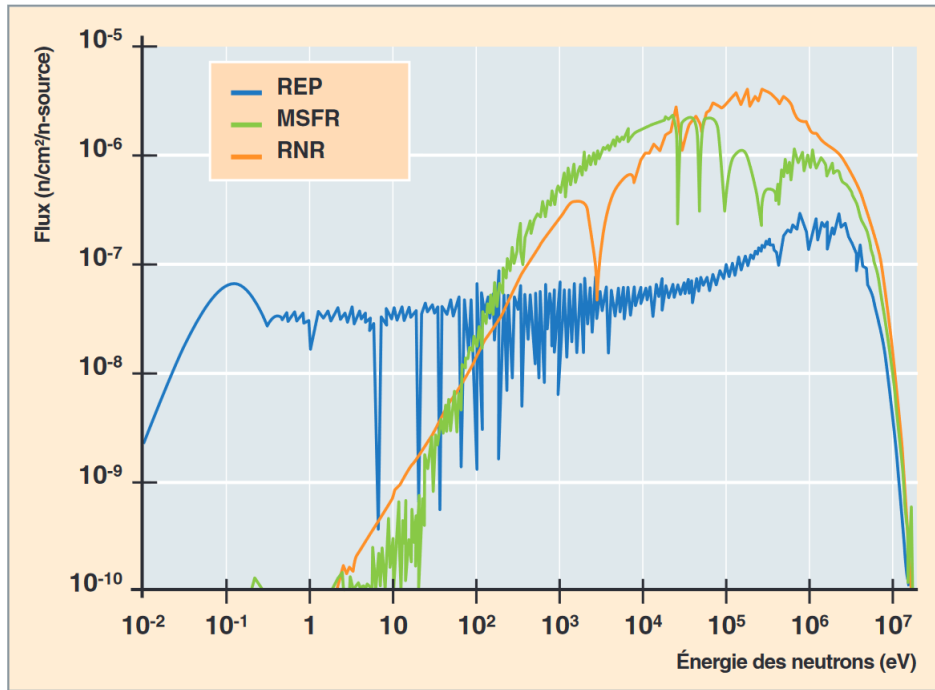


FIGURE 4.2 – Spectres de référence de différents types de réacteurs (MSFR désigne le MSFR de référence à sels fluorures ici) [94]

le Brome ($Z=35$), le Chlore ($Z=17$) et le Fluor ($Z=9$). Le ténésse et l'astate sont exclus d'emblée des choix possibles, ils sont radioactifs à vie courte (quelques ms pour le ténésse, quelques heures pour l'astate). L'iode a un seul isotope stable, ^{127}I . Il forme par capture de ^{128}I radioactif qui décroît en ^{128}Xe , stable. Cependant, c'est un élément relativement rare, et certains de ses isotopes radioactifs se retrouvent dans les produits de fission. L'iode forme également des espèces volatiles.

Le brome naturel est constitué de deux isotopes stables, ^{79}Br et ^{81}Br . Les deux isotopes forment par capture du krypton stable, ce qui est un avantage. Malheureusement c'est un élément encore plus rare que l'iode.

Le chlore naturel est très abondant, et formé de deux isotopes, le ^{35}Cl (75.77 mol%) et ^{37}Cl (24.23 mol%). Le ^{35}Cl forme par capture du ^{36}Cl radioactif de demi-vie 300 000 ans, et sa section efficace de capture du ^{35}Cl est presque de deux ordres de grandeur supérieure à celle du ^{37}Cl en domaines épithermique et thermique, comme illustré par la figure 4.3. Le ^{37}Cl peut former également du ^{36}Cl par réaction $(n,2n)$ mais il s'agit d'une réaction à haut seuil d'énergie (≈ 10 MeV) et à faible section efficace microscopique ($<0.5\text{b}$). Il forme par capture de ^{38}Ar stable. Le ^{37}Cl est donc un très bon candidat pour le solvant.

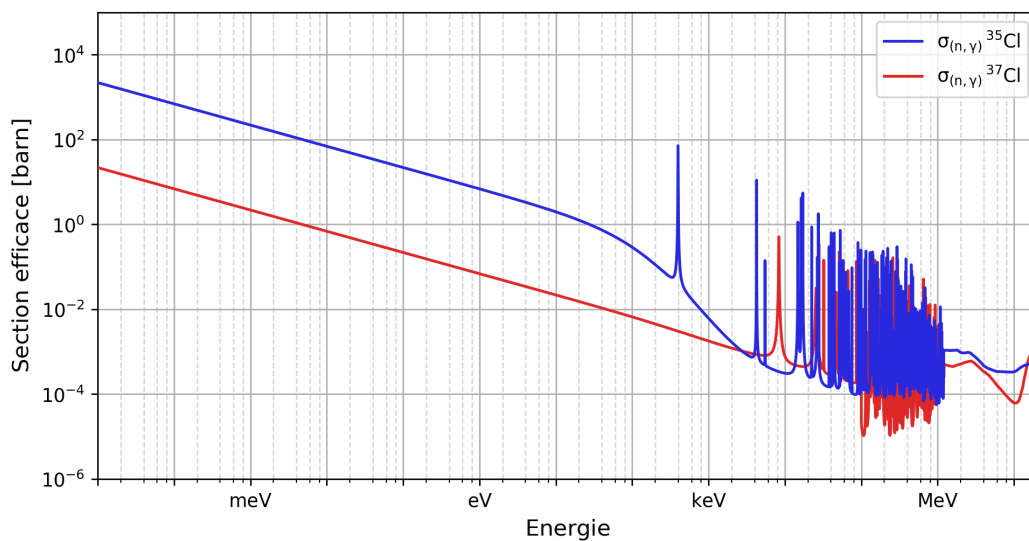


FIGURE 4.3 – Sections efficaces de capture des isotopes naturels du chlore

Le fluor a un isotope stable, le ^{19}F . Il forme du ^{20}Ne stable par capture. Le fluor a la particularité d'avoir de larges résonances de diffusion élastique en sortie du domaine rapide (25keV, 50keV, 100keV) visibles sur la figure 4.4 (encerclées en cyan) qui adoucissent le spectre neutronique. Ceci est souvent vu comme un désavantage pour la régénération du cycle uranium (voir section 1.1.6), mais un avantage pour réduire les dégâts d'irradiation sur les structures.

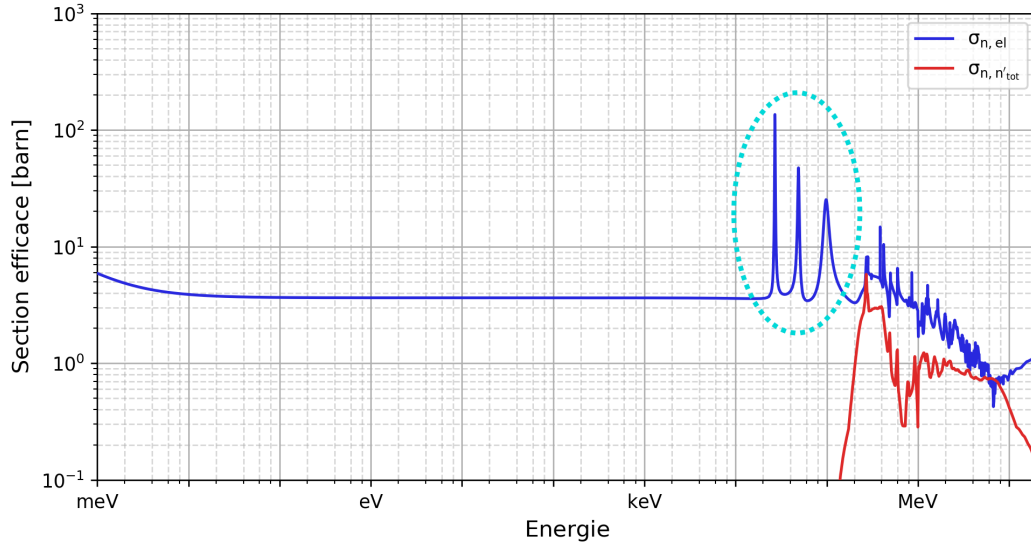


FIGURE 4.4 – Sections efficaces de diffusions élastique et inélastique du ^{19}F

Pour finir, les sels binaires et ternaires à base chlore présentent des eutectiques avec des fractions molaires plus élevées de TRU que les sels à base fluor, ce qui confère aux premiers un avantage non négligeable. Cet état des lieux conduit à choisir le chlore, vraisemblablement enrichi en ^{37}Cl . Les TRU sont principalement trivalents, l'uranium est de valence 3 ou 4, ce qui donne les formes suivantes : UCl_3 ou UCl_4 et $(\text{TRU})\text{Cl}_3$. UCl_4 est connu pour être corrosif pour beaucoup de matériaux dont l'acier 316 [95], on l'exclut pour conserver UCl_3 - $(\text{TRU})\text{Cl}_3$. La valence 3 sur l'uranium est obtenue par contrôle du potentiel d'oxydo-réduction via la gestion de la masse du chlore, ou l'ajout d'uranium métal par exemple (voir section 1.3.2).

Si l'on souhaite utiliser un mélange eutectique pour s'affranchir des problèmes liés à la précipitation préférentielle d'espèces lors du refroidissement (voir section 1.3.3) et abaisser le point de fusion du mélange, alors utiliser un sel binaire pour le sel combustible n'est pas pratique car cela force souvent un unique choix de proportions. Par ailleurs, et en particulier pour un réacteur de puissance comme le MSFR-Cl, on ne souhaite pas que la puissance volumique soit trop importante pour pouvoir extraire la chaleur plus facilement. Il faut donc trouver un solvant dans lequel diluer UCl_3 - $(\text{TRU})\text{Cl}_3$, c'est-à-dire un ou des métaux alcalins ou alcalino-terreux (associés au chlore pour former un sel).

Les alcalins existants sont les suivants, du plus lourd au plus léger : Francium ($Z=87$), Césium ($Z=55$), Rubidium ($Z=37$), Potassium ($Z=19$), Sodium ($Z=11$), Lithium ($Z=3$), Hydrogène ($Z=1$). Les alcalino-terreux sont les suivants : Radium ($Z=88$), Baryum ($Z=56$), Strontium ($Z=38$), Calcium ($Z=20$), Magnésium ($Z=12$), Béryllium ($Z=4$). Parmi ces éléments on peut exclure d'office le francium et le radium qui sont radioactifs. L'hydrogène et le béryllium sont des modérateurs, ils sont éliminés également.

Le césium naturel est composé uniquement de ^{133}Cs , qui forme du ^{134}Cs radioactif par capture. De plus, le césium est un PF dont des isotopes radioactifs comme le ^{135}Cs (demi-vie de $2.3 \cdot 10^6$ ans) et le ^{137}Cs (demi-vie de 30 ans) sont formés en grandes quantités, son utilisation comme solvant est donc déconseillée.

Le baryum possède beaucoup d'isotopes stables dont les sections efficaces de capture sont plutôt faibles en rapide, à ce titre il est intéressant. Néanmoins il présente beaucoup de résonances de diffusion élastique dans le domaine épithermique, comme illustré figure 4.5.

Le rubidium naturel est composé de deux isotopes, ^{85}Rb et ^{87}Rb . Le ^{87}Rb est radioactif mais à demi-vie très longue, de l'ordre de 10^{10} ans. Le ^{85}Rb possède quelques résonances dans le domaine épithermique. Il semble utilisable, mais apparaît sous forme d'isotopes radioactifs dans les produits de fission, ce qui réduit son attractivité.

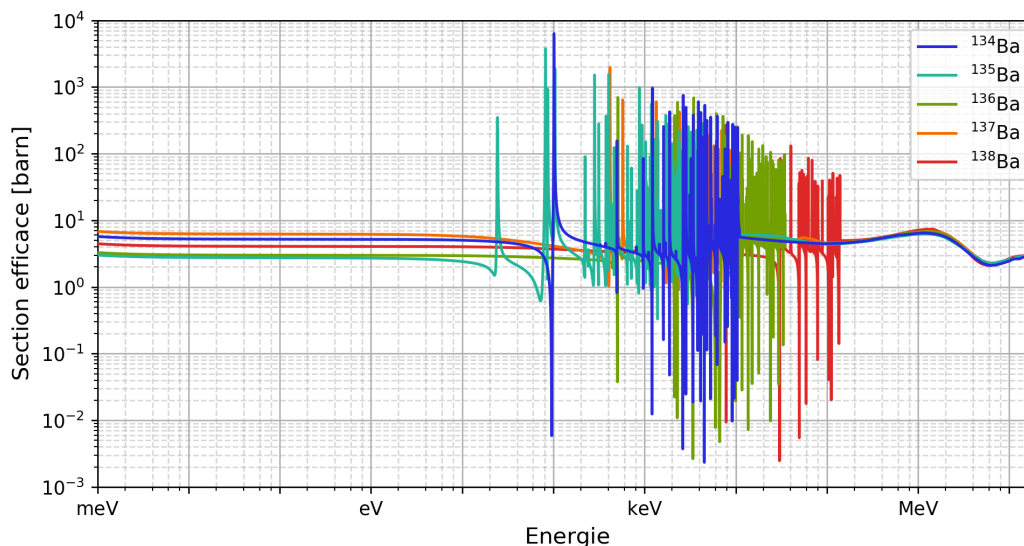


FIGURE 4.5 – Sections efficaces de diffusion élastique des isotopes naturels du baryum

Le strontium possède 4 isotopes naturels dont l'association montre beaucoup de résonances dans le domaine épithermique et rapide, et apparaît aussi sous forme d'isotopes radioactifs dans les produits de fission, ce qui le rend peu attractif.

Le potassium possède deux isotopes naturels, ^{39}K et ^{41}K . Bien qu'ils présentent des résonances dans le domaine épithermique, l'élément semble utilisable. La formation de ^{40}K principalement par capture sur ^{39}K est possible, mais la demi-vie de cet isotope étant de l'ordre de 1.10^9 ans, ce n'est pas rédhibitoire du point de vue de l'activité.

Le calcium naturel est composé à plus de 95% de ^{40}Ca formant par capture du ^{41}Ca radioactif de demi-vie de 10 000 ans, ce qui l'élimine des candidats pour le solvant.

Le sodium naturel est presque uniquement du ^{23}Na dont la section efficace de capture est faible, avec juste une résonance de diffusion élastique caractéristique proche du domaine thermique. Il est très abondant, en particulier sous sa forme saline NaCl . Le sodium a déjà été employé comme caloporteur pour des réacteurs à neutrons rapides, ce qui démontre la possibilité de l'utiliser dans un coeur de réacteur nucléaire. Le sodium est donc globalement très attractif pour former le solvant.

Le magnésium naturel est composé des isotopes ^{24}Mg (79%), ^{25}Mg (10%), ^{26}Mg (11%). Ses sections efficaces de capture et de diffusion élastique sont faibles. Le ^{26}Mg peut former de l'aluminium par capture, toutefois l'élément semble utilisable.

Pour finir, le lithium est constitué de 2 isotopes, ^6Li (7.5%) et ^7Li (92.5%). ^6Li produit par réaction (n,α) du tritium, il faut donc vraisemblablement enrichir le lithium si l'on souhaite l'utiliser, tout comme le chlore.

Au regard de cette analyse, il apparaît que le sodium est le plus attractif des alcalins et alcalino-terreux de par son abondance, et sa faible section efficace de capture qui favorise l'économie neutronique. Il ne nécessite pas d'enrichissement, ce qui est un atout non-négligeable sachant que le chlore lui-même devra possiblement l'être. Le magnésium n'est pas ajouté au mélange car il n'est pas vu comme nécessaire : la présence souhaitée d'une quantité importante d'uranium offre déjà un degré de liberté supplémentaire pour former un mélange eutectique avec le plutonium (et AM). On aboutit ainsi au sel $\text{NaCl-UCl}_3\text{-(TRU)Cl}_3$, dont le diagramme ternaire est présenté figure 4.6 (les TRU sont assimilés au plutonium, qui est présent en majorité).

On constate la présence d'une ligne eutectique que l'on visera lors de la conception des compositions initiales du sel combustible : une fois la fraction de $(\text{TRU})\text{Cl}_3$ fixée pour obtenir la criticité, les proportions des autres constituants s'obtiennent instantanément. Pour accélérer le travail de recherche, l'obtention des compositions eutectiques a été automatisée avec des scripts python dans le module Maya, développé dans l'équipe MSFR par Axel Laureau.

Un spectre neutronique représentatif de ce sel $\text{NaCl-UCl}_3\text{-(TRU)Cl}_3$ est présenté figure 4.7. On constate que ce spectre est très similaire à celui du réacteur caloporté sodium (voir figure 4.2) et qu'il répond donc aux attentes d'un spectre rapide.

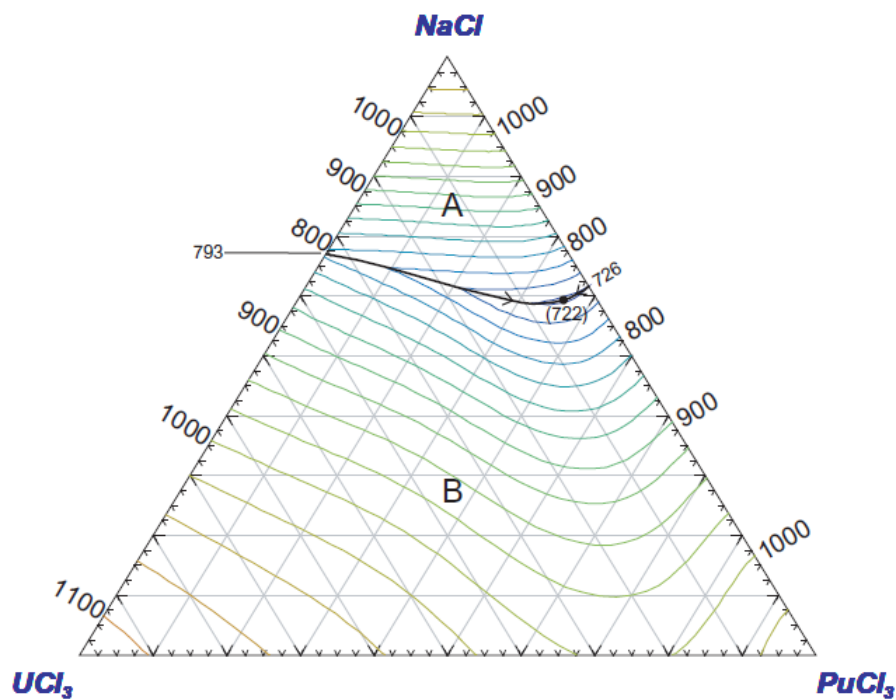
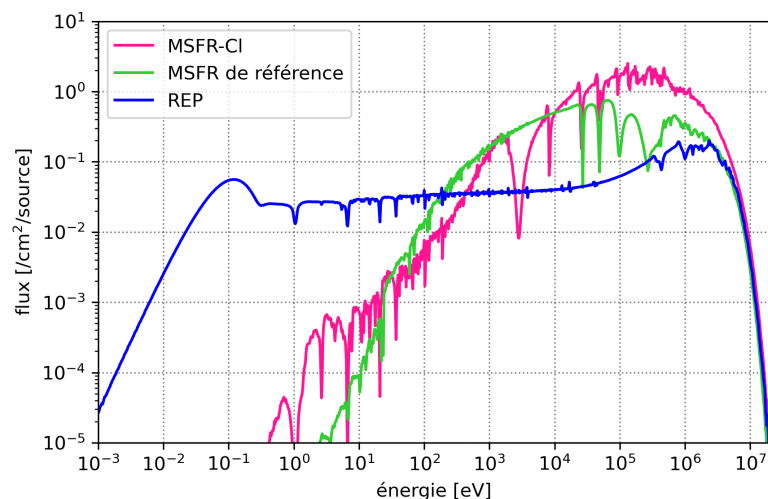
FIGURE 4.6 – Diagramme ternaire du sel NaCl-UCl₃-PuCl₃ [18]

FIGURE 4.7 – Spectre neutronique représentatif du sel combustible du MSFR-CI

4.3.2 Géométrie du circuit combustible

A l'image du MSFR de référence, le circuit combustible du MSFR-CI est une cuve de sel combustible dans laquelle on vient plonger des secteurs contenant chacun une partie de la couverture fertile et un échangeur de chaleur. La géométrie devra être optimisée via des calculs de CFD hors du cadre de cette thèse, on utilisera pour ces travaux un coeur orthocylindrique entourée de boucles de recirculation.

Selon les études réalisées, on modélisera ou non le vase d'expansion servant à accommoder les variations de volume du sel combustible suite à une variation de température. Ce vase collectera également les produits de fission gazeux, et devra être inerté au démarrage du réacteur. L'azote pouvant être un agent corrosif dans les conditions de fonctionnement envisagées [96], on préférera l'utilisation d'un gaz noble comme l'argon.

Les échangeurs de chaleur considérés pour le MSFR de référence et repris ici sont des échangeurs à plaques corruguées. Il s'agit du point le plus sensible du système du point de vue des contraintes thermiques sur les matériaux car les plaques de quelques millimètres d'épaisseur voient un gradient de température important.

Par ailleurs, la grande surface qu'ils présentent rend probable la déposition d'éléments insolubles (dont certains sont radioactifs) à cet endroit, pouvant à terme les endommager. Pour limiter l'endommagement des échangeurs par irradiation due au flux neutronique en provenance du coeur, le choix est fait de placer une protection neutronique en amont dans les secteurs, entre le sel fertile et l'échangeur. Pour tenter de réduire le dépôt d'éléments métalliques, il est envisageable d'utiliser une céramique comme le SiC (voir section 5.2) plutôt qu'un alliage métallique pour le milieu en contact avec le sel combustible, en particulier les secteurs et échangeurs de chaleur. Il est à préciser que, pour les études neutroniques, la géométrie des HX est grandement simplifiée pour ne tenir compte que du sel combustible. On aboutit ainsi à la modélisation présentée figure 4.8, utilisée sauf mention explicite du contraire pour tous les calculs neutroniques de cette thèse.

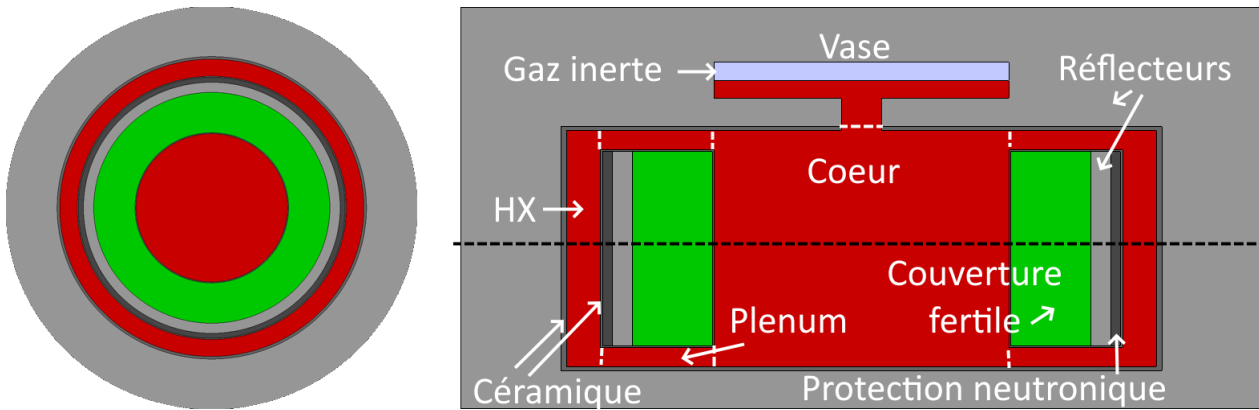


FIGURE 4.8 – Modélisation du MSFR-CI dans le code Serpent2 (sel combustible en rouge ; sel fertile en vert ; protections neutroniques en noir ; couche protectrice en gris foncé ; réflecteur en gris clair ; gaz inerte + PF gazeux en mauve)

4.4 Optimisation du circuit combustible

Préambule : il n'est pas simple de dé-corréler l'étude des différentes zones du circuit combustible (coeur, vase, couverture fertile, réflecteurs, protections neutroniques) car des modifications de l'une d'elles entraînent souvent un ajustement des autres. Ainsi pour le détail d'une zone, des hypothèses sont faites sur les autres basées sur l'ensemble des calculs effectués dans le cadre de la thèse. Elles seront précisées quand ce sera nécessaire.

4.4.1 Sel combustible

Le sel combustible, qui est aussi le caloporteur, doit respecter un certain nombre de critères :

- criticité ;
- mélange eutectique ;
- régénération ;
- extraction de chaleur.

4.4.1.1 Criticité & mélange eutectique

Comme expliqué dans la partie 4.3.1, la criticité s'obtient, pour une géométrie donnée, par l'ajustement de la fraction $(\text{TRU})\text{Cl}_3$ dans le mélange et dépend du vecteur TRU. Dans le cadre de cette thèse, quatre sources de matières fissiles sont étudiées :

1. les TRU contenus dans les combustibles **UOX** usés après 5 ans de refroidissement ;
2. les TRU contenus dans les combustibles **MOX** usés après 5 ans de refroidissement ;
3. l'uranium enrichi ;
4. les TRU issus de la couverture fertile du réacteur.

Le temps de refroidissement pour les combustibles usés est important car le vecteur TRU, dont une partie des éléments ont un temps de décroissance relativement court (ex : demi-vie du ^{241}Pu = 14 ans), va évoluer entre le moment d'extraction du combustible usé et sa réutilisation.

Le combustible UOX usé est le combustible usé le plus produit de par le monde, il représente donc une source de matière fissile importante. Le combustible MOX usé n'est actuellement pas réutilisé, il serait intéressant de pouvoir le valoriser. L'uranium enrichi constitue la source de matière fissile la plus utilisée dans le monde et

la moins contraignante pour un démarrage initial du point de vue de l'activité du combustible (pas d'actinides mineurs) d'où son étude ici. La fraction de ^{235}U sera la variable d'ajustement et dépendra du système. Le vecteur TRU issu de la couverture fertile dépendra du temps, du système et des paramètres du retraitement chimique. Cette source de matière sera indispensable dans le cas d'un déploiement massif où les autres sources viendraient à manquer (voir chapitre 7).

Les vecteurs issus des combustibles usés sont détaillés dans le tableau 4.2 issus de [8] (tableau 6.2 p211).

TABLE 4.2 – Vecteur TRU des combustibles UOX usés et MOX usés considérés

Z	A	I	Combustibles UOX usés (refroidis 5 ans) [8]	Combustibles MOX usés (refroidis 5 ans) [8]
94	238	0	2.76E-2	3.25E-2
94	239	0	4.64E-1	2.95E-1
94	240	0	2.24E-1	2.50E-1
94	241	0	1.05E-1	9.62E-2
94	242	0	6.90E-2	9.81E-2
93	237	0	5.41E-2	7.66E-2
95	241	0	3.31E-2	8.75E-2
95	242	1	9.00E-5	6.00E-4
95	243	0	1.62E-2	4.40E-2
96	243	0	5.00E-5	2.00E-4
96	244	0	6.00E-3	1.74E-2
96	245	0	5.00E-4	1.80E-3
96	246	0	6.00E-5	2.00E-4

Sauf mention contraire, l'uranium utilisé par défaut comme matière fertile est de l'uranium appauvri (0.2% ^{235}U , 99.8% ^{238}U).

Le mélange eutectique est obtenu par l'utilisation du diagramme ternaire (ou binaire pour l'uranium enrichi) tel qu'évoqué dans la partie 4.3.1. Le mélange est sur un point eutectique au démarrage, mais s'en écartera au court du fonctionnement sauf contrôle actif de la composition en ce sens (voir chapitre 5).

4.4.1.2 Régénération - combustible seul

En ce qui concerne la régénération, on fait le choix de garder le combustible sous-régénérateur et d'obtenir la surrégénération par la couverture fertile. Si le combustible est surrégénérateur de lui-même, alors sa teneur en matière fissile, sans extraction, augmente au cours du temps jusqu'à trouver un équilibre avec la teneur en matière fertile. Pendant cette phase de transition, la réactivité est affectée à la hausse. Elle est constamment compensée par une hausse de température puisque le système cherche, par le jeu des contre-réactions négatives, à rester critique. Cette hausse de température n'est évitable que par l'extraction continue et possiblement variable (puisque dépendante du vecteur TRU qui évolue) d'actinides, phénomène que le code REM ne gère pas actuellement. La gestion de la réactivité par introduction de poisons neutroniques est exclue (mauvaise efficacité en spectre rapide, quantités de plus en plus importantes à introduire, impact sur la chimie du sel). Le meilleur compromis pour l'utilisation du code REM sans extraction constante d'actinides semble donc d'avoir un combustible très légèrement sous-générateur, et de contrôler la réactivité par l'alimentation en matière fissile. Cela permet aussi de garder un système plus facilement comparable avec le MSFR de référence. Une étude systématique menée avec le code REM où l'on fait uniquement varier le volume du cœur montre que le volume central maximal est voisin de 25m^3 . Pour conserver une marge par rapport au type de combustible utilisé, on limite cette valeur à 20m^3 . La figure 4.9 compare l'évolution de la réactivité entre des configurations identiques à l'exception des volumes des zones centrales. On constate que lorsque le volume dépasse 20m^3 , alors le k reste strictement supérieur à 1 sur une longue durée, témoignant d'une hausse de réactivité qui n'est pas contrôlée dans le code REM.

4.4.1.3 Extraction de la chaleur

L'optimisation du système pour l'extraction de la chaleur n'est pas triviale à cause du nombre élevé de paramètres corrélés, apparaissant dans les équations suivantes.

La puissance notée \mathcal{P} à évacuer peut s'écrire sous cette forme :

$$\mathcal{P} = \dot{m}C_p\Delta T \quad (4.1)$$

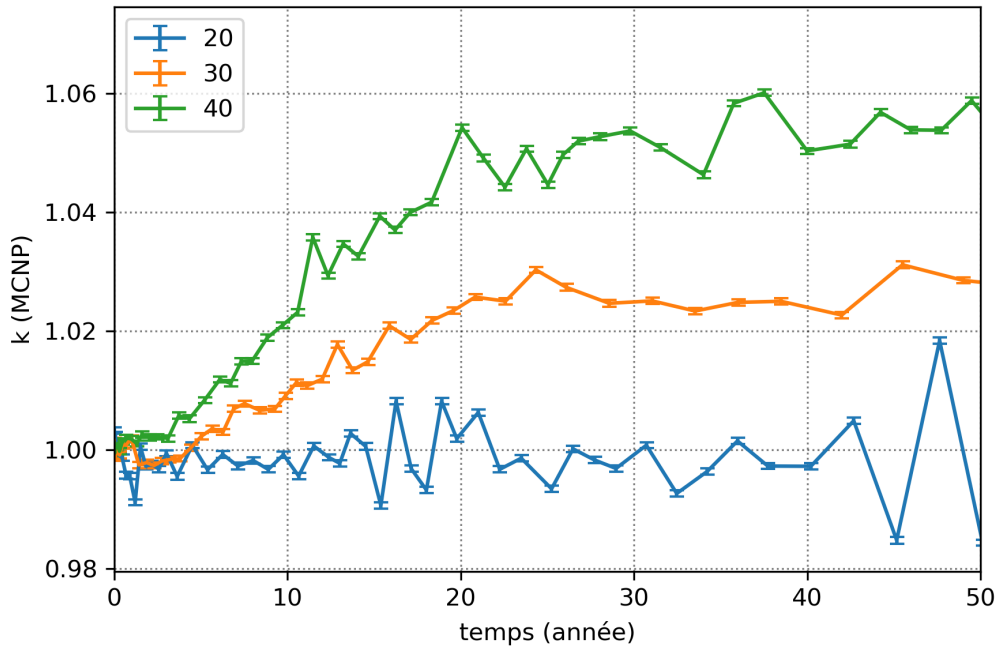


FIGURE 4.9 – Évolution de la réactivité pour trois volumes de cœur différents (en m^3)

avec \dot{m} le débit massique de sel combustible (m^3/s), C_p sa chaleur spécifique ($\text{J}/\text{kg}/\text{K}$), et ΔT l'écart de température acceptable entre l'entrée et la sortie de l'échangeur de chaleur.

La chaleur spécifique dépend de la composition du combustible et de sa température. ΔT dépend du matériau utilisé, tous les matériaux n'offrent pas la même résistance thermo-mécanique. \dot{m} peut se déduire des autres paramètres, une fois ceux-ci fixés.

La puissance mécanique associée aux pompes, requises pour mettre en mouvement le fluide, s'écrit par l'équation :

$$\mathcal{P}_{\text{pompes}} = \Delta P \frac{\dot{m}}{\rho} \quad (4.2)$$

avec P la pression, qui correspond à la compensation des pertes de charge, et ρ la masse volumique du sel. Les pertes de charge sont très dépendantes de la structure interne de l'échangeur de chaleur : nombres de plaques, espacement entre les plaques, angle des corrugations, rugosité, ... La recherche analytique d'une solution optimale étant trop complexe, on préfère utiliser un code d'optimisation par algorithme génétique, le code SONGe (cf section 3.3.1) pour les travaux présentés ci-après.

L'utilisation du code SONGe requiert au préalable de définir les contraintes qui pilotent l'optimisation, les variables représentant un degré de liberté ajustable au sein d'un intervalle borné, et les paramètres fixés. Le tableau 4.3 regroupe les principales grandeurs sujettes à un contrôle.

Les raisons en sont les suivantes :

- La température d'entrée est bornée par rapport à la marge (50K) à la température de fusion (autour de 800K) du sel combustible.
- La température de sortie est bornée par rapport au ΔT acceptable dans l'échangeur de chaleur, la valeur de 150K (1000-850) représente un maximum pris arbitrairement en référence au ΔT envisagé pour le projet ASTRID [73].
- Le débit total de sel combustible est borné pour contraindre l'espace des phases, un débit trop élevé s'accompagnera d'une puissance de pompes trop importante et/ou d'une vitesse trop grande et/ou de pertes de charge élevées.
- La fraction de sel combustible dans le cœur est bornée pour contraindre l'espace des phases (valeur supérieure) et assurer une quantité suffisante de précurseurs en cœur (valeur inférieure).
- La puissance des pompes est limitée pour éviter un détournement trop important de la puissance électrique fournie par le réacteur, et rester sur une valeur réaliste quant à la technologie existante en matière de pompes.
- La vitesse maximum dans les conduits est limitée pour éviter des contraintes mécaniques trop importantes

TABLE 4.3 – Contraintes et variables principales utilisées pour l’optimisation du circuit combustible du MSFR-CI par le code SONGe

Zone	Grandeur	Contrainte Variable Paramètre
Coeur	Température d’entrée [K]	[840 ; 860]
	Température de sortie [K]	[940 ; 1000]
	Débit total de sel combustible [kg/s]	[10000 ; 50000]
	Volume du cœur [m ³]	20
	Fraction de sel combustible en cœur	[0.4 ; 0.6]
Conduits	Puissance des pompes [kW]	300 (max 10)
	Vitesse maximum dans les conduits [m/s]	6.0 (max 0.3)
	Diamètre [m]	[0.1 ; 0.35]
Échangeur intermédiaire	Écart de température maximum dans les plaques [K]	70 (max 1)
	Profondeur totale de l’échangeur [m]	1 (max 0.2)
	Épaisseur des plaques [m]	$1 \cdot 10^{-3}$ (min $1 \cdot 10^{-4}$)
	Pas des corrugations [m]	[0.0005 ; 0.01]

liées à l’inertie du fluide. Cette valeur est estimée à partir de la contrainte de 2m/s sur la circulation du plomb pour les réacteurs utilisant ce caloporteur, et le ratio des masses volumiques des deux fluides (respectivement $\sim 10\text{g/cm}^3$ et $\sim 3\text{g/cm}^3$ pour le sel combustible).

- Le diamètre des conduits est contraint pour limiter l’espace des phases et limiter le volume de sel “non utile” dans les plenums.
- L’écart de température dans les plaques est limité à 70K pour éviter une contrainte thermique difficilement soutenable par le matériau.
- La profondeur totale de l’échangeur, qui correspond en réalité à sa largeur radiale, est limitée pour réduire l’encombrement du système et restreindre l’espace des phases.

De toutes les optimisations calculées, il apparaît que la chaleur est extractible dans des conditions acceptables pour des volumes de sel combustible allant de 38 à 45m³. Le nombre de paramètres du fichier de sortie du code SONGe comprend 324 paramètres, une partie d’entre eux sont présentés dans le tableau 4.4. Les contraintes technologiques associées à la fabrication des échangeurs selon les spécificités proposées par le code SONGe étant inconnues, on fait le choix de prendre le cas le plus conservateur, soit 45m³.

TABLE 4.4 – Sous-ensemble de paramètres optimisés par SONGe utilisés pour la définition de la configuration de référence du MSFR-CI

Contrainte	Grandeur	Valeur optimisée (valeur de contrainte (tolérance sur contrainte))	Coût
Zone			
Coeur	Température d'entrée [K]	850.0 (min 845.00(.500))	4.54E-5
Conduits	Vitesse maximum dans les conduits [m/s]	5.49(max 6.00(.300))	0.187
	Puissance des pompes [kW]	282.03(max 300.00(10.00))	.166
Échangeur intermédiaire	Température d'entrée du fluide froid [K]	756.89 (min 650.00(1.000))	3.76E-47
	Température de plaque en sortie du fluide chaud [K]	821.27 (min 820.00(1.00))	0.278
	Écart de température maximum dans les plaques [K]	35.65 (max 70.00(1.00))	1.22E-15
	Profondeur totale de l'échangeur [m]	1.316 (max 1.40(.20))	0.291
	Épaisseur de séparation entre fluides [m]	1.64E-3 (min 1.00E-3(1.00E-4))	1.73E-3
	Hauteur des corrugations [m]	2.45E-3 (min 2.00E-3(1.00E-4))	8.48260E-3
Variable			
Zone			
Conduits	Grandeur	Intervalle	Valeur optimisée
	Diamètre [m]	[0.1 ... 0.35]	0.327
Coeur	Débit total de sel combustible [kg/s]	[10000.0 ... 50000.0]	32692.85
	Température de sortie [K]	[940.0 ... 1000.0]	998.81
	Fraction de sel combustible en cœur	[0.4 ... 0.6]	0.479
Paramètre			
Zone			
Coeur	Grandeur	Valeur optimisée	-
	Volume de sel combustible [m ³]	41.69	-
	Temps de cycle [s]	3.94	-

4.4.1.4 Dimensionnement et placement du vase d'expansion

Le vase d'expansion a plusieurs rôles dont celui d'accueillir un excès de volume de sel combustible résultant de sa dilatation lors de hausses de température. Le vase d'expansion du MSFR de référence n'est pas encore bien défini, aussi il n'y a pas de critère existant concernant son dimensionnement. Dans le cadre de ces travaux, on étudie trois paramètres : son volume, son taux de remplissage en fonctionnement nominal, et son positionnement par rapport au coeur.

On suppose un vase en forme de cylindre placé dans le réflecteur supérieur, relié au coeur par un conduit central (et aux pompes dans les boucles de recirculation, mais ces conduits ne sont pas modélisés ici). On suppose également qu'il ne doit pas être trop étendu dans le réflecteur supérieur pour laisser place aux conduits qui accèdent à la couverture fertile. Pour garder une hypothèse simple, nous admettons que le vase a le même rayon que le coeur. Ce dernier étant un orthocylindre de 20m^3 , son rayon est de $(\frac{20}{2\pi})^{1/3}$ soit 1.47 m. La température moyenne en fonctionnement nominal est d'environ 925K.

Une première façon de dimensionner le vase consiste à partir des températures extrêmes postulées pour le sel combustible. Admettons que les pompes ne doivent jamais être dénoyées, cela revient à dire que le vase d'expansion doit être vide pour des températures inférieures ou égales à la température de fusion du sel. D'après le diagramme ternaire, la température maximale de fusion du sel ternaire NaCl-UCl₃-PuCl₃ est de 793K. La valeur arrondie à 800K pour la température basse est conservée.

La température haute est plus compliquée à définir, et dépend en partie de la stratégie de gestion de la réactivité ainsi que des tolérances requises en cas d'incident ou d'accident. En supposant l'acier 316H comme l'élément de structure (voir section suivante), il est possible de choisir comme valeur haute la température à partir de laquelle les propriétés mécaniques de l'alliage se dégradent, soit environ 1100°C ou, en arrondissant, 1400K (voire partie 4.4.2).

L'application numérique du dimensionnement du vase pour ces conditions donne les valeurs du tableau 4.5.

TABLE 4.5 – Premier dimensionnement du vase d'expansion

Masse volumique du sel à T=800K	3.46 g/cm ³
Masse volumique du sel à T=925K	3.19 g/cm ³
Masse volumique du sel à T=1400K	2.19 g/cm ³
Volume de sel dans le vase à T=800K	0 m ³
Volume de sel dans le vase à T=925K	3.71 m ³
Volume de sel dans le vase à T=1400K	25.9 m ³
Hauteur de sel dans le vase à T=925K	0.55 m
Hauteur totale du vase pour T=1400K	3.81 m

On constate qu'en fonctionnement nominal, un volume de 3.7m³ de sel combustible (8%) se trouve dans le vase d'expansion, et que ce dernier présente un encombrement très important avec sa hauteur totale de 3.81m. Ces dimensions sont difficilement acceptables telles quelles, aussi des critères moins drastiques doivent être envisagés.

En admettant par exemple que l'on souhaite pouvoir absorber une variation de réactivité de 1000 pcm, et pour un coefficient total de contre-réaction d'environ 20pcm/K (voire partie 4.4.5), cela se traduit par une variation de température moyenne de 50K. Dans ces conditions, le vase doit être vide pour une température moyenne de 875K, et avoir une hauteur suffisante pour accueillir le sel combustible à une température moyenne de 975K. L'application numérique pour ce deuxième cas donne les valeurs répertoriées dans le tableau 4.6.

TABLE 4.6 – Deuxième dimensionnement du vase d'expansion

Masse volumique du sel à T=875K	3.30 g/cm ³
Masse volumique du sel à T=925K	3.19 g/cm ³
Masse volumique du sel à T=975K	3.09 g/cm ³
Volume de sel dans le vase à T=925K	1.48 m ³
Volume de sel dans le vase à T=975K	3.07 m ³
Hauteur de sel dans le vase à T=925K	0.22 m
Hauteur totale du vase pour T=975K	0.45 m

Ces valeurs sont nettement plus acceptables et seront conservées par la suite. En cas de dépassement de la température haute, l'excès de sel sera envoyé dans un trop-plein pour éviter une rupture des structures (probablement le réservoir de vidange d'urgence duquel le sel ne peut pas être directement réinjecté dans le coeur,

contrairement au sel présent dans le vase).

Le troisième paramètre étudié est la distance du vase par rapport au coeur. On souhaite que le vase soit le plus découplé possible du coeur du point de vue neutronique, pour que la quantité de fissions ayant lieu à cet endroit soit négligeable et notamment que l'impact sur le coefficient de dilatation soit le plus faible possible. La figure 4.10 représente le ratio entre le taux de fission dans le vase et le taux de fission dans le coeur, ainsi que la valeur du coefficient de densité, en fonction de la distance du vase au coeur. La figure 4.11 représente l'évolution du facteur de multiplication également en fonction de la distance du vase au coeur à compositions constantes.

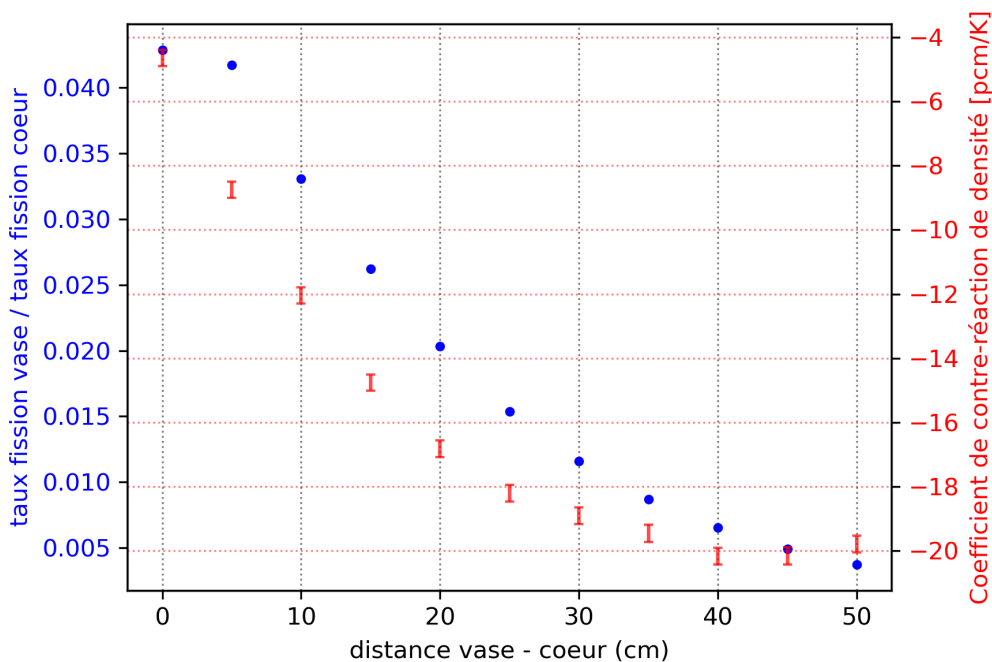


FIGURE 4.10 – Ratio des taux de fissions dans le vase / dans le coeur, et coefficient de densité en fonction de la distance du vase au coeur (l'incertitude statistique associée est plus petite que les points pour les taux de fissions)

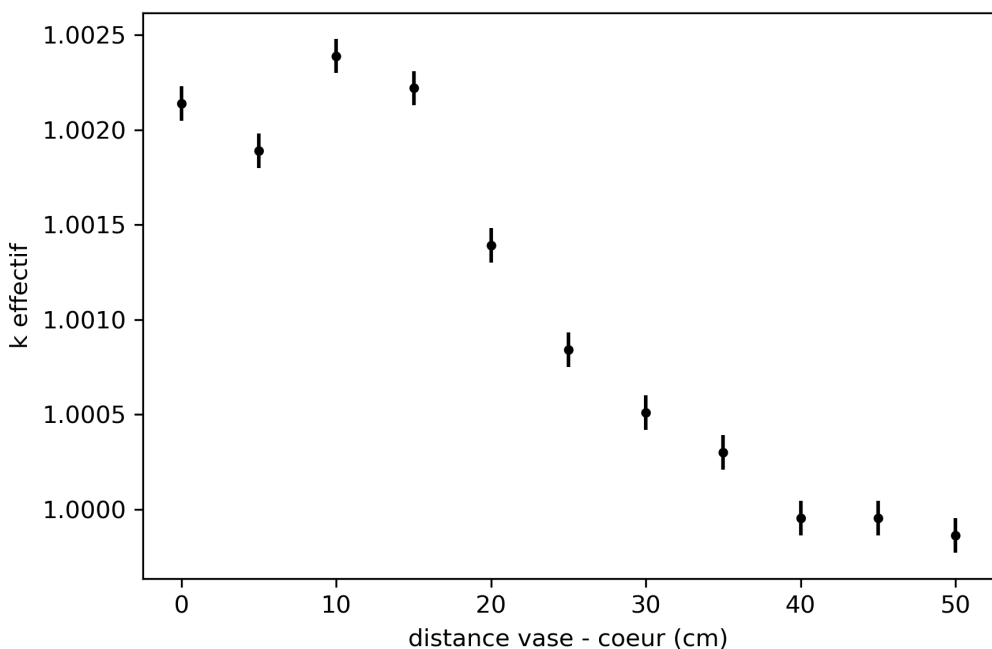


FIGURE 4.11 – Facteur de multiplication en fonction de la distance vase-coeur

On constate que le positionnement du vase a un impact très important sur le coefficient de densité, qui passe de -5 pcm/K à -20 pcm/K entre les distances 0 et 40 cm. De ce fait, on peut théoriquement choisir la valeur du coefficient de densité par le placement du vase. Le ratio des taux de fission décroît de la même façon, et passe de 4% environ à moins de 1%. Dans l'optique où le vase d'expansion serait compliqué à refroidir du fait d'un faible débit à cet endroit et de la puissance résiduelle, on souhaiterait éviter d'aggraver la situation avec un taux de fission élevé. En proposant un critère de 1% sur le ratio des taux de fission, une distance supérieure à 30 cm est requise pour cette configuration, en supposant que l'on ne place pas de protection supplémentaire comme une couche de B_4C entre le vase et le coeur. Néanmoins, une valeur trop élevée du coefficient de densité pourrait être source de problèmes, puisque la moindre fluctuation de température provoquerait une variation brutale de la réactivité. La distance optimale entre le vase et le coeur serait donc un compromis entre la puissance acceptable dans le vase et la valeur du coefficient de densité.

Sans critère spécifique sur la valeur dudit coefficient, on conservera la distance de 40 cm pour satisfaire le critère sur le taux de fission dans le vase.

4.4.1.5 Enrichissement du chlore

Le chlore naturel est composé à 75.77% de ^{35}Cl et 24.23% de ^{37}Cl , deux isotopes stables. Le ^{36}Cl est radioactif à durée de vie longue (demi-vie : 300 000 ans), peut être produit par la réaction (n,γ) sur le ^{35}Cl et par la réaction $(n,2n)$ sur le ^{37}Cl , dont les sections efficaces microscopiques sont présentées figure 4.12.

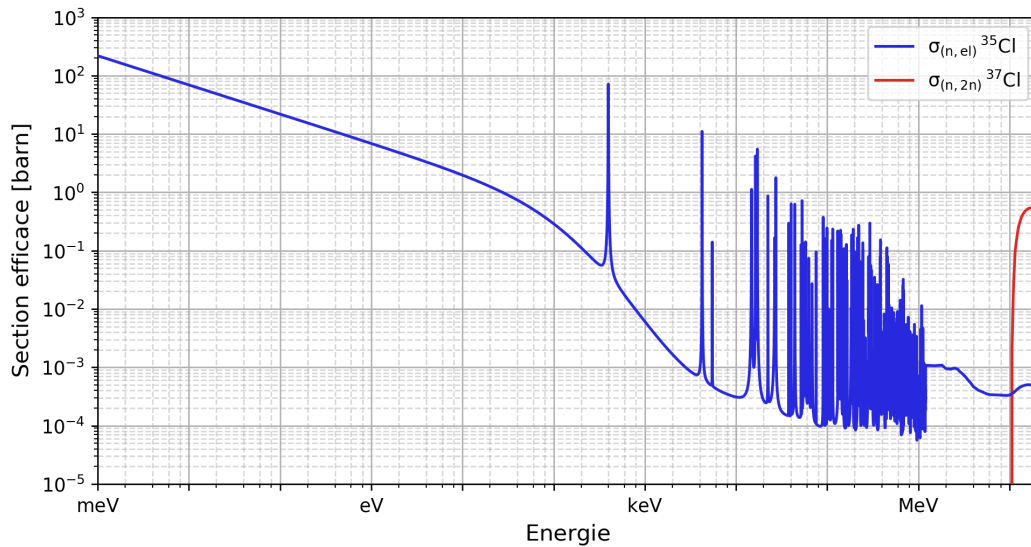


FIGURE 4.12 – Sections efficaces microscopiques des réactions (n,γ) sur le ^{35}Cl et $(n,2n)$ sur le ^{37}Cl

La réaction $(n,2n)$ est à seuil, elle sera donc d'autant plus susceptible de se produire que le spectre sera rapide, toute chose égale par ailleurs.

Différents isotopes du soufre (élément corrosif des aciers) peuvent être produits à partir de chaque isotope du chlore. Laura Mesthiviers a montré dans sa thèse [8] (p129) que sur des temps longs (décennies), la production de ^{36}S par réaction (n,p) sur le ^{36}Cl devient majoritaire.

Pour finir, comme illustré figure 4.3, la section efficace microscopique de capture du ^{35}Cl est plus élevée que celle du ^{37}Cl . Cela signifie que la masse nécessaire en matière fissile pour obtenir la criticité est d'autant plus élevée que la teneur en ^{35}Cl est élevée.

Pour toutes ces raisons, il est souhaitable d'enrichir le chlore en ^{37}Cl , se pose alors la question de la valeur optimale de cet enrichissement. Pour déterminer cette valeur, on réalise une étude systématique pour des enrichissements compris entre 25% et 99.9% en ^{37}Cl avec deux observables : la production totale de ^{36}Cl et le facteur de multiplication k . La figure 4.13 représente les taux de réaction (n,γ) sur le ^{35}Cl et $(n,2n)$ sur le ^{37}Cl dans le sel combustible suivant l'enrichissement en ^{37}Cl . La figure 4.14 représente la même chose mais dans le sel fertile. La figure 4.15 représente le taux de production total de ^{36}Cl du système suivant l'enrichissement en ^{37}Cl . La figure 4.16 représente le k suivant l'enrichissement en ^{37}Cl .

On constate que dans cette configuration, la production totale de ^{36}Cl ne fait que diminuer avec l'enrichissement tant la réaction (n,γ) sur le ^{35}Cl est dominante. Pour le sel combustible, les taux de réaction s'égalisent pour un enrichissement compris entre 99.5% et 99.9%. Pour la couverture fertile au spectre neutronique un peu moins rapide (voir section 4.4.3.3), la réaction (n,γ) sur le ^{35}Cl reste toujours dominante sur l'intervalle observé. Le facteur multiplicatif est strictement croissant avec l'enrichissement. De plus, la perte en réactivité entre le chlore naturel et le chlore fortement enrichi est substantielle, plus de 9000 pcm entre le chlore naturel et le

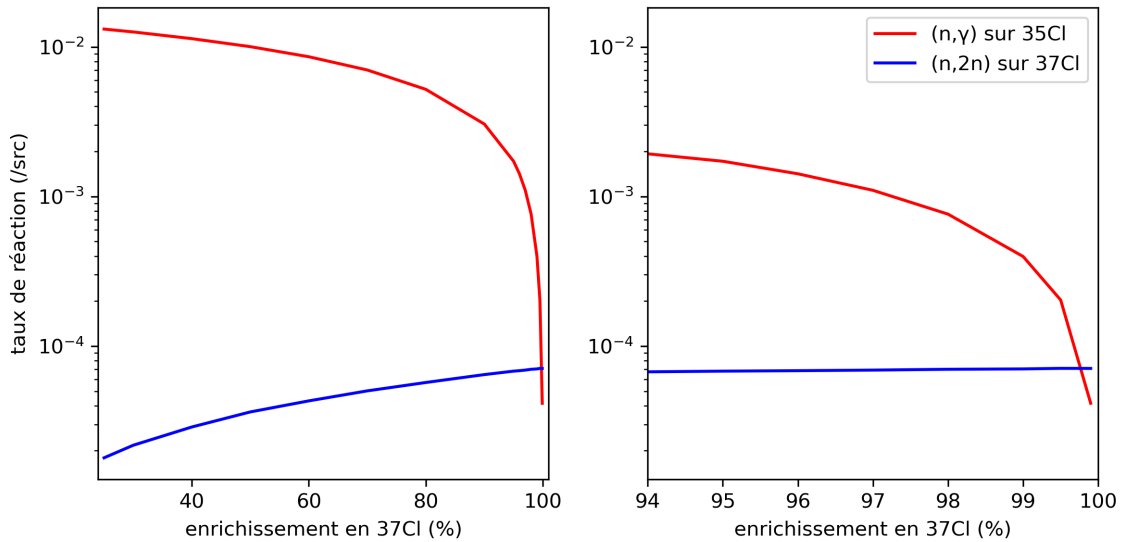


FIGURE 4.13 – Taux de réactions (n,γ) sur le ^{35}Cl et $(n,2n)$ sur le ^{37}Cl selon l'enrichissement en ^{37}Cl pour le sel combustible, avec grossissement à droite sur les enrichissements élevés

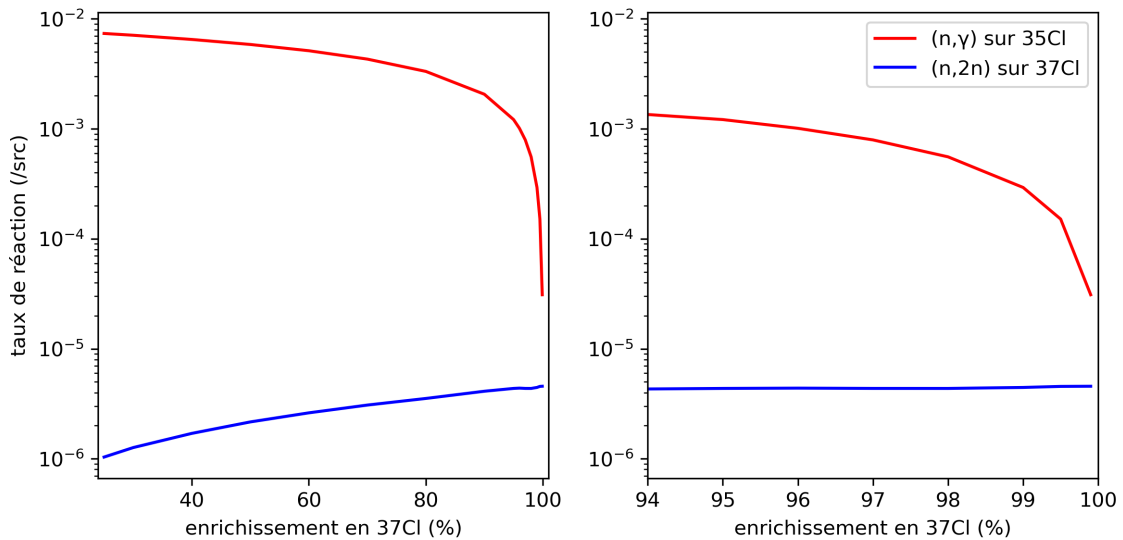


FIGURE 4.14 – Taux de réactions (n,γ) sur le ^{35}Cl et $(n,2n)$ sur le ^{37}Cl selon l'enrichissement en ^{37}Cl pour le sel fertile, avec grossissement à droite sur les enrichissements élevés

chlore enrichi à 99.9%.

De cette étude on peut conclure que, des points de vue neutronique et chimique, plus l'enrichissement en ^{37}Cl est élevé, plus la configuration est intéressante. En pratique, l'enrichissement utilisé sera vraisemblablement limité par le coût de production du sel enrichi en quantités industrielles. La masse de chlore totale du système, sans compter les pertes dues au retraitement, vaut 39% de la masse totale des sels, soit environ 87 tonnes. Il n'y a pas de données chiffrant le coût de production d'une telle masse de chlore en fonction de son enrichissement. On postulera pour la suite un enrichissement de 99% en admettant que le coût associé est acceptable.

4.4.2 Matériau de structure

L'état de l'art (voir section 2.3) a montré que le choix du matériau de structure pour l'utilisation de sels chlorures en réacteur à sels fondus est compliqué du fait du manque d'expériences. Il n'y a pas à ce jour de matériau qualifié pour cet usage.

Les concepteurs s'orientent principalement vers l'acier 316(H). Il n'y a pas encore de consensus sur la capacité de cet acier à résister à la corrosion des sels chlorures sous irradiation et à haute température. Cependant

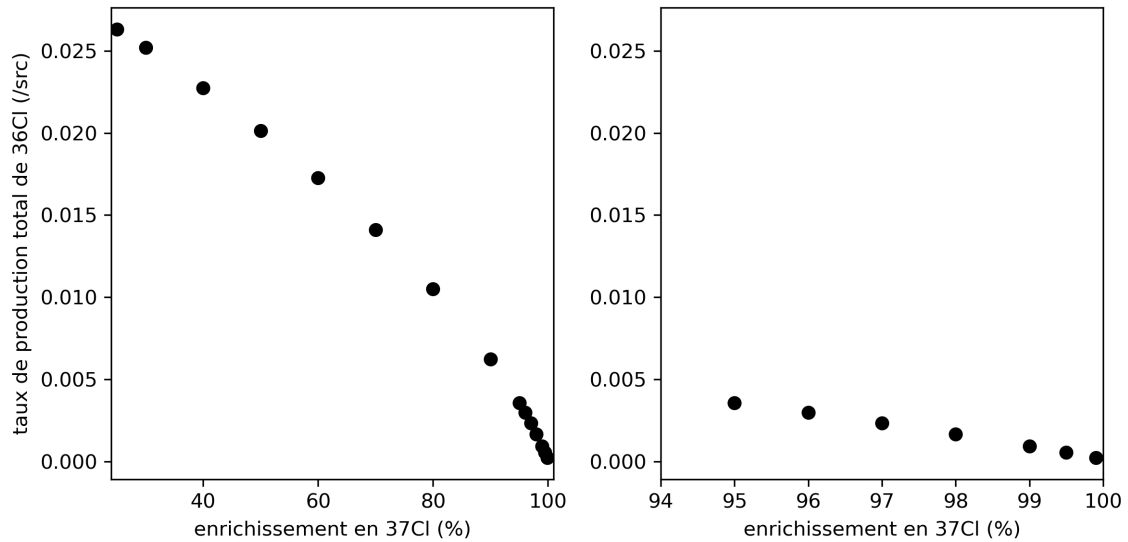


FIGURE 4.15 – Taux de production total de ^{36}Cl selon l'enrichissement en ^{37}Cl , avec grossissement à droite sur les enrichissements élevés

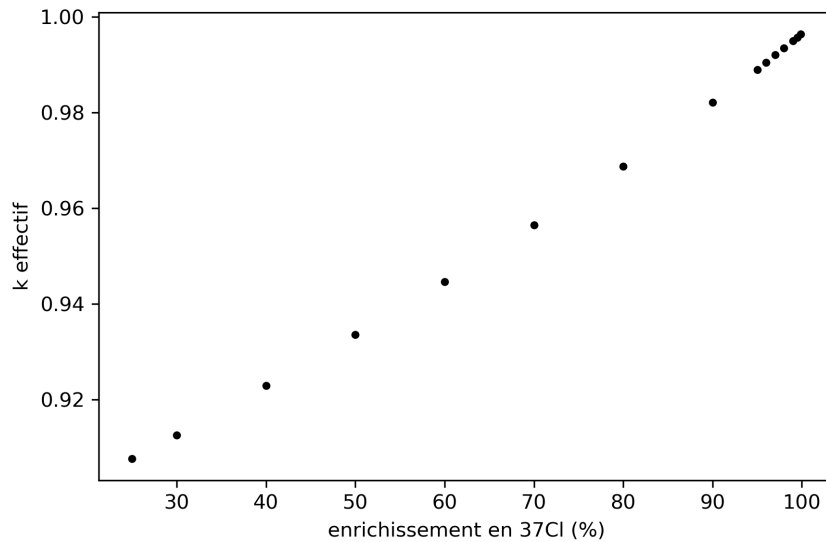


FIGURE 4.16 – Facteur de multiplication selon l'enrichissement en ^{37}Cl

il a montré de bonnes performances pour d'autres concepts de réacteurs rapides, en particulier les réacteurs caloportés sodium [73]. Sa composition et ses propriétés sont fournies dans les tableaux 4.7 et 4.8. La température de fusion est donnée à titre indicative, mais les propriétés thermo-mécaniques sont vraisemblablement dégradées pour des températures inférieures. L'acier 316H subit un traitement thermique pendant sa fabrication, un recuit entre 1010°C et 1120°C [97]. On considère ici qu'il n'est pas utilisable au-delà de ces valeurs.

Les alliages à base nickel semblent attractifs, comme l'Hastelloy N qui a montré de très bonnes performances pour le MSRE qualifié à minima pour les sels fluorures en spectre thermique. Mais là encore les expériences manquent pour savoir s'ils sont utilisables dans les sels chlorures. La composition de l'alliage nickel-chrome-tungstène similaire à l'Hastelloy N considéré dans ces travaux de thèse ainsi que ses propriétés sont fournies dans les tableaux 4.9 et 4.10.

Pour certaines raisons détaillées dans la partie 5.2, il peut être intéressant d'utiliser un matériau non métallique au contact du sel combustible. Certaines céramiques semblent attractives pour leur grande tolérance aux hautes températures et aux radiations. Le carbure de silicium (SiC) est une de ces céramiques. Sa composition est fournie dans le tableau 4.11, sa densité est fixée à 3.16 g/cm^3 [100].

Le principal défaut du SiC est lié au carbone qui peut modérer le spectre neutronique, comme présenté ci-après.

TABLE 4.7 – Composition de l'acier 316H

Z	A	I	N (at%)	Z	A	I	N (at%)
6	nat		0.0046125	26	56	0	0.613141126
14	28	0	0.0136954	26	57	0	0.013911326
14	29	0	0.0006717	26	58	0	0.001819426
14	30	0	0.0004286	28	58	0	0.078111328
15	31	0	0.0008048	28	60	0	0.029086428
16	32	0	0.0004937	28	61	0	0.001243628
16	33	0	0.0000038	28	62	0	0.003901428
16	34	0	0.0000208	28	64	0	0.000962428
16	36	0	0.0000000	42	92	0	0.002189442
24	50	0	0.0081924	42	94	0	0.001349442
24	52	0	0.1519167	42	95	0	0.002311442
24	53	0	0.0169007	42	96	0	0.002407242
24	54	0	0.0041291	42	97	0	0.001371942
25	55	0	0.0010083	42	98	0	0.003450042
26	54	0	0.0405038	42	100	0	0.001361242

TABLE 4.8 – Propriétés de l'acier 316H [97, 98]

Propriété	valeur
Masse volumique	8.0 g/cm ³
Chaleur spécifique	500 J/kg/K
Conductivité thermique	21.5 W/m/K (500°C)
Température de fusion	1400°C

TABLE 4.9 – Composition de l'alliage NiCrW (à partir de [99])

Z	A	I	N (at%)	Z	A	I	N (at%)	Z	A	I	N (at%)
28	58	0	0.540682483	24	53	0	0.007612911	74	184	0	0.030600003
28	60	0	0.208269925	24	54	0	0.001895015	74	186	0	0.028392888
28	61	0	0.009053349	22	46	0	0.000243415	13	27	0	0.000523426
28	62	0	0.02886604	22	47	0	0.000219516	14	28	0	0.002318888
28	64	0	0.007351329	22	48	0	0.002175096	14	29	0	0.000117748
42	92	0	0.001092279	22	49	0	0.000159621	14	30	0	7.76201E-05
42	94	0	0.000680834	22	50	0	0.000152835	6	nat		0.0029396129
42	95	0	0.001171771	26	54	0	0.000369547	15	31	0	0.000227983
42	96	0	0.00122771	26	56	0	0.005801096	5	10	0	6.49915E-05
42	97	0	0.000702915	26	57	0	0.000133973	5	11	0	0.000261599
42	98	0	0.001776057	26	58	0	1.78293E-05	16	32	0	4.18108E-05
42	100	0	0.000708804	25	55	0	0.00257073	16	33	0	3.34733E-07
24	50	0	0.003481539	74	182	0	0.026465407	16	34	0	1.88948E-06
24	52	0	0.067138008	74	183	0	0.01429132	16	36	0	8.80876E-09

TABLE 4.10 – Propriétés de l'alliage NiCrW [99]

Propriété	valeur
Masse volumique	8 g/cm ³
Chaleur spécifique	346.1+ T (0.9795 + T (-0.00235+ T (2.315.10 ⁻⁶ -6.71.10 ⁻¹⁰ T))) [J/kg/K]
Conductivité thermique	4.008 + 0.0194T [W/m/K]
Température de fusion	[1300 ; 1400]°C

L'impact du matériau pour le réflecteur sur le spectre est présenté sur la figure 4.17. Le facteur de multiplication associé à chaque calcul est présenté dans le tableau 4.12. Bien que non considérés pour le reste de ces travaux, le titane naturel (masse volumique = 4.51g/cm⁻³ [101]) et le molybdène naturel (masse volumique = 10.22g/cm⁻³ [102]) ont également été testés pour cette étude. Comme attendu, le SiC déplace une partie de la population neutronique vers les énergies les plus basses sans réaliser beaucoup d'absorption, augmentant le k. Le B₄C absorbe les neutrons thermiques, ce qui conduit à un spectre plus dur et à un k plus bas ; le molybdène a un comportement similaire. L'acier 316H et le titane affichent un comportement similaire, intermédiaire entre

TABLE 4.11 – Composition du SiC

Z	A	I	N (at%)
14	28	0	0.9222
14	29	0	0.0468
14	30	0	0.0309
6	nat		1

le SiC et le molybdène.

TABLE 4.12 – Facteur de multiplication pour une même composition de sel combustible suivant le matériau entourant le circuit combustible

Matériau	Facteur de multiplication
316H	0.99575 (11)
B4C	0.97126 (12)
Mo	0.98345 (12)
SiC	1.01252 (11)
Titane	0.99845 (11)

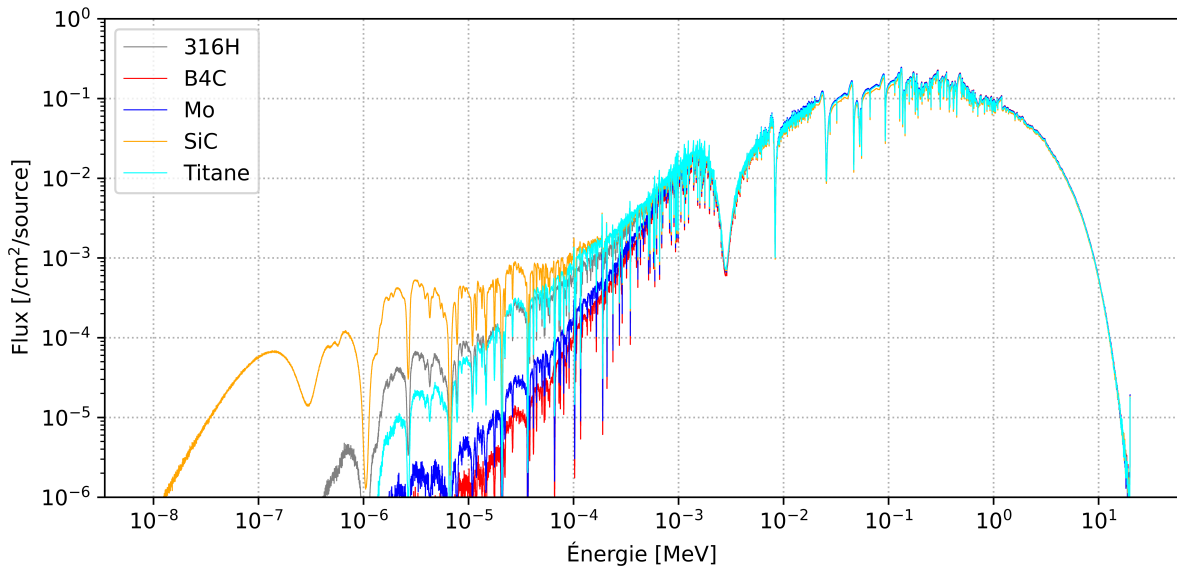


FIGURE 4.17 – Impact du matériau utilisé pour le réflecteur entourant le circuit combustible sur le spectre du sel combustible

L'idéal serait d'utiliser un acier 316H plaqué en SiC, mais l'écart sur le facteur de dilatation (316H : $17.5 \mu m/m/K$; SiC : $[7.9; 11] \mu m/m/K$ [103]), rend cela complexe en pratique : les contraintes à l'interface provoqueraient rapidement des ruptures fragiles de la céramique. Dans le cadre de ces travaux, on utilisera du SiC pour contenir les secteurs (sel fertile, réflecteur axial, protections neutroniques), et de l'acier 316H pour la structure et les réflecteurs autour du sel combustible.

4.4.3 Sel fertile

Ayant pour but de maximiser le facteur de régénération, on souhaite maximiser la fraction de matière fertile dans le sel fertile, tout en conservant un mélange eutectique. On choisit donc de se placer sur la ligne binaire NaCl-UCl₃ du diagramme 4.6, pour un sel de proportions molaires (67%)NaCl-(33%)UCl₃. L'uranium considéré ici est toujours de l'uranium appauvri ((0.2%)²³⁵U-(99.8%)²³⁸U). En pratique le sel devra contenir d'autres éléments pour éviter la production de ²³⁹Pu quasi pur, très proliférant. Ce point sera abordé dans la section 5.3, on admet pour l'instant que la composition de la couverture est ajustée pour contenir 0.5mol%(TRU, MOX usés)Cl₃.

Il faut ensuite optimiser l'épaisseur de la couverture fertile suivant deux critères principaux : le facteur de régénération, ou breeding ratio (BR) qui conduit à augmenter l'épaisseur de la couverture pour maximiser la collecte de neutrons de fuite ; l'inventaire en noyaux lourds et l'encombrement, que l'on souhaite réduire. Pour améliorer l'économie neutronique, on peut ajouter après le sel fertile un réflecteur dont l'épaisseur doit être également optimisée, conjointement avec l'épaisseur de la couverture fertile.

4.4.3.1 Calcul du facteur de régénération

Le facteur de régénération n'est pas trivial à évaluer pour un combustible contenant de multiples noyaux fissiles, ce qui est le cas pour les combustibles basés sur les TRU issus des combustibles UOX et MOX usés. Il va également varier avec l'évolution de la composition du combustible.

Le facteur de régénération dans le cycle uranium est souvent calculé de façon simplifiée en ne regardant que les conversions des deux noyaux principaux, ^{238}U et ^{239}Pu . L'équation (4.3) donne la méthode de calcul pour ce qui sera appelé ici le "BR simple".

$$\text{BR}_{\text{simple}} = \frac{\tau_{c,^{238}\text{U}}}{\tau_{f,^{239}\text{Pu}} + \tau_{c,^{239}\text{Pu}}} \quad (4.3)$$

avec τ_c le taux de captures [1/s] et τ_f le taux de fissions [1/s].

Une méthode plus sophistiquée consiste à attribuer un poids ω à chaque isotope du vecteur Pu pour quantifier leur valeur relative comme matière fissile. Cela revient à calculer un facteur de régénération en prenant pour chaque noyau d'intérêt un facteur d'équivalence $^{238}\text{U} - ^{239}\text{Pu}$ qui intègre les effets de spectre. Les équations (4.4),(4.5),(4.6) donnent le protocole pour calculer ce facteur de conversion appelé ici "BR complexe" [9].

$$\sigma_i^+ = \sigma_{f,i}(\nu_i - 1) - \sigma_{c,i} \quad (4.4)$$

$$\omega_i = \frac{\sigma_i^+ - \sigma_{^{238}\text{U}}^+}{\sigma_{^{239}\text{Pu}}^+ - \sigma_{^{238}\text{U}}^+} \quad (4.5)$$

$$\text{BR}_{\text{complexe}} = \frac{\sum_i \omega_i \tau_{c,i}}{\sum_i \omega_i (\tau_{c,i} + \tau_{f,i})} \quad (4.6)$$

Dans ces formules, les sections efficaces microscopiques sont moyennées sur le système (combustible + couverture) et pondérées par zone à l'aide des taux de réaction.

$$\sigma_{\text{reacteur},i} = \frac{\tau_{\text{combu},i} \sigma_{\text{combu},i} + \tau_{\text{couv},i} \sigma_{\text{couv},i}}{\tau_{\text{combu},i} + \tau_{\text{couv},i}} \quad (4.7)$$

Le facteur de régénération est un outil intéressant pour comparer des systèmes différents car il ne dépend pas de l'inventaire initial ni de la matière fissile. En revanche, si on s'intéresse au déploiement de plusieurs unités du même concept (voir chapitre 7), le temps de doublement devient un indicateur plus intéressant. Il s'agit de la durée requise pour produire suffisamment de matière fissile pour démarrer un deuxième réacteur à partir de la surproduction du premier. On peut théoriquement le calculer de la façon suivante :

$$t_d = \frac{m_{\text{fissile, init}}}{\dot{m}_{\text{fissile, produite}}(t)(\text{BR}(t) - 1)} \quad (4.8)$$

En pratique, il s'obtient en suivant le bilan des masses extraites. Sachant que le vecteur TRU de la couverture fertile va évoluer au cours du temps, il n'est pas possible de calculer précisément le temps de doublement à partir de la composition initiale, il faut modéliser le fonctionnement du réacteur sur plusieurs années voire plusieurs décennies (voir chapitre 5).

4.4.3.2 Efficacité de l'utilisation de ^{238}U en tant que matière fertile

On peut évaluer le facteur d'utilisation de ^{238}U comme matière fertile en regardant son taux de capture volumique utile, défini par l'équation (4.9). On considère ici que, dans une optique de production de matière fissile, les fissions rapides sur la matière fertile sont des réactions parasites.

$$\tau_{c,\text{vol,utile}} = \frac{\tau_c}{V_{\text{sel fertile}}} \left(\frac{\tau_c}{\tau_c + \tau_f} \right) \quad (4.9)$$

avec $\tau_r = \sigma_r \Phi$ [1/s] le taux de réaction r et Φ [1/cm²/s] le flux neutronique.

4.4.3.3 Optimisation par étude systématique

Les figures 4.18a et 4.18b présentent une carte des BR simple et complexe en fonction de l'épaisseur de couverture fertile et de l'épaisseur du réflecteur en acier 316H, pour les paramètres suivants :

- 20m³ (coeur) + 25m³ (plenums : 7m³ + échangeurs de chaleur : 18m³) de sel combustible ;
- 10cm de protection neutronique (B₄C).

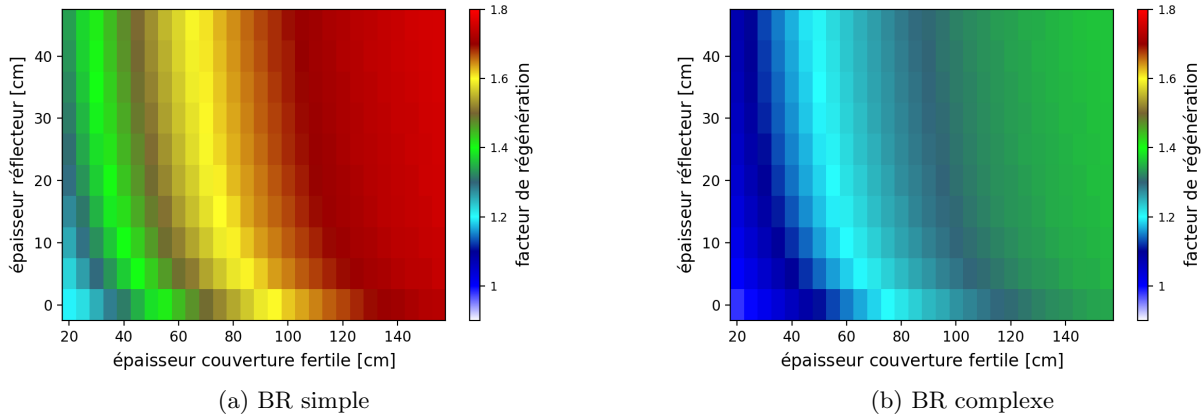


FIGURE 4.18 – Cartes des facteurs de régénération pour la composition initiale

Premièrement, on constate que les deux cartes affichent les mêmes tendances : à épaisseur de couverture fertile (en abscisse) fixée, plus l'épaisseur de réflecteur (en ordonnées) augmente, plus le facteur de régénération augmente ; et de la même façon, à épaisseur de réflecteur constante, plus l'épaisseur de la couverture fertile augmente, plus le facteur de régénération augmente. Sachant qu'il est intéressant de réduire l'inventaire en noyaux lourds autant que faire se peut (zone sur la gauche des graphiques), il est donc possible pour un même facteur de régénération recherché de diminuer l'épaisseur de la couverture fertile tout en augmentant celle de réflecteur. Deuxièmement, on constate un écart significatif sur les valeurs absolues des BR simple et complexe (le second calculé avec les poids (voir équation (4.5)) de la table 4.13 dont les valeurs sont cohérentes avec la référence [9]) : le BR simple est systématiquement supérieur, avec une valeur maximale proche de 1.8 alors que le BR complexe reste inférieur à 1.4. Il n'est pas vraiment possible de désigner la valeur la plus juste sans simuler l'évolution du réacteur, ce qui est fait dans la section 5.5. Du fait de la méthode de calcul, on peut raisonnablement postuler que le BR simple fournit une valeur optimiste, et le BR complexe une valeur plus conservatrice.

TABLE 4.13 – Poids en réactivité équivalent ²³⁹Pu calculés pour les isotopes du plutonium

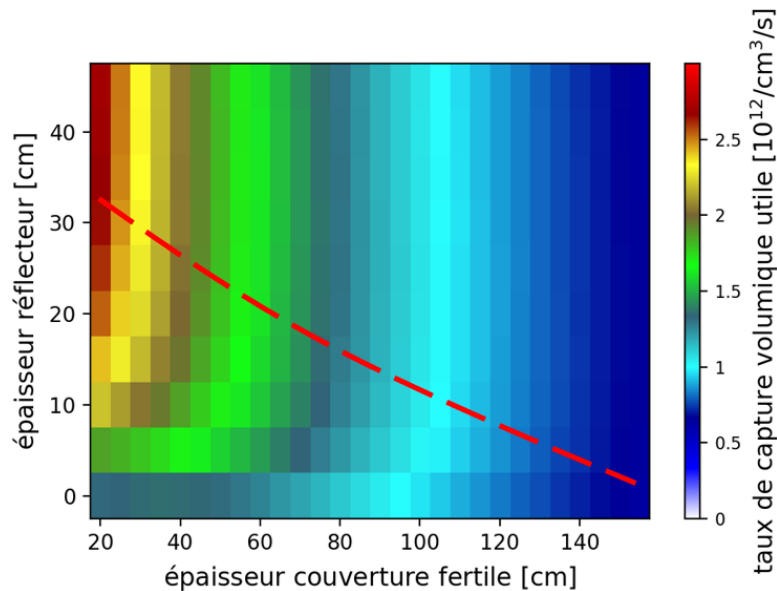
Isotope	²³⁸ Pu	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu	²⁴² Pu
Poids	0.51	1.0	0.13	1.43	0.10

La figure 4.19 présente une carte du taux de capture volumique utile sur l'uranium également en fonction de l'épaisseur de couverture fertile et de l'épaisseur du réflecteur.

On constate que le taux de capture volumique utile est d'autant plus grand que l'épaisseur de réflecteur est grand et l'épaisseur de couverture fertile est faible. Cela peut s'expliquer par l'atténuation du flux et un effet de spectre : une quantité importante de réflecteur peut thermaliser le flux, augmentant alors σ_c mais également le ratio $\frac{\sigma_c}{\sigma_f}$ pour l'²³⁸U.

L'utilisation du réflecteur "sature" à une certaine épaisseur pour chaque épaisseur de couverture fertile, cette saturation est indiquée par la courbe rouge au delà de laquelle il n'y a plus de gain significatif sur le taux de capture pour un réflecteur plus épais. Il faut choisir une valeur optimale de l'épaisseur de la couverture fertile en fonction du temps de doublement recherché pour le déploiement, sachant que l'épaisseur du réflecteur sera prise sur la ligne de saturation. Dans le cadre de ce travail, on choisit une couverture fertile de 80 cm avec un réflecteur de 20 cm, aboutissant aux valeurs (BR simple = 1.63) et (BR complexe = 1.27) et un temps de doublement respectif associé de 14.6 ans et 33.4 ans.

Le calcul en évolution (voir section 5.5) montre que le temps de doublement effectif associé remplit les conditions pour un déploiement rapide : en prenant une production nette d'environ 350kg/an de TRU, le temps de doublement associé à un démarrage nécessitant environ 15t de ces TRU est de 42 ans. Le BR complexe semble

FIGURE 4.19 – Utilisation de ^{238}U

donc bien plus indiqué pour le calcul. L'écart avec la valeur théorique du début provient vraisemblablement des contributions des autres actinides mineurs qui ne sont pas prises en compte : le calcul du BR complexe est fait avec les isotopes du Pu uniquement ici, sans l'Am et le Cm. L'alimentation continue de TRU pour maintenir la réactivité, qui affecte l'évolution du vecteur TRU, peut contribuer à l'écart également.

4.4.3.4 Le dessous des cartes

Comme évoqué précédemment, une autre façon d'augmenter le taux de capture volumique utile sur ^{238}U est de thermaliser le spectre de la couverture afin d'augmenter σ_c d'une part, mais également le ratio $\frac{\sigma_c}{\sigma_c + \sigma_f}$ d'autre part car la fission sur ^{238}U est une réaction à seuil (en énergie), en dessous duquel on peut estimer qu'il n'y a plus que des captures. Le MgO est employé comme modérateur, il s'agit d'une céramique résistante à l'irradiation à haute température déjà utilisée dans les réacteurs à neutrons rapides [104].

Un outil permettant de visualiser le spectre neutronique en fonction du rayon, appelé carte de spectre neutronique, est employé ici. Le tracé classique d'un spectre neutronique consiste à placer l'énergie en abscisse et le flux par intervalle d'énergie en ordonnée. Lors de la conversion en carte, pour une lecture plus intuitive, le rayon est placé en abscisse. L'énergie est déplacée de l'axe des abscisses à l'axe des ordonnées. Le flux constitue une troisième dimension qui est représentée par une gamme de couleurs allant du bleu (faible flux) au rouge (fort flux).

Les figures 4.20 et 4.21 présentent une carte du spectre neutronique pris à mi-hauteur pour deux configurations : la première avec une couverture fertile sans modérateur, la seconde avec des alternances de sel fertile et de MgO. Le lecteur peut utiliser la résonance de diffusion élastique caractéristique du sodium à 2.8 keV pour se repérer : elle se distingue par un trait vert horizontal entouré de zones rouges dans les sels combustible et fertile, marquant une dépression locale du flux.

Comme prévu, on observe sur la figure 4.21 un déplacement de la population neutronique vers des énergies plus basses, symbolisé par le déplacement de la zone rouge vers le bas de l'échelle des ordonnées. Dans cette étude, le taux de capture volumique sur ^{238}U dans le sel fertile passe de $1.3 \cdot 10^{12}$ à $2.09 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$, et le taux de capture absolu passe de $3.06 \cdot 10^{19} \text{ s}^{-1}$ à $3.01 \cdot 10^{19} \text{ s}^{-1}$. Le volume de sel fertile passe de 23.4 m^3 à 14.4 m^3 . On observe donc que l'on peut avoir le même taux de capture absolu avec seulement 60% de l'inventaire en noyaux lourds grâce à la thermalisation du spectre.

En revanche cette configuration présente un inconvénient significatif : en cas de perte du sel fertile, les neutrons peuvent être thermalisés par le MgO puis retourner dans le sel fissile, ce qui se traduit par une insertion de réactivité. La courbe 4.22 présente les valeurs du k selon le taux de remplissage de la couverture fertile. Dans cette configuration, la perte totale du sel fertile se traduit par une insertion de plus de 3000 pcm. En admettant un coefficient total de contre-réaction d'environ 20pcm/K (voire section 4.4.5), la perte du sel fertile entrainerait une élévation de température du combustible d'environ 150K. Il s'agit d'un initiateur potentiel d'événement incidentel ou accidentel, aussi cette configuration avec modérateur ne sera pas retenue pour les

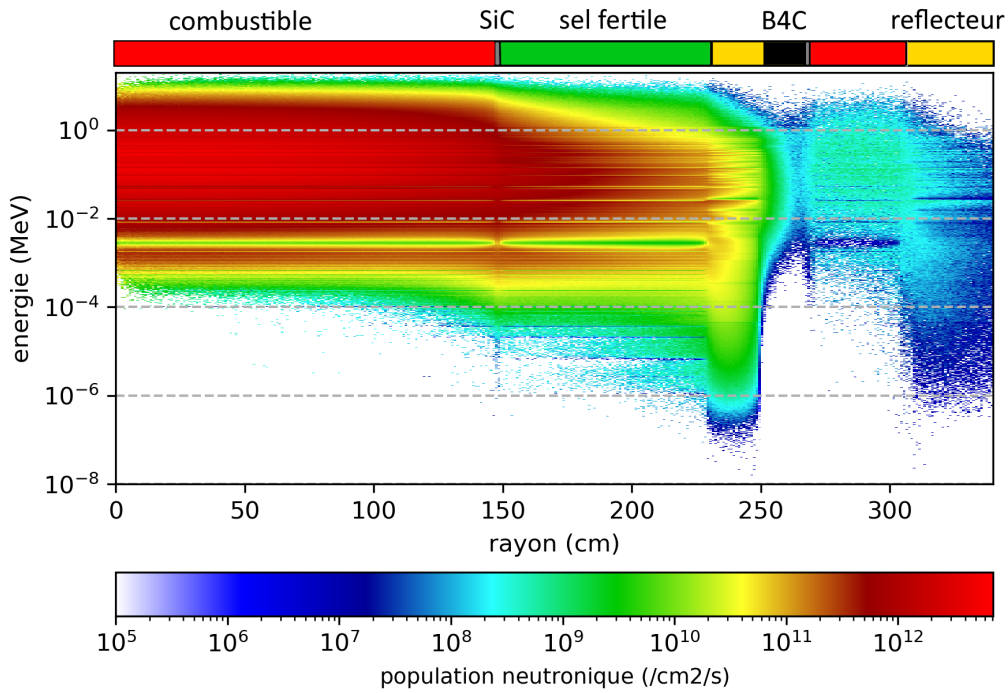


FIGURE 4.20 – Carte de la population neutronique en fonction du rayon, sans modérateur

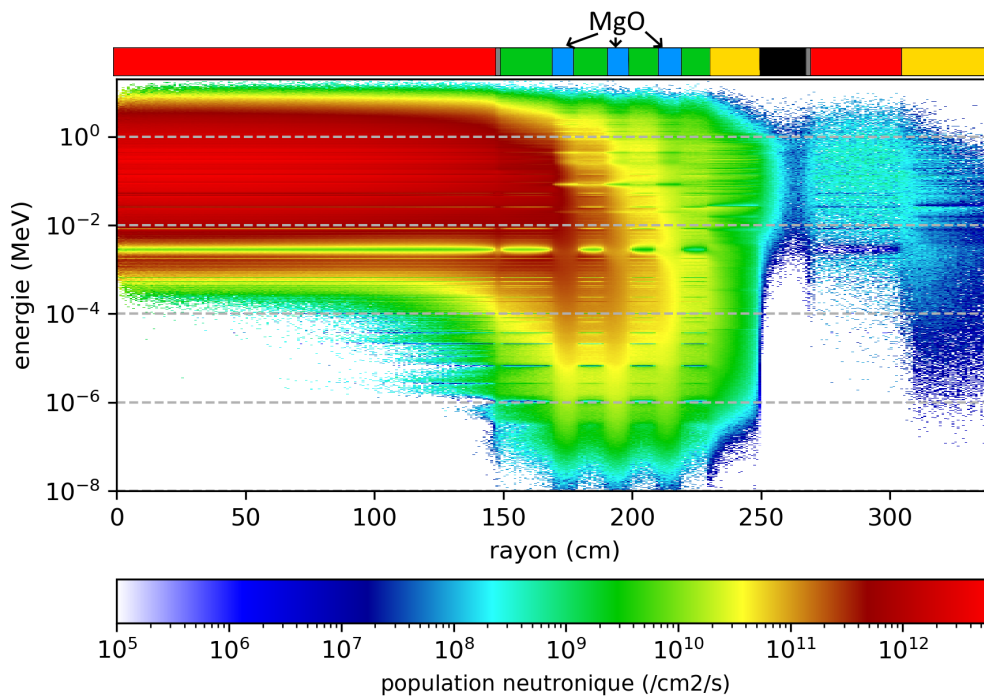


FIGURE 4.21 – Carte de la population neutronique en fonction du rayon, avec modérateur

études suivantes.

4.4.4 Protection neutronique

Les échangeurs de chaleur sont le point le plus vulnérable du système de par les contraintes qu'ils subissent en termes de gradient de température et de surface susceptible d'adsorber des impuretés. C'est un point important pour les MSFR au niveau de la sûreté du système car le circuit contenant le sel combustible représente la première barrière (l'équivalent des gaines dans un REP). Ils doivent être protégés au mieux du flux neutronique, pour limiter les DPA subis. Ils sont soumis à deux flux : le flux en provenance du coeur, et le flux généré par la décroissance in-situ des précurseurs lors de leur circulation. L'optimisation de la protection consiste à ce que le flux en provenance du coeur soit inférieur à celui issu des neutrons retardés. L'augmentation de la protection

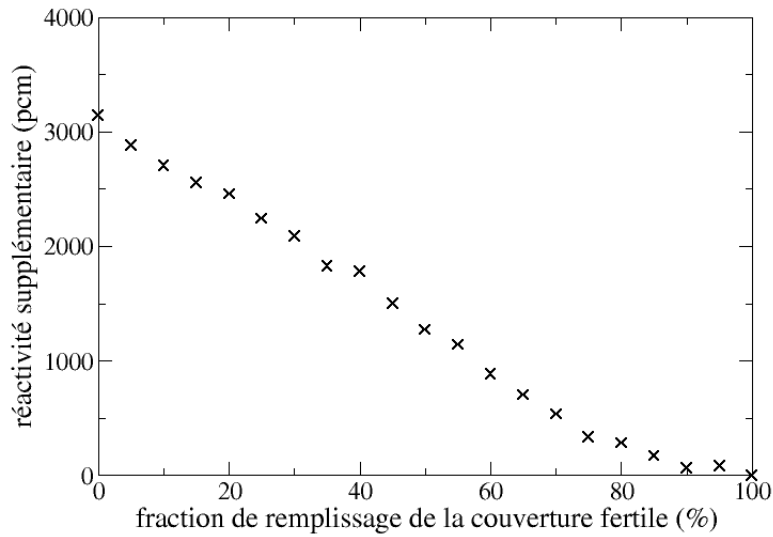


FIGURE 4.22 – Facteur de multiplication selon le niveau de remplissage de la couverture fertile

au delà augmente l’encombrement sans apporter de bénéfice significatif en termes de protection.

Les codes de transport utilisés (Serpent2 et MCNP5) ne possèdent pas de module de déplacement du combustible. Par conséquent, les neutrons retardés seront générés là où les précurseurs seront formés, autrement dit leur distribution spatiale n’est pas représentative d’un combustible circulant. Plusieurs méthodes de calcul ont été mises au point durant la thèse pour solutionner ce problème. Elles font appel aux deux modes de calcul pour les codes de transport neutroniques : le calcul “source”, et le calcul de criticité, ou “kcode”, explicités dans la partie 3.1.2.

4.4.4.1 Méthodes de dimensionnement

4.4.4.1.1 Approche par gerbe

La première méthode s’appuie sur l’approche par gerbe développée par Fabien Perdu [28], également utilisée par Axel Laureau [10] ; l’idée est la suivante.

Un réacteur critique a un k valant exactement 1, somme d’une contribution prompte et d’une contribution retardée :

$$k = (1 - \beta_{\text{eff}})k + \beta_{\text{eff}}k = k_p + \beta_{\text{eff}}$$

Un neutron engendre en moyenne k_p neutrons prompts par fission. Tant que le réacteur est sous-critique prompt ($k_p < 1$), toute chaîne de fissions prompts, appelée gerbe, va prendre fin. La quantité de fissions est le résultat de la suite géométrique de paramètre k_p :

$$\text{nombre de neutrons prompts générés par une gerbe} = k_p + k_p \cdot k_p + \dots = \sum_{n=1}^{\infty} k_p^n \stackrel{k_p < 1}{=} \frac{1}{1 - k_p}$$

De ceci, on peut en déduire que la gerbe prompte est de taille finie, et donc à l’équilibre tous les neutrons viennent d’un neutron retardé : les neutrons retardés apportent le complément à la criticité. Le réacteur peut être considéré comme un système sous-critique prompt avec une source externe de neutrons, les neutrons retardés. En s’appuyant sur cette théorie, on peut recalculer les scores, non pas avec un calcul kcode mais avec un calcul source en modélisant uniquement les neutrons prompts, mais en donnant comme distribution spatio-énergétique initiale pour les particules sources celle des neutrons retardés. Cependant, le calcul source peut prendre un temps extrêmement long compte-tenu du fait que le coeur a un coefficient multiplicateur très proche de 1, là où les autres régions vont avoir un k bien inférieur (environ 0.5 pour les échangeurs de chaleur). Pour cela, on va choisir de couper le calcul après un nombre de générations tel que les particules restantes décrivent la source convergée, et décrire analytiquement la fin des chaînes. Le calcul total d’un score τ sera effectué suivant l’équation (4.10), en supposant une source convergée après c générations. A partir de ce moment, k obtenu après ces c générations,

vaut k_p et la contribution au score total de cette génération vaut $\tau_c = \tau_\infty = \tau_{\text{kcode}}$.

$$\begin{aligned}
 \tau &= \tau_0 + k_0\tau_1 + k_0 \cdot k_1\tau_2 + \dots + k_0\dots k_\infty\tau_\infty \\
 &= \tau_0 + k_0\tau_1 + k_0 \cdot k_1\tau_2 + \dots + k_0\dots k_c(\tau_c + k_p\tau_\infty + k_p \cdot k_p\tau_\infty + \dots) \\
 &= \tau_0 + k_0\tau_1 + \dots + k_0\dots k_p \cdot \tau_\infty \left(\sum_{n=0}^{\infty} k_p^n \right) \\
 &= \tau_0 + k_0\tau_1 + \dots + k_0\dots k_p \cdot \tau_\infty \left(\frac{1}{1 - k_p} \right)
 \end{aligned} \tag{4.10}$$

Un problème rencontré lors de l'utilisation de cette méthode avec le code Serpent2 est que les scores ne sont pas normalisés comme attendus. La contribution τ_i est normalisée par la somme des particules générées, et non pas par particule source.

$$\tau_{i, \text{sss2}} = \frac{\tau_{i, \text{recherché}}}{1 + k_0 + k_0k_1 + \dots + k_0\dots k_i}$$

Il faut donc multiplier les scores bruts par ce facteur, cependant les k_i ne sont pas directement accessibles. Un des travaux de cette thèse a donc consisté à modifier et recompiler le code Serpent2 pour extraire cette information. Pour cela, le nombre de neutrons "survivants" à la i -ème génération est sauvegardé, et k_i vaut $\frac{\text{nombre de survivants (génération } i)}{\text{nombre de particules sources}}$. Le défaut de cette méthode est qu'elle requiert, avec cette implémentation, de faire c calculs source en incrémentant à chaque fois la génération à partir de laquelle on coupe le calcul. Cependant elle permet d'obtenir une première estimation servant de point de comparaison avec la version optimisée présentée ci-après.

Pour une première application, supposons un cas simple où l'on considère une vitesse de circulation du fluide infinie, résultant en un brassage parfait et une distribution homogène des précurseurs de neutrons retardés. Alors $k_p - 1$ vaut $\beta_{\text{eff, circ}} = \beta_{\text{eff}} \cdot \frac{V_{\text{coeur}}}{V_{\text{combustible}}}$. La figure 4.23 compare les flux en fonction du rayon à mi-hauteur obtenus avec un calcul kcode, et un calcul source suivant la nouvelle méthode, pour la configuration suivante :

- 45 m³ de sel combustible dont 20m³ dans le coeur ;
- 80 cm de couverture fertile ;
- 20 cm de réflecteur ;
- 10 cm de protection neutronique ;
- source de fissile : UOX usé.

On donne comme distribution énergétique, pour les particules sources, celle des neutrons retardés issus de la fission du ²³⁹Pu, l'isotope fissile majoritaire. Pour que les valeurs soient comparables entre le calcul avec l'approche par gerbe et le calcul kcode, il faut normaliser par la puissance qui doit être identique, assimilée ici aux taux de fission.

On observe que les flux sont très similaires dans le coeur, mais qu'il est bien plus élevé (facteur 5) dans les échangeurs avec la nouvelle méthode de calcul, comme attendu.

4.4.4.1.2 Repositionnement direct des neutrons retardés pendant le calcul de criticité

La deuxième méthode consiste à réaliser un calcul kcode mais en modifiant directement la fonction fission du code Serpent2, pour repositionner les neutrons retardés. Concrètement, à chaque fois qu'un neutron retardé est simulé, sa position est tirée aléatoirement selon une distribution choisie à l'avance. La figure 4.24 représente la comparaison des flux pour la même configuration que précédemment, avec repositionnement des neutrons retardés selon une distribution uniforme dans le combustible.

On constate que les deux méthodes donnent un résultat très proche. L'écart entre les deux peut provenir des incertitudes sur chaque k_i qui se cumulent, en particulier ceux des premières générations, qui induisent un biais systématique. Une autre contribution à l'erreur peut être le choix de la génération à partir de laquelle le calcul est coupé.

Le dernier point consiste, quelque soit la méthode utilisée pour le calcul du transport, à fournir la distribution spatiale des neutrons retardés la plus réaliste possible. Pour cela, on peut utiliser des codes faisant le couplage neutronique-thermohydraulique 3D comme TFM-OpenFOAM [10], ou des codes systèmes donnant accès à cette information. C'est le cas du code système LiCore, utilisé pour cette étude.

On fournit au code LiCore la même géométrie utilisée avec le code Serpent2, et on effectue une mise à l'équilibre illustrée figure 4.25.

On récupère la distribution 2D (rayon et hauteur) de la décroissance des précurseurs, que l'on intègre sur la quantité totale de décroissances pour avoir une fonction de distribution cumulée. On obtient ainsi une bijection entre une cellule de position $([r_1, r_2], [z_1, z_2])$ et un intervalle $[x_1, x_2] \in [0, 1]$, la longueur de l'intervalle $[x_1, x_2]$ étant donc proportionnel à la proportion de précurseurs dans la cellule associée. On fournit cette bijection au code Serpent2 qui va l'utiliser pour tirer aléatoirement la position des neutrons retardés, directement basée

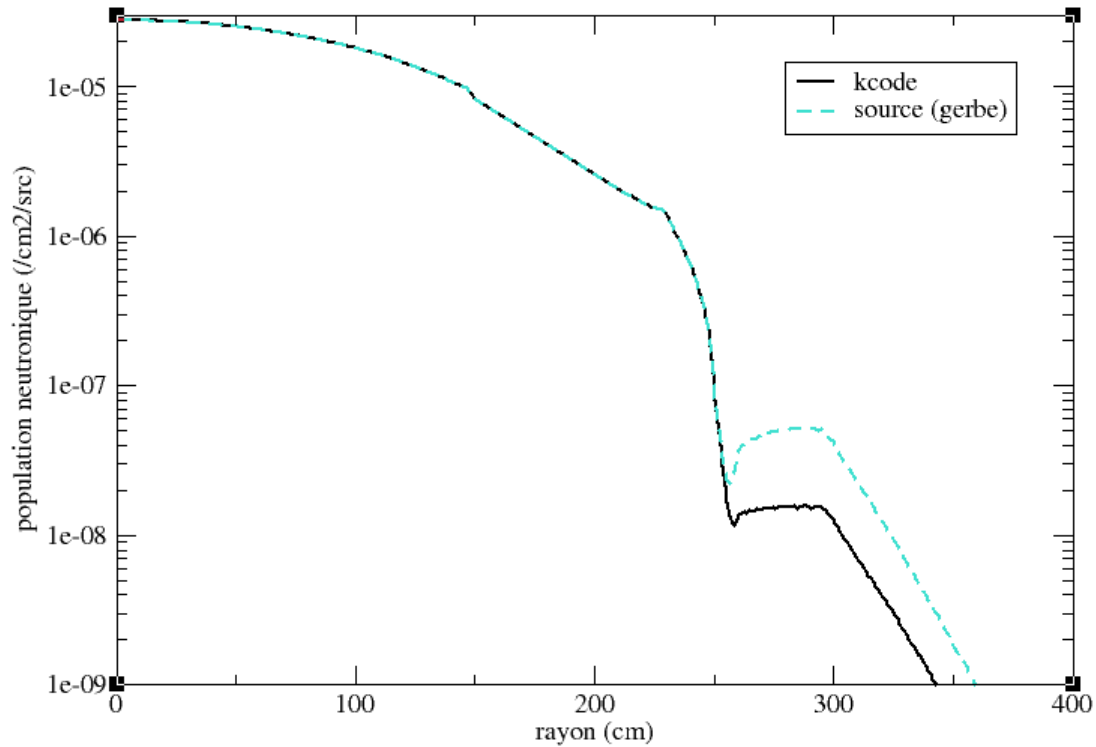


FIGURE 4.23 – Flux neutronique suivant le rayon - comparaison entre le calcul kcode et l’approche par gerbe

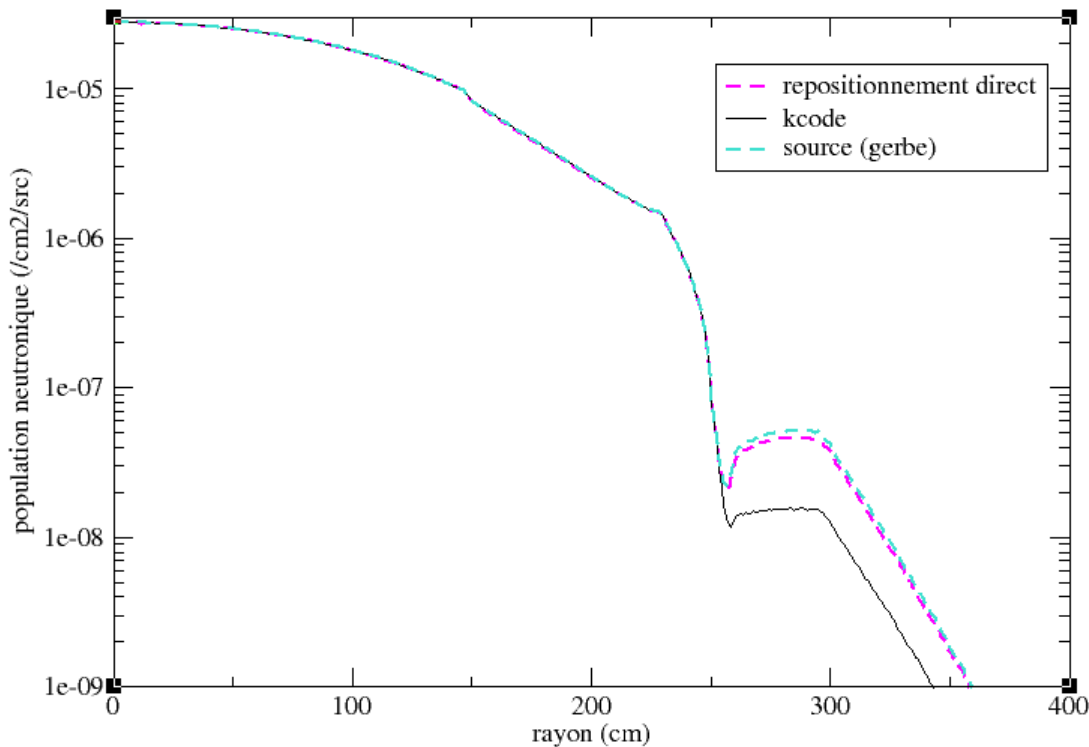


FIGURE 4.24 – Flux neutronique suivant le rayon - comparaison calcul kcode, approche par gerbe et repositionnement direct des neutrons retardés selon une distribution homogène

sur celle des précurseurs. Le passage de la distribution 2D à la distribution 3D s’effectue par tirage aléatoire de l’angle en tirant profit de la symétrie axiale du système. La figure 4.26 compare, toujours pour la même configuration, les flux obtenus par le calcul kcode suivant la distribution basique, homogène ou issue de LiCore neutrons retardés. On constate que la distribution homogène surestime la contribution réelle des précurseurs de 30% environ pour le flux radial pris à mi-hauteur dans les échangeurs de chaleur.

On peut vérifier l’importance de la position du détecteur en comparant le flux à mi-hauteur (détecteur de

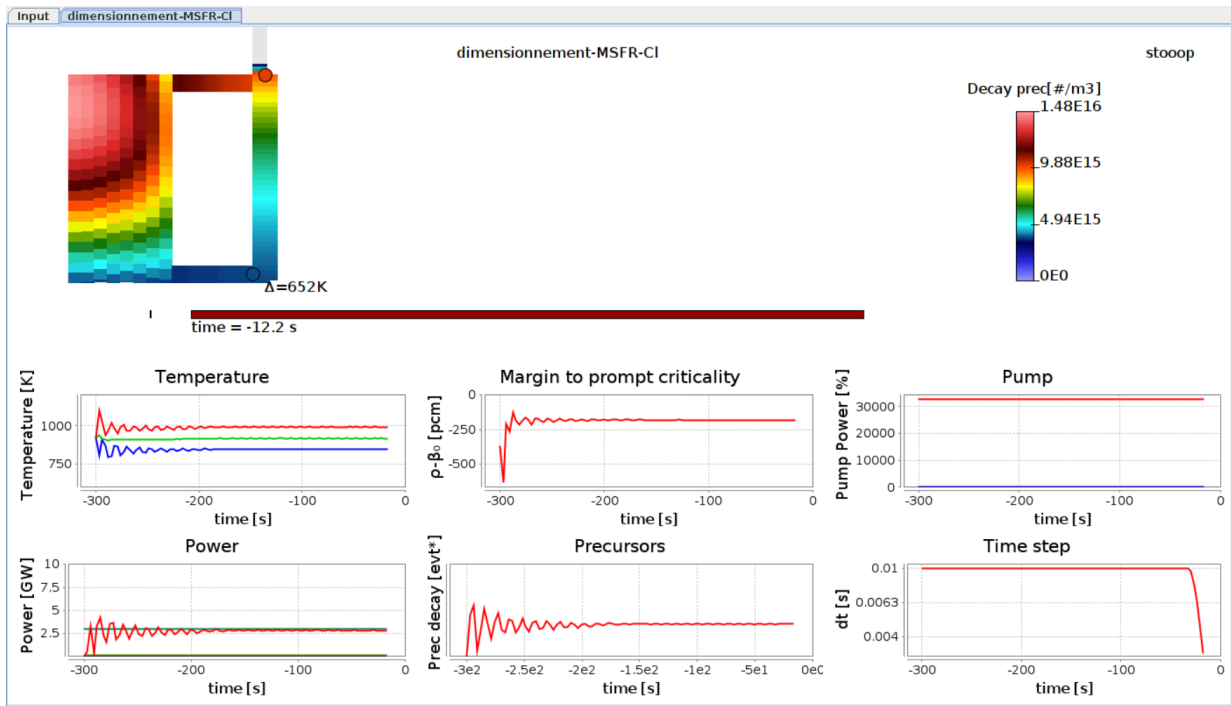


FIGURE 4.25 – Interface de LiCore - recherche de la distribution des précurseurs

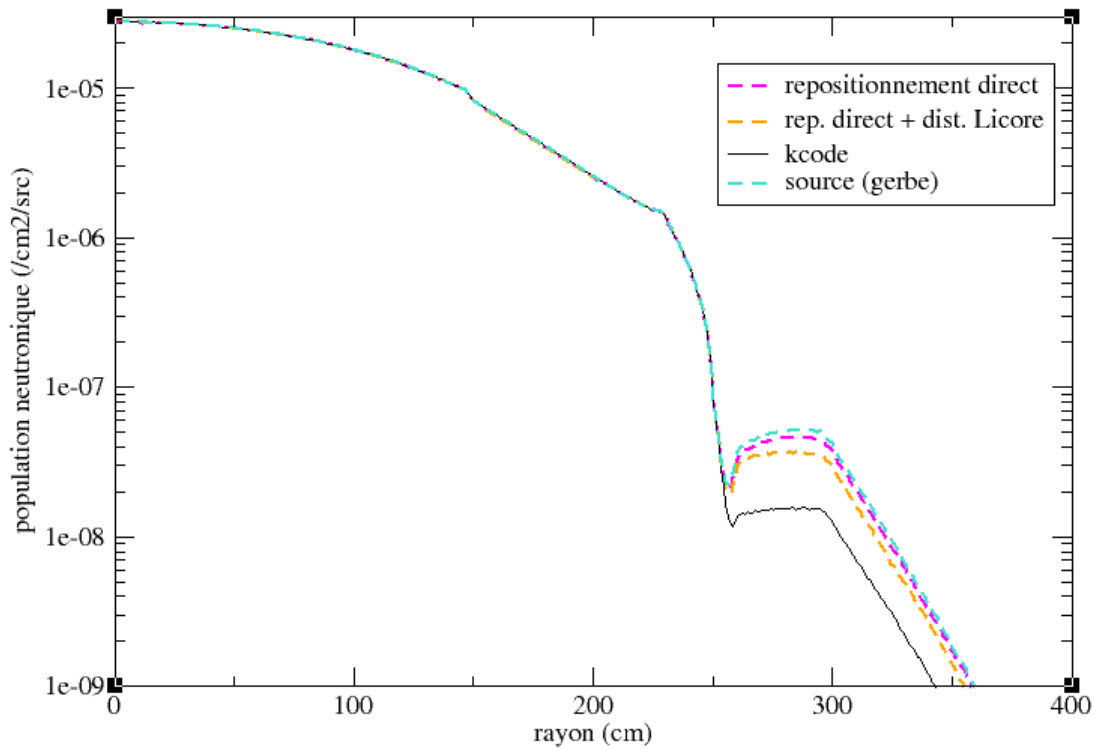


FIGURE 4.26 – Flux neutronique suivant le rayon avec la distribution des précurseurs de LiCore

-25cm à +25cm) du flux pris juste en-dessous du plenum supérieur (détecteur entre +70cm et +120cm). La figure 4.27 présente cette comparaison. On observe que le flux mesuré proche du plenum est moins important en coeur mais plus élevé dans les échangeurs. Cela est dû à l'importance non négligeable des neutrons issus du coeur allant faire des fissions dans les plenums, trajets permis par la relative transparence neutronique des sels chlorures, et pose la question de la protection autour des plenums.

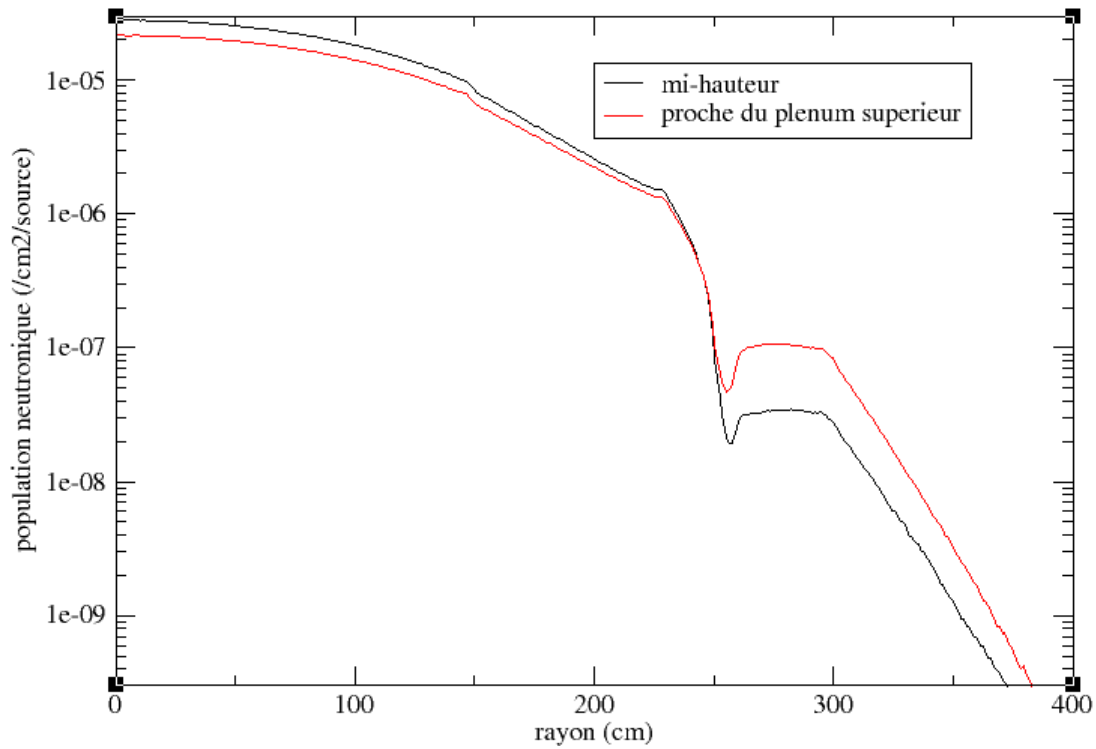


FIGURE 4.27 – Comparaison du flux neutronique à mi-hauteur et proche d'un plenum

4.4.4.2 Dimensionnement de la protection

L'optimisation du dimensionnement de la protection neutronique s'effectue par une étude systématique, en définissant comme observable le ratio des flux avec et sans repositionnement des neutrons retardés. On définit comme critère arbitraire un facteur 2 sur le ratio, c'est-à-dire que la contribution du flux en provenance du coeur doit être deux fois moindre que celle issue des neutrons retardés dans les échangeurs de chaleur. La figure 4.28 représente les flux à mi-hauteur dans le réacteur pour plusieurs épaisseurs de protection neutronique. La figure 4.29 représente le ratio entre ces flux. Le critère est atteint pour une épaisseur de B_4C de 10cm, ce sera donc la valeur retenue pour la configuration de référence du MSFR-CI.

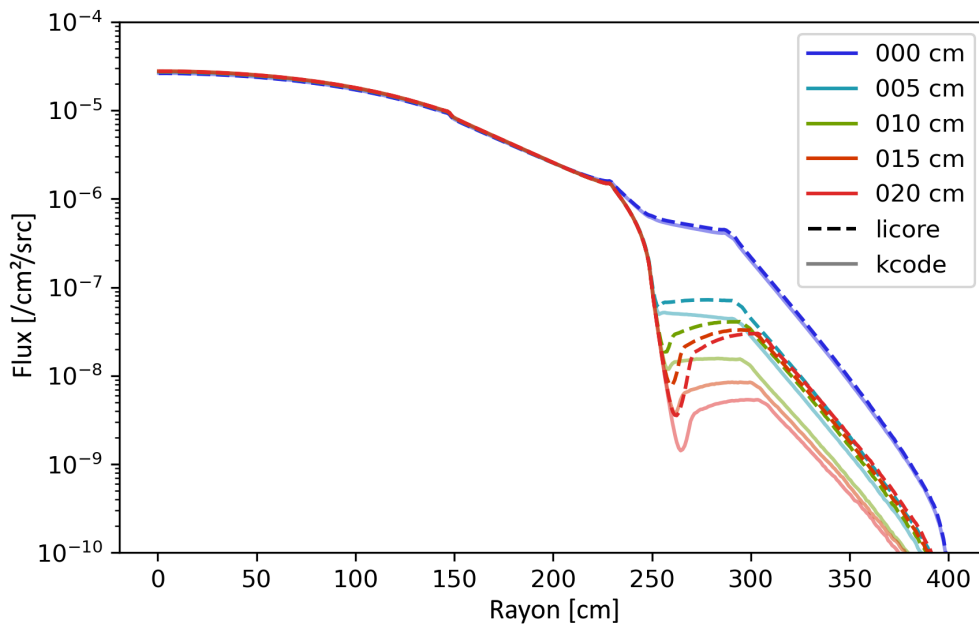


FIGURE 4.28 – Flux à mi-hauteur en fonction de l'épaisseur de la protection neutronique

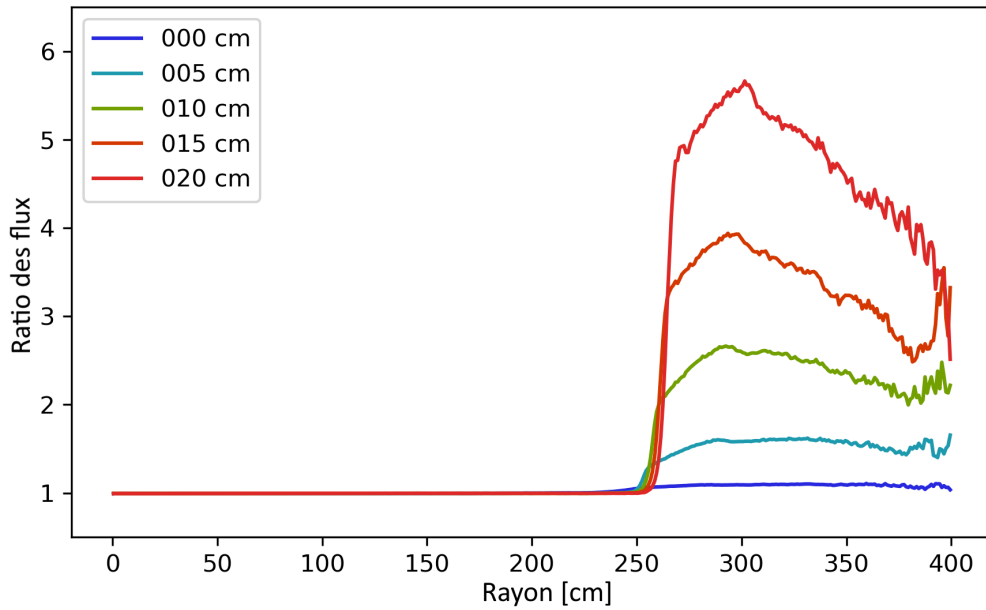


FIGURE 4.29 – Ratio des flux à mi-hauteur en fonction de l'épaisseur de la protection neutronique

4.4.5 Configuration standard et paramètres neutroniques

Les caractéristiques de la configuration dite standard, résultant des études d'optimisation sont présentées dans le tableau 4.14.

TABLE 4.14 – Caractéristiques de la configuration standard du MSFR-CI

Volume de sel combustible en cœur	20 m ³
Volume de sel combustible dans les boucles de recirculation	25 m ³
Volume de sel combustible dans le vase d'expansion	1.5 m ³
Nombre de boucles	24
Masse de sel combustible	145 t
Températures d'entrée et de sortie de cœur	850K → 1000K
Épaisseur de la couverture fertile	80 cm
Volume de la couverture fertile	23.4 m ³
Masse de la couverture fertile	75 t
Épaisseur du réflecteur	20 cm
Volume de réflecteur	7.4 m ³
Épaisseur de la protection neutronique	10 cm
Volume de la protection neutronique	3.9 m ³

Différentes compositions possibles, ajustées pour être critiques au démarrage, sont présentées dans le tableau 4.15. Une aide-mémoire des différents réacteurs étudiés est disponible en Annexe A.1 L'automatisation de la recherche d'une composition critique a été effectuée par Axel Laureau dans son module python Maya, utilisé ici. Il permet, à partir des vecteurs des espèces composant le sel combustible et du diagramme ternaire associé, d'obtenir un mélange critique et eutectique, ainsi que sa densité (méthode présentée dans la section 3.3.1) en un temps très court ($\simeq 3$ minutes pour $k=1 \pm 50$ pcm). La source de matière fissile utilisée dans les études suivantes sera l'UOX usé.

TABLE 4.15 – Compositions initiales

Source de matière fissile	Combustible UOX usé	Combustible MOX usé	Uranium enrichi
NaCl	65.7	65.1	67.1
UCl ₃	28.4	26.8	32.9 (e=15.9%)
(TRU)Cl ₃	5.9	8.1	0
Masse volumique (g/cm ³) (T=925K)	3.19	3.21	3.15

Les paramètres neutroniques pour ces compositions initiales sont présentés dans le tableau 4.16.

Remarque : les coefficients sont calculés avec propagation d'incertitudes par la méthode Monte-Carlo. L'incer-

titude associée pour le coefficient de densité est obtenue en supposant une évolution quadratique de ce coefficient et celle sur le coefficient Doppler, en supposant une évolution logarithmique.

On constate que tous les coefficients de contre-réaction sont négatifs, le réacteur sera donc stable du point de vue neutronique avec sa composition initiale. Le coefficient de densité est très largement négatif : à titre de comparaison, il vaut environ -4pcm/K dans le MSFR de référence [45] pour sa composition initiale. Le coefficient Doppler est plus faible, et est d'autant plus faible que la qualité de la matière fissile se dégrade : cela est dû aux actinides mineurs, l'américium en particulier, qui capture beaucoup dans la zone épithermique. Dans le MSFR de référence, ce coefficient vaut environ -4pcm/K pour sa composition initiale. On constate donc une forte asymétrie dans la contribution à la contre-réaction dans le cas du MSFR-Cl, avec une large dominance du coefficient de densité.

TABLE 4.16 – Paramètres neutroniques à l'état initial

Source de matière fissile	UOX utilisé	MOX utilisé	uranium enrichi
Coefficient de densité	-20.3(5) pcm/K	-18.9(5) pcm/K	-19.2(5) pcm/K
Coefficient Doppler	-0.67(4) pcm/K	-0.37(4) pcm/K	-0.72(4) pcm/K
β_{eff}	375(4) pcm	353(4) pcm	708(5)pcm

Lors du remplissage du réacteur, ce coefficient voit sa valeur évoluer. Il convient de vérifier que ceci n'est pas susceptible de remettre en cause la sûreté du réacteur, en calculant sa valeur en fonction du taux de remplissage, avec le facteur de multiplication associé. La figure 4.30 présente l'évolution du k lors du remplissage, ainsi que la valeur du coefficient de densité.

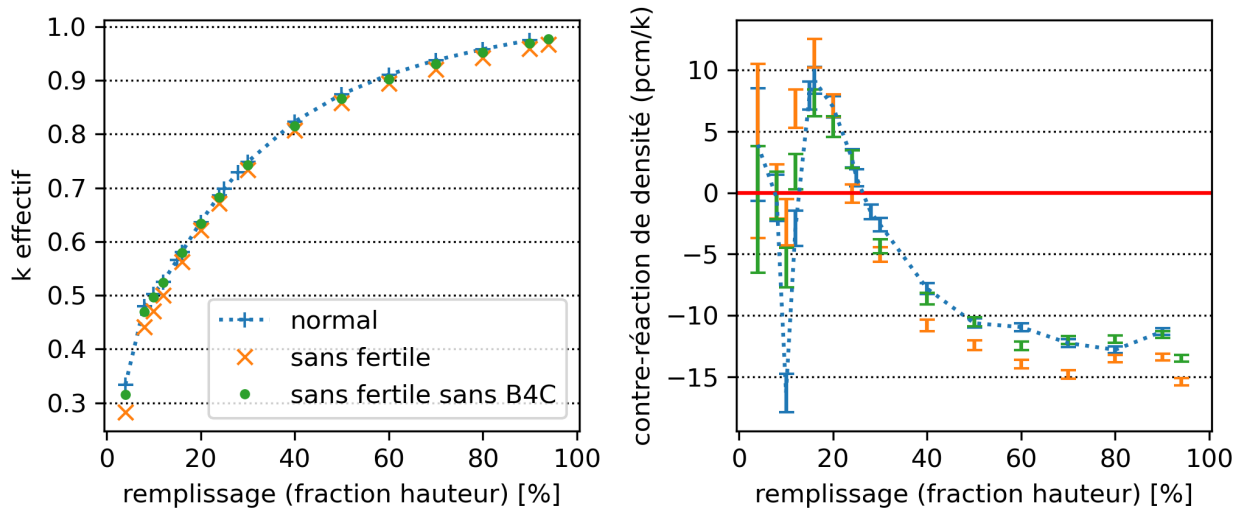


FIGURE 4.30 – Évolution du k et du coefficient de densité pendant le remplissage

On observe que le coefficient de densité évolue vers des valeurs positives lorsque le réacteur se vide. Il devient positif lorsque le réacteur est rempli à moins de 30%. Cependant, pour ce taux de remplissage, la marge à la criticité est telle (>25000pcm) que cela ne semble pas problématique.

4.5 Conclusion de l'optimisation de la configuration initiale standard

Tout d'abord, l'utilisation importante de TRU souhaitée pour le MSFR-Cl et les besoins d'un spectre neutronique rapide pour la régénération du cycle uranium conduit à troquer les sels fluorures pour des sels chlorures. L'abondance et la faible interaction du sodium en fait un élément de choix pour former le solvant. L'uranium et les TRU ayant une forme principale trivalente dans ce solvant, le sel combustible retenu est donc $\text{NaCl-UCl}_3\text{-(TRU)Cl}_3$.

L'optimisation du circuit combustible à l'aide du code SONGe conduit à un besoin de volume du sel dans les échangeurs au moins égal à 20m^3 pour permettre l'extraction des 3GW_{th} , 25m^3 est la valeur retenue ici pour conserver une certaine marge ; les contraintes neutroniques sur la quantité de précurseurs dans le coeur ainsi que l'iso-génération du combustible conduisent au choix d'un volume 20m^3 pour le coeur.

Une première optimisation du vase d'expansion est proposée avec pour exigence d'avoir moins de 1% des fissions du combustible à cet endroit, et d'accommoder une dilatation du combustible résultant d'une insertion de réactivité de 1000pcm. En supposant un vase de même rayon que le coeur situé dans le réflecteur supérieur et sans protection neutronique dédiée, les études concluent qu'il convient de le placer à une distance minimale de 40cm.

Les calculs réalisés sur l'enrichissement du chlore en ^{37}Cl montrent qu'il n'y a pas de valeur optimale de l'enrichissement si ce n'est le maximum réalisable à l'échelle industrielle. Supposition est faite qu'un enrichissement à hauteur de 99% est réalisable.

La couverture fertile et le réflecteur axial placé après ont été optimisés pour obtenir une surrégénération satisfaisante et une utilisation raisonnable de la matière fertile, aboutissant à une épaisseur de la couverture de 80cm et d'un réflecteur de 20cm.

Les matériaux de structure envisagés, choisis en se basant sur la littérature et qui devront être expérimentalement testés, sont l'acier 316H pour les réflecteurs et le SiC pour les secteurs. L'usage de cette céramique répond au besoin de limiter l'adsorption des PF métalliques dans les échangeurs de chaleur, des tests expérimentaux seront nécessaires pour décider de la pertinence de cette solution.

Le dimensionnement de la protection neutronique a fait l'objet de calculs tenant compte du déplacement des précurseurs dans le circuit combustible. A l'aide du code système LiCore, la distribution correcte des précurseurs a été partagée avec le code Serpent2 pour une modélisation correcte du flux, en particulier dans les échangeurs de chaleur. De ces calculs, conclusion a été faite qu'une protection neutronique de 10cm en B_4C était un choix optimal pour l'objectif d'avoir un flux en provenance du coeur deux fois moindre que celui généré par les neutrons retardés in-situ.

Pour finir, des calculs statiques de criticité pour les différents combustibles envisagés ainsi que les calculs des coefficients de contre-réaction associés ont été effectués, concluant que le réacteur était intrinsèquement stable avec une très forte dominance de l'effet de dilatation du sel devant l'effet Doppler pour la contre-réaction totale.

Dans la continuité directe de ces travaux, le chapitre suivant porte sur le calcul neutronique en évolution de cette configuration optimisée.

Chapitre 5

MSFR-C1 : calculs neutroniques en évolution

Ce chapitre présente les résultats des simulations neutroniques de fonctionnement du réacteur dans la durée, appelées évolutions, effectuées avec le code REM. Après un premier calcul sans intervention extérieure permettant d’avoir un aperçu des éléments produits (section 5.1), la définition d’une stratégie de traitement des sels fondus est faite (section 5.2), et les contrôles nécessaires pour l’exploitation (contrôle de la réactivité, contrôle de la valence des sels, ...) sont caractérisés. Les différentes alimentations (contrôles) et extractions (traitement) sont progressivement ajoutées dans les simulations pour illustrer leur impact sur les évolutions de compositions, puis optimisées. Un aspect de la stratégie de résistance à la prolifération du système est discuté (section 5.3). Le MSFR-C1 et le MSFR de référence démarré avec une matière fissile similaire sont comparés sur différents paramètres par exemple sur l’utilisation des actinides mineurs. La puissance résiduelle des deux systèmes est évaluée (section 5.4). Le chapitre se termine sur des études de sensibilités liées à la géométrie (le vase d’expansion), la/les librairie(s) de données utilisée(s), et le type de matière fissile considéré.

Sommaire

5.1	Calculs sans contrôle	84
5.2	Stratégie de traitement	84
5.3	Couverture fertile et résistance à la prolifération	87
5.4	Traitement du combustible	90
5.4.1	Effets des différents contrôles	90
5.4.1.1	Impact des contrôles sur les masses	91
5.4.1.2	Impact des contrôles sur la quantité de chlore	91
5.4.1.3	Impact des contrôles sur le facteur de multiplication	92
5.4.1.4	Impact des contrôles sur le vecteur Pu	93
5.4.2	Choix des débits de traitement pour la configuration de référence	95
5.4.2.1	Sensibilité sur le temps d’extraction des PF insolubles	95
5.4.2.2	Optimisation du débit d’extraction des PF solubles	97
5.5	Bilans massiques	97
5.5.1	MSFR-C1 en configuration standard	97
5.5.2	Comparaison avec le MSFR de référence	99
5.5.3	Distribution des produits de fission	100
5.6	Évaluation de la puissance résiduelle	102
5.6.1	Méthode de calcul	102
5.6.2	Comparaison des puissances résiduelles entre deux concepts MSFR	104
5.6.2.1	Puissance résiduelle associée au sel combustible	104
5.6.2.2	Puissance résiduelle associée au sel fertile	104
5.7	Études de sensibilité	105
5.7.1	Etude préliminaire sur l’impact du vase d’expansion sur l’évolution	105
5.7.2	Etude préliminaire sur l’impact du chargement initial	107
5.7.3	Étude préliminaire sur l’impact de la librairie de données nucléaires	107
5.8	Conclusion sur les calculs neutroniques en évolution	109

5.1 Calculs sans contrôle

Pour commencer, il est intéressant d'effectuer la simulation de l'évolution du réacteur sans contrôle, si ce n'est la puissance totale imposée à 3GW_{th} . Cette opération n'est pas réaliste (un réacteur sous-critique verrait sa réaction en chaîne s'interrompre) mais permet d'observer l'évolution de la réactivité et donne une idée des produits de fission générés. La figure 5.1 présente l'évolution de la réactivité suivant la source de matière fissile utilisée au démarrage (voir sections 4.4.1.1 et 4.4.5 pour les compositions initiales).

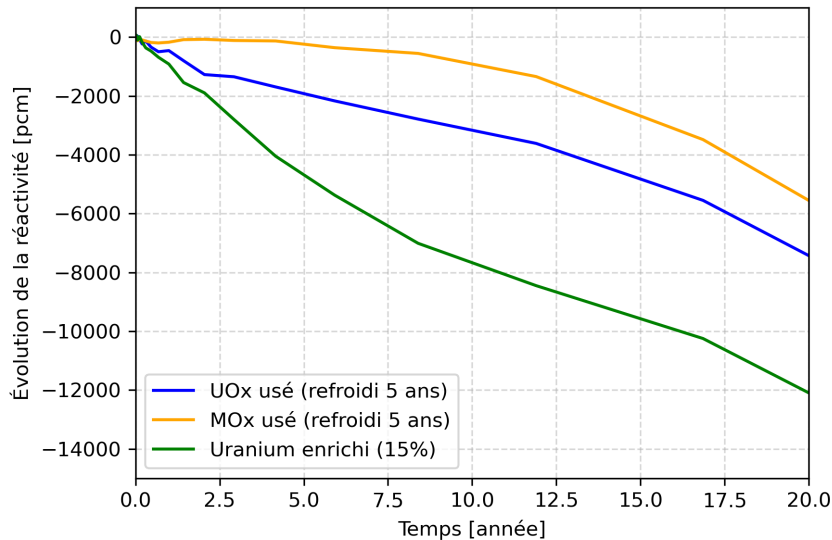


FIGURE 5.1 – Evolution de la réactivité pour une simulation sans contrôle

Comme attendu la réactivité décroît après un certain temps, puisque la teneur en noyaux fissiles s'épuise progressivement. On observe cependant des différences significatives suivant la source de matière fissile. Plus cette dernière est riche en matière fertile (essentiellement en ^{240}Pu et ^{242}Pu), moins la perte en réactivité est forte, en particulier sur des temps courts : la perte est compensée par la régénération. Dit autrement, plus le facteur de régénération est initialement élevé, plus la perte de réactivité est tenue dans les premières années. Un deuxième facteur qui limite la perte de la réactivité est le rôle de la couverture fertile : puisqu'elle n'est pas traitée ici, la teneur en matière fissile augmente au cours des premières années, comme illustré par la figure 5.2.

On observe que la part en ^{239}Pu dans le vecteur Pu du sel fertile évolue à peu près indépendamment du type de combustible initial. C'est un bon point dans l'objectif d'avoir une évolution de la couverture fertile indépendante du type de combustible, uniquement dépendante de la puissance. La part de ^{239}Pu passe par un maximum de 80% vers 6 ans d'évolution avant de décroître lentement. Cette décroissance est corrélée avec une accélération de la perte en réactivité (rupture de pente), visible en particulier dans le cas de la source de fissile "MOX usé".

En ce qui concerne les produits de fission, la figure 5.3 montre la composition du combustible (source fissile : "UOX usé") au bout de 10 ans.

On retrouve une distribution des produits de fission en deux zones majoritaires caractéristiques de l'asymétrie de la fission : les PF "légers" entre $Z=40$ et $Z=46$, et les PF "lourds" entre $Z=54$ et $Z=60$. A partir de ces résultats, on peut intuitivement penser que le schéma de traitement devra proposer une solution pour l'extraction d'espèces sous forme gazeuse, métallique et saline à cause des productions élevées d'éléments sous ces trois formes (e.g. : xénon ; molybdène ; néodyme).

5.2 Stratégie de traitement

La forme liquide du combustible permet un traitement du sel et une alimentation en matières tout en laissant le réacteur fonctionner. Ceci présente un avantage majeur sur deux aspects : le terme source qui est réduit en coeur avec l'extraction d'une partie des produits de fission au fur et à mesure de leur production ; le facteur de charge du réacteur qui augmente, puisque l'alimentation évite les étapes de déchargement et de réorganisation des assemblages classiques pour les combustibles solides. Le traitement doit répondre au mieux aux exigences suivantes :

1. extraction des produits de fission gazeux ;

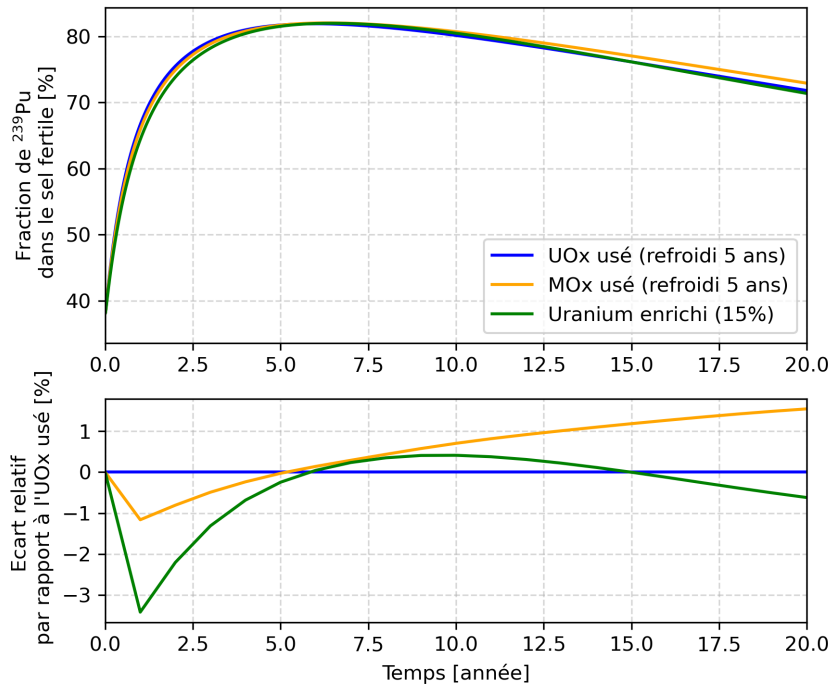


FIGURE 5.2 – Évolution de la part en ^{239}Pu dans le vecteur Pu du sel fertile, pour une évolution sans contrôle

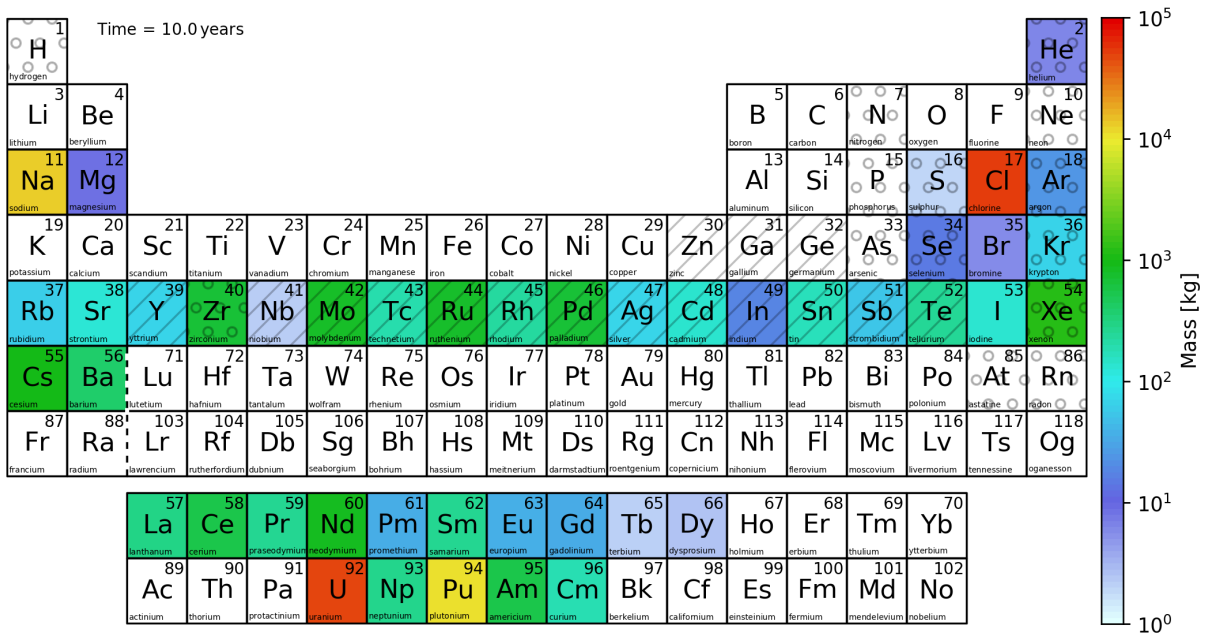


FIGURE 5.3 – Composition du sel combustible (source fissile : “UOX usé”) au bout de 10 ans, évolution sans contrôle (les rayures indiquent un élément métallique et les bulles indiquent un gaz ou un élément volatil pour les sels NaCl-AnCl_3)

2. extraction des éléments sous forme solide insolubles ;
3. extraction des impuretés ;
4. ajustement de la quantité de matière fissile du sel combustible ;
5. ajustement de la quantité de matière fertile dans les deux sels.

L'extraction des produits de fission gazeux, non solubles, a pour objectif d'éviter l'augmentation de la pression dans le système, en cas d'accumulation trop importante dans le vase d'expansion. Les éléments insolubles, pour l'essentiel des produits de fission métalliques, doivent être retirés pour éviter d'une part un endommagement mécanique des pompes et des structures pour les grosses particules, et d'autre part

leur fixation incontrôlée dans les échangeurs de chaleur. Ces derniers, de par leur large surface et leur géométrie (plaques corruguées) sont les plus susceptibles de les retenir. La fixation des PF métalliques dans les échangeurs soulève plusieurs inquiétudes. Premièrement, une accumulation de dépôt serait à même de bloquer une partie des échangeurs, diminuant les capacités d'extraction de la puissance. Deuxièmement, la plupart de ces PF sont radioactifs à durée de vie courte. Leur décroissance directement au contact des plaques engendre des dommages par irradiation supplémentaires, ce qui réduit leur durée de vie. Troisièmement, une fois adsorbés, ils peuvent migrer dans la structure pour former une solution solide. Cela les rend inextractibles par vidange du sel, et contribue à augmenter la température de l'échangeur une fois le sel combustible extrait, possiblement jusqu'à un endommagement irréversible si la vidange est associée à une perte du refroidissement via le circuit intermédiaire.

Les impuretés, sous toutes leurs formes (PF, introduction d'oxygène) modifient les propriétés physico-chimiques du sel. Elles sont susceptibles de faire précipiter certaines espèces (précipitation des actinides par oxydation entre autres) ou d'aggraver les phénomènes de corrosion. Le soufre (principalement produit à partir du ^{36}Cl [8]) et le tellure (PF) sont notamment surveillés pour leur capacité à dégrader les aciers.

Enfin, les actinides extraits du sel combustible doivent y être réinjectés jusqu'à leur disparition par fission, et non pas envoyés aux déchets. Une certaine quantité doit être prélevée ou ajoutée si nécessaire pour maintenir la criticité. Dans le cas de la couverture fertile, ils peuvent ne pas être réinjectés et être stockés pour un usage ultérieur.

Pour concevoir le schéma de traitement des sels, il est important de savoir quels éléments sont produits en quantités notables, et quelle forme ils sont susceptibles de prendre dans le sel combustible (saline, solide, gazeuse). La figure 5.3 donne des premiers éléments de réponse pour les quantités de PF produits. En ce qui concerne le second point, bien qu'il y ait peu de données sur la forme des éléments dans le sel ternaire $\text{NaCl-UCl}_3\text{-PuCl}_3$, on peut, sous réserve de certaines hypothèses sur le potentiel redox (voir section 1.3) et sur la concentration des éléments (corps purs, dilution infinie), attribuer à chaque élément sa forme la plus probable. Il est admis que cette méthode donne des résultats parfois invalidés par l'expérience [105], mais c'est une hypothèse nécessaire ici. La figure 5.4 montre le tableau de Mendeleïev avec, pour chaque élément, sa forme associée en sels chlorures (valence). Par exemple, l'uranium de valence +3 sera préférentiellement associé avec 3 chlorures de valence -1 pour former l'espèce électriquement neutre UCl_3 .

1	2																	10															
H	He																	Ne															
3	4	5	6	7	8	9																	18										
Li	Be	B	C	N	O	F	Ne																	Ar									
11	12	13	14	15	16	17	18	19	20	21	22	23	24	25	26	27	28	29	30	31	32	33	34	35	36								
Na	Mg	Al	Si	P	S	Cl	Ar	K	Ca	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	Ge	As	Se	Br	Kr								
37	38	39	40	41	42	43	44	45	46	47	48	49	50	51	52	53	54	55	56	57	58	59	60	61	62	63	64	65	66	67	68	69	70
Rb	Sr	Y	Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag	Cd	In	Sn	Sb	Te	I	Xe	Cs	Ba	La	Ce	Pr	Nd	Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb
87	88	89	90	91	92	93	94	95	96	97	98	99	100	101	102	103	104	105	106	107	108	109	110	111	112	113	114	115	116	117	118		
Fr	Ra	Ac	Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	Md	No	Lr	Rf	Db	Sg	Bh	Hs	Mt	Ds	Rg	Cn	Nh	Fl	Mc	Lv	Ts	Og		

FIGURE 5.4 – Forme identifiée des éléments dans le sel ternaire $\text{NaCl-UCl}_3\text{-PuCl}_3$ (la couleur indique la valence)

Une fois les éléments à extraire connus, on peut définir des étapes de traitement adaptés en fonction de leurs caractéristiques. On les regroupe ici en quatre catégories :

- les gaz, et PF volatils ;
- les produits de fission insolubles, principalement les PF métalliques légers ;
- les actinides ;
- les PF sous forme saline, principalement les lanthanides.

Les gaz et PF volatils s'accumulent spontanément dans le vase d'expansion, ils sont donc relativement simples à extraire mécaniquement, par balayage. Les PF volatils peuvent être condensés dans des pièges froids puis traités plus spécifiquement (possible récupération du chlore enrichi), les gaz sont en partie filtrés, le reste est réinjecté.

Les produits de fission insolubles sont les plus complexes à gérer. Comme évoqué à plusieurs reprises, ils sont très susceptibles de se déposer dans les échangeurs, et cela est d'autant plus probable si ces derniers sont métalliques. Une façon de réduire cette tendance est de concevoir des échangeurs non métalliques, en céramique. En particulier, le SiC semble être un candidat intéressant, déjà à l'étude pour les concepts de réacteurs à haute température à particules TRISO [106]. En admettant que les particules métalliques ne soient pas captées par les échangeurs, la stratégie d'extraction consiste à placer des pièges métalliques sous forme de grille dans le vase d'expansion, pièges qui devront être changés régulièrement.

Les actinides et les PF sous forme saline peuvent être extraits successivement par électrolyse en compartiments séparés en présence d'un métal liquide, le bismuth par exemple, avec collecte du chlore enrichi. La nappe métallique est amenée vers un sel propre, dans lequel les éléments sont récupérés. Les actinides sont réinjectés directement après chloration. Les PF sont précipités sous forme d'oxydes, et extraits du système. Ils pourront être traités davantage dans des usines dédiées, comme la Hague.

Pour finir, les alcalins et alcalino-terreux sont considérés comme très durs à extraire, de par leurs caractéristiques chimiques proches du sodium qui constitue la moitié du solvant. Ils feront l'objet d'une surveillance particulière dans les études suivantes, et pourraient nécessiter un traitement périodique poussé de tout le sel combustible, envisageable dans le cadre d'une visite décennale par exemple. La figure 5.5 présente le schéma de principe du traitement réalisé sur la base de ces considérations, fruit d'un travail en collaboration avec Michel Allibert (CNRS), Sylvie Delpech (CNRS), Jérôme Serp (CEA) et Gérard Senentz (Orano).

Ce schéma est la version la plus aboutie de ces travaux, mais n'est pas définitif. Certains procédés seront vraisemblablement remplacés par d'autres actuellement à l'étude ou prévus dans le cadre de projets naissants [57, 58].

5.3 Couverture fertile et résistance à la prolifération

Comme évoqué dans la section 1.4.2, le traitement du sel constitue un point sensible pour la prolifération, en particulier celui de la couverture qui est amenée à produire du ^{239}Pu sans le consommer.

La stratégie de résistance à la prolifération proposée dans le cadre de cette thèse est d'ajouter dans le sel fertile une petite quantité de TRU issus des combustibles MOX usés, contenant à la fois un vecteur Pu dégradé (38% de ^{239}Pu dans le vecteur Pu) et des éléments difficiles à manipuler car radioactifs à vie courte, le curium notamment (voir tableau 4.2 pour la composition). En ajustant le débit de traitement et la fraction de $(\text{TRU})\text{Cl}_3$ dans le sel, on peut choisir la part de ^{239}Pu dans le vecteur Pu, qui sera d'autant plus élevée que le temps de traitement sera long et la fraction de $(\text{TRU})\text{Cl}_3$ faible. Pour ne pas sortir du cadre législatif existant, on vise un vecteur Pu dont la part de ^{239}Pu n'excède pas 60%, ce qui s'apparente à un combustible UOX usé à faible taux d'irradiation (≈ 30 GWj/t) [107]. La figure 5.6 donne le résultat d'une étude systématique réalisée avec le code REM sur la configuration suivante :

- démarrage avec comme matière fissile les TRU issus des combustibles UOX usé ;
- sel combustible traité à hauteur de 100L/j ;
- extraction des gaz en 30s ;
- extraction des particules métalliques en 3600s (voir section 5.4.2.1) ;
- réactivité fixée (alimentation du combustible en matière fissile de même vecteur que la charge initiale) ;
- fraction de noyaux lourds fixée dans les sels combustible et fertile (alimentation en ^{239}Pu) ;
- fraction de $(\text{TRU})\text{Cl}_3$ fixée dans le sel fertile à 0.5mol%.

Plus le débit de traitement est faible, plus la part de ^{239}Pu dans le vecteur augmente au détriment des autres isotopes. La masse de Pu reste stable aux environs de 500kg.

Dans ces conditions :

- le débit de traitement de 50L/j conduit à la formation de plutonium clairement proliférant et est inacceptable ;
- le débit de traitement de 100L/j voit sa part de ^{239}Pu excéder 60% et est donc rejeté ;
- le débit de traitement de 150L/j répond à l'exigence, bien qu'il pourrait faire l'objet d'inquiétudes (moins de 30% de ^{240}Pu et peu de ^{238}Pu) ;
- le débit de traitement de 300L/j voit sa part de ^{239}Pu plafonnée à 50%, contient presque 40% de matière non fissile et 3.5% de ^{238}Pu : à ce titre il n'est pas facilement utilisable à des fins militaires, mais engendre une forte contrainte sur l'unité de traitement (à comparer aux 40L/j prévus pour le MSFR de référence, voir [45]).

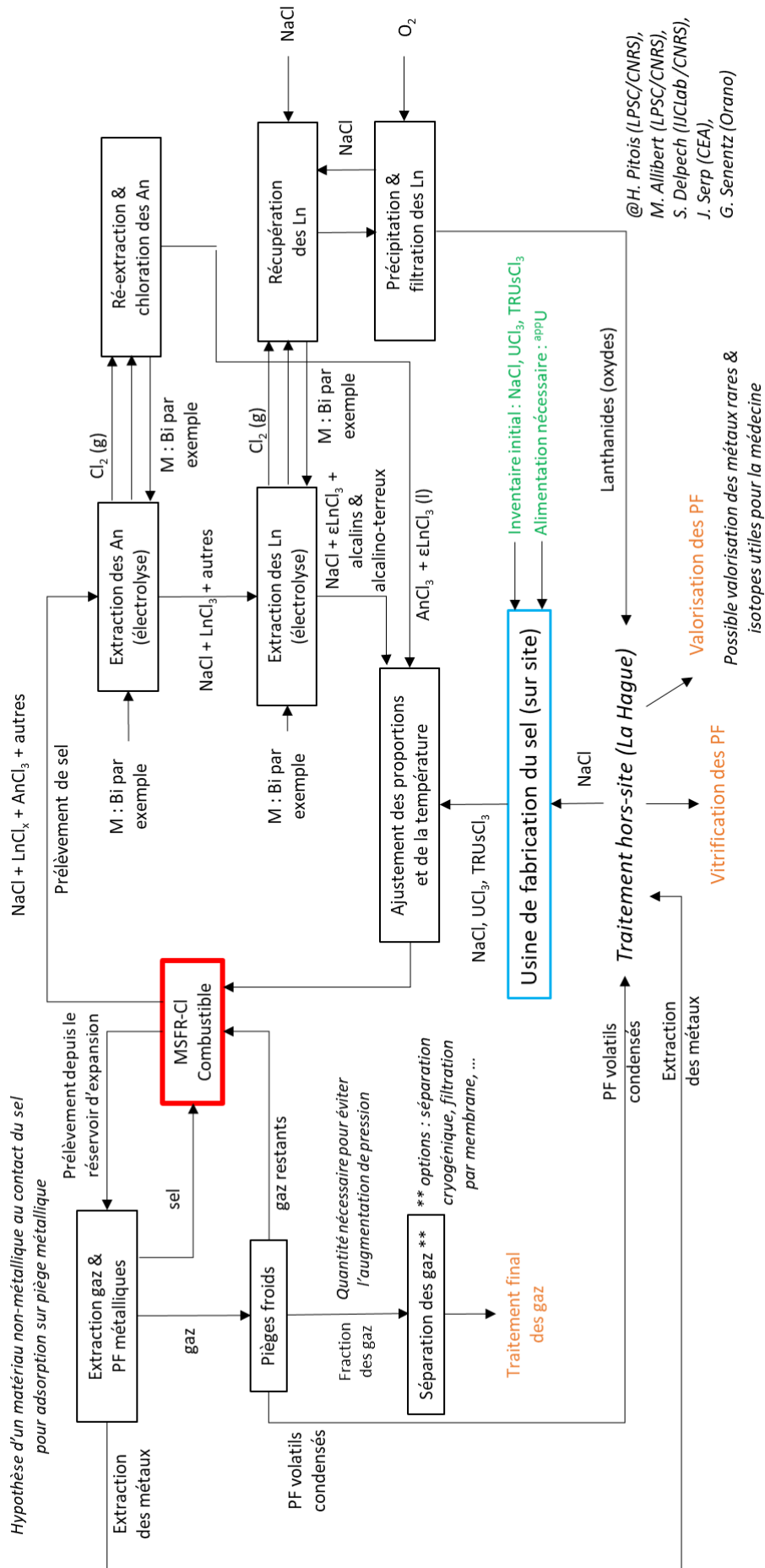


FIGURE 5.5 – Schéma de principe du traitement des sels chlorures NaCl-AnCl₃

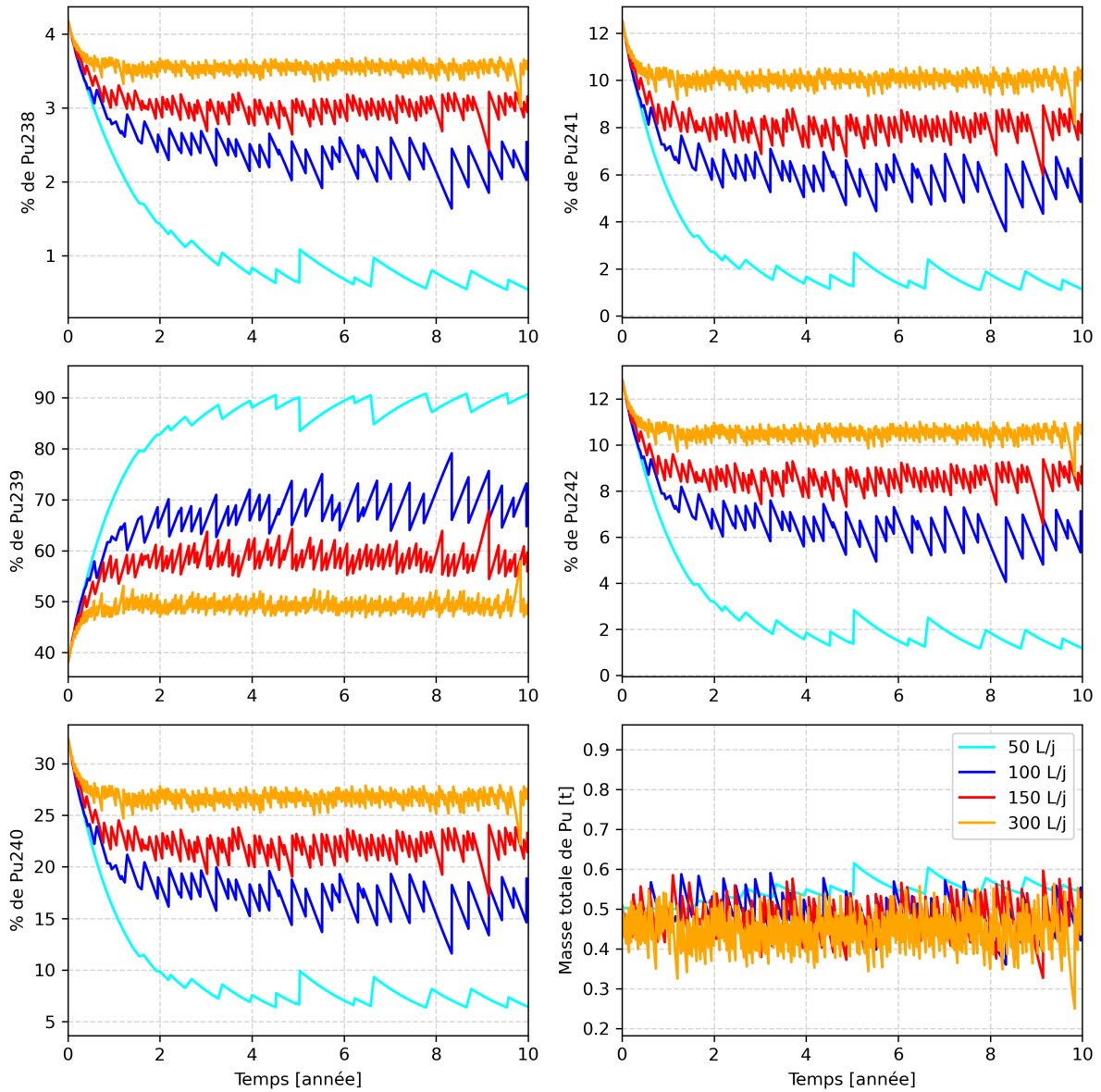


FIGURE 5.6 – Évolution du vecteur Pu du sel fertile en fonction du débit de traitement pour une fraction de 0.5mol% de $(\text{TRU})\text{Cl}_3$ (TRU issus des combustibles MOX usés refroidis 5 ans)

Outre la question de la résistance à la prolifération, le couple (fraction de $(\text{TRU})\text{Cl}_3$, débit de traitement) à choisir est un compromis entre la puissance générée dans la couverture fertile et la contrainte sur l'unité de traitement. Il est possible de multiplier la fraction molaire de $(\text{TRU})\text{Cl}_3$ par un coefficient c et le débit de traitement par le coefficient $\frac{1}{c}$ pour obtenir une part de ^{239}Pu identique. Par exemple, le couple (1mol% de $(\text{TRU})\text{Cl}_3$, 75L/j) est possible pour réduire la contrainte sur l'unité de traitement, mais conduit à une chaleur générée dans la couverture dépassant 5% du total. Le choix d'une fraction de 0.5mol% de $(\text{TRU})\text{Cl}_3$ pour un traitement de 150L/j permet une puissance dans la couverture de 3.3% du total et une contrainte acceptable sur l'unité de traitement, et sera retenu pour le reste des études.

5.4 Traitement du combustible

5.4.1 Effets des différents contrôles

Dans les simulations avec le code REM, le combustible du MSFR-Cl est soumis à trois extractions et deux alimentations dans la configuration par défaut :

- extraction des PF gazeux et insolubles ;
- extraction des PF insolubles ;
- extraction des PF solubles, les actinides ayant vocation à être réinjectés ne sont pas extraits (c'est un cas idéal pour le calcul, en réalité il y aurait une latence entre l'extraction et la réinjection qui pourrait impacter le calcul dans certains cas, voir [8] p221) ;
- alimentation en matière fissile (par défaut le même vecteur que pour le chargement initial, bien que ça ne soit pas obligatoire) pour maintenir la criticité à la température d'étude (900K) ;
- alimentation en uranium appauvri pour maintenir la fraction de noyaux lourds constante.

Plus récemment, le contrôle de l'électroneutralité du sel a été implémenté dans le code REM. A l'aide des hypothèses prises sur les formes principales des espèces en solution fournies dans le tableau 5.4, il est possible de maintenir l'électroneutralité du sel par extraction et alimentation de chlore (plus généralement de l'halogène principal) dans les sels. Par la suite, l'appellation "contrôle de la valence" correspond, en chimie, au contrôle de l'électroneutralité.

Pour observer l'impact des contrôles sur le combustible, les évolutions suivantes avec ajouts progressifs de ces contrôles pour le sel combustible sont étudiées :

1. extractions des produits de fission gazeux (ou volatils) notés G et insolubles notés I ; maintien de la fraction de noyaux lourds, noté %NL ;
2. extractions G + I ; maintien % NL et de la valence ;
3. extractions G + I + PF solubles notés S ; maintien % NL + valence ;
4. extractions G + I + S ; maintien % NL + valence + k.

Les produits de fission gazeux/volatils et les insolubles sont directement extraits, pour les premiers car ils s'extraient d'eux-mêmes du sel. Les produits de fission insolubles sont extraits pour une raison liée au code REM et à la chimie : les laisser dans le sel entraîne un biais sur le calcul de la densité du sel. Sous forme saline, les éléments possèdent un certain rayon ionique représentant la distance entre deux ions, en admettant que la distance anion-cation dans un cristal ionique soit proportionnel à la somme des rayons ioniques. Cette grandeur est utilisée pour l'interpolation de la densité totale du sel en fonction de sa composition (voir méthode dans la section 3.3.1). Mais elle n'a plus de sens pour les éléments sous forme métallique solide, où les atomes sont liés entre eux par liaison métallique et non ionique. Le code REM ne prend pas encore en compte cette différence, aussi on préfère extraire les éléments insolubles. L'extraction des PF insolubles est réalisée avec un temps caractéristique arbitraire de 3600s (voir section 5.4.2.1). Ce temps est de 30s pour le MSFR de référence comme pour les produits gazeux, car l'injection d'hélium permet une extraction rapide des éléments métalliques [17].

La couverture fertile n'étant pas l'objet principal de l'étude ici, on lui applique toujours le même traitement : extraction des gaz en 30s, extraction des particules métalliques en 3600s, contrôle de la fraction de TRU et de la fraction de noyaux lourds. Les évolutions avec peu de contrôles ayant tendance à voir la réactivité évoluer rapidement, on effectue la comparaison des systèmes au bout de 10 ans au lieu de quelques décennies. La puissance totale est fixée à 3GW_{th} , indépendamment de la réactivité. Les observables choisies pour analyser chaque contrôle sont résumées dans le tableau 5.1. Pour faciliter la lecture des résultats, le choix est fait de partir des observables pour l'analyse.

TABLE 5.1 – Contrôles et observables associées

Contrôle	Observable(s)
Fraction de noyaux lourds constante	Masse de noyaux lourds et masse totale
Extraction des gaz	Masse de PF en sel
Extraction des insolubles	Masse de PF en sel
Valence constante	Nombre de moles de chlore et de noyaux lourds en sel
Extraction des solubles	Masse de PF en sel
Réactivité constante	Facteur de multiplication

5.4.1.1 Impact des contrôles sur les masses

La figure 5.7 représente l'évolution de la masse totale de sel, celle des noyaux lourds (NL), et celle des produits de fission en fonction des différents contrôles. Pour les deux premières simulations (en cyan et bleu) sans extraction des PF solubles, ces derniers s'accumulent dans le sel jusqu'à représenter environ 3000kg au bout de 10 ans. Le maintien de la valence n'a pas d'impact sur ce paramètre, donc les courbes sont superposées. Puisque la fraction de noyaux lourds est maintenue constante ($UCl_3 + (TRU)Cl_3 = 34\text{mol}\%$), l'augmentation de la masse de PF se traduit par une augmentation de la masse de noyaux lourds (passage de 76t à 78t), et in fine de la masse totale. L'implémentation du contrôle de la valence implique un ajout de chlore pour équilibrer l'ajout de noyaux lourds, donc la masse totale augmente davantage pour la seconde simulation. Les perturbations locales observées à 4.5 ans et 9.5 ans sur la deuxième simulation peuvent provenir d'un paramètre d'alimentation du chlore qui pourrait être mieux ajusté, il s'agit d'un problème lié au schéma de calcul sans conséquence sur le long terme sur la forme de l'évolution (bilans matières).

Pour les simulations avec extraction des solubles (en orange et rouge), les seuls PF restants en sel sont les alcalins et alcalino-terreux considérés non-extractibles (hors traitement poussé du solvant, non étudié ici). Ils s'accumulent à hauteur de 550kg en 10 ans. Avec environ 5 fois moins de produits de fission en sel, l'ajout de noyaux lourds pour en maintenir la proportion molaire en sel est moindre, d'où des masses de noyaux lourds et totale stables sur 10 ans (légères augmentations respectivement de $\simeq 300\text{kg}$ (+0.4% de noyaux lourds) et $\simeq 1\text{t}$ (+0.7% total)). Le maintien de la réactivité conduit à un flux de matières très faible (dizaines de kilos par an) devant la masse totale de TRU (13.5t) aussi l'impact sur la masse de noyaux lourds est invisible, les courbes rouge et orange sont superposées.

5.4.1.2 Impact des contrôles sur la quantité de chlore

Préambule : dans le code REM, la valence est contrôlée par une extraction continue et une alimentation de chlore. L'extraction crée un déficit volontaire de charges négatives, compensé par une alimentation. Cette extraction au préalable permet de parer à une situation où le système serait en excès de chlore sans possibilité de rétablir activement la valence, sans nécessiter une autre alimentation en métal dédiée au contrôle du même paramètre.

La figure 5.8 présente l'évolution du nombre de moles de chlore, confrontée à l'évolution du nombre de moles d'actinides. Pour des raisons de lisibilité, la dernière simulation avec contrôle de la réactivité n'est pas représentée, elle est identique à la troisième simulation (extractions : G+I+S ; maintien : %NL + valence). Dans le premier cas où la valence n'est pas contrôlée, la quantité de chlore n'est affectée par aucune extraction dans la simulation et donc le nombre de moles de chlore (trait plein en cyan) ne varie pas. En revanche la quantité de noyaux lourds augmente pour s'ajuster à l'accumulation de PF (voir section 5.4.1.1), on observe donc que la quantité ($Na + 3An$) (traits-tillés) augmente, et donc le ratio $(Na + 3An)/Cl$ (graphique du bas) est supérieur à 1 et augmente également.

Dans la simulation (extractions : G+I ; maintien : %NL + valence) (courbes bleu foncé), le contrôle de la valence provoque l'ajout de chlore pour neutraliser les charges positives des PF solubles qui restent en sel et des noyaux lourds apportés. Du fait de la présence des PF solubles en sel, pour la plupart des lanthanides trivalents, la quantité de chlore apportée augmente plus rapidement que la quantité ($Na+3An$), le ratio $(Na + 3An)/Cl$ est strictement inférieur à 1 et diminue.

Dans la troisième simulation avec extraction des PF solubles, la quantité de PF restants (les alcalins et alcalino-terreux hors sodium) est très faible devant la quantité d'actinides, aussi les quantités de ($Na+3An$) et de chlore sont très corrélées et le ratio reste très proche de 1.

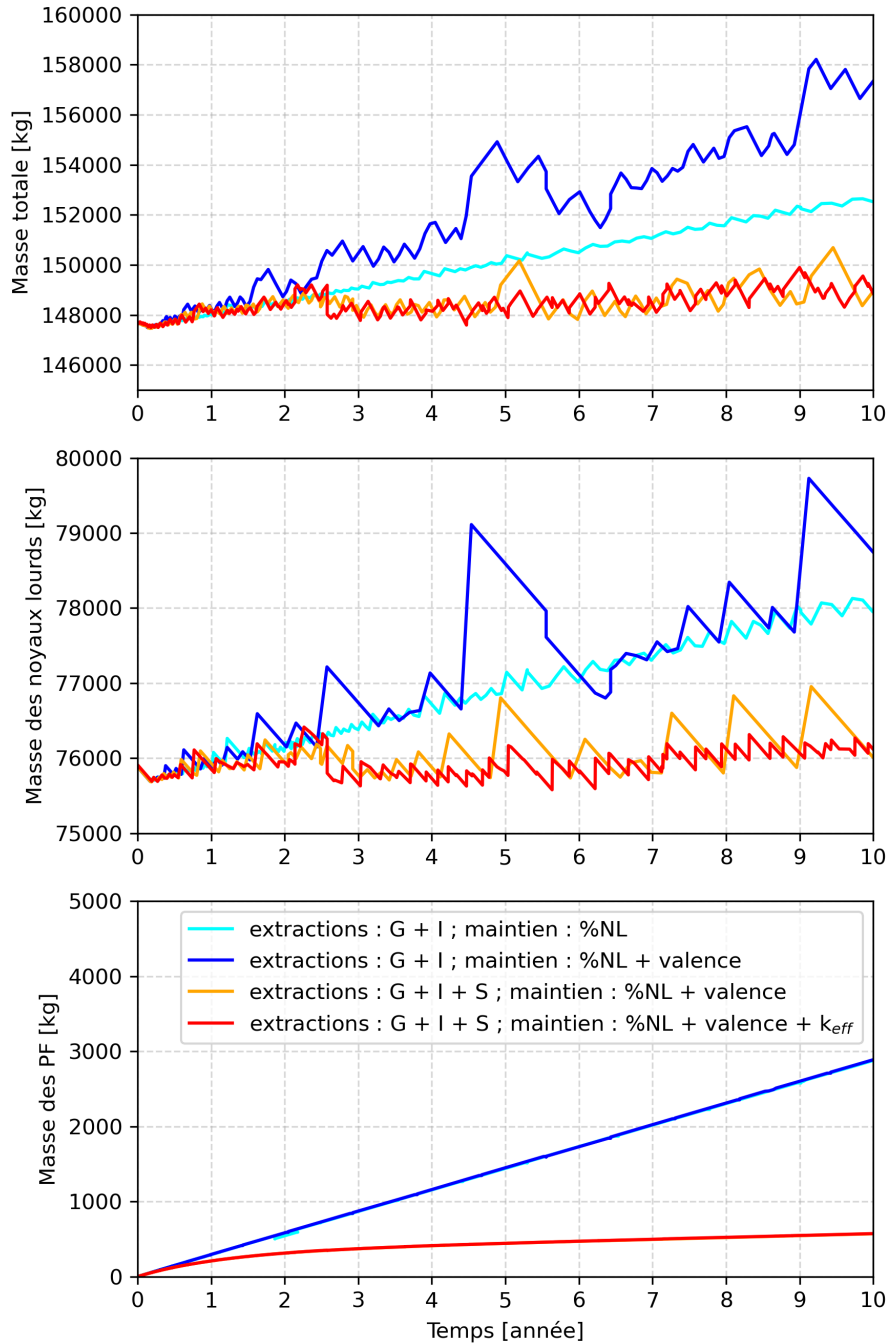


FIGURE 5.7 – Évolution des masses totale, de noyaux lourds et de PF suivant les différents contrôles implémentés, pour le MSFR-C1

5.4.1.3 Impact des contrôles sur le facteur de multiplication

Préambule : dans le code REM, la réactivité est contrôlée par l'alimentation en une matière contenant des isotopes fissiles pour compenser leurs disparitions par réactions absorbantes. Cette matière peut être partiellement constituée d'isotopes non fissiles, et ne peut pas être modifiée une fois la simulation lancée (ce qui peut limiter ensuite l'étude de scénarios de déploiement, voir section 7.2). Dans le cas présenté ici avec contrôle de la réactivité, le choix est fait d'alimenter avec la même matière fissile que celle utilisée pour le démarrage du réacteur, mais ce n'est pas obligatoire.

La figure 5.9 montre l'évolution du k en fonction des différents contrôles. Pour la première simulation (en cyan), le maintien de la puissance de 3GW pendant 10 ans provoque une diminution du k d'environ 2500 pcm. Cette perte est très faible si on la compare à celle d'un REP, de l'ordre de 30000 pcm en 3 ans. Cette perte minimale est due au spectre rapide qui, via l'importante quantité de matière fertile (principalement les 62t d' ^{238}U),

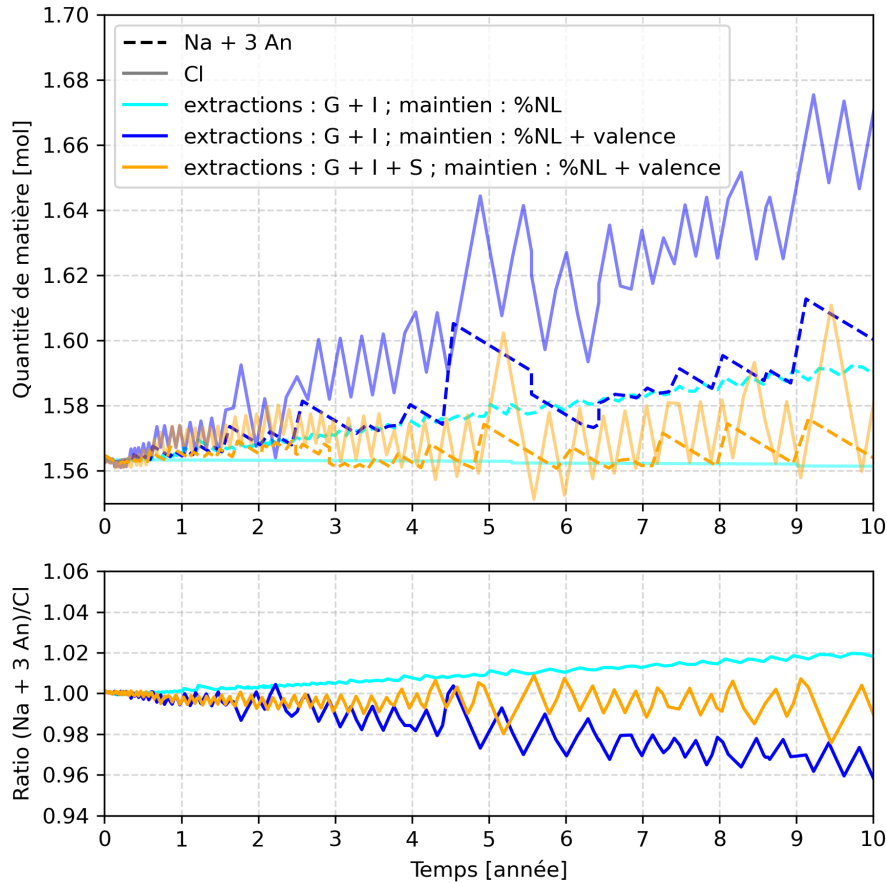


FIGURE 5.8 – Évolution des nombres de moles de chlore et d’actinides (An) suivant les différents contrôles mis en place, pour le MSFR-CI

permet une bonne régénération. La fraction de noyaux lourds étant maintenue par apport d’uranium appauvri, la perte de réactivité sur les premières années constitue l’essentiel de la perte totale sur plusieurs décennies : sur plus de 150 ans de simulation dans ces conditions, le k ne diminue pas de plus de 3500 pcm.

L’ajout du contrôle de la valence (courbe bleue) fait décroître davantage le k (perte de 4000 pcm en 10 ans). A cause de l’apport en chlore, la concentration d’actinides diminue : puisque le volume du coeur est fixé, une fraction de la quantité totale d’actinides du coeur est déplacée dans le vase d’expansion hors flux et ne contribue donc plus à la réaction en chaîne. Avec l’extraction des PF solubles (courbe orange), l’ajout de chlore est moindre et une quantité plus importante de poisons neutroniques est extraite : la diminution du k est équivalente à la première simulation sur les premières années. On observe un point d’inflexion à partir de 6.5 ans environ avec une remontée du k , mais il ne s’agit pas d’un phénomène physique, cela est dû au schéma de calcul : une observation de ce k sur plusieurs décennies montre une valeur moyenne de 0.985, contre 0.975 pour la première simulation (le hasard du calcul fait que ces valeurs coïncident exactement avec les valeurs du k à 10 ans).

Pour finir, la simulation avec contrôle de la réactivité (courbe rouge) montre que le k reste compris dans l’intervalle [0.99 ; 1.01] (même sur plusieurs décennies), ce qui indique une alimentation en matière fissile satisfaisante.

5.4.1.4 Impact des contrôles sur le vecteur Pu

La figure 5.10 représente l’évolution du vecteur Pu avec la mise en place des contrôles, la masse totale est affichée en bas à droite et les parts des différents isotopes sont montrées sur les 5 autres graphiques. Toutes les évolutions montrent un comportement général semblable, avec une augmentation de la part des trois isotopes les plus légers (238, 239, 240, graphes à gauche) au détriment des deux plus lourds (241, 242, graphes en haut à droite).

Les deux premières simulations affichent un comportement identique de leur vecteur Pu au cours de ces 10 premières années, avec l’exemple de la part de ^{239}Pu passant de 52 à 58% et une masse totale variant de 12.1t à 12.35t.

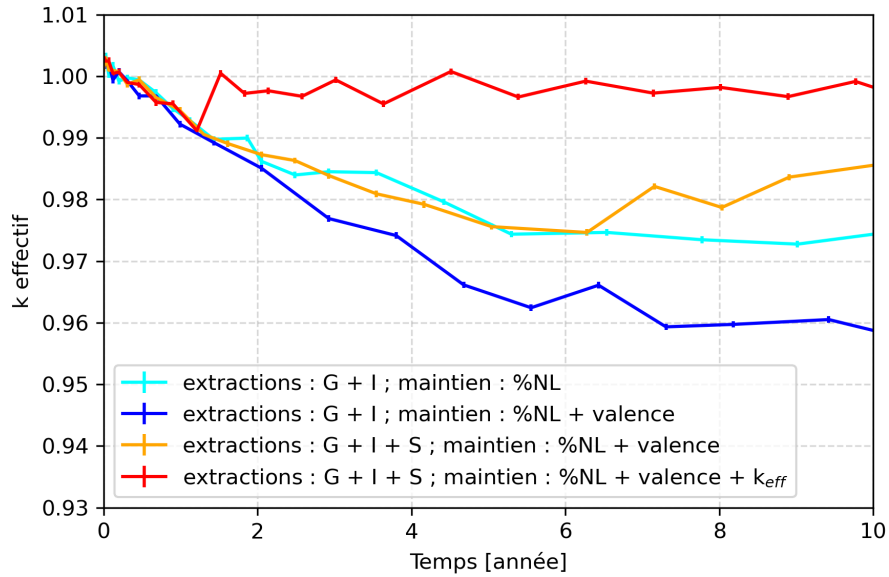


FIGURE 5.9 – Évolution du facteur de multiplication suivant les différents contrôles mis en place, pour le MSFR-CI

L'extraction des solubles (en orange) induit une part de ^{239}Pu légèrement plus basse (57.5%) au profit principalement du ^{240}Pu (26.5% à 26.7%), et une augmentation moindre de la masse totale de Pu (12.1t à 12.25t). Il y a moins d'ajout d'uranium appauvri et de chlore dans cette simulation, ce qui peut expliquer une conversion moindre d' ^{238}U en ^{239}Pu .

La simulation avec contrôle de la réactivité induit l'alimentation avec des TRU issus des combustibles UOX usés ici, on constate donc une augmentation de la masse de Pu totale. Puisque la fraction molaire de noyaux lourds est fixée, ceci implique une alimentation moindre d'uranium appauvri. Par conséquence logique, la part de ^{239}Pu est moindre au bout de 10 ans (56.5%) au profit de tous les autres isotopes puisque le vecteur Pu de l'alimentation a une part de 52% de ^{239}Pu correspond à l'instant initial, et que la quantité de ^{238}U disponible pour la conversion est moindre également.

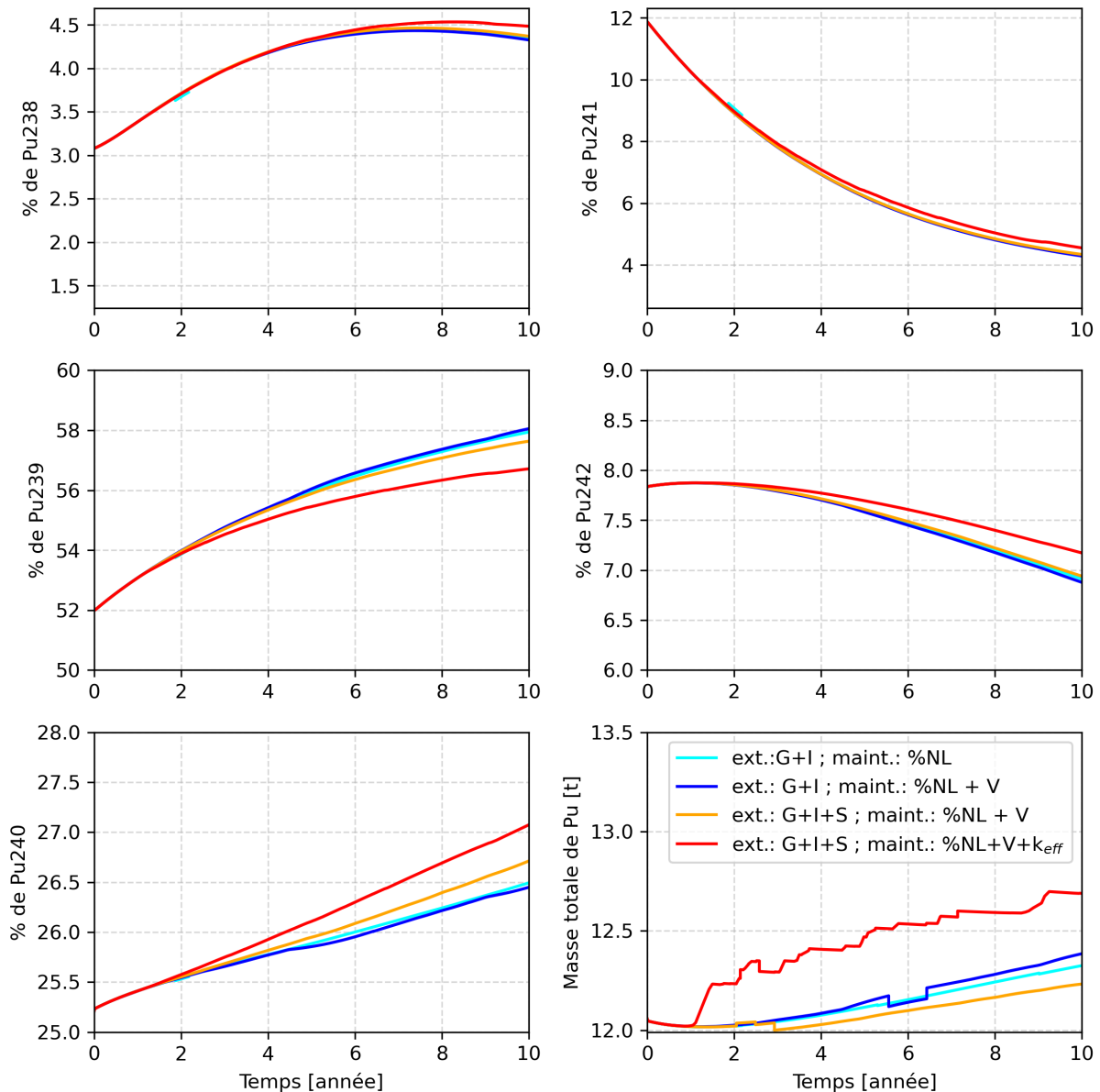


FIGURE 5.10 – Évolution du vecteur Pu suivant les différents contrôles mis en place, pour le MSFR-CI

5.4.2 Choix des débits de traitement pour la configuration de référence

Il s'agit ici de définir les débits de traitement du combustible, dans le but de maintenir une quantité de PF faible dans le sel sans imposer une trop forte contrainte sur l'unité de traitement.

On ne peut pas vraiment choisir le temps d'extraction des produits de fission gazeux du sel. Ils vont spontanément s'accumuler dans le vase d'expansion et doivent être extraits pour éviter une augmentation de pression. Le temps d'extraction de 30s est une hypothèse tirée des observations faites sur le MSRE et appliquée pour le MSFR de référence [17], elle est conservée dans ces études.

5.4.2.1 Sensibilité sur le temps d'extraction des PF insolubles

Le temps d'extraction des insolubles est une hypothèse arbitraire. Pour éviter des erreurs sur le calcul des densités lors de l'utilisation du code REM, ces éléments doivent être extraits. Optimiser le débit d'extraction des insolubles n'a donc pas de sens pour le moment. Par ailleurs, il n'y a pas d'expérience démontrant que les éléments insolubles sont extractibles considérant leur probable adsorption dans les échangeurs de chaleur, d'autant qu'on ne fait pas à ce stade de conception l'hypothèse d'un bullage d'hélium pour ce système. On peut néanmoins observer l'impact du temps d'extraction des insolubles sur la simulation. La figure 5.11 montre l'évolution de la masse totale de PF suivant ce temps d'extraction.

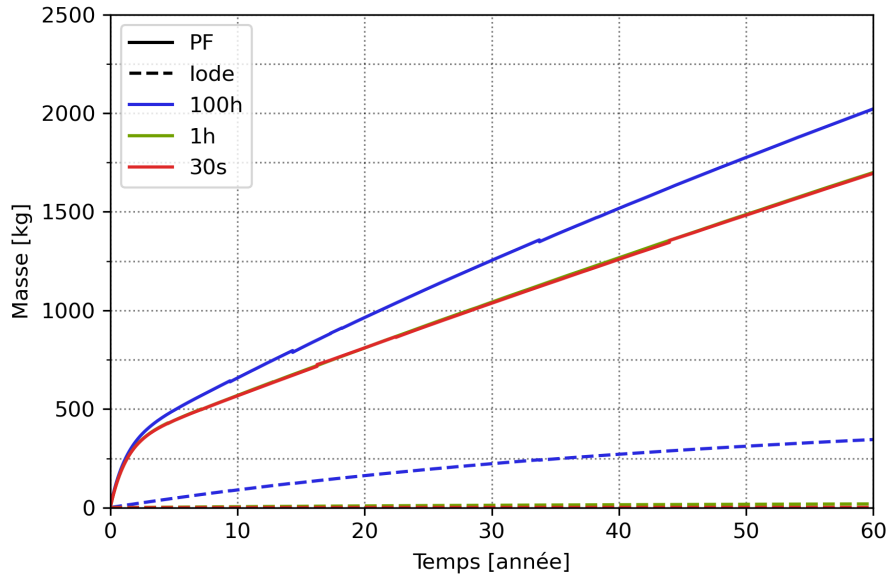
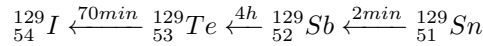


FIGURE 5.11 – Impact du temps d'extraction des PF insolubles sur la quantité totale de PF et d'iode dans le combustible

On constate qu'entre 30s et 1h, il n'y a pas de différence visible sur la quantité totale de PF restant dans le sel combustible. En revanche, lorsque l'on augmente le temps d'extraction à 100h, cette quantité augmente, quasi exclusivement à cause de la quantité d'iode qui s'accumule. L'iode est un halogène comme le chlore, il n'est pas extrait dans la simulation. En étudiant le vecteur iode du sel combustible, il apparaît qu'il s'agit principalement de l' ^{129}I . Puisqu'il n'apparaît pas lorsque les temps d'extraction des insolubles sont courts, il est vraisemblablement produit par décroissance β^- . La chaîne de décroissance β^- pour le nombre de masse 129 est présentée ci-dessous, en commençant par l' ^{129}I et en remontant le nombre de charges.



L'étude de la distribution des produits de fission rapide du ^{239}Pu , présentée figure 5.12, suggère que les éléments antérieurs à l'étain pour ce nombre de masse sont peu produits. On peut en déduire, à la vue des demi-vies, que pour des temps d'extraction inférieurs ou proches d'une heure, l'étain décroît en antimoine et que la majeure partie de l'antimoine est extraite du système. Mais pour des temps longs comme 100h, l'antimoine décroît en tellure, qui lui-même décroît en iode qui s'accumule. On en conclut qu'il faut conserver un temps d'extraction de l'ordre de l'heure pour éviter ceci, ce sera la valeur retenue pour le reste des simulations.

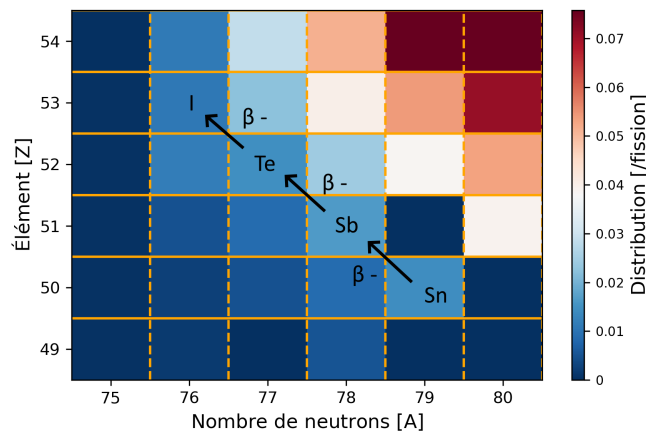


FIGURE 5.12 – Distribution des produits de fission rapide (500 keV) de ^{239}Pu

5.4.2.2 Optimisation du débit d'extraction des PF solubles

On ignore à ce stade les niveaux de solubilité des lanthanides dans le sel $\text{NaCl-UCl}_3\text{-PuCl}_3$, et l'impact des autres produits de fission sur cette solubilité. Le critère d'optimisation choisi est donc la masse restante de PF dans le sel. On réalise une étude systématique en faisant varier le débit de traitement entre 50 et 200L/j. La figure 5.13 présente l'évolution de la masse de PF en sel suivant le débit d'extraction des éléments solubles.

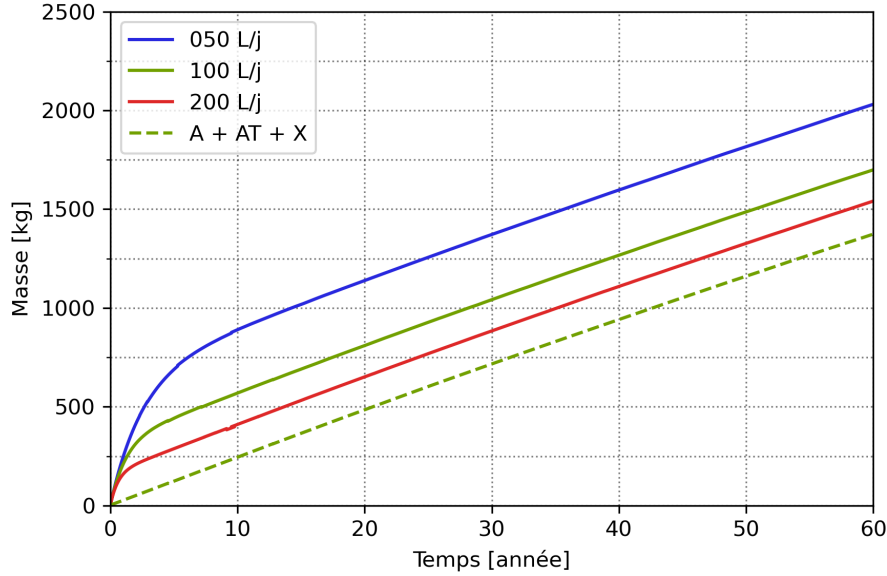


FIGURE 5.13 – Impact du débit d'extraction des PF solubles sur la quantité totale de PF dans le combustible

Plus on augmente le débit de traitement, plus la courbe de la masse totale de PF va converger vers la somme des masses des éléments que l'on n'extrait pas, c'est-à-dire les alcalins (A), les alcalino-terreux (AT) et les halogènes (X) hors composants du solvant (Na et Cl). Par ailleurs, on observe que la contrainte sur l'unité de traitement augmente rapidement pour un gain absolu assez faible : passer de 100L/j à 200L/j double la contrainte et permet seulement un gain de 150kg sur la masse totale de PF dans le sel. Sans information supplémentaire sur les contraintes liées à la chimie du sel, et sachant que l'empoisonnement neutronique lié aux PF solubles est négligeable pour un spectre aussi rapide que celui du MSFR-Cl, le choix du débit de traitement sera fixé à 100L/j pour le reste des études suivantes.

Les paramètres retenus pour la configuration "standard" du MSFR-Cl sont donc les suivants :

- 30s de temps d'extraction pour les éléments gazeux, soit l'hypothèse du MSFR de référence ;
- 1h de temps d'extraction pour les éléments insolubles, soit le temps minimal pour éviter un impact sur la simulation ;
- 100L/j pour le traitement du combustible, pour limiter l'accumulation de PF solubles dans le combustible sans mettre trop de contrainte sur l'unité de traitement.

5.5 Bilans massiques

Dans cette section, les bilans massiques sur les actinides puis sur les produits de fission sont calculés pour le MSFR-Cl en configuration standard puis comparés avec le MSFR de référence démarré aux TRU et ^{enr}U ($e=13\%$) [108], alimenté à l' ^{233}U et avec le traitement détaillé dans cette référence [45].

Les bilans massiques sont calculés simplement avec l'équation (5.1).

$$\text{bilan massique}_A(t) = m_A(t) - m_A(t=0) + \int_0^t \dot{m}_{A\text{extraction}}(t')dt' - \int_0^t \dot{m}_{A\text{alimentation}}(t')dt' \quad (5.1)$$

avec A la zone considérée.

5.5.1 MSFR-Cl en configuration standard

L'alimentation cumulée et l'évolution de la composition du sel combustible sont décrites par la figure 5.14.

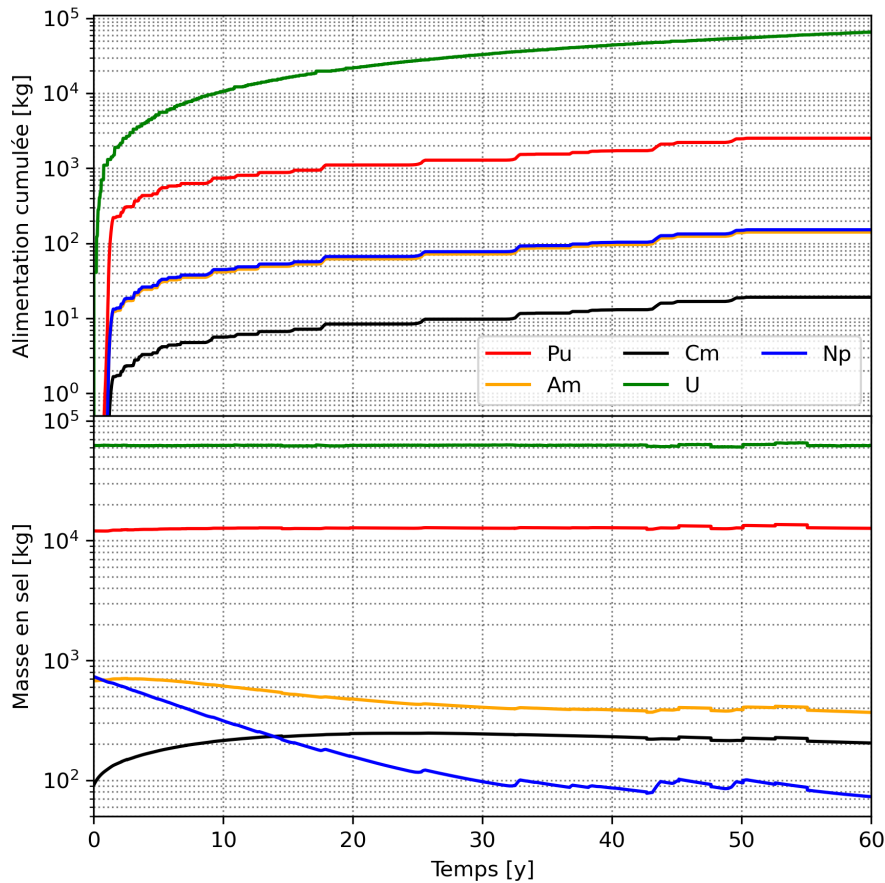


FIGURE 5.14 – Alimentation cumulée et évolution de la composition du sel combustible du MSFR-Cl en configuration standard

Le bilan massique complet (composition initiale, alimentation, composition finale et bilan) pour les actinides du sel combustible (pas d'extraction d'An pour ce sel pour modéliser la réinjection) au bout de 50 ans est présenté dans le tableau 5.2. Par convention, on attribue un signe positif à ce que le réacteur produit, et un signe négatif à ce qu'il consomme.

L'alimentation cumulée, l'évolution de la composition du sel fertile et l'extraction cumulée sont décrites par la figure 5.15.

Le bilan massique complet pour le sel fertile au bout de 50 est présenté dans le tableau 5.3.

On constate que le réacteur consomme massivement l'uranium apporté par l'alimentation, en particulier l' ^{238}U , dans le combustible comme dans la couverture fertile. Ce dernier disparaît en immense majorité par capture servant à former le ^{239}Pu , consommé en partie dans le combustible (combustible conçu pour être légèrement sous-générateur de lui-même) mais largement surrégénéré dans la couverture comme attendu, le réacteur est donc globalement surrégénérateur.

Dans la couverture, le ^{241}Pu disparaît alors que l' ^{241}Am est formé, les deux dans des quantités équivalentes. Le ^{241}Pu est fissile, une partie va disparaître par fission pendant son passage dans le réacteur. Une fois extrait, du fait de sa relative courte demi-vie (14 ans), il se transforme en ^{241}Am par décroissance β^- dans sa zone de stockage. L' ^{241}Am est un poison neutronique alors que le ^{241}Pu est un excellent fissile. A ce titre, il serait intéressant de minimiser le temps de traitement des noyaux lourds sortant de la couverture fertile pour les réutiliser le plus vite possible, et ainsi minimiser la concentration en ^{241}Am .

Le neptunium est éliminé dans le combustible mais apparaît dans la couverture fertile. Dans le combustible, le ^{237}Np (demi-vie $\simeq 2 \cdot 10^6$ ans) va capturer puis décroître en ^{238}Pu qui peut fissionner ou former du ^{239}Pu qui fissionne aussi. Pour la couverture, le ^{237}Np est principalement formé en petites quantités par décroissance α du ^{241}Am de demi-vie de 430 ans.

Du curium, essentiellement du ^{244}Cm , est produit dans le combustible mais disparaît dans la couverture. Il peut être généré par captures successives sur le plutonium et l'américium, et se transforme (demi-vie de 18 ans)

TABLE 5.2 – Bilan massique sur 50 ans pour les actinides du sel combustible

Z	A	I	Composition initiale [kg]	Alimentation sur 50 ans [kg]	Composition finale [kg]	Bilan [kg]
92	234	0	0	0	47.9	47.9
92	235	0	123.1	107.9	26	-205.1
92	236	0	0	0	35.6	35.6
92	237	0	0	0	0.1	0.1
92	238	0	62202.4	54552	60318.2	-56436.2
somme 92			62325.5	54659.9	60427.8	-56557.7
93	237	0	724.9	149.2	87.3	-786.8
93	239	0	0	0	8.5	8.5
somme 93			724.9	149.2	95.8	-778.3
94	238	0	371.4	76.4	245.2	-202.6
94	239	0	6269.8	1290.2	7304.7	-255.3
94	240	0	3039.5	625.5	4061.5	396.5
94	241	0	1430.7	294.4	559.8	-1165.3
94	242	0	944.1	194.3	585.2	-553.1
somme 94			12055.5	2480.8	12756.4	-1779.8
95	241	0	451.0	92.8	229.3	-314.5
95	242	1	1.2	0.3	10.9	9.4
95	243	0	222.6	45.8	148.3	-120.1
somme 95			674.8	138.9	388.5	-425.2
96	242	0	0.0	0.0	10.9	10.9
96	243	0	0.7	0.1	2.0	1.2
96	244	0	82.8	17.0	151.5	51.7
96	245	0	6.9	1.4	30.9	22.5
96	246	0	0.8	0.2	16.9	15.9
96	247	0	0.0	0.0	2.0	2.0
96	248	0	0.0	0.0	0.6	0.6
somme 96			91.2	18.7	214.8	104.8

en ^{240}Pu par décroissance α .

Le temps de doublement (temps requis pour produire suffisamment de matière fissile pour démarrer un deuxième réacteur à partir du premier) associé à ces bilans massiques, vérifié avec un calcul de criticité utilisant la composition du vecteur TRU de sortie de couverture, est de 40 ans.

5.5.2 Comparaison avec le MSFR de référence

Les bilans massiques sur les sels combustible et fertile du MSFR de référence sont fournis dans les tableaux 5.4 et 5.5.

Pour comparer l'utilisation des actinides des deux réacteurs, il peut être intéressant de regarder un taux de consommation, $\tau_{\text{conso},i}$, défini par l'équation (5.2), avec i un isotope ou un élément. Avec cette définition, $\tau_{\text{conso},i} = 1$ signifie une disparition complète de i , $\tau_{\text{conso},i} = -1$ signifie que l'on a produit un élément absent de la composition initiale ou de l'alimentation, $\tau_{\text{conso},i} > 0$ implique une consommation partielle et $\tau_{\text{conso},i} < 0$, une surproduction.

$$\tau_{\text{conso},i} = \frac{\text{inventaire ajouté}_i - \text{inventaire retiré}_i}{\text{inventaire ajouté}_i + \text{inventaire retiré}_i} \quad (5.2)$$

$$\tau_{\text{conso},i} = \frac{\text{masse initiale}_i + \int_0^{t_f} \text{alim}_i(t) dt - \text{masse finale}_i - \int_0^{t_f} \text{extrac}_i(t) dt}{\text{masse initiale}_i + \int_0^{t_f} \text{alim}_i(t) dt + \text{masse finale}_i + \int_0^{t_f} \text{extrac}_i(t) dt}$$

Remarques

- Le taux de consommation étant obtenu à partir de la masse, le taux de consommation d'un élément n'est pas la somme directe des taux de consommation de ses isotopes, mais une somme pondérée par la masse des isotopes.

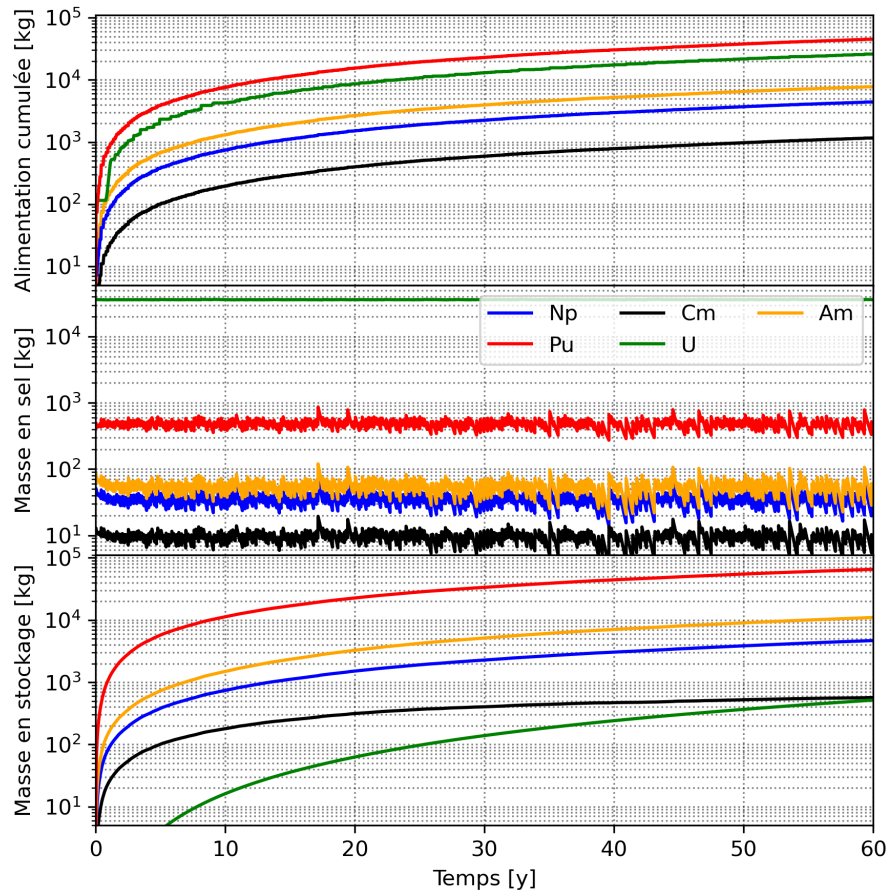


FIGURE 5.15 – Alimentation cumulée, évolution de la composition du sel fertile et extraction cumulée du MSFR-Cl en configuration standard

- Pour rappel, on souhaite que les MSFRs produisent moins d’actinides mineurs qu’ils n’en consomment, et surproduisent leur matière fissile.

Le tableau 5.6 donne le taux de consommation par isotope et élément pour les deux réacteurs. Ils affichent une consommation similaire de leur matière fertile principale, respectivement 0.29 sur l’ ^{238}U et 0.32 sur le ^{232}Th .

Le MSFR de référence démarré avec des TRU et de l’ ^{enr}U est plus performant sur la régénération de sa matière fissile principale, avec un taux de consommation de -0.77 sur l’ ^{233}U contre -0.30 sur le ^{239}Pu . C’est cohérent avec le fait qu’il consomme les autres noyaux fissiles, notamment l’ ^{235}U et le ^{239}Pu . Le MSFR-Cl consomme également l’ ^{235}U .

Le cas du ^{241}Pu est plus particulier. Pour le MSFR-Cl, une partie significative du ^{241}Pu est perdue par conversion en ^{241}Am dans la zone de stockage recevant ce qui est extrait de la couverture fertile. Pour le MSFR de référence, il est absent de la couverture fertile et consommé dans le combustible.

On observe que, du point de vue du réacteur, le MSFR de référence consomme de l’Am mais produit du Cm, à l’inverse du MSFR-Cl. Dans le premier cas, une partie de l’Am est convertie en Cm par captures dans le combustible. Dans le second cas, le MSFR-Cl apparaît consommateur de Cm car une large partie du ^{244}Cm présent dans la couverture décroît (demi vie de 18 ans) par rayonnement α pour former du ^{240}Pu .

5.5.3 Distribution des produits de fission

La figure 5.16 montre le bilan sur la production de PF entre le MSFR-Cl en configuration standard et le MSFR de référence démarré aux TRU et ^{enr}U ($e=13\%$). Il y a une plus grande production d’éléments légers (Z compris entre 30 et 40) pour le MSFR de référence et une plus grande production d’éléments lourds (Z compris entre 61 et 66) pour le MSFR-Cl. Les éléments de Z compris entre 42 et 46 sont légèrement plus produits par

TABLE 5.3 – Bilan massique sur 50 ans pour les actinides du sel fertile

Z	A	I	Composition initiale [kg]	Alimentation sur 50 ans [kg]	Extraction sur 50 ans [kg]	Composition finale [kg]	Bilan [kg]
92	234	0	0	0	308.8	2.6	311.3
92	235	0	71.5	42.8	23.9	8.1	-82.3
92	236	0	0	0	33.9	12.6	46.5
92	237	0	0	0	0	0	0
92	238	0	36148.2	21604.8	0.2	36102	-21650.8
somme 92			36219.7	21647.6	366.8	36125.3	-21375.3
93	237	0	42.4	3699.2	3849.1	32.6	140
93	239	0	0	0	0.1	4	4.1
somme 93			42.4	3699.2	3849.2	36.6	144.1
94	238	0	18.1	1576.1	1474.4	15.4	-104.4
94	239	0	164.9	14366.5	33824.7	296.2	19589.5
94	240	0	140.3	12225.9	13011.5	113.4	758.6
94	241	0	54.2	4724.1	1704.7	41.3	-3032.3
94	242	0	55.5	4837.4	4860	43.9	11
somme 94			433	37730	54875.3	510.2	17222.4
95	241	0	49.3	4296.9	6824.5	38.1	2516.4
95	242	1	0.3	29.6	38.8	0.4	9.3
95	243	0	25	2178.7	2147.5	19.5	-36.7
somme 95			74.6	6505.2	9010.8	58	2489
96	242	0	0	0	1.1	0.7	1.8
96	243	0	0.1	9.9	6.2	0.1	-3.7
96	244	0	9.9	865.1	404.8	8.3	-462
96	245	0	1	89.9	99.4	0.9	9.4
96	246	0	0.1	10	10.8	0.1	0.7
96	247	0	0	0	0.1	0	0.1
96	248	0	0	0	0	0	0
somme 96			11.1	974.9	522.4	10.1	-453.7

le MSFR-Cl, et ceux de Z allant de 47 à 59 sont légèrement plus produits par le MSFR de référence. Cela est dû au fait que le MSFR de référence va fissionner moins de TRU, en particulier le ^{239}Pu au profit de l' ^{233}U surrégénéré sur le ^{232}Th . La distribution des PF montre deux pics du fait de l'asymétrie de la fission, on observe ici un décalage vers les éléments plus lourds pour le MSFR-Cl cohérent avec une matière fissionnée plus lourde (nombre de masse plus élevé) en moyenne.

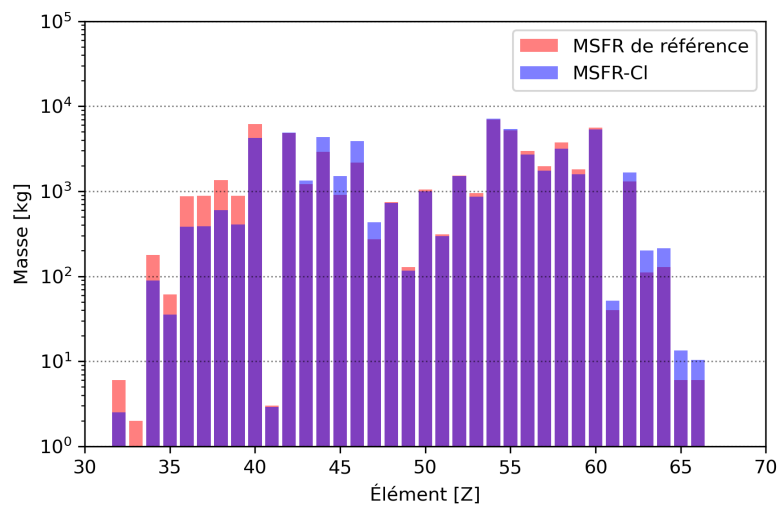
FIGURE 5.16 – Bilan sur les PF - comparaison MSFR-Cl et MSFR de référence (démarrage TRU + ^{enr}U)

TABLE 5.4 – Bilan massique des actinides sur 50 ans sur le sel combustible du MSFR de référence

Z	A	I	Composition initiale [kg]	Alimentation sur 50 ans [kg]	Extraction sur 50 ans [kg]	Composition finale [kg]	bilan [kg]
90	230	0	0	0	0	0.6	0.6
90	232	0	12884.4	55907.2	0	29783.4	-39008.2
somme 90			12884.4	55907.2	0	29784	-39007.6
91	231	0	0	0	0	16.8	16.8
91	233	0	0	0	0	98.8	98.8
somme 91			0	0	0	115.6	115.6
92	232	0	0	0	0	14.9	14.9
92	233	0	0	1245.2	0	4029.5	2784.3
92	234	0	0	0	0	1851.5	1851.5
92	235	0	3150.9	0	0	410.3	-2740.5
92	236	0	0	0	0	394.2	394.2
92	237	0	0	0	0	0.5	0.5
92	238	0	21355.9	0	0	4300.6	-17055.3
somme 92			24506.8	1245.2	0	11001.5	-14750.4
93	237	0	451.3	0	0	97.8	-353.4
93	239	0	0	0	0	1.2	1.2
somme 93			451.3	0	0	99	-352.2
94	238	0	194.2	0	0	191.7	-2.5
94	239	0	3316.6	0	0	953.5	-2363.1
94	240	0	1559.5	0	0	1387.5	-172
94	241	0	779.4	0	0	253.7	-525.7
94	242	0	490	0	0	294.7	-195.4
somme 94			6339.7	0	0	3081.1	-3258.7
95	241	0	247.7	0	0	72	-175.6
95	242	1	0	0	0	4.6	4.6
95	243	0	139.5	0	0	84.4	-55.2
somme 95			387.2	0	0	161	-226.2
96	242	0	0	0	0	5.6	5.6
96	243	0	0.4	0	0	1.5	1.1
96	244	0	59	0	0	117.2	58.2
96	245	0	5.2	0	0	32.6	27.5
96	246	0	0.7	0	0	22.9	22.1
96	247	0	0	0	0	4.2	4.2
96	248	0	0	0	0	2.4	2.4
somme 96			65.3	0	0	186.4	121.1

TABLE 5.5 – Bilan massique des actinides sur 50 ans sur le sel fertile du MSFR de référence

Z	A	I	Composition initiale [kg]	Alimentation sur 50 ans [kg]	Extraction sur 50 ans [kg]	Composition finale [kg]	bilan [kg]
90	232	0	17806.3	5581.9	0	17786.7	-5601.5
somme 90			17806.3	5581.9	0	17786.7	-5601.5
91	231	0	0	0	2.9	0	2.9
91	233	0	0	0	2	9.4	11.4
somme 91			0	0	4.9	9.4	14.3
92	232	0	0	0	0.1	0	0.1
92	233	0	0	0	5293	42.6	5335.6
92	234	0	0	0	48.5	0.5	49
92	235	0	0	0	0.8	0	0.9
somme 92			0	0	5342.4	43.1	5385.6

5.6 Évaluation de la puissance résiduelle

5.6.1 Méthode de calcul

Un facteur important pour l'évaluation de la sûreté du système est la quantification de la puissance résiduelle, lié au terme source. Pour rappel, la puissance résiduelle, ou chaleur résiduelle, est la puissance que le réacteur

TABLE 5.6 – Taux de consommation des actinides sur 50 ans suivant le réacteur

Z	A	I	combustible seul MSFR-C1	réacteur MSFR-C1	combustible seul MSFR de référence	réacteur MSFR de référence
90	230	0			-1.00	-1.00
90	232	0			0.40	0.32
somme 90					0.40	0.32
91	231	0			-1.00	-1.00
91	233	0			-1.00	-1.00
somme 91					-1.00	-1.00
92	232	0			-1.00	-1.00
92	233	0			-0.53	-0.77
92	234	0	-1.00	-1.00	-1.00	-1.00
92	235	0	0.80	0.71	0.77	0.77
92	236	0	-1.00	-1.00	-1.00	-1.00
92	237	0	-1.00	-1.00	-1.00	-1.00
92	238	0	0.32	0.29	0.66	0.66
somme 92			0.32	0.29	0.40	0.22
93	237	0	0.82	0.08	0.64	0.64
93	239	0	-1.00	-1.00	-1.00	-1.00
somme 93			0.80	0.07	0.64	0.64
94	238	0	0.29	0.08	0.01	0.01
94	239	0	0.02	-0.30	0.55	0.55
94	240	0	-0.05	-0.03	0.06	0.06
94	241	0	0.51	0.48	0.51	0.51
94	242	0	0.32	0.05	0.25	0.25
somme 94			0.07	-0.13	0.35	0.35
95	241	0	0.41	-0.18	0.55	0.55
95	242	1	-0.76	-0.23	-1.00	-1.00
95	243	0	0.29	0.03	0.25	0.25
somme 95			0.35	-0.12	0.41	0.41
96	242	0	-1.00	-1.00	-1.00	-1.00
96	243	0	-0.43	0.13	-0.58	-0.58
96	244	0	-0.21	0.27	-0.33	-0.33
96	245	0	-0.58	-0.14	-0.72	-0.72
96	246	0	-0.89	-0.43	-0.94	-0.94
96	247	0	-1.00	-1.00	-1.00	-1.00
96	248	0	-1.00	-1.00	-1.00	-1.00
somme 96			-0.32	0.19	-0.48	-0.48

continue d'émettre après arrêt de la réaction en chaîne principalement à cause des décroissances des éléments radioactifs. Dans le cas d'un REP où l'on ne considère que le combustible d'un cycle (entre 12 et 18 mois), presque tout le terme source est contenu dans le combustible solide, inamovible. Pour les MSFR connectés à leur unité de traitement, le terme source est réparti entre le circuit combustible et les zones de stockage des éléments extraits.

Pour évaluer la puissance résiduelle à un instant t , on effectue la simulation du réacteur avec le code REM au moins jusqu'à cet instant t en ajustant un paramètre : le temps d'élagage de l'arbre de décroissance utilisé pour l'évolution de la composition. Lorsque l'on s'intéresse à la composition du combustible sur des temps de l'ordre de quelques jours, il n'est pas nécessaire de modéliser tous les isotopes de durée de vie courte (par exemple de demi-vie inférieure à une heure) puisque ceux-ci auront disparu. Ceci permet d'accélérer le temps de calcul en considérant que, pour trois éléments A, B, C tels que A décroît en B qui décroît en C, si B décroît rapidement, alors A est converti en C directement. En revanche, pour l'estimation de la puissance résiduelle sur des temps courts, de l'ordre de la seconde, il est essentiel d'avoir la composition la plus complète possible pour avoir un dépôt correct de l'énergie en fonction du temps. Il faut donc réduire ce temps d'élagage de 1h (valeur standard pour les calculs avec le code REM) au temps minimal pour lequel on souhaite avoir une valeur de la puissance résiduelle, à 1s ici. Une fois que l'on possède la composition dans toutes les zones contenant des éléments radioactifs à l'instant voulu, on calcule la puissance dégagée par zone en fonction du

temps avec le module ECI (Evolution d'une Composition Isotopique, module de l'environnement qui contient le code REM) qui résout les équations de Bateman hors flux pour chaque isotope composant les matières observées.

5.6.2 Comparaison des puissances résiduelles entre deux concepts MSFR

Dans cette section, la puissance résiduelle du MSFR-CI est comparée à celle du MSFR de référence démarré aux TRU et ^{enr}U ($e=13\%$) après 5 ans de fonctionnement à puissance nominale.

5.6.2.1 Puissance résiduelle associée au sel combustible

La figure 5.17 présente la puissance résiduelle des sels combustibles. La puissance totale dégagée par les deux sels est très similaire. Il y a quelques différences liées aux hypothèses de traitement ainsi qu'à la distribution de produits de fission (voir figure 5.16). Pour le MSFR de référence, il y a une production plus importante de noyaux légers, notamment le Kr ($Z=36$) et le Rb ($Z=37$) qui dégagent beaucoup de chaleur sur des temps courts (entre 1s et 1h), ce qui explique une puissance plus élevée dans les gaz et insolubles sur cet intervalle de temps. En revanche, il y a davantage de Mo et de Tc dans le sel combustible du MSFR-CI qui émettent beaucoup de chaleur en quelques minutes, ce qui peut expliquer une puissance plus élevée en sel sur cette échelle de temps. Dans l'unité de traitement chimique, on constate que le MSFR de référence émet deux fois plus de puissance (800kW contre 400kW). Cette différence vient principalement de la présence pour le MSFR de référence du zirconium et du barium dans le traitement chimique, alors que ces éléments sont respectivement extrait dans les gaz et laissé dans le sel combustible pour le MSFR-CI.

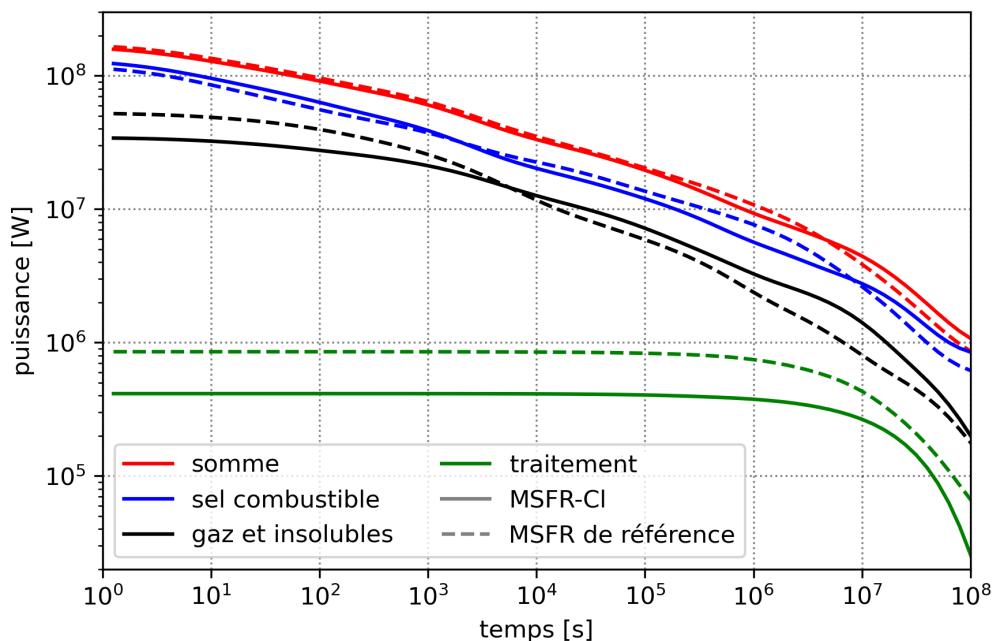


FIGURE 5.17 – Puissance résiduelle des combustibles

5.6.2.2 Puissance résiduelle associée au sel fertile

La figure 5.18 présente la puissance résiduelle des sels fertiles (la courbe du traitement pour le MSFR de référence n'apparaît pas car sa valeur est toujours inférieure à 1kW). On constate un écart très important entre les deux systèmes ici. Cela est dû à la présence dès le début des 0.5% de TRU dans la couverture fertile du MSFR-CI et de la quantité de fission relativement plus importante, à l'origine de plus de produits de fission.

En regardant l'écart des puissances entre le combustible et la couverture pour le MSFR-CI, on constate également que la puissance résiduelle est un peu plus élevée que prévu. On regarde ici uniquement les produits de fission, donc les gaz et insolubles d'une part et le traitement d'autre part. Puisqu'on ajuste la fraction de $(TRU)Cl_3$ pour que le taux de fission en couverture vaille 3.3% du taux de fission du combustible, on devrait avoir une puissance résiduelle à $t=1s$ en couverture qui vaut environ 3.3% de celle du combustible (hors effets

de spectre entre les sels). Or les ratios sont respectivement de 7.3% entre les éléments solubles et de 4% entre les gaz et insolubles à $t=1s$.

Lorsque l'on regarde le ratio des masses fissionnées fourni par le code REM, on constate que celui-ci évolue la première année vers 4% à cause de l'évolution du vecteur Pu de 35% vers 60%. Le ratio de 4% observé sur les gaz et insolubles peut s'expliquer ainsi. Pour les éléments solubles qui ont un temps d'extraction assez long (le traitement total de $23m^3$ à hauteur de $150L/j$ prend $150j$ environ), en fonction du temps de fonctionnement à partir duquel on regarde la puissance résiduelle, la fraction va dépendre du ratio (volume de sel)/(temps de traitement du sel), soit un ratio maximal possible de $\simeq \frac{45m^3}{23m^3} \frac{150L/j}{100L/j} * 4\% \simeq 12\%$. Plus on regarde la puissance résiduelle sur un temps court, plus ce ratio devrait être proche de 12%. Pour vérifier cette hypothèse, la puissance résiduelle a été extraite après 1 mois de fonctionnement. Le ratio des puissances entre combustible et couverture fertile pour le traitement chimique est de 11%, ce qui corrobore l'hypothèse.

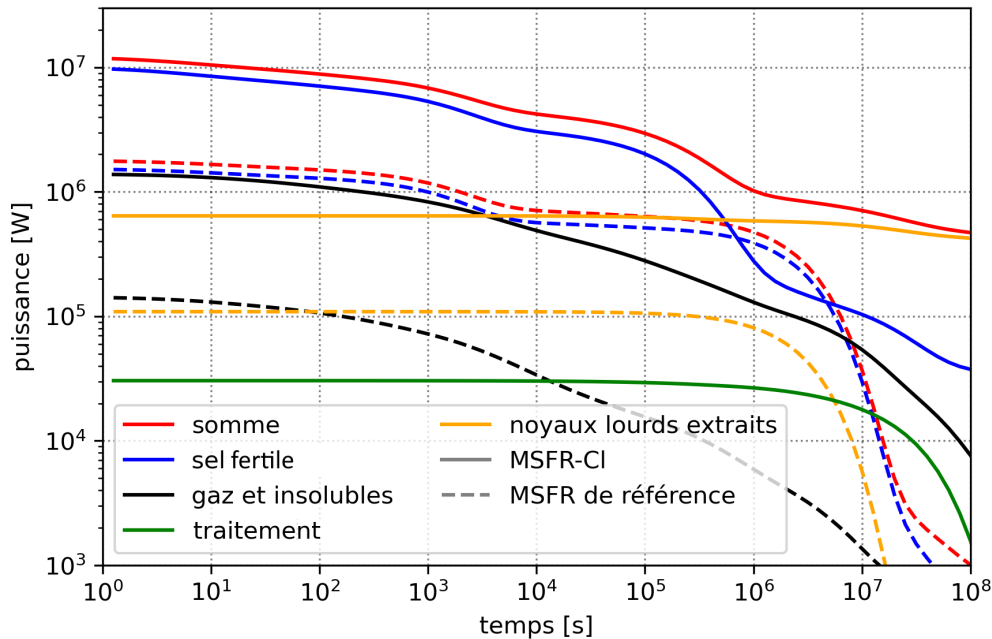


FIGURE 5.18 – Puissance résiduelle des couvertures fertiles

5.7 Études de sensibilité

5.7.1 Etude préliminaire sur l'impact du vase d'expansion sur l'évolution

Note : la simulation avec vase d'expansion a été relancée avec les mêmes paramètres pour obtenir des fluctuations moins violentes sur les alimentations, d'où des valeurs légèrement différentes sur le bilan du combustible présenté dans la table 5.7. Le code REM montre un comportement binaire sur la valeur des alimentations qui peut passer de sa valeur minimale à sa valeur maximale instantanément entre deux pas d'ajustements. Ceci peut provoquer des perturbations locales affectant les flux de matières pour les bilans, bien que l'évolution globale soit très similaire.

Une mise à jour récente de REM permet de prendre en compte le vase d'expansion dans l'évolution. Du point de vue des calculs neutroniques, le combustible est parfaitement uniforme. Les produits de fission, dont la quantité produite dépend uniquement de la puissance, sont dilués dans un volume légèrement plus grand, et les noyaux lourds qui ne fissionnent quasiment pas dans le vase d'expansion sont "mélangés" avec ceux du coeur à chaque pas d'intégration. La présence du vase d'expansion ne devrait pas provoquer de changement conséquent sur les résultats car la géométrie a été dimensionnée pour faire en sorte que l'importance neutronique du combustible dans le vase d'expansion soit faible (voir section 4.4.1.4). Le volume de sel dans le vase d'expansion est de $1.5m^3$ au début de la simulation, soit 3% du total (2t d'uranium supplémentaires). Des écarts de quelques pourcents entre les bilans massiques sont donc vraisemblables.

Le bilan des masses sur les actinides est présenté dans le tableau 5.7. La présence du vase d'expansion augmente le volume total de sel combustible, les masses sont donc plus élevées dans la simulation avec vase

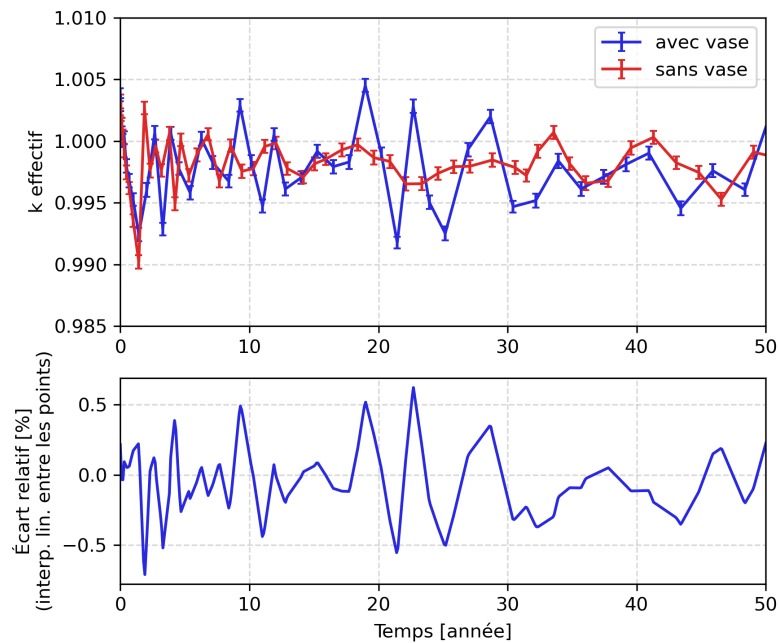


FIGURE 5.19 – Evolution du facteur de multiplication pour la configuration standard du MSFR-CI, avec ou sans vase d'expansion

d'expansion, aussi la comparaison est plus pertinente entre les bilans qui permettent la comparaison des flux qu'entre les masses absolues. On observe des différences plus élevées ($\approx 10\%$) que les 3% évoqués précédemment sur les actinides mineurs, mais leur faible masse en sel peut expliquer cela. En revanche il y a des écarts importants sur les isotopes du Pu, en particulier sur le ^{239}Pu qui, après comparaison des bilans, proviennent d'une alimentation deux fois plus importante pour la simulation avec vase d'expansion. Il semble donc que le vase d'expansion a un impact réel sur l'évolution de l'inventaire, davantage d'études avec des géométries différentes seront nécessaires pour confirmer ceci.

TABLE 5.7 – Bilan massique du sel combustible sur 50 ans - comparaison avec ou sans vase d'expansion

Z	A	I	Bilan avec vase [kg]	Bilan sans vase [kg]	Ecart relatif [%]
92	234	0	48.3	42.4	12.2
92	235	0	-204.9	-204.5	0.2
92	236	0	36.6	35.3	3.6
92	237	0	0.1	0.1	0.0
92	238	0	-54942.4	-54777.8	0.3
93	237	0	-782.5	-710.1	9.3
93	239	0	8.7	9.0	-3.4
94	238	0	-203.7	-195.5	4.0
94	239	0	-23.7	563.9	2479.3
94	240	0	487.7	654.0	-34.1
94	241	0	-1145.2	-1005.8	12.2
94	242	0	-544.6	-499.5	8.3
95	241	0	-311.4	-283.5	9.0
95	242	1	9.3	8.2	11.8
95	243	0	-118.2	-109.7	7.2
96	242	0	10.6	9.6	9.4
96	243	0	1.2	1.1	8.3
96	244	0	54.0	48.3	10.6
96	245	0	23.1	21.0	9.1
96	246	0	16.4	15.7	4.3
96	247	0	2.1	2.0	4.8
96	248	0	0.7	0.7	0.0

5.7.2 Etude préliminaire sur l'impact du chargement initial

Dans cette étude, on s'intéresse à l'utilisation des autres sources de matière fissile dont les compositions critiques ont été calculées dans la section 4.4.5. La figure 5.20 présente l'évolution des facteurs de multiplication effectifs. Dans le cas standard, la réactivité est contrôlée comme déjà discuté dans la section 5.4.1.3. Pour l'utilisation des TRU issus des combustibles MOX usés, la disponibilité plus importante de matière fertile au début de la simulation (actinides mineurs non fissiles) mène à un combustible surrégénérateur sur les premières années, d'où un k croissant et dépassant nettement 1 durant les 25 premières années. Pour éviter cette situation sans renoncer à l'utilisation de cette matière ni modifier la géométrie, il serait par exemple possible de la mélanger avec de l'uranium enrichi (explication ci-après), ou bien ne pas réinjecter une partie des actinides lors du traitement et les conserver pour une alimentation après quelques années, ou pour le démarrage d'une autre unité.

L'utilisation de l'uranium enrichi implique une matière fertile en moindre quantité, puisqu'une partie de ^{238}U est remplacé par de ^{235}U . De plus la fission rapide de ^{235}U libère moins de neutrons que celle du plutonium, aussi la quantité de neutrons disponibles pour la conversion est moindre. Le k va donc diminuer davantage sur les premiers mois.

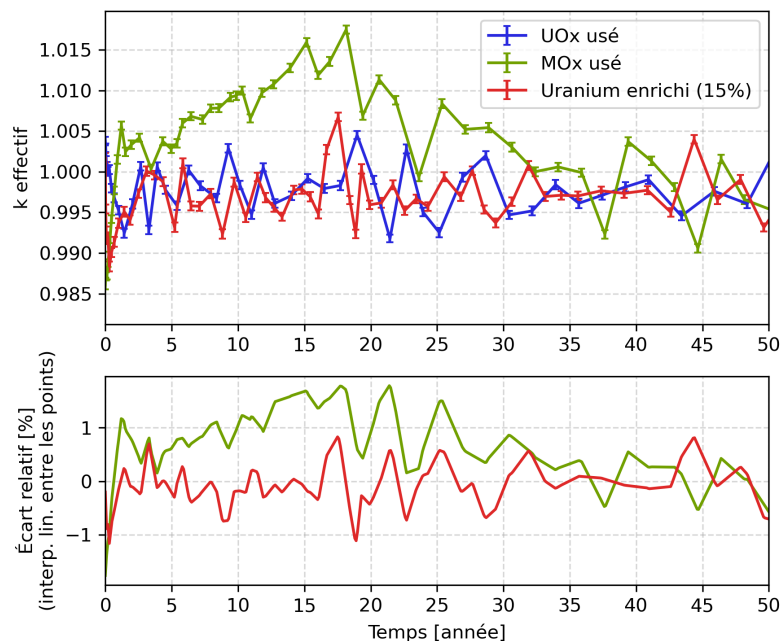


FIGURE 5.20 – Evolution du facteur de multiplication pour la configuration standard du MSFR-CI selon le combustible de démarrage

Les bilans massiques sont présentés dans la table 5.8. Le démarrage au MOX usé conduit à une consommation plus importante des actinides mineurs car ceux-ci sont présents en plus grande quantité, ce qui permet également une surproduction de ^{239}Pu . Malgré une réduction du volume du coeur pour éviter la surrégénération dans le circuit combustible (voir section 4.4.1.2), le démarrage au MOX usé conduit à un facteur de conversion dépassant 1 pendant les premières années comme évoqué précédemment. Le mélange avec de l'uranium enrichi pourrait permettre de modérer cet effet en réduisant la possibilité de régénération.

Le démarrage à l'uranium enrichi conduit naturellement à une consommation importante de ^{235}U et à un bilan positif sur le plutonium et les actinides mineurs, absents au démarrage.

5.7.3 Étude préliminaire sur l'impact de la librairie de données nucléaires

Pour cette étude, l'utilisation de la base de données ENDF-B7.1 est comparée avec une de ses versions plus anciennes, ENDF-B6.8, en sachant que les librairies contiennent entre autres les données de sections efficaces microscopiques et des rendements de fission. Ces données sont primordiales pour déterminer les taux de réaction avec les calculs statiques, qui conditionnent l'évolution ensuite. La figure 5.21 montre l'évolution du facteur de multiplication selon la base de données utilisée. Lorsque l'on effectue le même calcul statique à l'instant initial, on obtient une valeur de k de +2000 pcm avec la base ENDF-B6.8.

Cette surcriticité initiale a des impacts visibles sur les bilans massiques présentés dans le tableau 5.9. On constate des écarts assez importants, en particulier sur le ^{239}Pu et le ^{240}Pu . Puisque le k dépasse 1 dans le cas

TABLE 5.8 – Bilan massique du sel combustible sur 50 ans pour les actinides, pour trois combustibles différents

Z	A	I	Combustible UOX usé [kg]	Combustible MOX usé [kg]	Combustible Uranium enrichi (15%) [kg]
92	234	0	48.3	90.1	55.2
92	235	0	-204.9	-194.4	-20525.8
92	236	0	36.6	45.5	1819.1
92	237	0	0.1	0.1	1.2
92	238	0	-54942.4	-52291.6	-50044.8
93	237	0	-782.5	-1423.4	487.8
93	239	0	8.7	8.7	8.3
94	238	0	-203.7	-336.3	472.1
94	239	0	-23.7	1764.7	7301.2
94	240	0	487.7	-699.2	3156.1
94	241	0	-1145.2	-1367.3	382.3
94	242	0	-544.6	-1179.1	151.8
95	241	0	-311.4	-1493.8	134.7
95	242	1	9.3	0.8	5.8
95	243	0	-118.2	-663.6	24.9
96	242	0	10.6	11.5	6.0
96	243	0	1.2	-1.8	1.0
96	244	0	54.0	-95.3	14.3
96	245	0	23.1	19.6	2.0
96	246	0	16.4	33.3	0.3
96	247	0	2.1	4.6	0.0
96	248	0	0.7	1.5	0.0

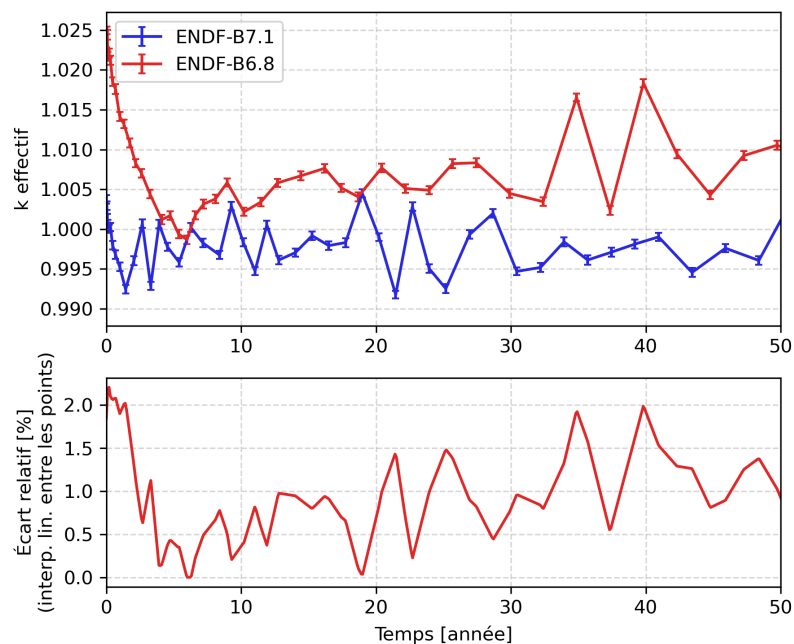


FIGURE 5.21 – Évolution du facteur de multiplication pour la configuration standard du MSFR-CI selon la librairie de données utilisée

avec utilisation de la base ENDF-B6.8, l'évolution est faite sans alimentation tant que cet excès de réactivité est présent, soit pendant environ 7 ans. Lorsque le k revient à 1, l'alimentation reprend. Même après dissipation de l'excès initial de réactivité, le k reste au dessus de 1, entre 1.005 et 1.01. Il semble donc qu'avec ces données, le combustible soit surrégénérateur. ENDF-B7.1 contient de nouvelles mesures sur un certain nombre de noyaux [69], on peut donc espérer que la simulation réalisée avec cette base est plus fiable. Néanmoins, il sera important de procéder à des mesures de criticité avec les sels chlorures pour s'en assurer.

TABLE 5.9 – Bilan massique du sel combustible sur 50 ans pour les actinides suivant la base de données utilisée

Z	A	I	ENDF-B7.1 - masses [kg]	ENDF-B6.8 - masses [kg]	Écart relatif [%]
92	234	0	45.0	31.0	-31.1
92	235	0	-202.6	-207.3	2.3
92	236	0	33.5	34.7	3.6
92	237	0	0.1	0.1	0.0
92	238	0	-58087.1	-57541.8	-0.9
93	237	0	-768.3	-652.9	-15.0
93	239	0	7.9	8.4	6.3
94	238	0	-205.4	-191.0	-7.0
94	239	0	-496.9	952.8	-291.7
94	240	0	247.5	765.8	209.4
94	241	0	-1152.5	-904.6	-21.5
94	242	0	-557.9	-476.4	-14.6
95	241	0	-313.7	-234.2	-25.3
95	242	1	8.8	6.2	-29.5
95	243	0	-121.9	-85.8	-29.6
96	242	0	10.3	9.0	-12.6
96	243	0	1.1	0.2	-81.8
96	244	0	45.1	27.8	-38.4
96	245	0	20.9	28.8	37.8
96	246	0	14.9	16.3	9.4
96	247	0	1.9	1.6	-15.8
96	248	0	0.6	0.4	-33.3

5.8 Conclusion sur les calculs neutroniques en évolution

Dans ce chapitre, la simulation du MSFR-CI sous diverses conditions a été effectuée. Une première simulation réalisée sans contrôle a mis en évidence le besoin d'extraction des produits de fission sous forme gazeuse, volatile, métallique, ou saline (ionique).

De ce constat, un schéma de traitement dédié aux sels NaCl-AnCl_3 a été mis au point, en collaboration avec des experts en chimie de plusieurs instituts. Les procédés d'extractions suivants sont envisagés : un balayage mécanique de l'atmosphère du vase d'expansion pour les PF gazeux et volatils ; des pièges métalliques pour les produits de fission métalliques ; des électrolyses à compartiments séparés pour les produits salins. Les sels fissile et fertile sont soumis au même traitement, si ce n'est que les TRU du sel fertile ne sont pas réinjectés dans le sel fertile mais stockés à d'autres fins (alimentation pour le sel combustible, démarrage d'autres unités).

La couverture fertile, destinée à la production de matière fissile proliférante, a fait l'objet d'une étude dédiée à augmenter sa résistance à la prolifération. En ajustant correctement le débit de traitement (150L/j choisi ici) et en ajoutant une faible quantité de TRU en provenance des combustibles MOX usés (0.5mol% de $(\text{TRU})\text{Cl}_3$), il est possible de valoriser cette matière en régénérant son vecteur Pu (augmentation de la part de ^{239}Pu) tout en réduisant considérablement l'attractivité de la matière produite pour des fins malveillantes.

L'impact des différents contrôles sur le sel combustible, lors de l'utilisation du code REM, a ensuite été étudié. L'étude par implémentation successive de ces derniers ont en particulier mis en évidence l'importance de l'extraction des produits de fission pour éviter une dérive de la masse totale du sel combustible, et la gestion du chlore permettant de maintenir la valence constante. Le spectre très rapide du MSFR-CI et la géométrie optimisée (voir section 4.4.1.2) permet également au réacteur de perdre très peu en réactivité au court du temps (environ 1500pcm quand les contrôles autres que celui de la réactivité sont implémentés), grâce à la régénération sur l' ^{238}U présent en quantités importantes (62t au démarrage). Le débit de traitement des PF solubles a été optimisé à 100L/j pour minimiser la contrainte sur l'unité de traitement tout en extrayant suffisamment de produits de fission.

Les bilans massiques sur 50 ans pour le MSFR-CI confirment la surrégénération du système, avec un temps de doublement estimé autour de 40 ans. Les actinides mineurs sont globalement consommés, l'Am est toutefois davantage produit que détruit, principalement à cause du stockage associé à la couverture fertile où le ^{241}Pu décroît en ^{241}Am . La comparaison avec le MSFR de référence démarré avec le mélange $(\text{TRU} + {}^{\text{enr}}\text{U} (13\%))$ montre que ce système est plus attractif pour la consommation d'actinides mineurs grâce à sa régénération sur le ^{232}Th au nombre de masse plus bas, qui limite grandement la reformation de ces éléments.

La puissance résiduelle a été évaluée sur les deux systèmes. Identique en ce qui concerne la production de totale de chaleur, le terme source est différemment distribué dans les zones considérées (sel, zone de stockage des gaz et insolubles, stockage des PF solubles). Ceci résulte des hypothèses sur le traitement, et de la forme différente de certaines espèces dans les deux sels (le zirconium notamment, volatil dans les sels chlorures mais soluble dans les sels fluorures).

Pour finir, des études préliminaires sur l'impact du vase d'expansion, du chargement initial et de la librairie de données ont été réalisées. Les résultats suggèrent que la présence du vase n'est pas négligeable et affecte l'alimentation. La matière fissile utilisée pour démarrer le réacteur est importante pour la gestion de la réactivité, avec des comportements opposés des TRU issus des combustibles MOX usés et de l'uranium enrichi (15%); le mélange des deux pourrait être intéressant à étudier. Le choix de la librairie de données est également important, le combustible conçu pour être légèrement sous-générateur de lui-même étant évalué comme surrégénérateur avec l'utilisation d'une autre base de données plus ancienne. A ce titre, des mesures de criticité sur les sels seront à réaliser pour valider les modèles utilisés.

Chapitre 6

Comportement du MSFR-CI en transitoires

Dans ce chapitre, le comportement du réacteur est analysé pour des transitoires, sur différentes échelles de temps, pour mettre à l'épreuve sa résilience du point de vue de la sûreté. Tout d'abord, les transitoires de type insertion de réactivité sont passés en revue. Puis, des transitoires de suivi de charge de plus en plus rapides sont simulés. L'accident de sur-refroidissement à basse puissance, c'est-à-dire l'insertion de réactivité via l'apport brutal de sel froid en coeur à puissance faible devant celle de fonctionnement nominal, est ensuite examiné. Ces trois premiers types de transitoires (section 6.1) sont analysés d'une part pour leur importance au niveau de la sûreté et de l'exploitation du réacteur, mais également pour permettre une comparaison avec les transitoires déjà réalisés sur le MSFR de référence par Axel Laureau pendant sa thèse. Finalement, un transitoire sur temps long (plusieurs heures) permettant la mise en place de la convection naturelle est modélisé dans la section 6.2 avec le code SNCF, plus adapté pour ces échelles de temps et pensé pour (bien que non limité à) la convection naturelle. Pour chaque transitoire, le comportement du MSFR-CI sera comparé à celui du MSFR de référence.

Sommaire

6.1	Transitoires sur temps courts	112
6.1.1	Modélisation du MSFR-CI avec le code système LiCore	112
6.1.2	Insertions de réactivité	113
6.1.2.1	Etudes sur le MSFR-CI	113
6.1.2.1.1	Impact de la réactivité totale ajoutée	113
6.1.2.1.2	Impact de la rampe de réactivité	114
6.1.2.2	Comparaison au MSFR de référence	115
6.1.3	Suivis de charge	116
6.1.4	Accident de sur-refroidissement à basse puissance	117
6.2	Transitoires sur des temps longs calculés avec le code SNCF	119
6.2.1	Définition du scénario considéré	119
6.2.2	Résultats	121
6.2.2.1	Comportement général du réacteur lors du transitoire	121
6.2.2.2	Études préliminaires d'optimisation des boucles EPuR	122
6.3	Conclusion sur les études de transitoires	124

6.1 Transitoires sur temps courts

6.1.1 Modélisation du MSFR-CI avec le code système LiCore

Les transitoires sur temps courts ($\simeq 100$ s) sont réalisés avec le code système LiCore présenté en section 3.3.2 conçu pour réaliser des simulations rapides (temps réel) de transitoires. Le code permet ainsi d'avoir des bons ordres de grandeur sur les températures moyennes et la puissance totale sans passer par un calcul avec des codes de CFD couplés avec la neutronique, plus précis mais beaucoup plus long (de l'ordre du jour pour un transitoire sur 1/16 du circuit combustible parallélisé sur 10 CPU, variable selon la précision exigée). On obtient ainsi un bon aperçu du comportement du réacteur rapidement, l'objectif ici n'est pas de quantifier précisément les grandeurs.

Le fichier input de LiCore est mis à jour avec les dimensions du circuit contenant le sel combustible, qui sont celles utilisées pour la géométrie modélisée pour les calculs neutroniques, ainsi qu'avec les caractéristiques de l'échangeur de chaleur, obtenues avec le code SONGe (voir section 4.4.1.3). Les paramètres cinétiques sont également mis à jour. Ici les secteurs (couverture fertile, réflecteur axial, protections neutroniques) n'interviennent pas directement (on néglige leur impact sur le calcul) et ne sont donc pas modélisés.

La figure 6.1 illustre la traduction de la géométrie d'un code à l'autre, les flèches noires indiquent les dimensions conservées. Le code LiCore permet la modélisation du circuit intermédiaire qui collecte la chaleur du circuit combustible, mais celui-ci n'ayant pas été étudié dans le cadre de cette thèse, seul le circuit combustible est représenté. Par ailleurs, le fonctionnement du code LiCore donne un rôle précis au vase d'expansion, c'est un volume permettant de se remplir et de se vider en fonction de la dilatation du combustible, avec une ponction de 1% du débit total par la pompe. Le vase est représenté différemment d'une géométrie à l'autre, hypothèse est faite que ceci n'a pas d'impact significatif sur les transitoires étudiés avec cet outil.

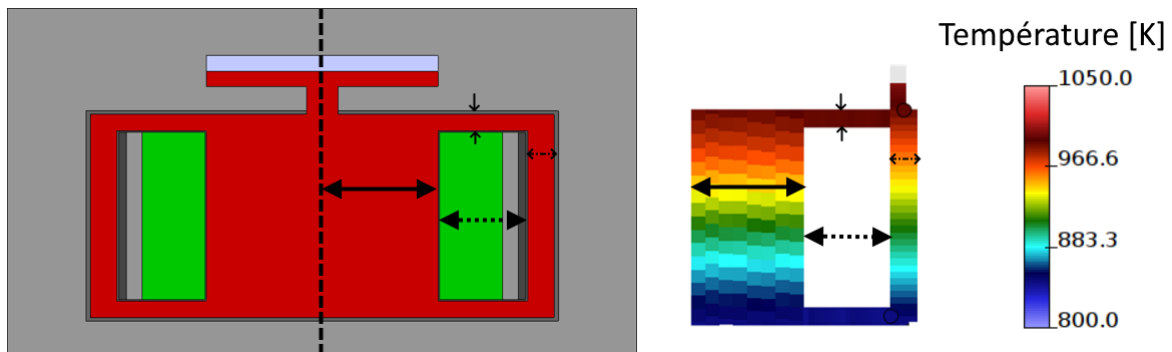


FIGURE 6.1 – Modélisation du MSFR-CI dans le code LiCore (droite) à partir de la géométrie définie pour les calculs neutroniques (modélisation avec le code Serpent2 à gauche)

Les paramètres neutroniques utilisés pour les transitoires avec le MSFR-CI sont présentés dans le tableau 6.1. Les paramètres cinétiques sont fournis par un calcul statique de la configuration standard avec le code Serpent2. La distance extrapolée considérée ici résulte de la forme du flux calculé par le code Serpent2.

TABLE 6.1 – Paramètres neutroniques du MSFR-CI utilisés avec le code LiCore

Paramètre	Valeur
β_{eff}	375 pcm
Groupe de précurseurs	$8.36438.10^{-5}$; $6.57549.10^{-4}$; $5.76215.10^{-4}$; $1.37479.10^{-3}$; $7.73224.10^{-4}$; $2.85041.10^{-4}$
Constante de décroissance λ associée [s^{-1}]	$1.34529.10^{-2}$; $3.07593.10^{-2}$; $1.18082.10^{-1}$; $3.10558.10^{-1}$; $8.84811.10^{-1}$; 2.97470
Temps de génération [s]	$8.52 \cdot 10^{-7}$
Coefficients de contre-réaction Doppler	-0.7 pcm/K
Coefficients de contre-réaction de densité	-19.4 pcm/K
Distance extrapolée [cm]	50

Note : les coefficients de contre-réaction utilisés ici sont légèrement différents de ceux présentés dans le tableau 4.16 de la section 4.4.5, les premiers sont issus d'un calcul antérieur moins précis. Cet écart n'est pas susceptible de remettre en cause les conclusions générales présentées dans ce chapitre.

6.1.2 Insertions de réactivité

6.1.2.1 Etudes sur le MSFR-CI

Tout d’abord, la réponse du système est analysée pour des insertions de réactivité linéaires sur des temps compris entre 1ms et 1s. L’impact des deux paramètres principaux sont étudiés : d’une part, la rampe d’insertion de réactivité exprimée en pcm/s, et d’autre part, la réactivité totale ajoutée.

6.1.2.1.1 Impact de la réactivité totale ajoutée

La figure 6.2 présente l’impact d’une insertion de réactivité de 1, 10, 100 et 1000 pcm en 1s. Dans cette simulation, la puissance extraite dans l’échangeur de chaleur est fixée à 3 GW_{th} . Les grandeurs affichées sont décrites ci-après.

- En haut à gauche, la marge à la criticité prompte est affichée.
- En haut à droite, la puissance générée dans le sel combustible est montrée.
- En bas à droite, les températures maximale, moyenne et minimale dans le combustible sont renseignées.

La marge à la criticité prompte vaut $1-k_p$, qui correspond également à $\rho - \beta_{eff}$. Le terme β_{eff} correspond à la valeur β_0 des codes de calculs neutroniques, corrigée des effets de spectres (voir section 1.1.4.1). Pour un combustible liquide circulant, lorsque la circulation du fluide entraîne des précurseurs dans une zone hors flux, cette valeur est modifiée et devient $\beta_{eff, circ}$. Dans le cas où le fluide est immobile, alors $\beta_{eff, circ}$ vaut β_{eff} . $\beta_{eff, circ}$ fluctue avec la circulation du sel combustible lors d’un transitoire, aussi on préfère utiliser $\rho - \beta_{eff}$.

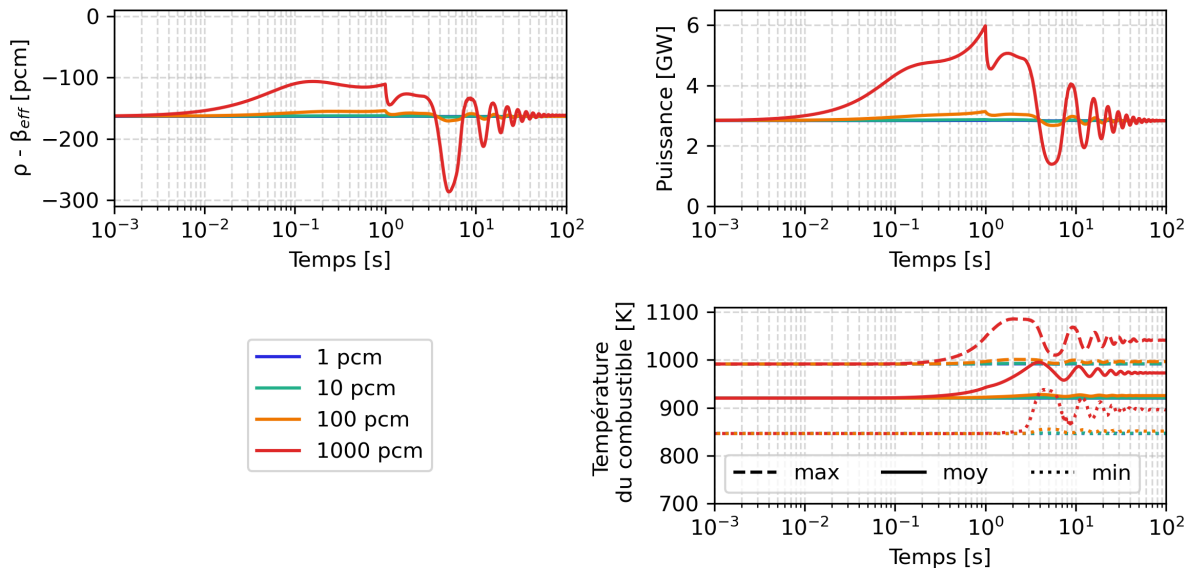


FIGURE 6.2 – Rampe de réactivité linéaire sur 1s

On observe que, pour un ajout de réactivité jusqu’à 100 pcm en une seconde, le système n’affiche presque aucune perturbation. Même pour une insertion de 1000 pcm en une seconde, soit presque 6 fois la marge à la criticité prompte initiale, le système revient à sa puissance nominale en 40s et les températures se déplacent de $\simeq 50\text{K}$ du fait des contre-réactions thermiques. C’est tout à fait cohérent avec la valeur du coefficient total de contre-réaction autour de -20 pcm/K . On observe des oscillations de période 8s, soit $2 \times 4\text{s}$ qui sont liées au temps de circulation du combustible qui met environ 4s pour faire un tour complet du coeur aux boucles de recirculation. Avec une rampe d’environ 1s, le combustible a effectué un quart de tour pendant l’injection de la réactivité. Une partie du combustible surchauffé a été renouvelé par celui, plus froid, en provenance des échangeurs de chaleur, et la contre-réaction est “diluée” dans le temps. Une autre preuve de ceci est l’évolution asynchrone des températures maximale, moyenne et minimale : la première a une évolution visible rapidement, en environ 0.2s, alors que la dernière ne varie qu’au bout de 3s, ce qui est cohérent avec les 4s de recirculation moins une rampe de 1s. Pour finir, même pour une insertion totale de 6 fois la valeur $\rho - \beta_{eff}$ initiale, on constate que l’on conserve toujours une marge à la criticité prompte de plus de 100 pcm sur les 170 pcm de neutrons retardés, il n’y a donc pas de passage en régime surcritique prompt.

6.1.2.1.2 Impact de la rampe de réactivité

Pour observer l'impact de la rampe, on peut insérer la même quantité totale de réactivité sur un intervalle de temps de plus en plus court. La figure 6.3 présente cette expérience pour une injection de 1000 pcm pour quatre périodes. Sur ce graphe, la puissance est en échelle logarithmique. On observe tout d'abord que la période n'a pas d'influence sur le comportement du réacteur au-delà d'une dizaine de secondes, soit environ 3 fois le temps de circulation du sel. En revanche, on observe un net impact de la période sur la marge à la criticité prompte et sur la variation de la puissance.

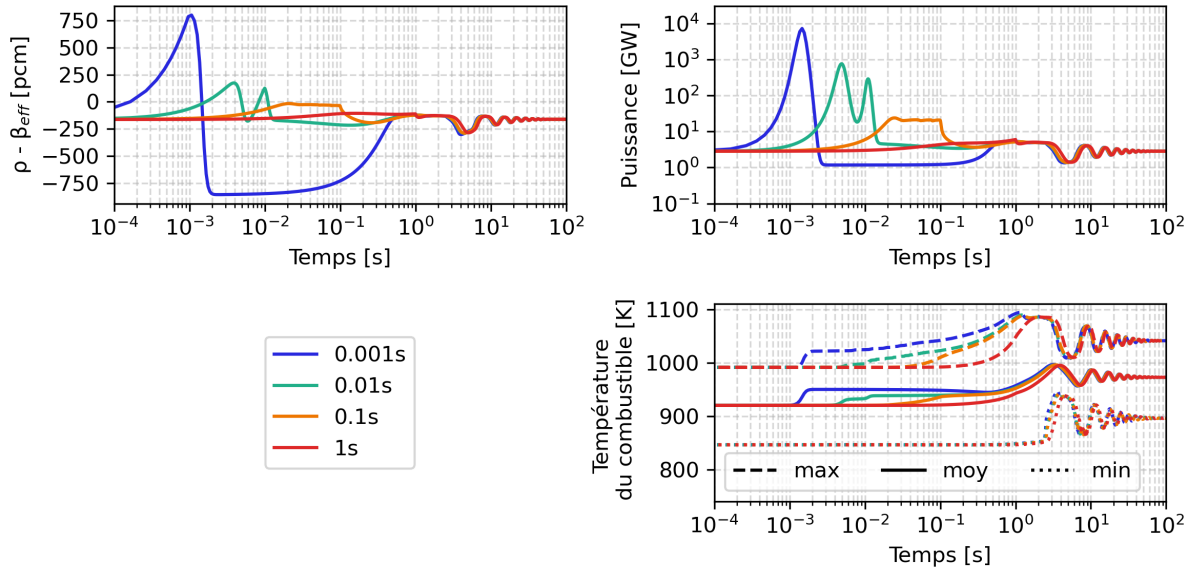


FIGURE 6.3 – Injection linéaire de 1000 pcm sur des périodes de 0.001s à 1s

Pour l'analyse, supposons d'abord un cas plus simple avec une injection faible de réactivité ($< \beta_{\text{eff}}$) mais sur un instant (aucun processus physique ne peut générer "instantanément" de la réactivité, il s'agit d'une expérience de pensée). L'injection de réactivité revient à artificiellement augmenter le terme ρ , donc $\rho - \beta_{\text{eff}}$ augmente. La population neutronique croît, les taux de réaction augmentent, le sel voit sa température augmenter en coeur avec l'augmentation des fissions. Puis du fait des contre-réactions thermiques (effet Doppler et dilatation du sel), ρ va diminuer rapidement, la population de neutrons prompts aussi. Avec la baisse de la puissance, la température augmente de moins en moins rapidement, la contre-réaction s'atténue progressivement. Avec la circulation du combustible, du sel froid vient remplacer progressivement le sel surchauffé, la valeur $\rho - \beta_{\text{eff}}$ retourne à sa valeur initiale et la puissance retrouve aussi, éventuellement après quelques oscillations, sa valeur de départ.

Les simulations présentées sur la figure 6.3 offrent quatre cas d'étude bien distincts. Pour rappel, l'injection de réactivité est linéaire avec le temps, donc les rampes sont de 1 000 000 pcm/s pendant 0.001s, 100 000 pcm/s pendant 0.01s, 10 000 pcm/s pendant 0.1s et 1000 pcm/s pendant 1 s. Ces valeurs très élevées ne correspondent à aucun initiateur d'accident identifié à ce jour [15], les simulations ici ont pour objectif de comprendre les phénomènes liés à la réponse du système, non pas à décrire un scénario réaliste.

Pour la plus courte période, la rampe est très rapide et la situation se rapproche d'une insertion instantanée. On constate que la valeur $\rho - \beta_{\text{eff}}$ devient largement positive pendant environ 1 milliseconde, ce qui provoque un passage en régime surcritique prompt. La population neutronique et donc la puissance croissent exponentiellement sur cet intervalle de temps, la puissance atteint un pic de 7TW. Pour un tel transitoire, les travaux de thèse de Thibault Lemeute [6] montrent que l'hypothèse du fluide incompressible n'est plus valable ici et que des phénomènes plus complexes peuvent apparaître (onde de pression, ...). Néanmoins, ce cas est intéressant car le passage surcritique prompt amplifie les phénomènes pour mieux les observer, et la courte période permet de les découpler pour l'analyse. Il illustre ainsi très bien le cas théorique de l'insertion instantanée, en particulier pour $\rho - \beta_{\text{eff}}$ avec trois phases : augmentation brutale entre 0 et 1ms (rampe), diminution rapide entre 1ms et 10ms (contre-réactions), et retour à la valeur initiale entre 10ms et 0.5s.

Pour la période de 0.01s, on observe deux passages en régime surcritique prompt, conduisant à deux pics de puissance respectivement à 700GW et 300GW. La validité de l'hypothèse du fluide incompressible est plus difficile à estimer sans faire le calcul avec un outil dédié, il est possible qu'il s'agisse d'un cas limite. La présence

de deux pics peut s'expliquer par l'équilibrage de deux phénomènes très rapides, c'est une compétition entre le rythme d'insertion de réactivité (imposé artificiellement) et le rythme d'insertion d'anti-réactivité (contre réaction induite par le niveau de la puissance).

L'injection de 1000 pcm en 0.1s ne provoque pas de surcriticalité prompte : bien qu'il s'agisse toujours d'un transitoire violent, les contre-réactions agissent suffisamment rapidement pour que $\rho - \beta_{\text{eff}}$ ne dépasse pas 0. On observe un plateau entre 20ms et 0.1s pour $\rho - \beta_{\text{eff}}$ et pour la puissance, cette dernière atteignant 20GW.

Enfin, l'injection de 1000 pcm en 1s, dont l'évolution est plus visible sur la figure 6.2, provoque un pic de puissance à 6GW à 1s mais tous les phénomènes sont atténués du fait de la plus faible rampe.

Bien que ce ne puisse pas être affirmé avec certitude pour les périodes 0.001s et 0.01s, il est raisonnable de penser que la température maximale n'atteint pas 1100K pour des injections de 1000pcm en plus de 0.1s. A ce titre, ces transitoires ne devraient pas dégrader directement les structures (sont sous-entendus ici le SiC, l'Hastelloy ou l'acier 316H). Il est toutefois vraisemblable que s'ils venaient à se répéter, ils deviendraient un facteur aggravant de la fatigue thermique.

6.1.2.2 Comparaison au MSFR de référence

On peut effectuer les mêmes simulations sur le MSFR de référence pour comparer le comportement des deux systèmes. La figure 6.4 présente l'évolution des mêmes grandeurs physiques (marge à la criticité prompt, puissance, températures) pour l'injection de 1000 pcm sur les mêmes périodes.

Remarque : l'échelle des abscisses est identique mais les échelles des ordonnées sont différentes pour des questions de lisibilité.

Globalement, la grandeur $\rho - \beta_{\text{eff}}$ a une évolution très similaire dans les deux cas, la puissance également malgré des valeurs plus extrêmes, et une variation importante des températures est observée.

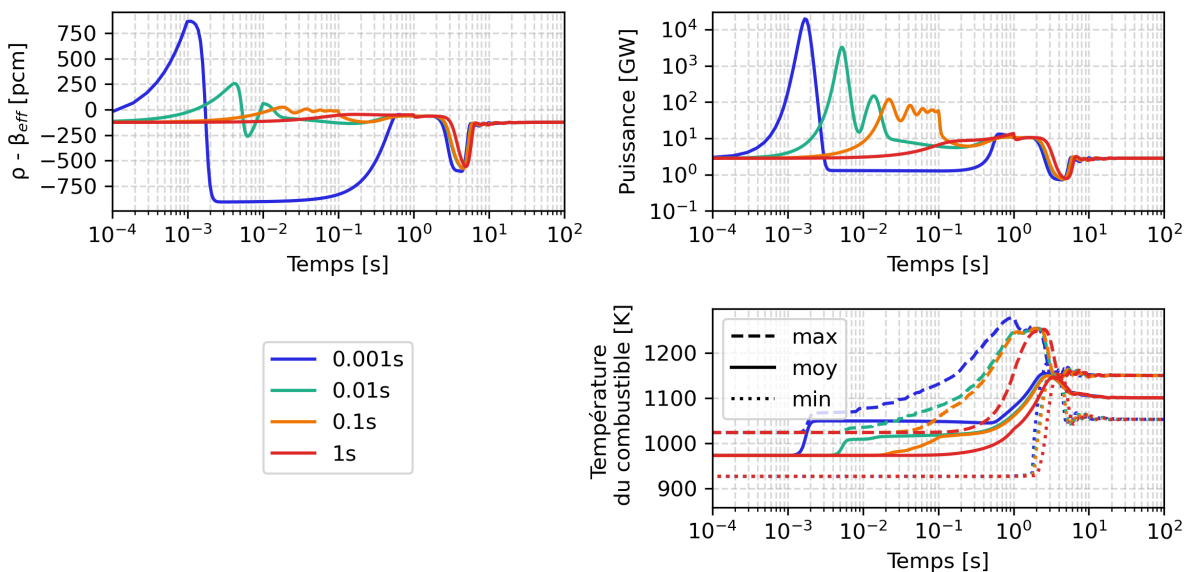


FIGURE 6.4 – Injection linéaire de 1000 pcm sur des périodes de 0.001s à 1s - MSFR de référence

La période de 0.001s permet une meilleure visibilité des phénomènes, aussi la figure 6.5 présente la comparaison des systèmes sur cette période, pour le même transitoire. $\rho - \beta_{\text{eff}}$ évolue de la même façon puisque les mécanismes sont parfaitement identiques, mais avec une différence importante.

Du fait des différences neutroniques (coefficients de contre-réaction, paramètres cinétiques) et thermodynamiques (masse volumique, capacité calorifique) des combustibles, $\rho - \beta_{\text{eff}}$ atteint une valeur un peu plus élevée pour le MSFR de référence, mais surtout sa décroissance a lieu plus tard. En régime surcriticalité prompt avec une croissance exponentielle de la population neutronique, cela se traduit directement par un pic de puissance plus élevé (20TW contre 7TW). Cela a pour conséquence que le dépôt d'énergie dans le combustible sur la même durée va être beaucoup plus important pour le MSFR de référence.

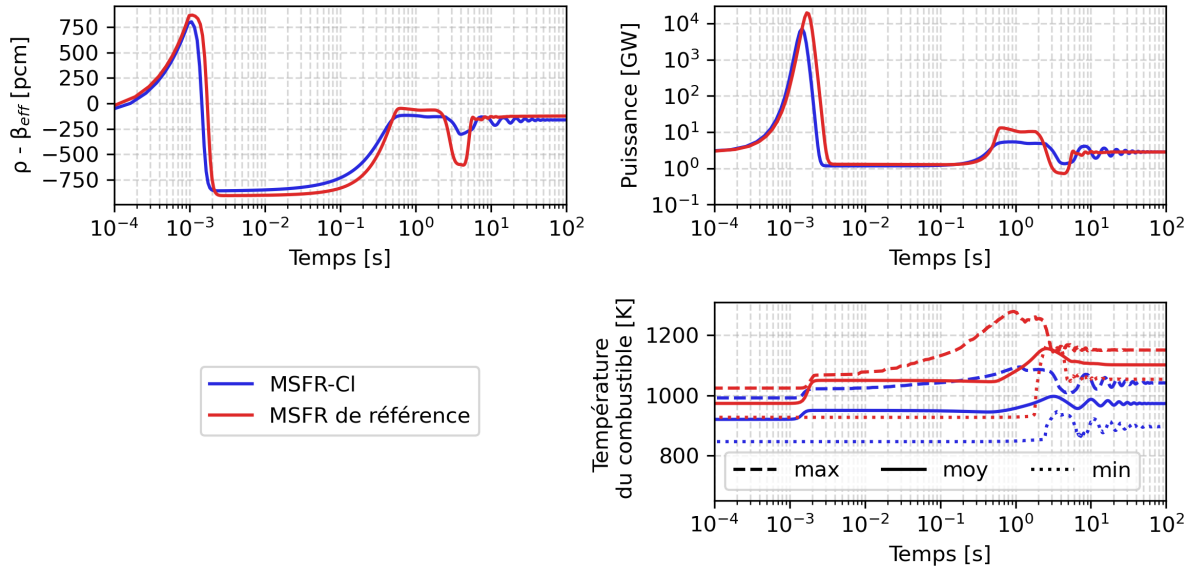


FIGURE 6.5 – Injection linéaire de 1000 pcm en 0.001s - comparaison MSFR-Cl - MSFR de référence

Pour rappel, la puissance peut s’exprimer par l’équation (6.1) avec \mathcal{P} la puissance [W], C_p la chaleur spécifique (ou capacité calorifique) [J/kg/K] et ΔT l’écart de température [K] en entrée et sortie de coeur.

$$\mathcal{P} = \dot{m}C_p\Delta T \quad (6.1)$$

Avec une extraction de puissance constante, un débit massique constant et l’hypothèse que C_p varie très peu avec la température, l’écart ($T_{\max} - T_{\min}$) n’a pas de raison de changer sur le long terme, c’est ce qui est constaté (début et fin de transitoire avec écart de 100K pour le MSFR de référence et 150K pour le MSFR-Cl). En revanche, l’élévation absolue de température moyenne n’est pas identique pour les deux systèmes car elle est conditionnée par la valeur du coefficient de contre-réaction total (-20 pcm/K pour le MSFR-Cl contre -8 pcm/K pour le MSFR de référence). Une injection de 1000 pcm conduira donc à $\frac{1000}{20} = 50\text{K}$ de hausse de température pour le MSFR-Cl contre $\frac{1000}{8} = 125\text{K}$ pour le MSFR de référence. C’est bien ce que l’on observe avec, pour les températures moyennes, les transitions respectives 925K \rightarrow 975K pour le MSFR-Cl et 975K \rightarrow 1100K pour le MSFR de référence.

6.1.3 Suivis de charge

La situation modélisée ici est un appel rapide de puissance de la part du réseau. Pour être comparable avec les simulations existantes [10](p87), on réalise ici un suivi de charge de 1.5GW à 3GW. Le changement de puissance est réalisé par la variation de débit sur les pompes, il s’agit d’une croissance exponentielle faite pour plusieurs périodes allant de 1ms à 100s. La figure 6.6 représente le résultat de ces simulations. Pour ce suivi de charge, une marge à la criticité prompt confortable supérieure à 100pcm est conservée. Même pour la période la plus faible, la variation de température moyenne ne dépasse pas 10K. Du fait du coefficient de densité largement négatif, le système supporte très bien le transitoire même sur des périodes très courtes.

Pour comparer les performances respectives des systèmes, la figure 6.7 représente cette simulation pour la période de 30s. Cette période correspond à un transitoire a priori réalisable sur le circuit combustible d’un MSFR, même si les circuits intermédiaire et de conversion seraient probablement limitants.

Un comportement très similaire pour les deux systèmes s’observe, et des oscillations sont présentes pour le cas du MSFR-Cl, absentes sur le MSFR de référence. Lors du transitoire, du fait de l’appel supplémentaire de puissance, la réactivité augmente et la température en coeur diminue légèrement par contre-réactions. Cela fait apparaître un faible gradient de température le long d’une “boucle de courant” entre le coeur et l’échangeur, responsable d’une oscillation de réactivité et de puissance de période 4 secondes (le temps de recirculation). La distribution radiale de vitesse dans le code LiCore est proportionnelle au flux neutronique. Dans le cas du MSFR-Cl, le coeur a un rayon plus large (1.47m contre 1.125m) et la distance extrapolée du flux est plus grande (50cm contre 20cm). Par conséquent, le brassage qui est effectué en sortie de coeur est moindre avec le MSFR-Cl qu’avec le MSFR de référence, d’où le fait qu’une perturbation prenne plus de temps à se dissiper par recirculation du fluide, et du fait des paramètres neutroniques et thermodynamiques différents, provoque des oscillations de réactivité plus fortes. Une autre conséquence de ces paramètres différents entre les deux sels est que le MSFR-Cl atteint plus rapidement sa température d’équilibre : celle-ci est atteinte en environ 50s, contre

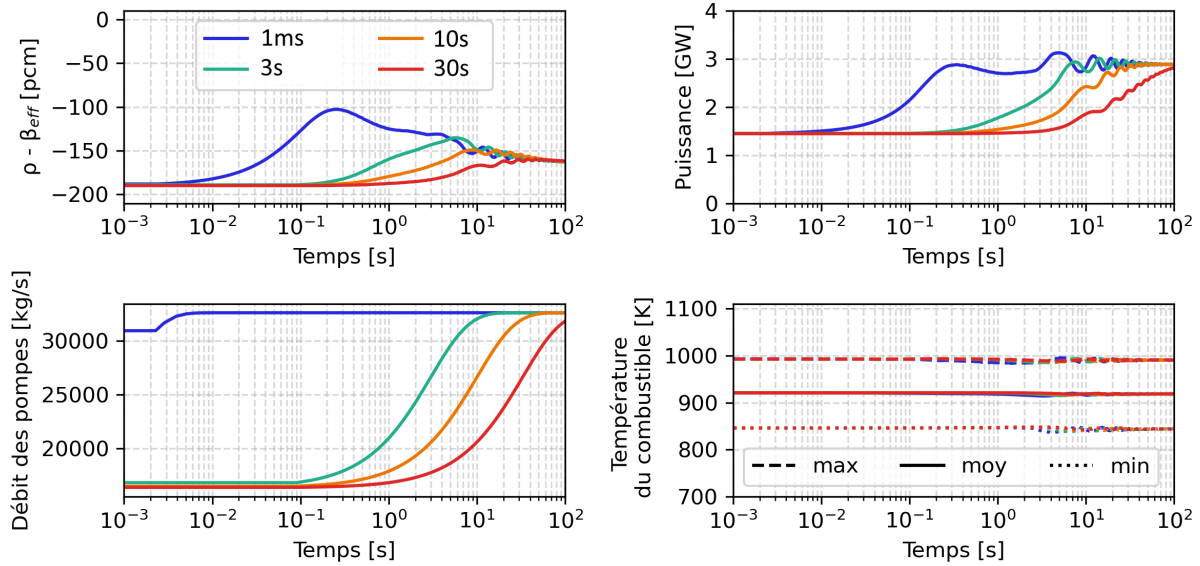


FIGURE 6.6 – Suivi de charge de 1.5GW à 3GW sur le MSFR-CI

environ 200s pour le MSFR de référence.

De façon générale, les deux systèmes affichent d'excellentes performances pour le suivi de charge.

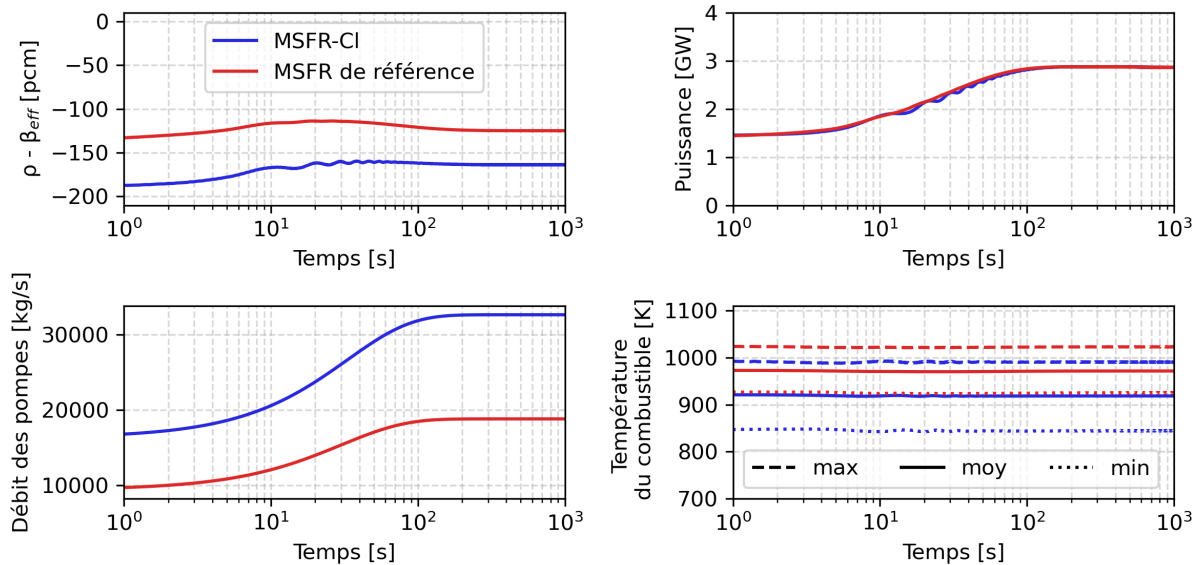


FIGURE 6.7 – Comparaison des suivis de charge de 1.5GW à 3GW sur les MSFR pour la période de 30s

6.1.4 Accident de sur-refroidissement à basse puissance

Pour faire varier la température du sel combustible d'1K, une certaine quantité absolue de fissions est requise. Ceci signifie qu'une population neutronique très faible peut instantanément doubler sans faire changer la température du combustible de façon visible. Or, si la température du combustible n'évolue pas, les contre-réactions thermiques qui dépendent de la variation de température n'entrent pas en jeu. L'accident de sur-refroidissement à basse puissance repose sur ces principes. En injectant subitement du combustible froid dans un réacteur fonctionnant à basse puissance, les contre-réactions thermiques vont engendrer une insertion de réactivité. La quantité de fissions augmente en réponse, mais le changement de température effectif peut être trop faible pour freiner la croissance de la population neutronique. Il est alors possible que le système entre en régime surcritique prompt.

La figure 6.8 montre le résultat d’une augmentation quasi-instantanée de l’extraction de puissance au niveau de l’échangeur pour atteindre 3 GW, pour plusieurs valeurs de puissance de départ. La figure 6.9 montre en détail le moment où le pic de puissance est atteint.

Un passage en régime surcritique prompt apparaît dès lors que la puissance de départ pour le transitoire est inférieure à 10 MW. Cela se traduit par une excursion de puissance dont la valeur maximale atteinte est d’autant plus élevée que la puissance de départ est faible : 2.8GW pour une puissance de départ de 1MW, 9GW pour une puissance de départ de 1kW. La température moyenne voit une variation maximale de 70K pour les puissances de départ de 1kW à 100MW, et seulement de 40K pour 1GW. Elle oscille avec une période de 8s cohérente avec le temps de recirculation (voir section précédente), et se stabilise en une minute à sa valeur de départ de 920K (la figure 6.8 peut suggérer une température de départ moyenne plus basse mais cela est dû au fait qu’elle commence à diminuer légèrement avant $t=0.1s$). La température maximale atteinte localement dans le cas du transitoire démarré avec une puissance de 1KW est de 1030K pendant moins de 0.5s, ce qui ne devrait pas être suffisant pour endommager l’élément de structure (ici l’acier 316H).

Le système fait une nouvelle fois preuve de sa résilience à travers cette étude : même avec un passage en surcritique prompt après une hausse de puissance de 6 ordres de grandeur, il ne semble pas y avoir de conséquence significative, et le système se stabilise rapidement.

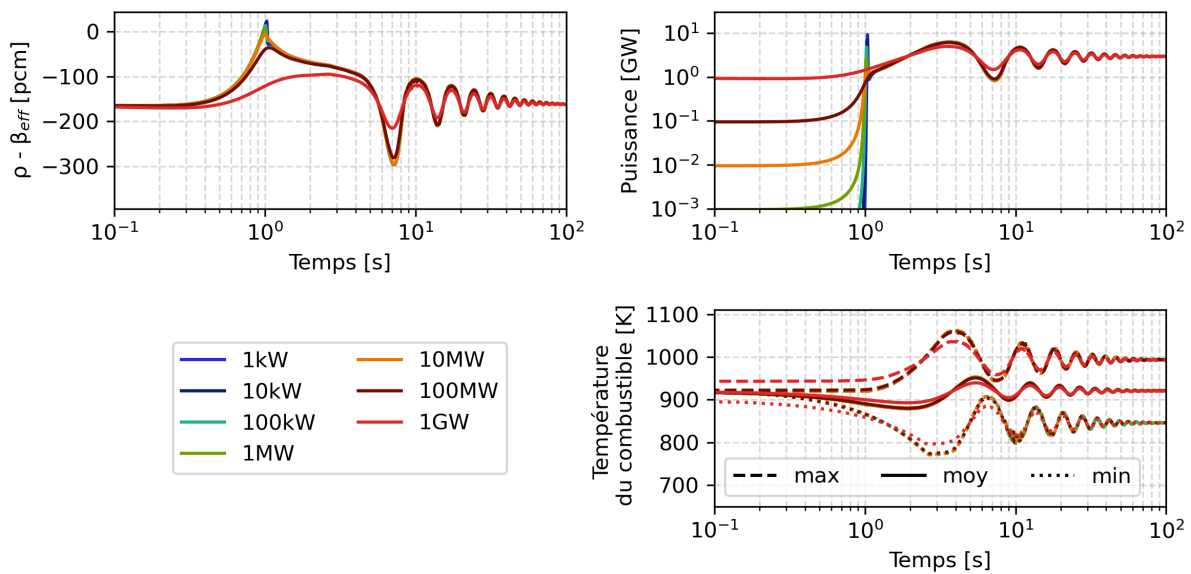


FIGURE 6.8 – Sur-refroidissement à basse puissance du MSFR-CI

Les figures 6.10 et 6.11 (intervalle [0.95s ; 1.07s]) comparent la réponse du MSFR-CI à celle du MSFR de référence pour le sur-refroidissement à 1kW. On constate que les deux systèmes atteignent une valeur de $\rho - \beta_{eff}$ égale (+20pcm). Du fait des différences neutroniques et thermodynamiques des combustibles, le MSFR-CI atteint une valeur de puissance maximale moins élevée : 9GW contre 24GW pour le MSFR de référence. En revanche, on observe des oscillations de réactivité (de +20 à -300pcm contre +20 à -120pcm), de puissance (600MW contre 500MW pour le deuxième pic) et de températures (880K à 940K contre 940K à 980K pour le deuxième pic) plus amples et pendant plus longtemps (60s contre 30s) pour le cas du MSFR-CI, pour la raison déjà évoquée dans la section 6.1.3.

Remarque : du fait du positionnement différent de l’échangeur de chaleur dans le MSFR de référence, placé plus en hauteur pour la configuration de base de LiCore, le transitoire peut être légèrement décalé dans le temps. Pour des questions de lisibilité ici, les simulations ont été synchronisées sur leur pic de puissance (décalage temporel de -0.43s pour le MSFR de référence).

De façon générale, ces études montrent que les deux systèmes sont capables de gérer le transitoire de sur-refroidissement. Pour le MSFR de référence, les types de transitoires présentés dans ces études ont fait l’objet de comparaisons avec le code couplé neutronique-thermohydraulique TFM-OpenFOAM dans le cadre de la thèse d’Axel Laureau [10]. Ces comparaisons montrent que le code LiCore fournit de très bonnes approximations dans ce cadre. Il serait intéressant de vérifier si cela est toujours vrai avec le MSFR-CI.

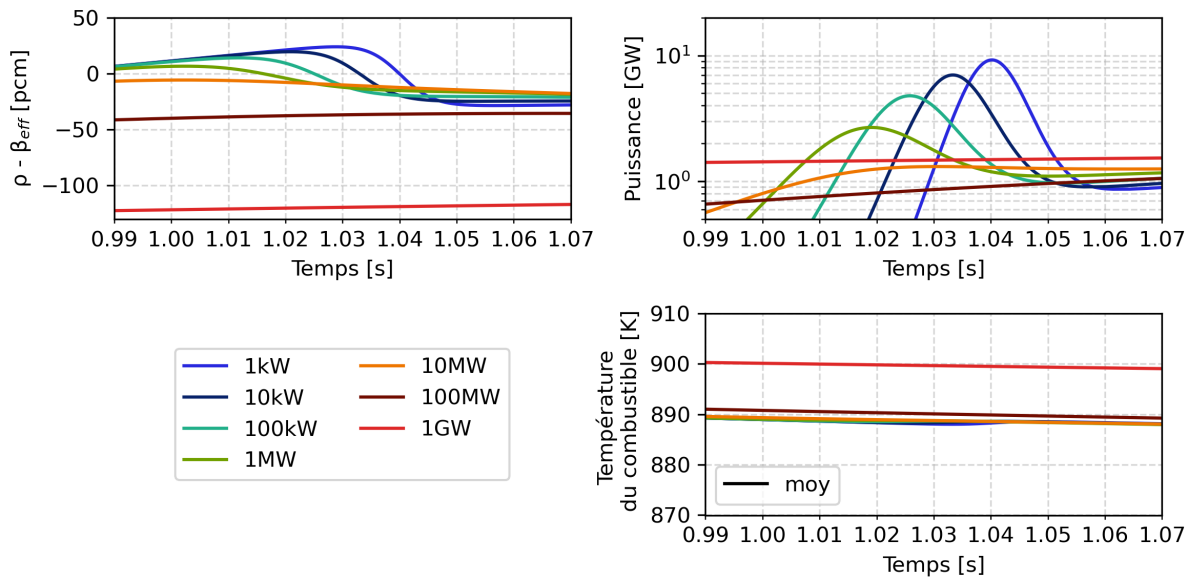


FIGURE 6.9 – Sur-refroidissement à basse puissance du MSFR-CI - intervalle [0.99s ; 1.07]

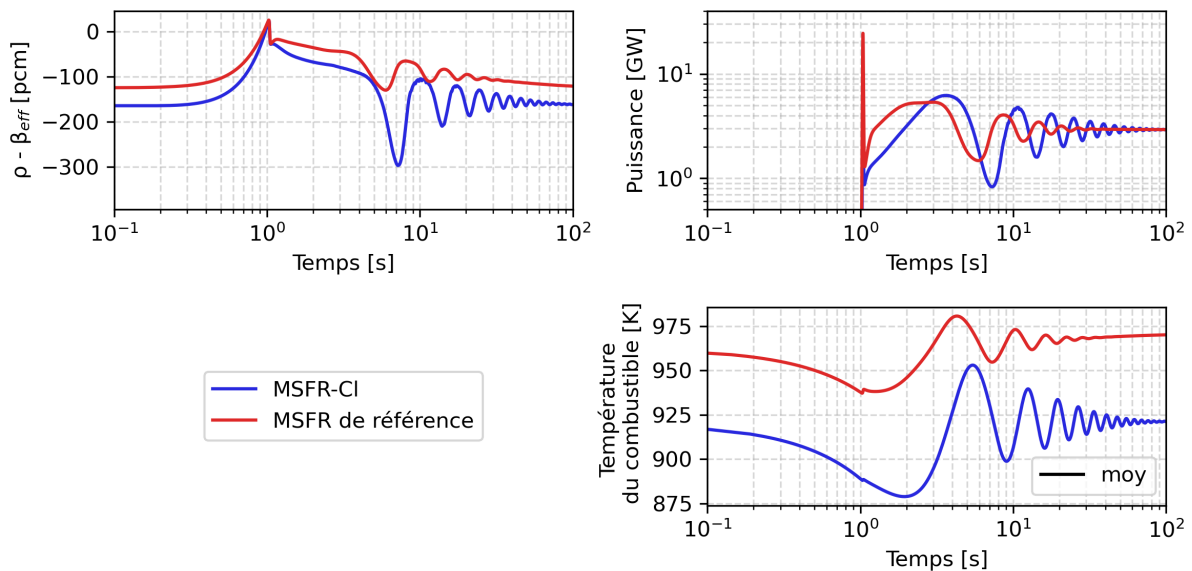


FIGURE 6.10 – Sur-refroidissement à puissance de départ de 1kW

6.2 Transitoires sur des temps longs calculés avec le code SNCF

Les transitoires longs désignent la perte durable des systèmes de refroidissement actifs et l'étude de la mise en place de la convection naturelle. Les transitoires sont modélisés avec le code SNCF présenté dans la section 3.3.3 qui, contrairement au code LiCore fonctionnant à débit imposé par l'utilisateur, prend en compte les effets de flottabilité. Les études présentées ici s'appuient sur le travail de deux stages réalisés en 2020 [88] et 2022 [89]. Les résultats présentés ici sont issus de ce second stage (de niveau M1) que j'ai encadré, réalisé par Max Begue.

6.2.1 Définition du scénario considéré

L'objet d'étude est le système composé du circuit combustible, du circuit intermédiaire, d'un circuit d'air dans le bâtiment réacteur et de l'air extérieur (circuit ouvert, cheminées). La figure 6.12 déjà présentée dans la section 3.3.3 est remise pour faciliter la compréhension du lecteur.

Le scénario consiste à partir du point de fonctionnement nominal du réacteur, puis de couper l'alimentation des pompes pour modéliser une perte de connexion au réseau comme pour l'accident de Fukushima (en anglais :

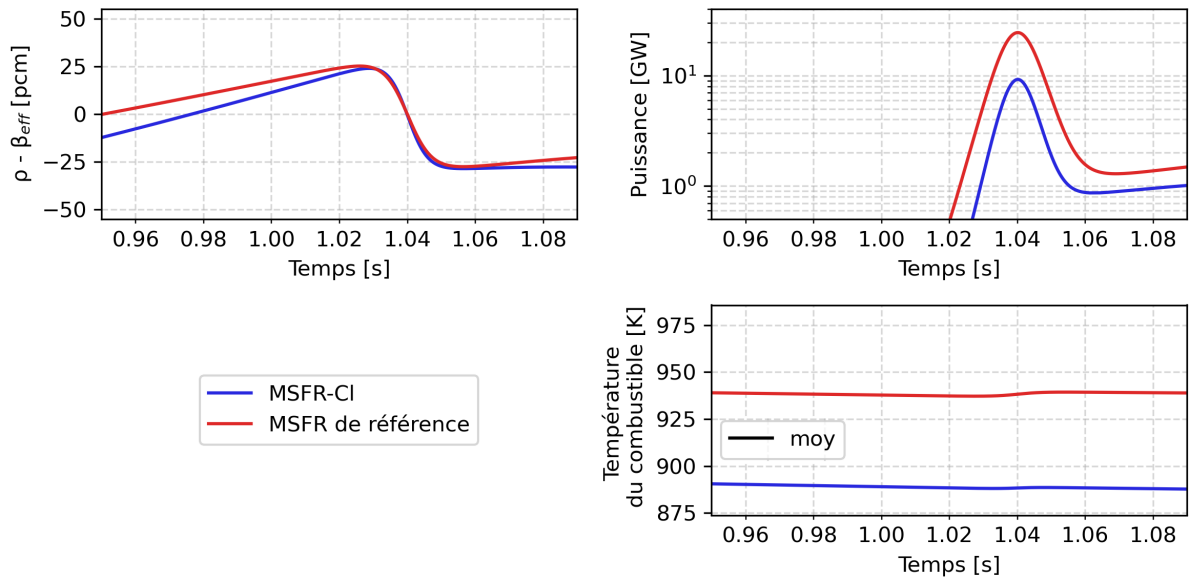


FIGURE 6.11 – Sur-refroidissement à puissance de départ de 1kW - intervalle [0.95s ; 1.09s]

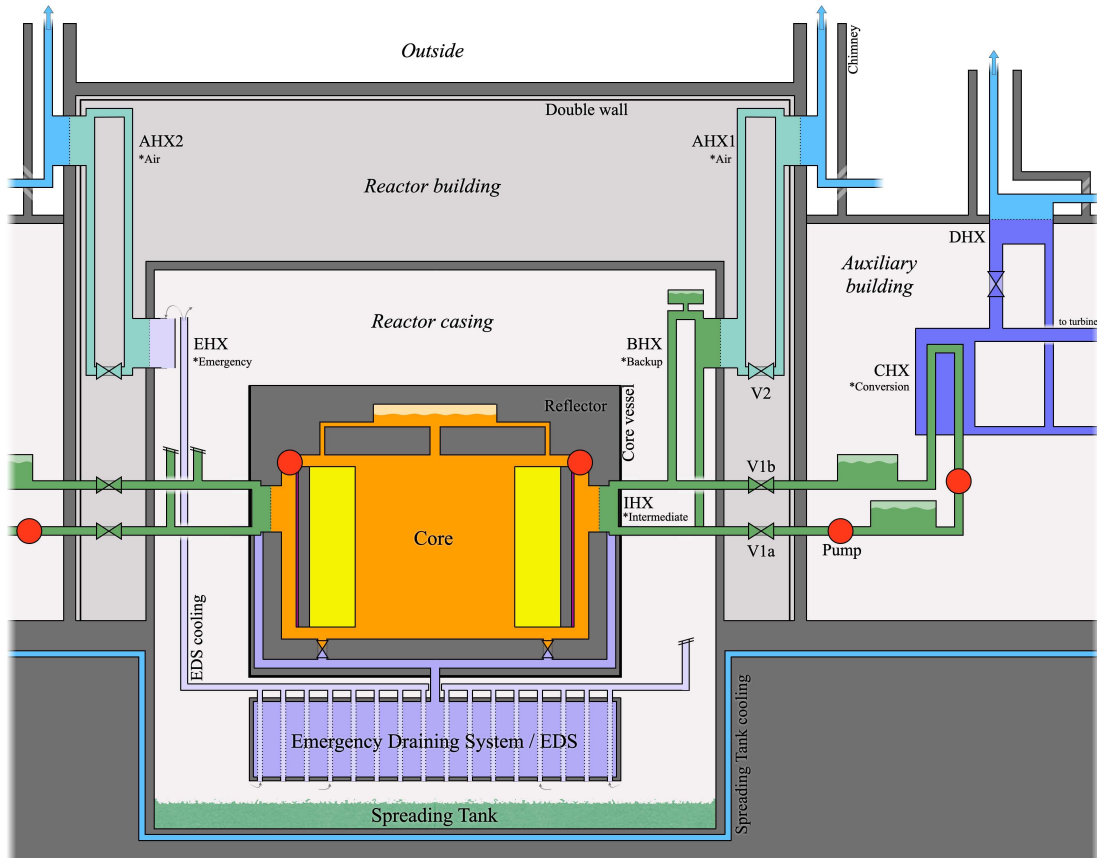


FIGURE 6.12 – Les différentes boucles de fluide utiles pour la convection naturelle

Total Loss of Power, ou TLOP). En admettant que le circuit intermédiaire soit toujours disponible, celui-ci est isolé du circuit de conversion au niveau des vannes V1a et V1b. La perte de puissance des pompes impliquera une perte d'extraction de chaleur et donc une montée en température du circuit combustible assurant la sous-criticité et l'arrêt de la puissance de fission. L'enjeu est de démontrer ou non la possibilité d'extraire la puissance résiduelle par convection naturelle, permettant de conserver le sel combustible dans son circuit sans recourir à une vidange d'urgence, que l'on souhaite éviter tant que cela est possible pour faciliter la reprise de l'exploitation une fois l'incident maîtrisé.

Les réacteurs considérés ici sont détaillés dans le tableau 6.2. La version du MSFR-Cl étudiée alors, différente de la configuration standard actuelle ($\simeq 60\text{m}^3$ de sel combustible au lieu de 45m^3), résultait de données antérieures sur la masse volumique du sel combustible : $\simeq 2.8\text{g/cm}^3$ contre $\simeq 3.2\text{g/cm}^3$ à $T=900\text{K}$. Les sels intermédiaires considérés ici pour le MSFR de référence et le MSFR-Cl sont respectivement le LiF-NaF-KF(FLiNaK) et le LiCl-NaCl-KCl (CLiNaK), dont les propriétés thermodynamiques sont données dans le tableau 6.3. Les échangeurs de chaleur sel/air (BHX) et air/air (AHX1) sont des échangeurs à plaques lisses (moins de contraintes sur la compacité de ces échangeurs).

TABLE 6.2 – Caractéristiques utilisées pour la boucle combustible dans la configuration obtenue d’après SONGe

Sel	Chlorure	Fluorure
Nombre de secteurs	24	16
Volume total de sel [m^3]	55.8	16.75
Volume en cœur [m^3]	30	9
D_h du cœur [m]	3.37	2.26
Longueur du cœur [m]	3.37	2.26
Section du cœur [$\text{m}^2/\text{secteur}$]	0.371	0.250
Température critique [K]	874	940
D_h des tuyaux [m]	0.3	0.256
D_h de l’IHX [m]	$5.52 \cdot 10^{-3}$	$4.62 \cdot 10^{-3}$
Longueur des tubes Haut/Bas [m]	3.03	1.98
Longueur de l’IHX [m]	1.73	0.76
Longueur du raccord bas [m]	1.64	1.50
Surface d’échange de l’IHX [m^2]	388	176
Coefficient de pertes de charge singulières du tube haut	2.34	2.34
Coefficient de pertes de charge singulières du tube bas	1.17	1.17
Coefficient de pertes de charge singulières du raccord bas	0.65	0.65
Masse volumique	$3453.25 - 0.77 \cdot T$	$4983 - 0.882 \cdot T$
Chaleur spécifique	$660.1 - 0.03357 \cdot T$	$-1111 + 2.78 \cdot T$
Viscosité dynamique	$8.812 \cdot 10^{-5} e^{3544/T}$	-
Viscosité cinématique	-	$5.54 \cdot 10^{-8} e^{3689/T}$
Conductivité thermique	$0.7204 - 2.11 \cdot 10^{-4} \cdot T$	$0.928 + 8.397 \cdot 10^{-5} \cdot T$

TABLE 6.3 – Propriétés thermodynamiques des sels intermédiaires

Sel	CLiNaK	Fluoroborate [22]
Masse volumique [$\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$]	$1975 - 0.4626 \cdot T[\text{K}]$ [109]	$2446.3 - 0.711 \cdot T[\text{K}]$
Chaleur spécifique [$\text{J}/\text{kg}/\text{K}$]	1244 [110]	1506
Viscosité dynamique [$\text{kg}/\text{m}/\text{s}$]	$1.121 \cdot 10^{-4} \cdot e^{\frac{2357}{T[\text{K}]}}$ [111]	$8.77 \cdot 10^{-5} e^{\frac{2240}{T[\text{K}]}}$
Conductivité thermique [$\text{W}/\text{m}/\text{K}$]	$0.79 - 2.19 \cdot 10^{-4} T[\text{K}]$ [111]	$0.66 - 2.37 \cdot 10^{-4} T[\text{K}]$

6.2.2 Résultats

6.2.2.1 Comportement général du réacteur lors du transitoire

Le code SNCF commence par une mise à l’équilibre pendant une durée fixée à 100s ici. Puis, la puissance de la pompe est arrêtée avec une décroissance exponentielle de période 30s. La figure 6.13 présente l’évolution de la température moyenne du cœur et de la puissance générée par fissions pour une ancienne configuration du MSFR-Cl. La figure 6.14 montre l’évolution de la vitesse moyenne du sel combustible.

Suite à la mise à l’équilibre, la température du cœur est à la température “critique”, c’est-à-dire sa température moyenne de fonctionnement nominal ici fixée à 875K où le facteur de multiplication vaut 1. Dès l’arrêt des pompes, la vitesse moyenne décroît comme attendue, faisant diminuer l’extraction de chaleur. La puissance de fission, utilisée pour maintenir le cœur à une température moyenne au moins égale à la température critique, s’interrompt. La température du combustible augmente du fait de la puissance résiduelle, modélisée comme un terme source de chaleur lors du calcul de la température d’une particule de sel.

Puis la vitesse moyenne s’équilibre à une valeur non nulle, résultant de la mise en place de la convection naturelle. La chaleur résiduelle est modélisée comme une somme d’exponentielles décroissantes décrivant la courbe

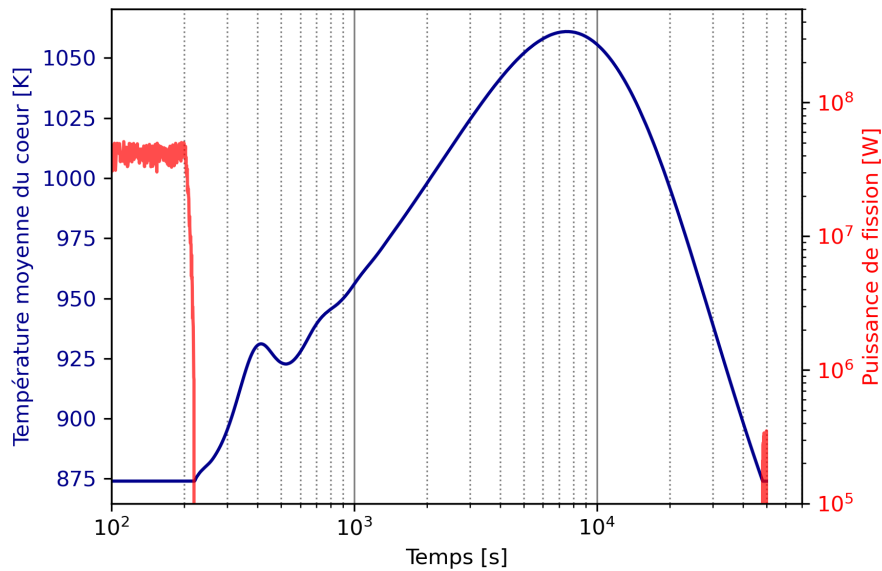


FIGURE 6.13 – Évolutions de la température du cœur et de la puissance de fission pour un transitoire SNCF standard

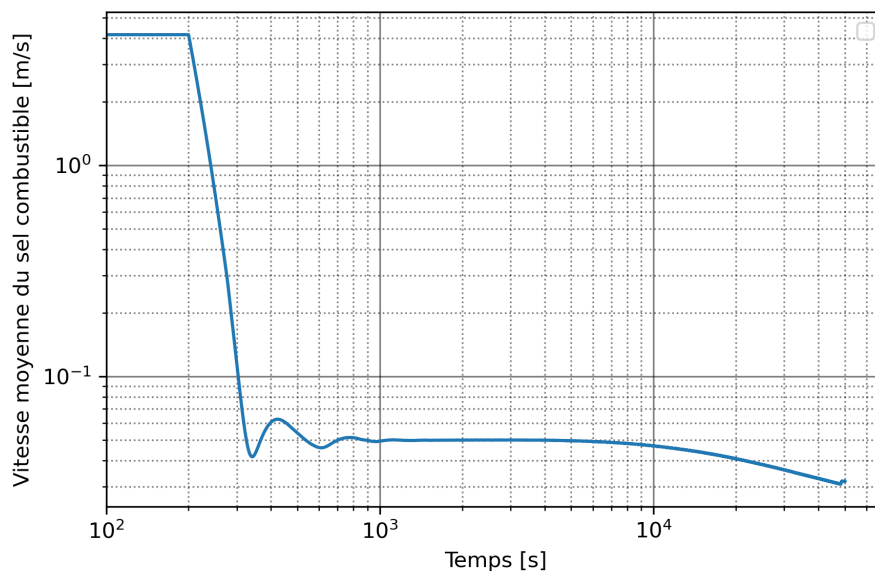


FIGURE 6.14 – Évolution de la vitesse moyenne du sel combustible pour un transitoire SNCF standard

présentée dans la section 5.6.2.1. Tant qu'elle dépasse la capacité d'extraction au niveau de l'échangeur de chaleur, la température moyenne du combustible augmente. Puis cette dernière passe par un maximum, ici 1060K, et diminue progressivement jusqu'à retrouver sa valeur initiale, la température critique. A ce moment, en l'absence de barre de contrôle pour maintenir la sous-criticité, la puissance de fission réapparaît pour compenser l'extraction de chaleur et maintenir le combustible à sa température critique. Ce phénomène évite au passage la solidification du sel dans le cœur. Pour le dimensionnement des boucles EPUr (Évacuation de la Puissance Résiduelle) présenté dans la section suivante, le critère d'acceptation d'une configuration retenu est la température moyenne maximale atteinte dans le combustible.

6.2.2.2 Études préliminaires d'optimisation des boucles EPUr

Des études systématiques ont été effectuées sur les deux systèmes avec pour variables sur chaque boucle à l'exception du circuit combustible :

- les hauteurs des boucles ;
- les diamètres hydrauliques des conduits ;

- les sections des échangeurs modifiant le ratio $\frac{\text{Section du canal}}{\text{Périmètre mouillé}}$ à diamètre hydraulique fixé ;
- les surfaces d'échange (ajouts de plaques).

Les valeurs par défaut pour les deux concepts de MSFR sont présentées dans le tableau 6.4[89]. Dans ce tableau, l'échangeur associé à une boucle désigne celui dans lequel le circuit dépose sa chaleur (IHX pour le circuit combustible, BHX pour le circuit intermédiaire, AHX1 pour le circuit d'air dans le bâtiment réacteur). Les valeurs de la boucle combustible sont invariantes et fournies par le code SONGe.

TABLE 6.4 – Paramètres thermohydrauliques de référence pour les boucles dans le code SNCF [89]

-	MSFR de référence	MSFR-Cl (60m ³)
Boucle combustible	-	-
Diamètre hydraulique conduits [m]	0.26	0.3
Section de passage dans l'échangeur [m]	0.26	0.3
Diamètre hydraulique des canaux [m]	0.00462	0.00552
Surface d'échange [m ²]	388	176
Boucle intermédiaire	-	-
Diamètre hydraulique conduits [m]	1	1
Section de passage dans l'échangeur [m]	1.57	1.57
Diamètre hydraulique des canaux [m]	0.02626	0.02626
Surface d'échange [m ²]	480	480
Boucle du bâtiment réacteur	-	-
Diamètre hydraulique conduits [m]	1	1
Section de passage dans l'échangeur [m]	1.57	1.57
Diamètre hydraulique des canaux [m]	0.02626	0.02626
Surface d'échange [m ²]	480	480
Boucle air extérieur	-	-
Diamètre hydraulique conduits [m]	1	1

Le résultat de ces études préliminaires pour le MSFR de référence est présenté sur la figure 6.15, et celles pour la configuration du MSFR-Cl avec 60m³ de sel combustible est présenté sur la figure 6.16. Les points sont annotés avec les hauteurs des 3 boucles (intermédiaire, air bâtiment réacteur, air extérieur (cheminée)). Ces figures sont centrées sur une sous-partie de l'espace des phases, celles montrant les configurations les plus performantes, pour des raisons de lisibilité. Les graphes complets sont disponibles en Annexe C.

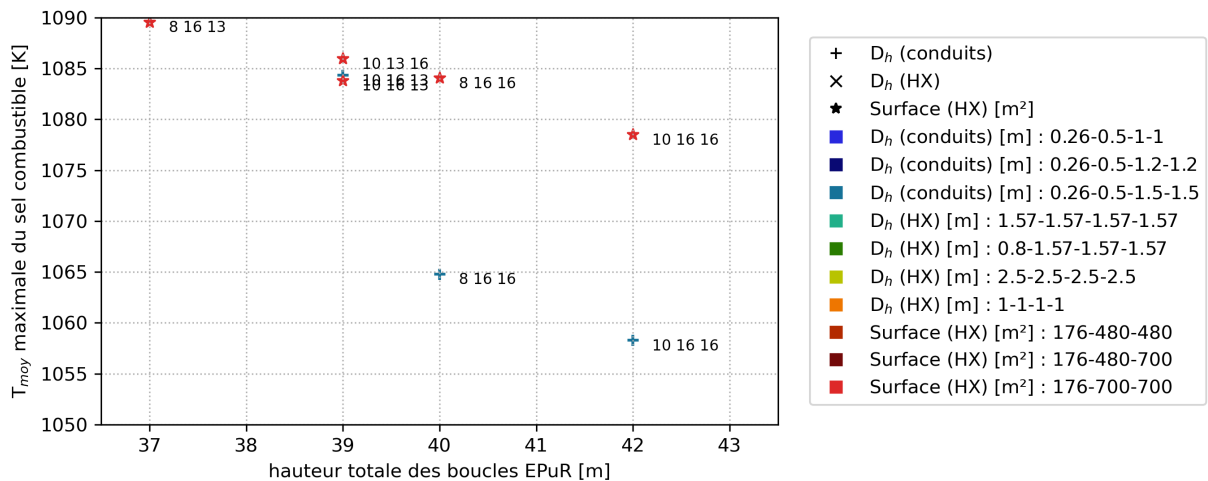


FIGURE 6.15 – Température moyenne maximale atteinte pendant le transitoire en fonction de la géométrie des boucles pour le MSFR de référence [89]

Les températures moyennes maximales atteintes pour les meilleures configurations testées dans ces études sont respectivement de 1025K pour le cas chlorure (bâtiment réacteur de 19m dont la boucle de sel intermédiaire de 9m) et 1058K pour le cas fluorure (bâtiment réacteur de 26m dont la boucle de sel intermédiaire de 10m). L'enceinte de confinement des réacteurs commerciaux français dépasse 40m [14], il semble donc possible d'obtenir des températures plus basses au prix de boucles plus hautes, d'un volume de sel intermédiaire plus important

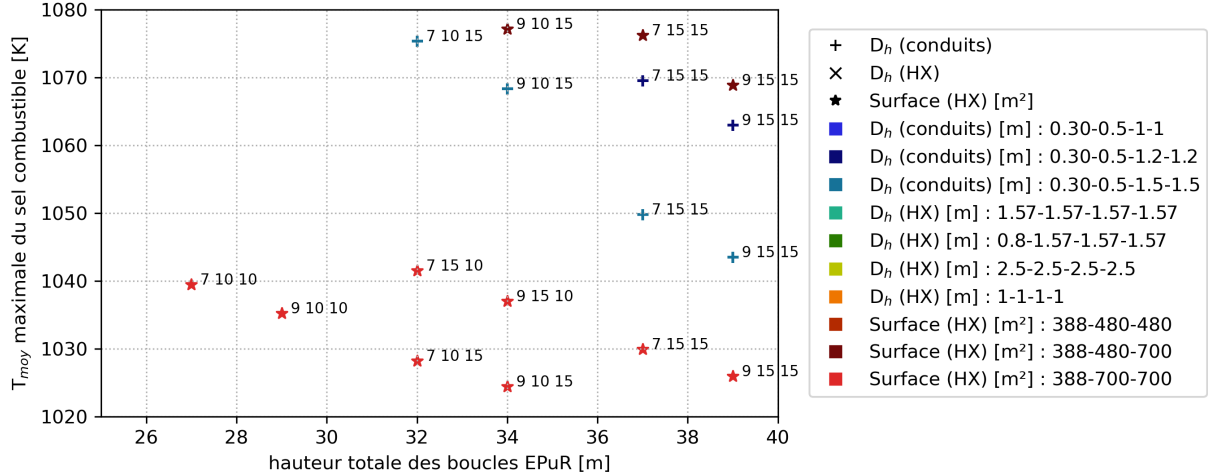


FIGURE 6.16 – Température moyenne maximale atteinte pendant le transitoire en fonction de la géométrie des boucles pour le MSFR-Cl avec 60m³ de sel combustible [89]

et de pressions plus importantes dans les boucles.

Dans le cas du chlorure, le vase a été pré-dimensionné pour accueillir un volume de sel correspondant à une température moyenne de 975K (voir section 4.4.1.4). Sachant que pour une même puissance résiduelle, un sel combustible de 45m³ verra sa température augmenter davantage qu'un sel combustible de 60m³ toute chose égale par ailleurs ($E = mC_p\Delta T$, pour une même énergie déposée, si la masse de sel diminue l'écart de température augmente), la convection naturelle ne permet pas de conserver tout le sel combustible dans son circuit avec ces configurations. Plus d'études seront nécessaires pour s'assurer de la faisabilité de la convection naturelle pour le MSFR-Cl. Il est envisageable de dimensionner le vase pour accueillir le sel à une certaine température moyenne maximale définie par rapport aux capacités des boucles EPuR choisies, tout en s'assurant de la sous-criticité du système quelque soit son niveau de remplissage.

Pour le MSFR de référence, la température de 1058K correspond à une augmentation de 83K par rapport à sa température d'opération de référence de 975K. Compte tenu de la plus faible dilatation du sel fluorure, cela se traduit par un volume supplémentaire de 0.33m³ (calcul ci-dessous, corrélation de la masse volumique dans la table 6.2).

$$V_{\text{sel}} \cdot \left(\frac{\rho_{\text{sel}}(T = 975K)}{\rho_{\text{sel}}(T = 1058K)} - 1 \right) = 18 \left(\frac{4123}{4050} - 1 \right) = 0.33\text{m}^3$$

Le MSFR de référence n'a pas de vase d'expansion dimensionné à ce jour. En prenant les mêmes hypothèses que le MSFR-Cl, soit un vase de même rayon que celui du coeur (1.125m), l'accueil de 0.33m³ de sel combustible supplémentaire se traduit par une augmentation de hauteur dans le vase de 8cm. Dans les conditions envisagées (pertes des pompes, disponibilité des sels combustible et intermédiaire, disponibilité des boucles EPuR), l'évacuation de la puissance résiduelle par convection naturelle est une option réaliste et attractive pour le MSFR de référence.

6.3 Conclusion sur les études de transitoires

Dans ce chapitre, les deux codes systèmes LiCore et SNCF ont été utilisés pour modéliser différents transitoires. Le code LiCore a d'abord été employé pour calculer des insertions de réactivité de 1 à 1000pcm/s, et de 1000pcm sur des durée de 0.001s à 1s. Le MSFR-Cl montre une grande résilience avec un retour à un état stable en moins de 100s malgré des passages en régime sur-critique prompt pour les rampes de 1000pcm en 0.001s et 0.01s. Pour la rampe la plus extrême, il est probable que la modélisation du code LiCore ne soit plus adaptée et que des outils capables de modéliser le comportement du sel soumis à de telles vitesses de variation de température soient nécessaires. La comparaison avec le MSFR de référence montre que les deux systèmes ont un comportement similaire. Les différences dans les paramètres neutroniques et thermodynamiques entre les sels combustibles provoquent, pour le MSFR-Cl, des extrema de puissance moins élevés, et des oscillations de puissance et de réactivité plus marquées et plus longues à dissiper.

Les calculs de suivi de charge avec le code LiCore montrent que les deux systèmes n'ont aucune difficulté à

suivre la demande. Pour le cas d'un passage de 1.5GW à 3GW en 30s (qui représente une variation plus rapide que les capacités de suivi demandées aux réacteurs actuels), le transitoire s'effectue sans variation significative des températures du circuit combustible.

Le dernier type de transitoire testé avec le code LiCore porte sur l'accident de sur-refroidissement à basse puissance. Une injection de combustible froid lorsque la population neutronique initiale est faible en coeur peut provoquer un passage en régime surcritique prompt avant que l'élévation de température engendrée par l'augmentation des fissions ne provoque la réponse des contre-réaction thermiques. C'est ce qui est observé pour des extractions instantanées de 3GW avec une puissance initiale inférieure à 10MW. Ceci engendre sur le MSFR-CI une fluctuation de température moyenne maximale de 70K mais le système retrouve à nouveau un état stationnaire en moins de 100s. La comparaison avec le MSFR de référence montre pour ce dernier un dépôt de puissance environ trois fois plus important pour une puissance de départ de 1kW suivie d'une extraction de 3GW : ceci induit une élévation de température plus élevée, malgré la meilleure qualité de sels fluorures en tant que caloporteur.

Plus généralement, les études avec le code LiCore montrent que les deux systèmes ont un comportement excellent même pour des transitoires accidentels (au moins tant que le sel combustible et l'extraction de chaleur à l'échangeur sont disponibles) en étant capables de revenir à un état stationnaire en moins de 100s. Dans ces études, les différences sur les paramètres neutroniques et thermodynamiques entre les sels combustibles conduit le MSFR-CI à des extrema plus faibles en puissance et en température, au prix de fluctuations plus persistantes avec un brassage moins important du sel combustible.

L'évacuation de la chaleur résiduelle par convection naturelle a fait l'objet d'études préliminaires avec le code SNCF, avec pour objectif le pré-dimensionnement des boucles EPuR. En admettant une perte du circuit de convection mais la disponibilité du sel intermédiaire, les calculs réalisés par Max Begue dans le cadre de son stage indiquent qu'il est possible de conserver le sel combustible dans son circuit à une température moyenne de l'ordre de 1050K, pour les cas étudiés, sur les deux systèmes, avec des boucles de sel intermédiaires d'environ 10m de hauteur. Les boucles d'air associées placées dans le bâtiment réacteur sont largement compatibles en termes de hauteur (total de 19m avec le MSFR-CI et 26m avec le MSFR de référence pour les cas étudiés) avec les enceintes de confinement actuelles (hauteur supérieure à 40m), suggérant qu'il est possible d'améliorer encore l'extraction de chaleur. Ces études mettent également en évidence l'importance du vase d'expansion, en particulier pour le MSFR-CI (le MSFR de référence a un volume de sel plus faible et une dilatation moins importante). Le pré-dimensionnement actuel du vase d'expansion du MSFR-CI a été conçu pour accueillir le sel combustible à une température moyenne maximale de 975K, loin des 1050K obtenus dans ces études. Dans l'optique où l'on souhaite conserver cette stratégie d'évacuation de la puissance résiduelle, dimensionner le vase par rapport aux insertions de réactivité acceptables n'est pas suffisant : il faudra ajuster sa taille par rapport à la capacité d'extraction de chaleur du dimensionnement final des boucles EPuR.

Chapitre 7

Scénarios d’insertion du réacteur MSFR-CI dans des parcs de type français

Dans ce chapitre, l’impact de l’insertion du MSFR-CI dans un parc de réacteurs de type français est évalué du point de vue des matières, et comparé à celui du MSFR de référence. Quelques scénarios mondiaux sont explorés en annexe D. Ces études préliminaires ont pour but d’estimer la capacité de déploiement des deux concepts et leur impact sur les inventaires, d’une part pour la consommation des ressources naturelles, d’autre part pour la gestion des combustibles usés.

Sommaire

7.1	Demande électrique considérée	127
7.2	Scénario de référence : REP utilisant du combustible UOX et MOX	127
7.3	Scénarios avec MSFR	129
7.4	Conclusion sur les études de scénarios	133

7.1 Demande électrique considérée

La demande se base sur la construction historique de réacteurs dans le pays, puis s'appuie un travail effectué par le gestionnaire national du réseau, RTE. Dans son rapport de 2021 "Futurs Énergétiques" [112], RTE propose un certain nombre de scénarios pour la demande électrique française en 2050. Le scénario avec la plus forte demande, soit le scénario "Hydrogène+" avec 754TWh en 2050, est choisi ici pour maximiser l'impact sur les besoins en matières. La part historique du nucléaire dans le mix électrique français est de l'ordre de 70%, cette valeur est conservée pour 2050.

La demande électrique pour 2100 est postulée à 1000TWh avec une contribution du nucléaire à hauteur de 60%. Ces valeurs sont arbitraires, elles supposent une augmentation liée à l'électrification, la production significative d'hydrogène par électrolyse, et de nouveaux usages. La baisse relative de la part du nucléaire dans le mix électrique fait l'hypothèse d'une optimisation du réseau permettant un haut taux de pénétration des énergies renouvelables (partiellement intermittentes) qui représentent les 40% restants. La demande est ensuite maintenue à une valeur constante pour atteindre un état stationnaire au niveau du parc, puis elle chute à zéro pour permettre de déterminer les inventaires finaux.

La traduction en puissance installée est faite de la manière suivante :

$$\text{Puissance installée} = \frac{\text{Production totale exigée} \cdot \text{Part du nucléaire}}{\text{Facteur de charge moyen}}$$

Le tableau 7.1 présente l'application numérique pour 2050 et 2100. Hypothèse est faite d'une croissance linéaire entre les valeurs de 2050 et 2100.

TABLE 7.1 – Calcul de la puissance installée requise pour le scénario de type français

Facteur de charge moyen	83%
Énergie générée par 1 GW _e par an	8.76 TWh
Production effective d'1 GW _e par an	7.27 TWh
Demande en 2050	754 TWh
Part du nucléaire	70%
Production requise du nucléaire	528 TWh
Puissance installée requise	73 GW _e
Demande en 2100	1000 TWh
Part du nucléaire	60%
Production requise du nucléaire	600 TWh
Puissance installée requise	83 GW _e

7.2 Scénario de référence : REP utilisant du combustible UOX et MOX

Dans cette première étude, le parc n'est constitué que de réacteurs d'1GW_e utilisant du combustible UOX ou MOX, et les réacteurs MOXés fonctionnent avec 100% de MOX. Les caractéristiques simplifiées de ces réacteurs sont renseignées dans le tableau 7.2. Les valeurs sont moyennées par an en supposant des cycles de 1.5 ans et un facteur de charge de 83% [113]. La masse de départ est une moyenne faite sur des REP allant de 900MW_{th} à 1650MW_{th} [14]. Les flux sont basés sur les valeurs de cette référence [8] (p266) renormalisées pour 1GW_e. L'écart de masse entre le flux d'entrée et le flux de sortie représente les PF.

TABLE 7.2 – Caractéristiques des REP utilisés pour les scénarios

Réacteur	Entrée	Sortie
REP UOX	UOX : 16.705 t/an	TRU UOX usé : 0.214 t/an ; URT-U : 15.636 t/an
REP 100% MOX	MOX : 16.706 t/an	TRU MOX usé : 1.252 t/an ; URT-M : 14.657 t/an

Dans le code SDF/ISF, il n'est pas possible, une fois un réacteur démarré, de changer son type de combustible pendant sa durée de fonctionnement. Aussi, pour ajouter de la souplesse au code, la durée de vie des REP est artificiellement réduite à 30 ans. A puissance installée constante, ceci s'interprète comme un changement de combustible dans un même réacteur et non comme la construction d'un nouveau site après démantèlement du précédent. L'hypothèse erronée que tous les réacteurs peuvent utiliser du combustible MOX est faite implicitement, mais ne pose pas de problème ici car il n'y a jamais assez de ce combustible pour que tous les réacteurs

en utilisent simultanément.

Dans cette simulation, les réacteurs MOXés démarrent à partir de 2000 et sont prioritaires pour consommer le plus possible les TRU issus des combustibles UOX usés. Ceci conduit au déploiement du parc représenté sur la figure 7.1. Sans contrainte sur l'uranium naturel disponible pour le pays, la production suit toujours la demande. Le nombre de réacteurs utilisant du combustible MOX représente 9 GW_e à l'état stationnaire, soit 10.5% du de la puissance installée.

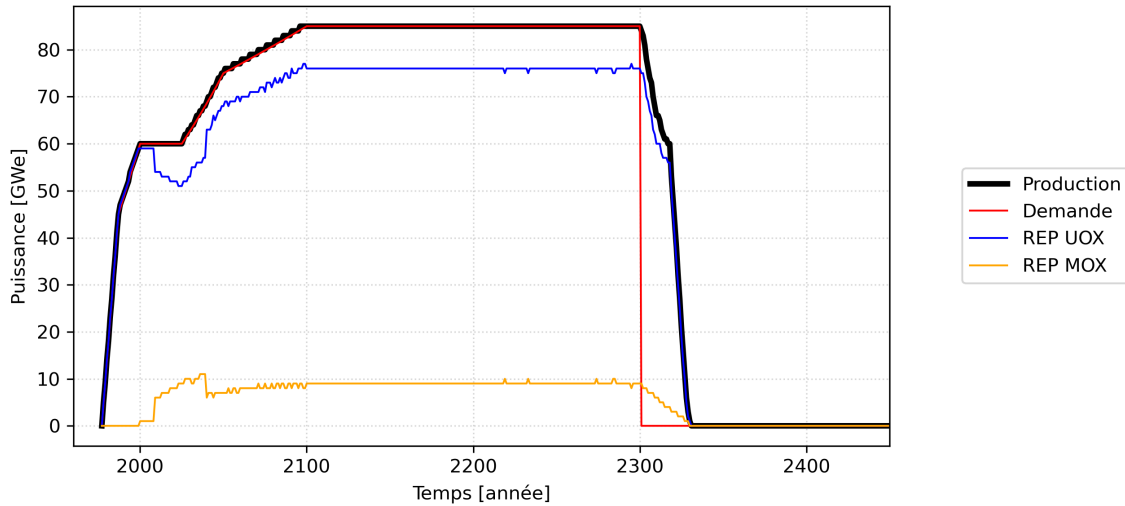


FIGURE 7.1 – Évolution d'un parc de type français basé exclusivement sur des REP

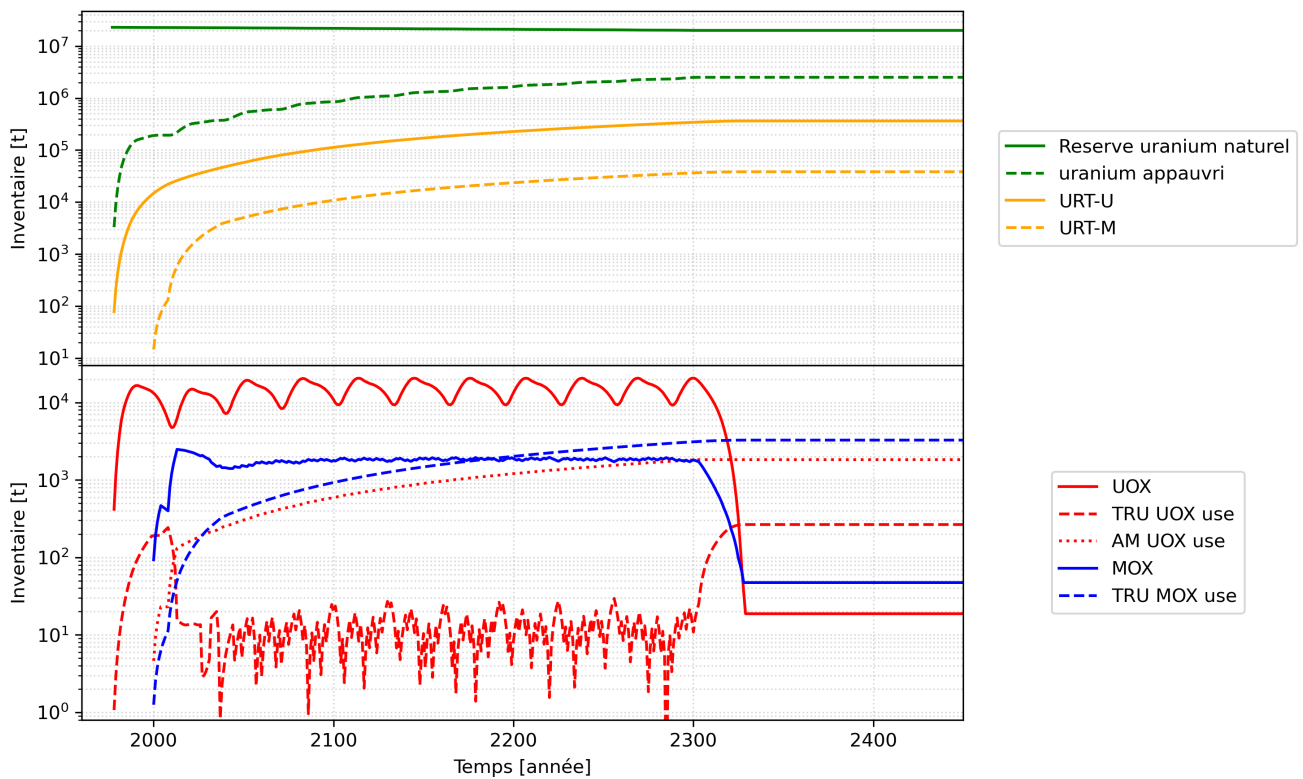


FIGURE 7.2 – Évolution des inventaires d'un parc de type français basé exclusivement sur des REP

La figure 7.2 représente l'évolution des inventaires. L'uranium appauvri est utilisé pour produire du combustible MOX, ce qui explique les fluctuations de son stock. Les combustibles sont fabriqués pour être consommés directement, aussi les inventaires d'UOX et de MOX sont constants (20kt et 2kt) pendant l'exploitation des

réacteurs. Les TRU issus des combustibles UOX usés sont utilisés pour la fabrication du MOX, d'où le fait que le stock augmente jusqu'en 2000 puis est régulièrement consommé pour répondre aux besoins des REP MOXés. Les TRU issus des combustibles MOX usés ne sont pas réutilisés, leur stock croît continuellement. Les observables les plus intéressantes du point de vue des matières sont la consommation finale d'uranium naturel et les inventaires finaux en TRU issus des combustibles usés qui, **en 2100**, valent respectivement :

- 997kt d'^{nat}U consommé;
- 19t de TRU issus des combustibles UOX usés + 592t d'AM vitrifiés issus des UOX usés recyclés;
- 926t de TRU issus des combustibles MOX usés.

A ce jour, le stock mondial d'uranium naturel identifié à un coût inférieur à 260\$/kg est de 10.5Mt [114]. Même si ces ressources s'avéraient être sous-estimées, la France représente démographiquement moins de 1% de la population mondiale (70 millions sur 8 milliards d'êtres humains). Il n'est pas du tout certain qu'elle puisse avoir accès à $\approx 10\%$ de la ressource mondiale récupérable estimée à ce jour, d'où le besoin de déploiement de réacteurs surrégénérateurs.

7.3 Scénarios avec MSFR

Dans cette section, les MSFR sont supposés être déployables à partir de 2040, et les deux concepts sont confrontés avec pour objectifs de réduire la consommation d'uranium naturel et l'inventaire de combustibles usés. Les caractéristiques des MSFR utilisés sont fournies dans le tableau 7.3. Pour le MSFR-CI, "1" représente les TRU issus des combustibles UOX usés, et "2" représente les TRU issus des combustibles MOX usés (voir annexe A pour la nomenclature). Le MSFR-CI C-1 F-2 est donc le réacteur dans sa configuration standard. Par ailleurs, ces trois réacteurs peuvent être redémarrés à la fin de leurs 60 ans de fonctionnement. Pour ce faire, le flux de sortie de noyaux lourds du combustible à l'arrêt du réacteur est utilisé comme flux d'entrée pour le réacteur redémarré, et la couverture fertile est prise comme neuve. Les flux pour l'alimentation et l'extraction au cours du fonctionnement sont légèrement ajustés pour correspondre aux bilans de matière fournis par le code REM sur l'exploitation entre 60 ans et 120 ans du réacteur. Pour des raisons de simplification, l'uranium extrait des MSFR-CI est assimilé à l'uranium appauvri, bien qu'en toute rigueur son vecteur soit légèrement différent.

TABLE 7.3 – Caractéristiques des MSFR principaux

Réacteur	Entrée	Sortie
MSFR de ref. démarré avec TRU UOX usé + ^{enr} U (e=13%) (1.45GW _e)	TRU UOX usé : 7.2t ^{enr} U : 24.5t ²³² Th : 30.7t + 1.2 t/an ²³³ U : 25kg/an	²³³ U : 110kg/an ²³² Th : 49.0t TRU sortie MSFR : 13.2t
MSFR de ref. démarré avec ²³³ U (1.45GW _e)	²³² Th : 56.8t + 1.2t/an ²³³ U : 5.1t + 63kg/an	²³³ U : 110kg/an ²³² Th : 52.9t TRU sortie MSFR : 9.2t
MSFR-CI C-1 F-2 (1.45GW _e)	TRU UOX usé : 13.5t + 54kg/an ^{app} U : 98.5t + 1.5t/an TRU MOX usé : 0.56t + 0.9t/an	TRU UOX usé : 1.4t/an ^{app} U : 98.5t TRU ex-MSFR-CI : 13.3t

Les figures 7.3 et 7.5 comparent les deux parcs obtenus. Dans le cas du déploiement des MSFR de référence, les MSFR prennent très efficacement le relais des REP jusqu'à constituer l'intégralité du parc (à 2 REP UOX près) en 2080. Dans le cas du déploiement du MSFR-CI dans sa configuration standard, constat est fait que le système seul n'est pas suffisant pour remplacer les REP, et la puissance installée à l'équilibre représente 14.5GW_e en 2100.

Les figures 7.4 et 7.6 montrent les évolutions des inventaires. L'explication de l'allure du parc avec MSFR-CI se trouve dans l'évolution des stocks de TRU issus des combustibles MOX usés, qui sont en flux tendus entre la production par les REP MOX et la consommation par les MSFR-CI. Cela se voit à l'arrêt du parc où l'inventaire de TRU MOX usé est réduite à environ 40t soit la consommation approximative d'un MSFR-CI sur 60 ans. La stratégie de résistance contre la prolifération conduit à une utilisation importante de ces TRU au point d'empêcher le démarrage de nouvelles unités (voir bilan des inventaires tableau 7.4). C'est un bon résultat en ce qui concerne la réutilisation des combustibles MOX usés mais cela impose une limite au déploiement des MSFR-CI dans cette configuration.

Un défaut de ce scénario réside également dans le stock important de TRU issus des couvertures fertiles des

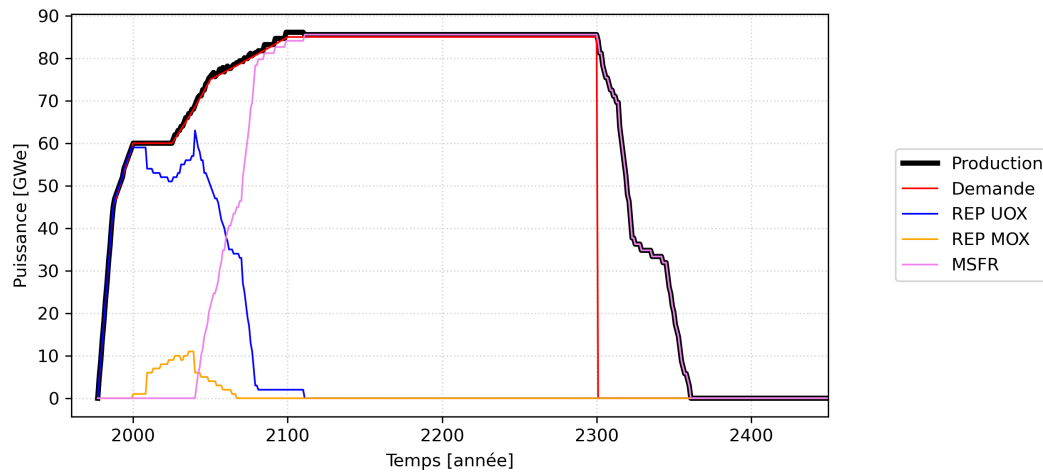


FIGURE 7.3 – Évolution d'un parc de type français avec déploiement des MSFR de référence

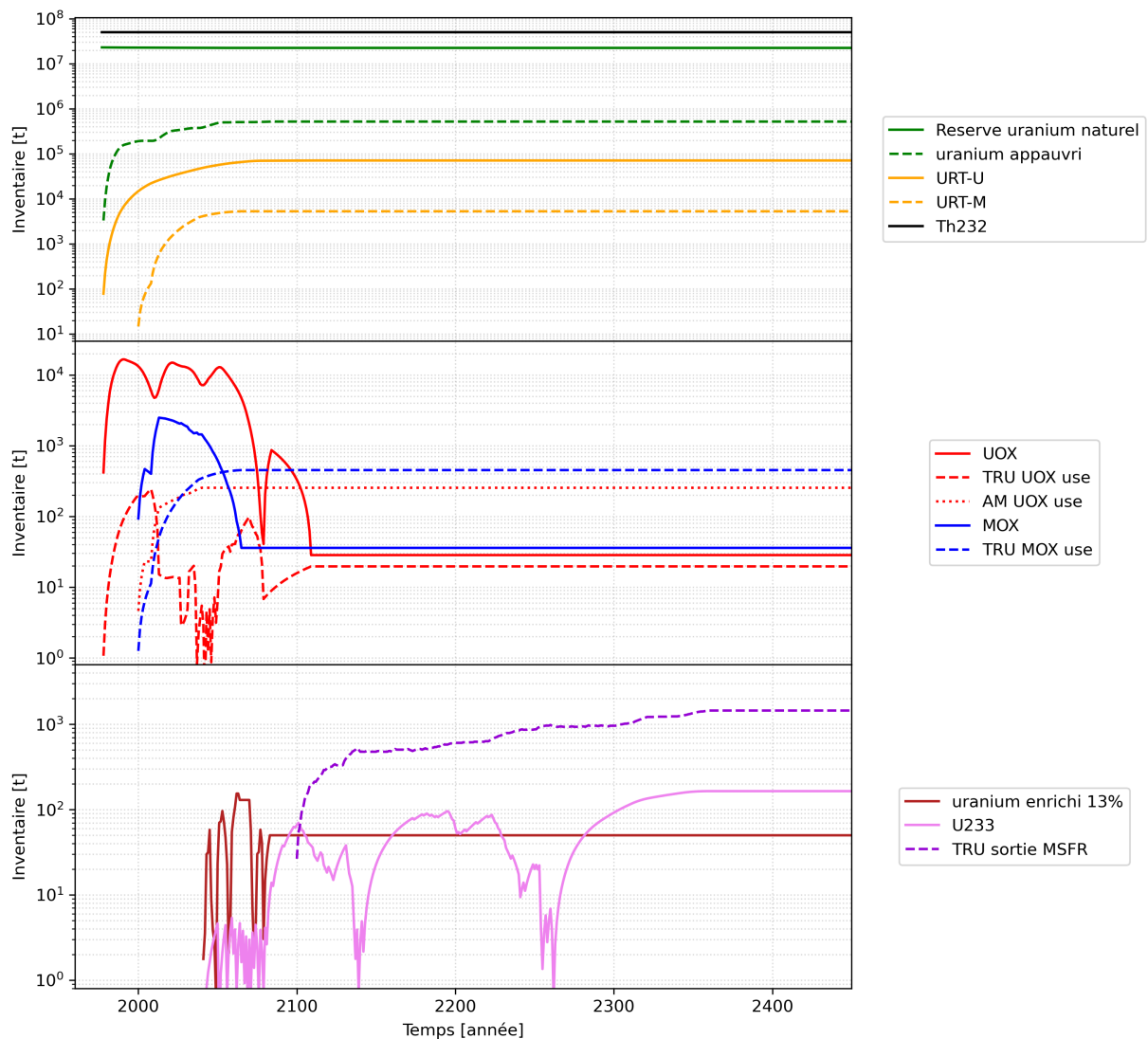


FIGURE 7.4 – Évolution des stocks d'un parc de type français avec déploiement des MSFR de référence

MSFR-Cl qui est sous-exploité ici. Puisque les TRU issus des MOX usés sont limitants et que le vecteur TRU issu des couvertures fertiles s'approche des combustibles UOX usés, on peut s'intéresser au cas où on utilise cette matière pour faire du MOX. La figure 7.7 montre l'évolution du parc ainsi obtenu, la figure 7.8 montre

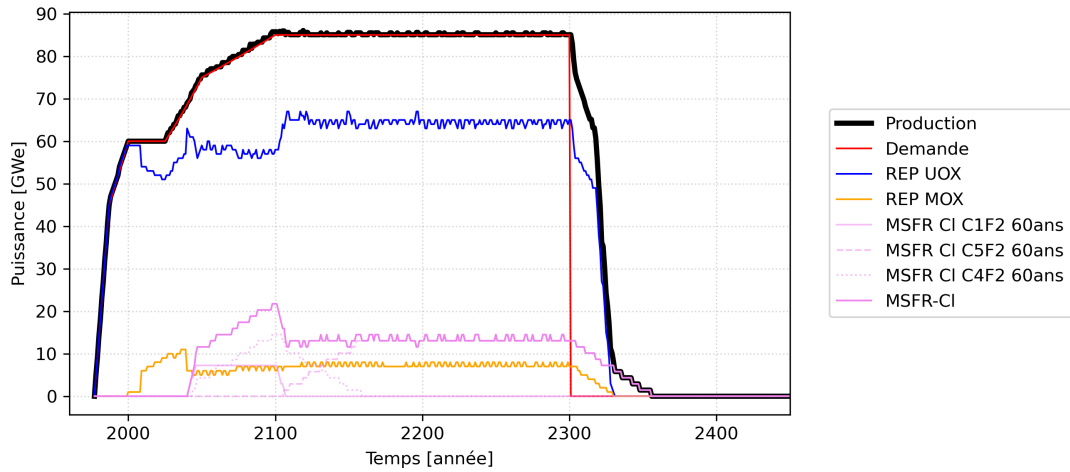


FIGURE 7.5 – Évolution d'un parc de type français avec déploiement des MSFR-CI

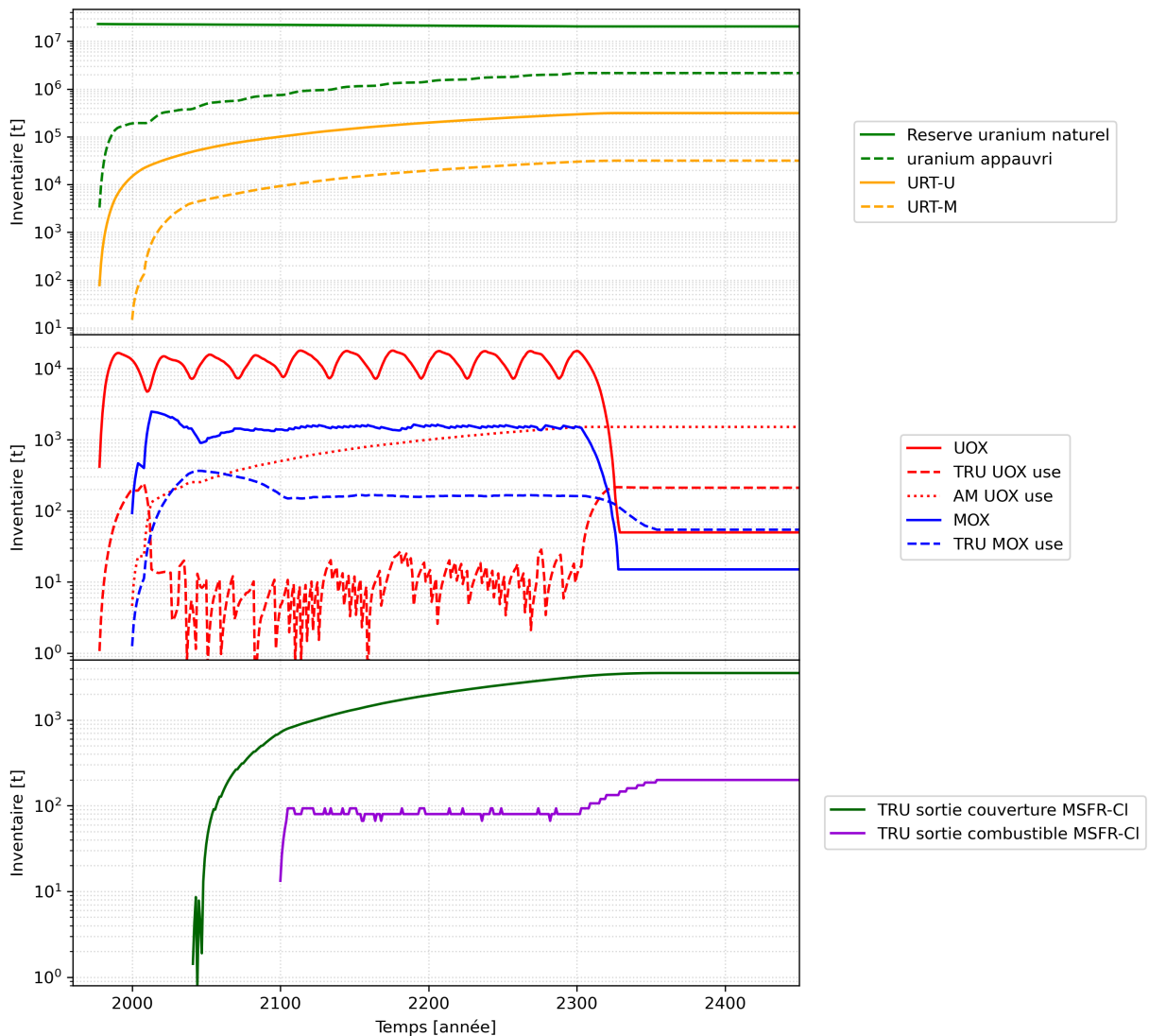


FIGURE 7.6 – Évolution des stocks d'un parc de type français avec déploiement des MSFR-CI

l'évolution des inventaires et le tableau 7.4 fait le bilan des inventaires en 2100.

Avec la fabrication plus importante de MOX, la quantité de MSFR-CI déployés à l'équilibre passe de 10 à 27 réacteurs (14.5GWe à 39.15GWe) et la quantité d'^{nat}U consommée est réduite de 90kt ce qui est une nette

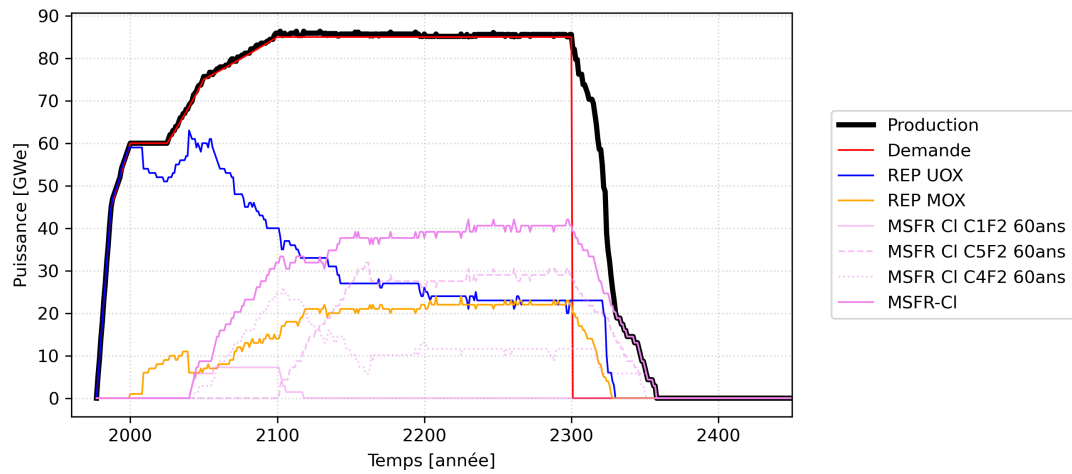


FIGURE 7.7 – Évolution d'un parc de type français avec déploiement des MSFR-CI

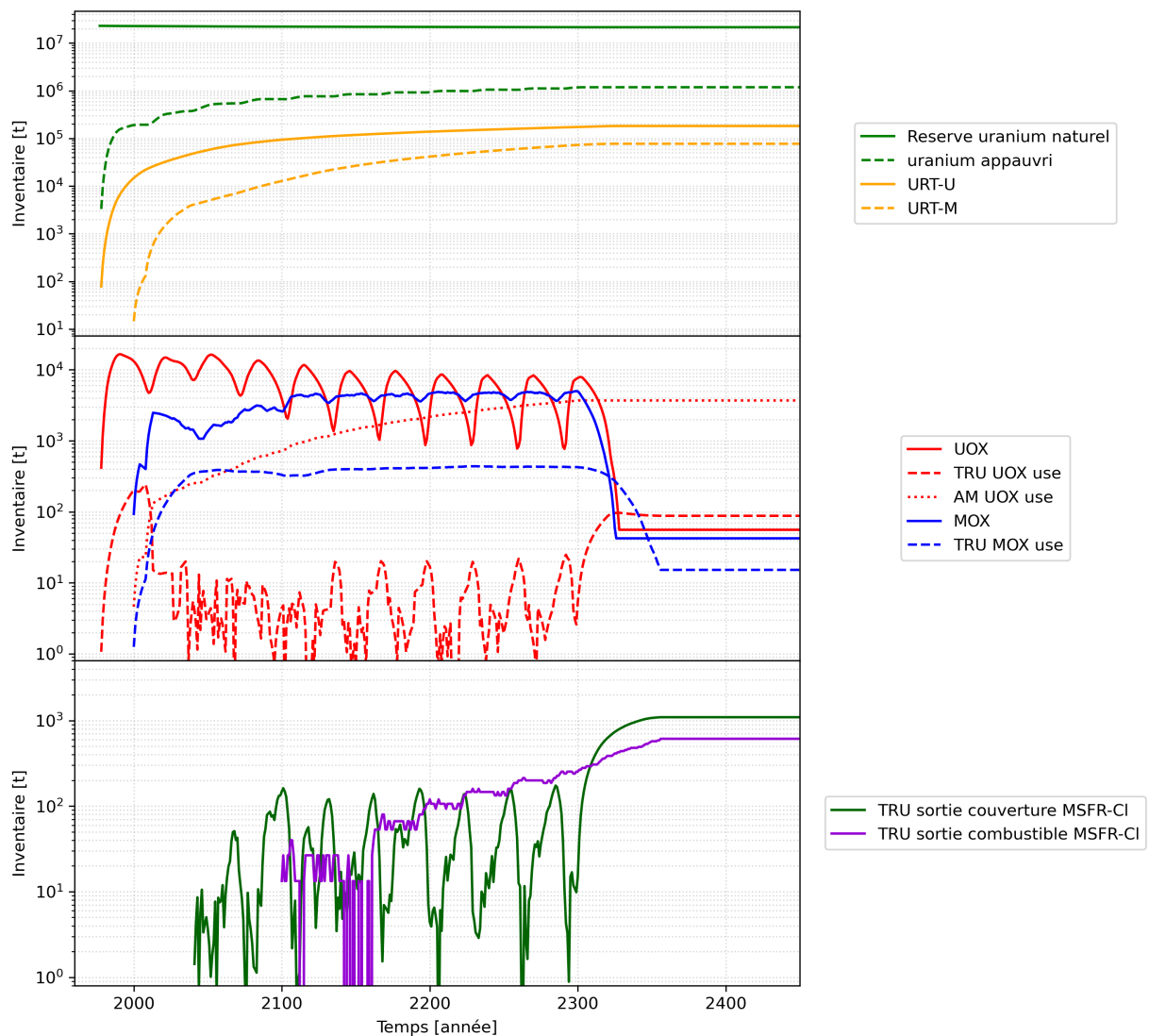


FIGURE 7.8 – Évolution des stocks d'un parc de type français avec déploiement des MSFR-CI

amélioration par rapport au cas précédent. Néanmoins, de ces premiers résultats, plusieurs problématiques émergent :

- le stock de TRU issus des MOX usés n'est pas géré avec le MSFR de référence dans ce scénario ;

TABLE 7.4 – Inventaires en 2100 avec déploiement du MSFR de référence ou des MSFR-CI

Scénario	Conso. d' ^{nat} U	TRU/AM UOX usés	TRU MOX usés	TRU sortie MSFR
Avec MSFR de référence	601kt	16t 254t	451t	26t
Avec MSFR-CI	879kt	5t 501t	168t	13t 715t (couverture)
Avec MSFR-CI MOX+	790kt	5t 718t	331t	13t 148t (couverture)

- la stratégie de résistance à la prolifération empêche un déploiement massif du MSFR-CI ;
- les stocks de noyaux lourds issus des MSFR, quel que soit le concept, restent dans l'inventaire final.

En ce qui concerne la première problématique, il existe des versions du MSFR de référence démarrés avec un mélange ^{233}U + TRU issus des combustibles MOX usés [115]. Ce n'est donc pas une limite du MSFR de référence, il est possible de substituer une partie des réacteurs démarrés uniquement à l' ^{233}U par des réacteurs démarrés avec ledit mélange pour gérer les combustibles MOX usés. Il existe également une version du MSFR de référence incinératrice pour réduire l'inventaire final de ses TRU.

Pour le MSFR-CI, une version incinératrice de même puissance que le modèle surrégénérateur n'a pas fait l'objet de travaux dans le cadre de cette thèse, mais semble envisageable. Des versions incinératrices de puissance intermédiaire ont été conceptualisées. Le concept RAPTOR développé par Laura Mesthiviers [8] est une option possible.

Pour solutionner le problème du déploiement de surrégénérateurs, il faut envisager des alternatives à la stratégie de résistance à la prolifération. L'une d'entre elles basée sur l'utilisation du ^{237}Np (formation de ^{238}Pu par capture qui augmente la résistance à la prolifération) est présentée dans l'annexe D.1.3.1 pour des scénarios mondiaux.

Un dernier point d'intérêt concerne l'inventaire final d'uranium appauvri, renseigné dans le tableau 7.5. De prime abord, il est naturel de penser que les scénarios avec MSFR-CI, qui réutilisent l'uranium appauvri, devraient avoir un inventaire final de cette matière moindre que celui avec MSFR de référence nécessitant de l'uranium enrichi à 13% et n'utilisant pas l'^{app}U. Cependant, les MSFR de référence peuvent substituer tout le parc de REP suffisamment rapidement pour que leur usage nécessitent in fine moins d' ^{235}U . Par conséquent, le scénario avec les MSFR de référence conduit à un inventaire final d'^{app}U 2 fois moindre que le meilleur scénario étudié ici avec les MSFR-CI (518 kt contre 1.19 Mt).

TABLE 7.5 – Inventaires en 2100 avec déploiement du MSFR de référence ou des MSFR-CI

Scénario	Témoin (REP)	Avec MSFR de référence	Avec MSFR-CI	Avec MSFR-CI MOX+
Inventaire final ^{app} U	2.51 Mt	518 kt	2.16 Mt	1.19 Mt

7.4 Conclusion sur les études de scénarios

Dans ce chapitre, à travers des études préliminaires, l'impact du déploiement du réacteur MSFR-CI dans un parc de type français a été estimé et comparé avec le MSFR de référence. Il apparaît que le MSFR de référence prend efficacement le relai des REP. Le MSFR-CI dans sa configuration standard permet l'utilisation de tout le stock de TRU issus des combustible MOX usés, qui devient le facteur limitant et le système seul n'est pas suffisant pour remplacer les REP.

L'état stationnaire montre que le MSFR-CI ne représente au mieux que 46% du parc et nécessite toujours des REP utilisant du combustible MOX (26%) et du combustible UOX (28%).

Une autre voie semble prometteuse du point de vue de la gestion des matières, dans le contexte actuel décrit ci-après. Premièrement, le MSFR de référence propose d'excellentes performances mais on ne dispose pas de sa matière fissile principale, l' ^{233}U . Deuxièmement, le cycle uranium soulève des inquiétudes par la production de sa matière fissile. Troisièmement, les gestionnaires de combustible montrent de l'intérêt pour un réacteur incinérateur à sels chlorures [8, 58, 57] qui offrirait une solution pour éliminer les combustibles usés issus des réacteurs à eau légère actuels.

Il apparaît possible de concevoir un objet adapté à ce contexte : un réacteur à cœur incinérateur gérant les combustibles usés actuels, à couverture fertile thoriée pour produire l' ^{233}U et faciliter la transition d'un cycle à l'autre. Les études préliminaires de conception de ce réacteur feront l'objet du chapitre suivant.

Chapitre 8

Modèle alternatif : le SyRE

En se basant sur les résultats des études de scénario en ce qui concerne les besoins en matière fissile, et en prenant en compte l'intérêt porté par les gestionnaires de combustible pour un petit réacteur à sels fondus incinérateur, ce chapitre s'intéresse à un incinérateur à couverture fertile thoriée baptisé Système pour le Recyclage et l'Exploitation, ou SyRE. Comme son nom le suggère, son objectif est l'incinération en coeur des combustibles usés issus du cycle uranium, tout en préparant une transition vers le cycle thorium en produisant en couverture fertile le combustible associé, l' ^{233}U . Après une présentation des choix principaux, des études préliminaires de dimensionnement reprenant les méthodes présentées lors des précédents chapitres sont proposées. Pour finir, l'utilité du système est estimée à travers des études préliminaires de déploiement dans un parc de type français.

Sommaire

8.1	Contexte	136
8.2	Choix principaux	136
8.3	Dimensionnement et optimisation de la couverture fertile	136
8.4	Conception du circuit contenant le sel combustible	139
8.4.1	Définition des critères pour un incinérateur	139
8.4.2	Impact de la puissance volumique	140
8.4.2.1	Inventaire initial et précurseurs	141
8.4.2.2	Critères sur l'incinération et le taux de capture sur le thorium	142
8.4.3	Dimensionnement des protections neutroniques des échangeurs de chaleur	144
8.4.4	Utilisation du B_4C comme piège à neutrons thermiques	144
8.4.5	Dimensionnement du vase d'expansion	146
8.4.6	Utilisation du combustible UOX usé	148
8.5	Scénarios pour un parc de type français	149
8.5.1	Déploiement des SyRE sans MSFR	149
8.5.2	Déploiement des SyRE puis des MSFR de référence	150
8.5.3	Arrêt anticipé de la production de MOX	150
8.6	Conclusion des études préliminaires	150

8.1 Contexte

Une des problématiques des REP, notamment pour l’acceptabilité sociale, est la gestion des combustibles usés qu’il produit. Tous les pays à l’exception de la Russie et de la France¹ ont fait le choix de ne pas retraiter le combustible, et accumulent donc des combustibles UOX usés. Pour des raisons notamment politiques, la France a délaissé sa filière de réacteurs caloportés sodium, a choisi de faire usage du combustible MOX dans ses REP pour stabiliser son inventaire en plutonium, et accumule des combustibles MOX usés. Récemment, une des solutions à l’étude est l’utilisation d’un RSF de type incinérateur, mais cela revient à réduire l’inventaire en matière fissile dans un contexte où elle pourrait venir à manquer si l’énergie nucléaire est massivement choisie pour substituer les énergies fossiles.

Par ailleurs, la régénération et le retraitement du combustible en cycle uranium est controversé car il mène à la production de ^{239}Pu proliférant. Le cycle thorium soulève moins d’inquiétudes, et du fait du nombre de masse plus faible de ses matières principales (232 et 233 contre 238 et 239), conduit à une production moindre d’actinides mineurs, en particulier dans des réacteurs rapides comme le MSFR de référence. De plus, certains pays n’ont pas de ressources en uranium mais possèdent des gisements ou des stocks de thorium dont ils souhaiteraient faire usage. Le défaut du cycle thorium est que l’isotope fissile associé, le ^{233}U , ne se trouve pas dans la nature. Il faut le produire à partir du ^{232}Th .

En partant de ces constats, il apparaît que l’outil idéal pour un gestionnaire de combustible nucléaire serait un réacteur capable de convertir les combustibles usés du cycle uranium en combustible neuf pour le cycle thorium. C’est le point de départ pour la conception du réacteur SyRE (Système pour le Recyclage et l’Exploitation), objet de ce chapitre. Une façon de faire est de séparer la partie incinération de la partie production de combustible neuf : on choisit donc comme base un coeur incinérateur en cycle uranium, couplé à une couverture fertile contenant du thorium.

8.2 Choix principaux

En ce qui concerne le sel combustible, on choisit de s’appuyer sur les travaux effectués par L. Mesthiviers [8] et d’utiliser le sel ternaire $\text{NaCl-MgCl}_2\text{-(TRU)Cl}_3$. Les TRU pourront provenir des combustibles UOX usés, des MOX usés, ou bien être un mélange des deux. Deux sels fertiles sont étudiés : le sel NaCl-ThCl_4 et le sel LiF-ThF_4 . La résistance à la prolifération n’est pas étudiée en détail ici, hypothèse est faite que la stratégie envisagée pour le MSFR de référence (voir section 2.2.1.4) est applicable.

Le matériau servant d’élément de structure sera l’acier 316H. Pour réduire l’inventaire en sel fertile et maximiser son usage, il est envisageable de modérer le spectre de la couverture fertile avec du MgO . Pour éviter d’adoucir le spectre dans le combustible et minimiser l’insertion de réactivité en cas de perte du sel fertile, du B_4C peut être placé entre les deux sels pour servir de filtre “passe-haut” vis-à-vis des neutrons incidents et de leur énergie (le B_4C étant très efficace pour absorber les neutrons thermiques). Ceci reprend le principe de la configuration “MB” d’un des incinérateurs de plutonium étudiés par L. Mesthiviers [8] (p168). En revanche, les neutrons sortant du coeur et capturés par le B_4C ne sont plus disponibles pour la couverture fertile, ce qui diminuera la conversion. Le B_4C servira de protection neutronique pour le ou les échangeur(s) de chaleur.

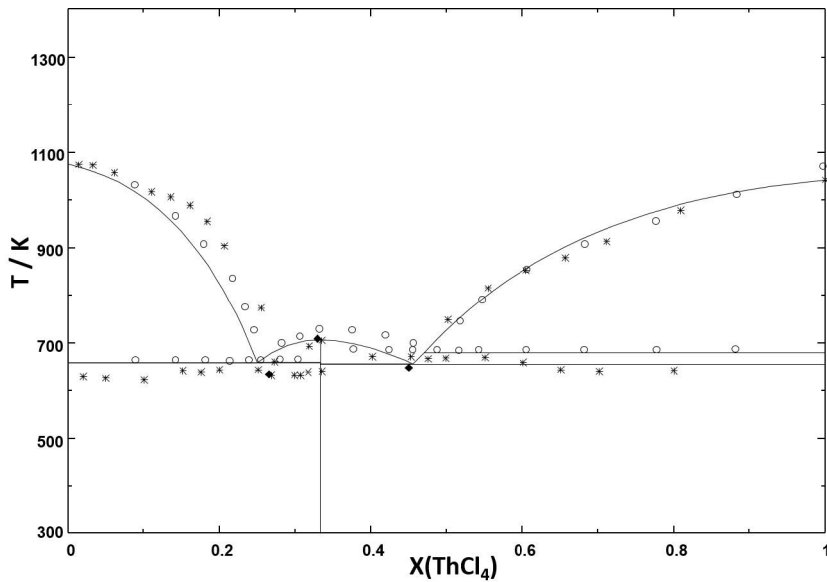
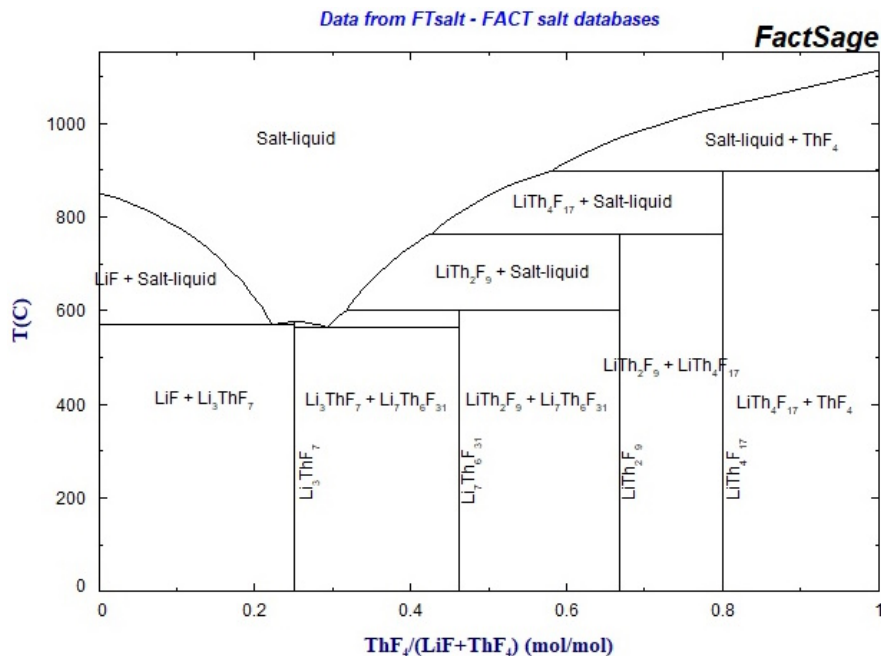
Pour éviter les contraintes liées à un réacteur de puissance (puissance résiduelle élevée notamment), la puissance totale du réacteur est arbitrairement limitée à 300MW_{th} , il est donc catégorisable comme AMR (Advanced Modular Reactor).

8.3 Dimensionnement et optimisation de la couverture fertile

Les diagrammes binaires du sel NaCl-ThCl_4 et du sel LiF-ThF_4 sont présentés par les figures 8.1 et 8.2. On choisit pour chaque sel au démarrage la composition eutectique qui maximise la teneur de thorium, soit la composition $(54\text{mol}\%)\text{NaCl}\text{-(}46\text{mol}\%)\text{ThCl}_4$ pour le premier et $(77.5\%)\text{LiF}\text{-(}22.5\%)\text{ThF}_4$ (le sel $(71\%)\text{LiF}\text{-(}29\%)\text{ThF}_4$ serait peut être plus intéressant mais il y a moins de données disponibles à son sujet, notamment sur les propriétés thermodynamiques).

Plusieurs approches sont possibles ensuite, la méthode retenue a été de fixer une épaisseur totale pour le secteur et d’optimiser ensuite ses différents constituants que sont les zones de sel fertile, de modérateurs et de

1. Le Japon a souhaité recycler le combustible sur le modèle français, mais ne possède pas toutes les installations pour le faire à ce jour

FIGURE 8.1 – Diagramme binaire du sel NaCl-ThCl₄ [116]FIGURE 8.2 – Diagramme binaire du sel LiF-ThF₄ [117]

protections neutroniques. Dans cette section, le coeur utilisé est celui du RAPTOR [8], soit un coeur orthocylindrique de 2m³ (correspondant à un rayon de 68cm). Un volume de 2.5m³ est ajouté pour les boucles de recirculation (2m³ dans la version originale, auxquels on ajoute 0.5m³ pour compenser l'augmentation de la longueur des plenums liés à l'épaisseur de la couverture fertile ici). Le circuit contenant le sel combustible sera optimisé dans la section 8.4.

Dans un premier temps, les critères considérés pour optimiser la couverture fertile sont le taux de capture absolu sur le ²³²Th et le volume de sel fertile. La figure 8.3 montre les cartes de spectre obtenues selon le sel fertile utilisé, pour une couverture fertile de 1m d'épaisseur (de rayon r=70cm à r=170cm), . Le spectre est bien plus thermalisé avec le sel fluorure (carte de droite) avec le déplacement de la zone rouge (flux élevé) vers la zone épithermique, et le peuplement de la zone d'énergies comprises entre 10meV et 1eV (bas de la carte). En lien avec cela, avec le sel fluorure, le flux décroît rapidement avec le rayon, avec les zones de haut flux (rouge/orange) qui disparaissent entre 110cm et 130cm de rayon, là où elles sont toujours présentes en sortie de couverture avec le sel chlorure.

Ces évolutions de flux sont directement corrélées avec les taux de capture sur le ²³²Th représentés sur la

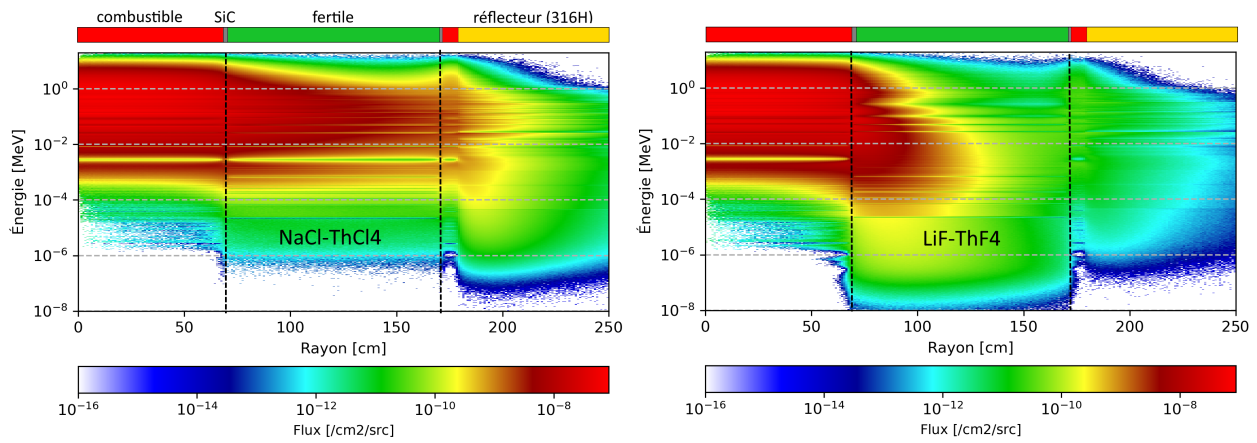
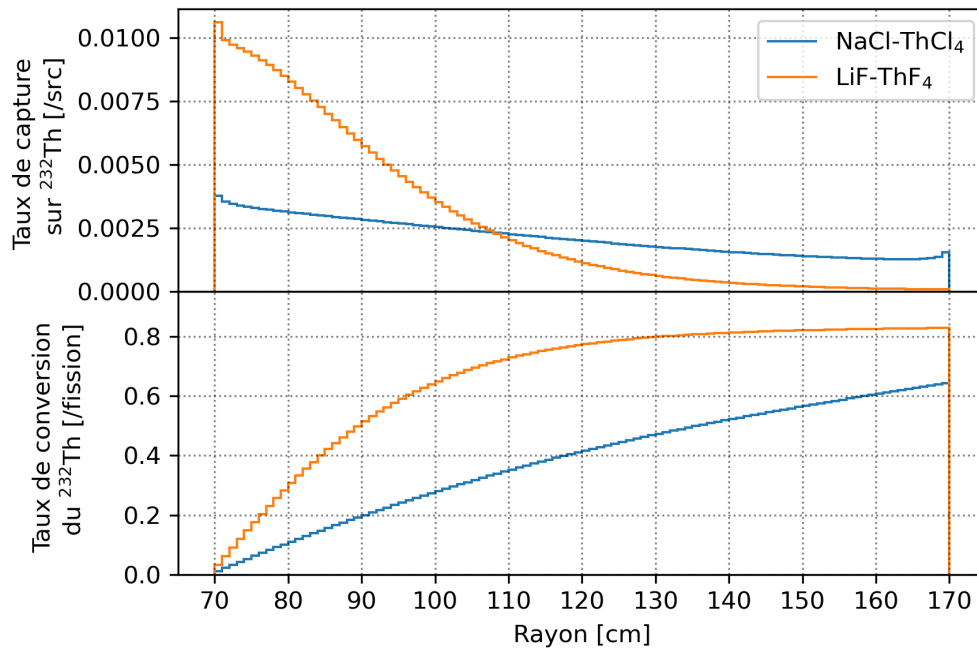


FIGURE 8.3 – Cartes de spectre pour le réacteur suivant le sel fertile

figure 8.4. Il apparaît clairement ici que, pour la couverture fertile, le sel LiF-ThF₄ est plus intéressant : malgré une fraction molaire de Th plus faible que pour le sel NaCl-ThCl₄, le premier permet un taux de capture plus élevé et une meilleure compacité du système. Le taux de conversion du thorium est fourni par fission (taux de capture cumulé par source $\times \bar{\nu}$) et montre que pour un noyau lourd fissionné dans le sel, moins de 1 noyau d'²³³U sera produit. Néanmoins la matière fissile produite est très différente de la matière incinérée, la première est le combustible idéal du cycle thorium alors que la seconde est un combustible dégradé du cycle uranium. D'autres géométries pourraient permettre une meilleure récupération des neutrons de fuite pour peut être obtenir un système produisant davantage d'²³³U.

FIGURE 8.4 – Taux de capture et taux de conversion sur le ²³²Th en fonction du rayon dans le sel fertile

Le tableau 8.1 fournit des valeurs du taux de capture cumulé pour quelques épaisseurs du sel LiF-ThF₄ ainsi que le volume de sel associé. Le choix est un compromis entre le taux de capture souhaité, le volume de sel fertile et également les besoins de traitement du sel. Pour maximiser la compacité du système et minimiser l'inventaire en noyaux lourds, la valeur de 30cm d'épaisseur pour la couverture fertile avec le sel LiF-ThF₄ est retenue pour la suite des études. S'il s'avère nécessaire d'augmenter la production d'²³³U en vue d'un déploiement plus rapide de MSFR, l'épaisseur de la couverture pourra être augmentée. Le choix du sel fluorure a pour désavantage de requérir l'enrichissement du lithium en plus de celui du chlore. Cependant, des tests ont été effectués avec l'ajout de MgO avec le sel fertile chlorure, mais une modération efficace requiert environ 20cm de MgO, ce qui réduit d'autant la quantité de sel fertile disponible à encombrement équivalent. L'utilisation du sel LiF-ThF₄

seul réduit aussi les dégâts d'irradiation sur les structures en comparaison d'un sel chlorure sans modérateur, ou la complexité du système en comparaison d'un sel chlorure avec modérateur.

TABLE 8.1 – Taux de capture cumulé sur le ^{232}Th en fonction du rayon dans la couverture fertile avec le sel LiF-ThF_4

Épaisseur [cm]	Taux de capture cumulé [/src]	Fraction du total [%]	Volume de sel fertile [m^3]
10	0.102	37.14	0.55
20	0.171	62.16	1.17
30	0.215	78.39	1.86
50	0.257	93.45	3.46
80	0.273	99.08	6.41
100	0.275	100.0	8.62

Du fait de la faible quantité de fissions dans le sel fertile, le traitement chimique de la couverture fertile peut être simplifié. L'uranium et les TRU sont extraits par fluoration, le thorium et le protactinium sont réinjectés. Les produits de fission gazeux/volatils et métalliques de la couverture fertile sont extraits avec un temps caractéristique de 30s (même valeur que pour le MSFR de référence), les PF solubles sont laissés en sel.

Il faut choisir un débit de traitement approprié pour l'extraction de l'uranium et des TRU. La configuration étudiée ici est un coeur de $2\text{m}^3 + \simeq 2.5\text{m}^3$ de sel combustible dans les boucles de recirculation, et une couverture fertile de 30cm d'épaisseur contenant le sel LiF-ThF_4 . La figure 8.5 montre l'évolution des masses en sel fertile de ^{232}Th , ^{233}U et de PF, et la figure 8.6 montre la masse d' ^{233}U disponible dans le stockage au cours du temps, pour trois débits de traitement.

Pour un traitement de 0.5L/j, la masse de thorium n'est pas stable en couverture dans les premières années à cause de l'accumulation d' ^{233}U , qui engendre plus de fissions en couverture donc plus de produits de fission en sel (260kg en 50 ans) et moins d' ^{233}U disponible en sortie (880kg en 50 ans). Les traitements de 5L/j et 50L/j permettent de conserver une masse stable de thorium avec une faible accumulation d' ^{233}U en sel (plateau à 30kg et 4 kg) donc moins de fissions (masses de PF solubles de 60 et 10kg à 50 ans) et des masses d' ^{233}U disponibles en stockage similaires (1850kg et 2080kg en 50 ans). La disponibilité d'environ 10% supplémentaires d' ^{233}U ne semble pas justifier un débit de traitement 10 fois plus élevé, aussi le traitement de 5L/j est sélectionné comme référence.

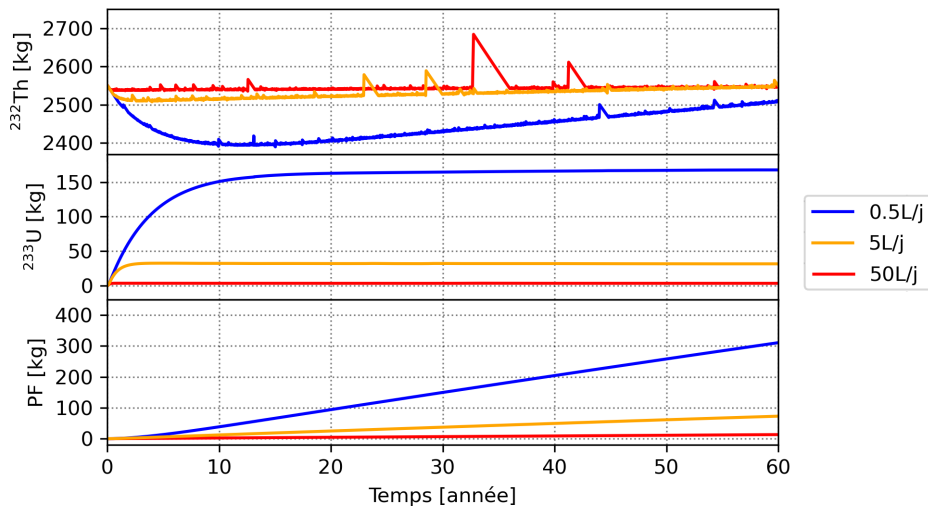
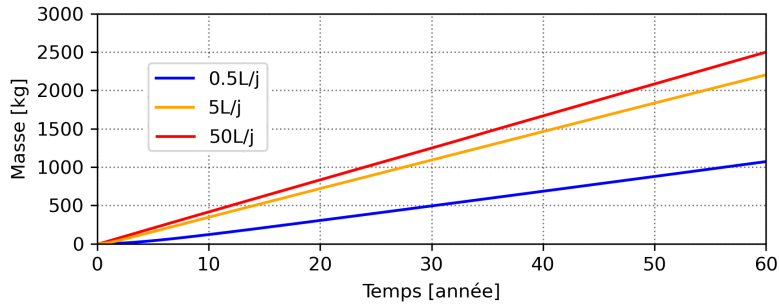


FIGURE 8.5 – Evolution des masses en sel fertile suivant le débit de traitement

8.4 Conception du circuit contenant le sel combustible

8.4.1 Définition des critères pour un incinérateur

La définition intuitive d'un incinérateur parfait suggère un outil capable de détruire la plus grande quantité possible de déchets, en un temps minimal, en ne laissant aucun résidu. Ces notions ont été formalisées par

FIGURE 8.6 – Evolution de la masse d' ^{233}U disponible dans le stockage suivant le débit de traitement

plusieurs auteurs, dont J.H. Bultman [118]. Les trois critères suivants, tirés de ses travaux et adaptés au cas d'un combustible liquide alimenté pendant l'exploitation, sont utilisés ici.

Tout d'abord, le bilan massique simple défini par l'équation (8.1). Dans le cas d'un incinérateur ici, les actinides ne sont pas extraits (ou s'ils le sont pour des besoins de traitement, ils sont réinjectés directement), aussi le terme d'extraction cumulé est nul et non mentionné par la suite.

$$\text{bilan massique}(t) = \text{inventaire initial} + \text{alimentation cumulée}(t) - \text{extraction cumulée}(t) - \text{inventaire final}(t) \quad (8.1)$$

Le second critère est le "waste ratio" (WR), ou le rapport sur déchet, qui exprime une efficacité brute de l'incinérateur, adimensionnel. Appliqué à une masse, il est défini par l'équation (8.2). Il doit être maximisé.

$$\text{WR}(t) = \frac{\text{inventaire initial} + \text{alimentation cumulée}(t)}{\text{inventaire final}(t)} \quad (8.2)$$

Le troisième critère est le "inventory transmutation time" (ITT), ou temps de transmutation de l'inventaire, qui quantifie la rapidité de l'incinérateur. Il est exprimé en [s] et défini par l'équation (8.3). Il doit être minimisé.

$$\text{ITT}(t) = \frac{\text{inventaire initial} + \text{alimentation cumulée}(t)}{\text{puissance} \cdot \text{QB}(t)} \quad (8.3)$$

avec QB la quantité brûlée définie comme :

$$\text{QB}(t) = \frac{\text{inventaire initial} + \text{alimentation cumulée}(t) - \text{inventaire final}(t)}{\text{énergie produite}(t)} \quad (8.4)$$

Le bilan massique est négatif pour les matières consommées, aussi il est à minimiser. Dans le cas d'un réacteur à combustible solide à cycle défini à l'avance, les bilans de matières s'effectuent sur les inventaires initiaux et finaux. Pour un réacteur à combustible liquide alimenté pendant son exploitation, l'inventaire initial n'est pas adapté, il faut plutôt considérer l'inventaire apporté, soit l'inventaire initial auquel s'ajoute l'alimentation cumulée, d'où la dépendance de ces critères par rapport au temps ici.

8.4.2 Impact de la puissance volumique

Comme mentionné précédemment, la puissance thermique du réacteur est fixée à 300MW_{th} . Dans cette étude, trois valeurs de puissance volumique sont testées : $100\text{MW}/\text{m}^3$ (coeur de 3m^3), $150\text{MW}/\text{m}^3$ (coeur de 2m^3 , configuration RAPTOR), $200\text{MW}/\text{m}^3$ (coeur de 1.5m^3). L'impact de ce paramètre est observé sur les trois critères de l'incinérateur mais également sur la quantité de précurseurs en coeur ainsi que sur le taux de capture absolu sur le thorium en couverture fertile.

Pour les précurseurs, plus la puissance volumique est grande, plus le débit doit être important pour évacuer la chaleur ce qui influence la quantité de précurseurs dans le coeur. Pour le taux de capture, le changement de géométrie du coeur affecte par construction la géométrie de la couverture fertile. Par ailleurs, le spectre neutronique du sel combustible influence celui de la couverture et réciproquement. Dans cette configuration, plus le coeur est petit, plus la fraction de noyaux lourds dans le sel augmente pour obtenir la criticité, plus le spectre neutronique se durcit. Néanmoins, le spectre peut aussi être davantage affecté par l'effet de bord induit par la couverture fertile dont une partie des neutrons, thermalisés par le fluor, peut revenir dans le combustible et potentiellement dégrader l'incinération. Cet effet peut être réduit en plaçant une épaisseur de B_4C entre le coeur et la couverture fertile pour capturer les neutrons thermiques, ce point est abordé dans la section 8.4.3. La variation de la valeur du coefficient de densité en fonction de la taille du coeur n'a pas été évalué ici, mais

ce coefficient est calculé pour la configuration avec coeur de 2m^3 dans la section 8.4.5 portant sur le placement du vase d'expansion.

8.4.2.1 Inventaire initial et précurseurs

Pour chaque configuration, l'extraction de chaleur est vérifiée avec le code SONGe qui fournit le volume de sel combustible total et sa répartition dans les différentes zones (coeur, plenums, échangeurs). Puis la composition critique et eutectique du sel combustible est déterminée avec le code Serpent2 et le diagramme ternaire du sel $\text{NaCl-MgCl}_2\text{-PuCl}_3$, déjà présenté dans la section 1.3.3 et présenté à nouveau dans la figure 8.7. La traduction de la géométrie proposée par SONGe dans les codes de calcul neutronique s'accompagne d'une simplification, en particulier sur la géométrie des plenums : les conduits deviennent des secteurs de cylindre, de même volume. La géométrie est répliquée dans le code LiCore, pour obtenir la distribution correcte des précurseurs, et la valeur de $\beta_{\text{eff,circ}}$ est obtenue à l'aide d'un calcul de criticité utilisant la version de Serpent2 modifiée avec repositionnement des neutrons retardés (voir section 4.4.4).

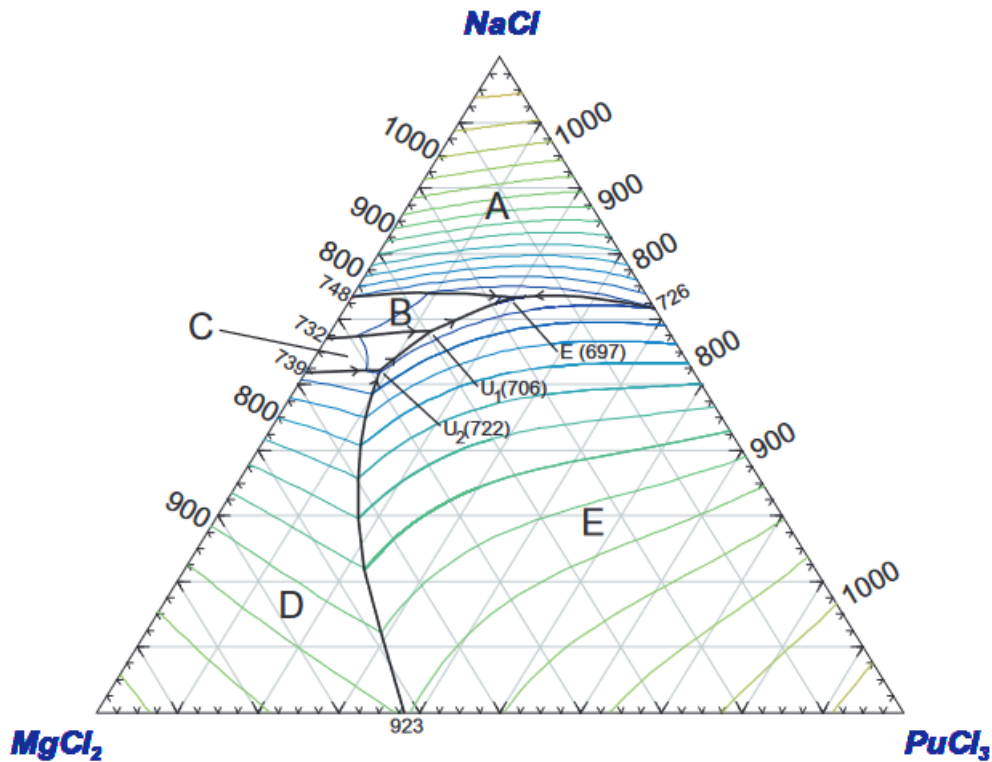


FIGURE 8.7 – Diagramme ternaire du sel $\text{NaCl-MgCl}_2\text{-PuCl}_3$ [18]

Le tableau 8.2 fournit les inventaires initiaux pour les 3 configurations analysées. On constate un écart d'environ 10% sur la masse de TRU requise dans le combustible pour obtenir la criticité entre le coeur le plus petit (1.5m^3 , 2820kg) et le coeur le plus gros (3m^3 , 3160kg). La variation de la taille du coeur a peu d'importance sur le volume requis hors coeur : les sels ont une composition chimique suffisamment proche pour que les différences sur les paramètres thermodynamiques (ρ , C_p) soient faibles, à ce titre les échangeurs de chaleur peuvent être considérés comme identiques et requièrent donc le même volume de sel pour extraire la même puissance pour une même différence de température entrée/sortie.

TABLE 8.2 – Configurations initiales selon la puissance volumique choisie

Puissance volumique [MW/m^3]	Volume de sel combustible (coeur + boucles) [m^3]	Composition du sel combustible (fractions molaires $\text{NaCl-MgCl}_2\text{-(TRU)Cl}_3$)	Masse de TRU [kg]	Volume de sel fertile [m^3]
200	1.5 + 2.64	59-28-13	2820	1.27
150	2 + 2.86	58-30-12	2980	1.42
100	3 + 2.85	58-32-10	3160	2.03

Les valeurs de $\beta_{\text{eff,circ}}$ sont fournies dans le tableau 8.3. En théorie, pour un même temps de circulation du sel, plus le coeur est petit par rapport au volume total, plus la fraction de neutrons retardés effective devrait être faible (une proportion plus élevée de précurseurs décroît hors coeur). Dans cette étude, on constate que, pour le coeur de 2m^3 , les valeurs sont plus élevées. Cela est vraisemblablement dû aux plenums, qui ont proportionnellement un volume un peu plus important dans cette configuration que pour les deux autres, et réduisent l'espace disponible pour la couverture fertile.

TABLE 8.3 – Fraction de neutrons retardés selon la puissance volumique choisie

Puissance volumique [MW/m ³]	Fraction de sel dans les échangeurs	β_{eff} [pcm]	$\beta_{\text{eff,circ}}$ [pcm]
200	48.3%	241(14)	174(12)
150	41.1%	261(4)	192(4)
100	34.2%	249(6)	186(5)

8.4.2.2 Critères sur l'incinération et le taux de capture sur le thorium

Dans cette étude, on calcule les critères sur l'incinération et la production d'²³³U après 50 ans de fonctionnement. Quelle que soit la configuration, les temps d'extraction pour le traitement des sels sont conservés, ce qui revient à adapter le débit de traitement au volume du sel. Les simulations sont faites avec contrôles de la réactivité et de la valence, et extractions des PF gazeux, solubles et insolubles pour le combustible.

Avant de comparer les bilans pour les trois configurations, il est intéressant d'en étudier une plus en détails pour comparer les compositions initiale, finale, et l'impact de l'alimentation.

Le tableau 8.4 présente le bilan massique détaillé pour la configuration de coeur de 2m^3 . De l'uranium se forme sans être apporté, en particulier l'²³⁴U, aussi son bilan est positif.

L'apparition du curium dans le système (alimentation + formation à partir d'autres noyaux lourds) excède sa consommation dans les premières décennies, aussi son bilan net est positif. A partir de 60 ans de fonctionnement, la consommation s'équilibre avec la production puis le bilan net sur le curium devient négatif.

Le neptunium, le plutonium et l'américium sont consommés, de façon très inégale au niveau isotopique. Pour le plutonium en particulier, le ²³⁹Pu est surconsommé par rapport aux autres, ce qui a deux conséquences. Premièrement, le vecteur Pu final est très dégradé : la proportion d'isotopes fissiles passe de 50% à 25% en 50 ans. Deuxièmement, puisque le combustible perd en qualité fissile, il est nécessaire d'augmenter la quantité de TRU pour assurer la criticité, aussi le volume de sel augmente au cours de l'exploitation, passant de 5.0m^3 (en comptant le vase d'expansion) à 5.8m^3 soit 16% d'augmentation. La forme liquide du combustible et la présence du vase d'expansion permettent de gérer cela en théorie, mais plus d'études seraient nécessaires pour quantifier les impacts par exemple sur le coefficient de densité ou sur les moyens nécessaires pour refroidir le vase si nécessaire.

Le tableau 8.5 présente les bilans massiques nets finaux après 50 ans pour le sel combustible pour les trois configurations à l'étude. Les résultats sont très similaires, avec une légère tendance à des bilans plus élevés en valeur absolue (davantage d'uranium produit, davantage de plutonium consommé) avec l'augmentation de la taille du coeur. Plus le coeur est petit, plus il y a de neutrons qui fuient hors du coeur pour rejoindre la couverture fertile, plus les taux de réaction en couverture augmentent, plus la quantité de chaleur générée dans la couverture par rapport au coeur augmente. Puisque la quantité de chaleur totale est fixée, un coeur plus petit va consommer moins de combustible qu'un coeur plus gros puisque la couverture fertile va contribuer davantage. Lorsque l'on observe le taux de fission sur l'²³³U dans la couverture fertile, on constate effectivement qu'il est d'autant plus élevé que le coeur est petit (respectivement 276kg, 250kg et 230kg fissionnés en 50 ans).

Le tableau 8.6 montre les bilans massiques dans les sels fertiles. On constate que la production totale d'²³³U est plus élevée pour le coeur de 3m^3 et équivalente pour les deux autres. La production rapportée au volume de sel fertile vaut respectivement $1857\text{kg}/\text{m}^3$, $1660\text{kg}/\text{m}^3$ et $1353\text{kg}/\text{m}^3$ sur 50 ans, le coeur le plus petit produit le moins d'²³³U au total mais fait un meilleur usage du thorium disponible.

Les tableaux 8.7 et 8.8 fournissent les critères d'incinération WR et ITT dans le combustible selon la configuration sur les transuraniens. Du fait du bilan positif sur le curium dans les 50 premières années, celui-ci a un temps d'incinération effectif négatif, ce critère n'a plus de sens pour cet élément ici. Pour les autres éléments, on constate que les critères sont plus intéressants pour le coeur le plus petit. Le WR est légèrement plus élevé et le temps requis pour l'incinération de l'inventaire est légèrement plus faible : le combustible est mieux utilisé pour les puissances volumiques élevées.

TABLE 8.4 – Bilan massique détaillé [kg] sur 50 ans pour les actinides du sel combustible pour le coeur de 2m³

Z	A	I	Composition initiale	Alimentation cumulée	Composition finale	Bilan net
92	234	0	0.0	0.0	66.8	66.8
92	235	0	0.0	0.0	11.8	11.8
92	236	0	0.0	0.0	7.8	7.8
			0	0	86.4	86.4
93	237	0	225.2	514.6	145.1	-594.7
94	238	0	95.9	219.3	367.1	51.9
94	239	0	874.5	1998.5	569.1	-2304.0
94	240	0	744.2	1700.8	1400.1	-1044.9
94	241	0	287.6	657.2	225.1	-719.7
94	242	0	294.5	672.9	614.2	-353.3
			2296.7	5248.7	3175.6	-4370
95	241	0	261.6	597.8	286.2	-573.1
95	242	1	1.8	4.1	14.7	8.8
95	243	0	132.6	303.1	204.5	-231.2
			396	905	505.4	-795.5
96	242	0	0.0	0.0	8.0	8.0
96	243	0	0.6	1.4	1.7	-0.3
96	244	0	52.7	120.3	162.5	-10.5
96	245	0	5.5	12.5	34.6	16.6
96	246	0	0.6	1.4	11.4	9.4
96	247	0	0.0	0.0	1.3	1.3
96	248	0	0.0	0.0	0.3	0.3
			59.4	135.6	219.8	24.8

TABLE 8.5 – Bilan massique [kg] sur 50 ans pour les actinides du sel combustible

Z	A	I	Coeur de 1.5m ³	Coeur de 2m ³	Coeur de 3m ³
92	234	0	61.0	66.8	73.7
92	235	0	10.9	11.8	12.9
92	236	0	7.4	7.8	8.4
			79.3	86.4	95.0
93	237	0	-582.2	-594.7	-606.6
94	238	0	35.1	51.9	71.4
94	239	0	-2256.7	-2304.0	-2348.9
94	240	0	-1057.8	-1044.9	-1024.0
94	241	0	-704.1	-719.7	-734.0
94	242	0	-359.6	-353.3	-345.3
			-4343.1	-4370.0	-4380.8
95	241	0	-569.0	-573.1	-575.5
95	242	1	7.8	8.8	9.8
95	243	0	-230.0	-231.2	-231.2
			-791.2	-795.5	-796.9
96	242	0	7.7	8.0	8.4
96	243	0	-0.3	-0.3	-0.2
96	244	0	-12.8	-10.5	-7.8
96	245	0	15.4	16.6	18.0
96	246	0	9.1	9.4	9.8
96	247	0	1.3	1.3	1.3
96	248	0	0.3	0.3	0.3
			20.7	24.8	29.8

Cette étude suggère qu'il est intéressant, du point de vue de l'incinération, de maximiser la puissance volumique et donc, à puissance totale imposée, de minimiser la taille du coeur. Le principal facteur limitant est l'extraction de la chaleur, en fonctionnement normal (volume requis au niveau de l'échangeur de chaleur) comme

TABLE 8.6 – Bilan massique [kg] sur 50 ans pour les actinides du sel fertile

Z	A	I	Coeur de 1.5m ³	Coeur de 2m ³	Coeur de 3m ³
90	232	0	-2715.5	-2676.1	-3052.1
91	231	0	0.5	0.5	0.6
92	232	0	1.7	1.5	1.5
92	233	0	2358.3	2357.0	2745.9
92	234	0	69.9	62.8	60.9
92	235	0	2.7	2.3	2.0

TABLE 8.7 – Critère d’incinération WR à 50 ans par élément

Z	Coeur de 1.5m ³	Coeur de 2m ³	Coeur de 3m ³
93	5.3	5.1	4.9
94	2.5	2.4	2.3
95	2.7	2.6	2.5
96	0.9	0.9	0.9

TABLE 8.8 – Critère d’incinération ITT [ans] à 50 ans par élément

Z	Coeur de 1.5m ³	Coeur de 2m ³	Coeur de 3m ³
93	62	62	63
94	84	86	89
95	80	82	84
96	-462	-393	-334

en cas d’accident (un coeur plus petit concentrera la puissance résiduelle et aura moins d’inertie thermique). En revanche, un coeur plus petit, dans cette configuration à secteurs et couverture fertile d’épaisseur constante, laisse moins d’espace disponible pour la couverture et donc produit moins d’²³³U. Il est donc possible d’adapter la géométrie en fonction de l’aspect que l’on souhaite le plus valoriser, l’incinération ou la régénération. Pour la suite de ce chapitre, on continuera l’étude de la configuration avec un coeur de 2m³.

8.4.3 Dimensionnement des protections neutroniques des échangeurs de chaleur

Cette section s’intéresse au dimensionnement de la protection neutronique, en B₄C, placée devant les échangeurs de chaleur pour réduire les dégâts d’irradiation, à l’aide de la méthode présentée en section 4.4.4.2. Pour rappel, on traduit la géométrie modélisée avec le code de transport Serpent2 dans le code système LiCore, qui fournit une bonne estimation de la distribution des précurseurs dans le circuit combustible. Puis cette distribution est utilisée dans une version modifiée de Serpent2 avec repositionnement des neutrons retardés.

La figure 8.8 montre le flux neutronique suivant le rayon (pris à mi-hauteur) selon l’épaisseur de B₄C ajoutée. Contrairement au MSFR-Cl, les flux avec ou sans correction sont confondus : la contribution au flux total des neutrons rapides est très supérieure à celle pouvant être générée par les précurseurs directement dans les échangeurs. Un critère précédemment utilisé n’est plus intéressant ici, l’ajout excessif de B₄C augmentera l’encombrement du système et dégradera l’économie neutronique. L’ajout de 10cm de B₄C permet une réduction d’un facteur 3 environ du flux dans les échangeurs (de $\simeq 1.5 \cdot 10^{-5}/\text{cm}^2/\text{s}$ à $4 \cdot 10^{-6}/\text{cm}^2/\text{s}$, 4% du flux maximal au centre du coeur). L’ajout de 10cm supplémentaires réduit ensuite le flux à $3 \cdot 10^{-6}/\text{cm}^2/\text{s}$, ce qui apparaît comme un gain mineur pour les désavantages engendrés. Dans le cadre de ce travail, on conservera la valeur de 10cm de B₄C. L’ajout de cette protection fait chuter la réactivité d’environ 1000 pcm, la teneur en TRU dans le combustible sera légèrement rehaussée pour retrouver une composition critique. La fraction effective de neutrons retardés diminue significativement, passant de $\beta_{\text{eff,circ}}(\text{sans B}_4\text{C}) = 192(4)$ à $\beta_{\text{eff,circ}}(\text{avec B}_4\text{C}) = 140(3)$. Elle réduit également la régénération sur le thorium d’environ 13% (voir écart entre les bilans massiques des tableaux 8.6 (coeur de 2m³) et 8.9 (colonne “sans filtre”)).

8.4.4 Utilisation du B₄C comme piège à neutrons thermiques

La présence de la couverture fertile thermalisante quasiment au contact du coeur provoque le retour d’une partie des neutrons thermiques depuis la couverture vers le coeur. Les neutrons thermiques ne sont pas efficaces pour l’incinération, aussi cette étude porte sur l’impact de l’ajout d’une couche de B₄C entre le combustible et la couverture fertile, agissant comme “filtre passe haute énergie” pour les neutrons. Quelques calculs statiques

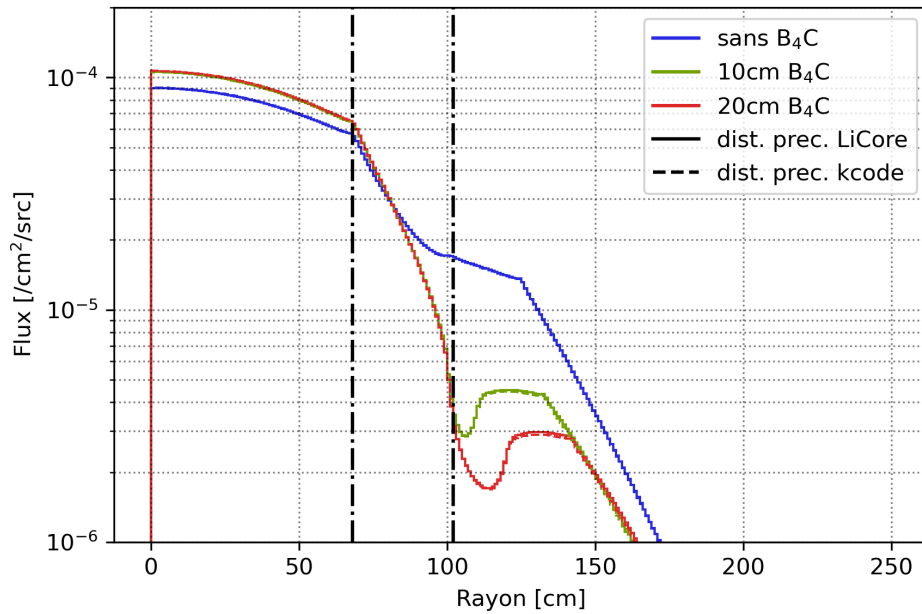


FIGURE 8.8 – Flux neutronique radial suivant l'épaisseur de la protection en B_4C devant les échangeurs de chaleur (coeur de $2m^3$)

réalisés avec Serpent2 montrent que le B_4C a un impact important sur le spectre neutronique même avec des épaisseurs fines, aussi on choisira arbitrairement une épaisseur de 1cm ici. Dans cette étude, la protection de 10cm de B_4C devant les échangeurs de chaleur est présente.

Les cartes de spectre neutronique sans et avec filtre sont présentées dans la figure 8.9. La zone de basses énergies à l'interface combustible/couverture fertile est encadrée en noir. La comparaison montre que l'ajout du filtre dépeuple cette zone comme souhaitée (disparition de la zone verte entre 55 et 68cm), avec une forte dépression du flux sur la couche de B_4C (trait bleu à 69-70cm).

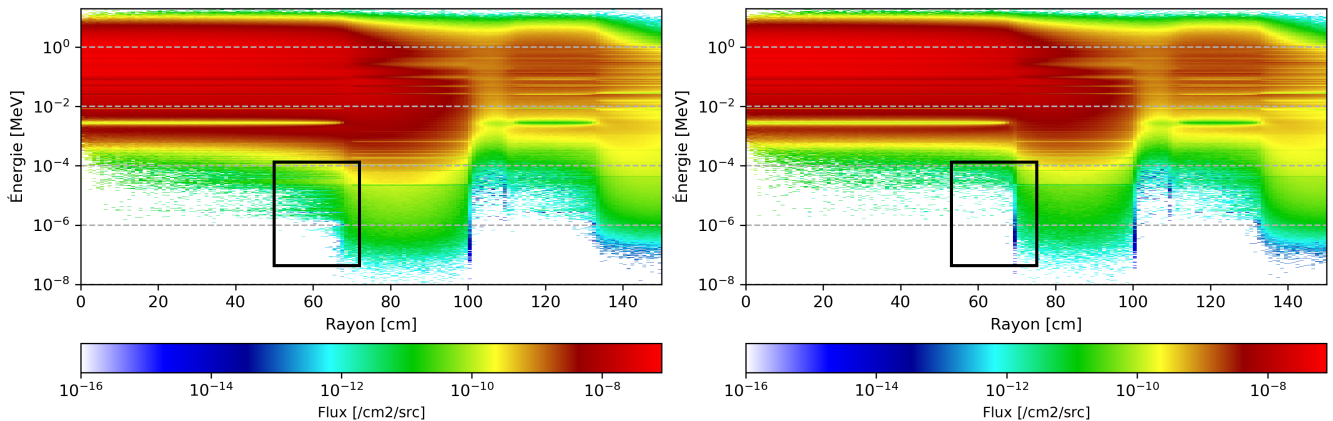


FIGURE 8.9 – Cartes de spectre neutronique sans filtre (à gauche) et avec filtre (à droite)

Les bilans massiques nets pour les actinides du combustible au bout de 50 ans de fonctionnement du réacteur, avec ou sans filtre, sont fournis dans le tableau 8.9. La présence du filtre est visible (consommation de 180kg de Pu supplémentaire en 50 ans) mais ne modifie pas drastiquement les bilans de matières (moins de 5% d'écart relatif sur les éléments), à l'exception apparente du curium. Cependant, pour 31kg de curium en moins dans le cas avec filtre, il y a 6kg d'uranium et 25kg d'américium en plus, aussi le gain sur l'incinération d'actinides autres que le Pu n'est pas flagrant.

Le tableau 8.10 montre le bilan massique pour les actinides des sels fertiles. La présence du filtre réduit significativement la production d' ^{233}U à partir du ^{232}Th : cela représente 30%, soit 530kg en 50 ans sachant que la quantité requise en ^{233}U pour démarrer un MSFR de référence est d'environ 5t.

TABLE 8.9 – Bilan massique [kg] sur 50 ans pour les actinides du sel fissile

Z	A	I	Avec filtre	Sans filtre	Ecart relatif [%]
92	234	0	82.8	75.3	10.0
92	235	0	10.6	11.6	-8.6
92	236	0	7.2	7.6	-5.3
			100.6	94.5	6.5
93	237	0	-592	-594.8	-0.5
94	238	0	73.9	67.1	10.1
94	239	0	-2403.5	-2342.7	2.6
94	240	0	-1110.3	-1058.4	4.9
94	241	0	-810.2	-753.8	7.5
94	242	0	-371.3	-356	4.3
			-4621.4	-4443.8	4.0
95	241	0	-529.2	-556.2	-4.9
95	242	1	12.3	10.4	18.3
95	243	0	-235.7	-231.4	1.9
			-752.6	-777.2	-3.2
96	242	0	7.8	8	-2.5
96	243	0	-0.8	-0.5	60.0
96	244	0	-44.7	-23	94.3
96	245	0	7	12.7	-44.9
96	246	0	4.9	7.4	-33.8
96	247	0	0.6	0.9	-33.3
96	248	0	0.1	0.2	-50.0
			-25.1	5.7	-540.4

TABLE 8.10 – Bilan massique [kg] sur 50 ans pour les actinides du sel fertile

Z	A	I	Avec filtre	Sans filtre	Ecart relatif [%]
90	232	0	-1533.1	-2283.0	-32.8
91	231	0	0.8	0.5	60.0
92	232	0	1.1	1.3	-15.4
92	233	0	1419.4	2045.0	-30.6
92	234	0	20.0	46.1	-56.6
92	235	0	0.3	1.3	-76.9

La quantité de ^{10}B , élément absorbant du filtre, est maintenue constante par une alimentation. L'alimentation cumulée sur 50 ans de ^{10}B s'élève à 67kg pour une masse dans le filtre de 13kg. En supposant que l'on change le filtre lorsque 50% du ^{10}B est consommé (réaction $^{10}\text{B} + \text{n} \rightarrow ^4\text{He} + ^7\text{Li}$), et que ce dernier disparaît avec une période exponentielle, un calcul en ordre de grandeur suggère que le filtre devrait être changé environ tous les 3 ans. La position du filtre suggère que son remplacement représente une opération de maintenance lourde (drain des sels et ouverture de la cuve pour atteindre les secteurs) que l'on souhaiterait réaliser le moins possible (lors d'un événement similaire à une visite décennale pour les REP).

En résumé, cette étude suggère que l'utilisation d'un filtre en B_4C n'est pas recommandée, car elle conduit à une perte significative de la régénération sur le thorium et engendre des problématiques d'exploitation, pour un faible gain sur l'incinération des TRU.

8.4.5 Dimensionnement du vase d'expansion

Cette étude porte sur le placement du vase d'expansion par rapport au coeur. Comme observé dans la section 4.4.1.4, ce paramètre impacte la valeur du coefficient de contre-réaction de densité et la chaleur produite dans le vase. Pour cette étude préliminaire, le vase d'expansion est un cylindre de même rayon que le coeur et d'une hauteur arbitraire de 50cm. A la température de fonctionnement nominale (900K) avec la composition initiale, il est rempli à 20% de sa capacité. Ceci représente un volume de 0.15m^3 .

La figure 8.10 représente l'évolution du rapport du taux de fission dans le vase d'expansion sur le taux de fission dans tout le combustible ainsi que l'évolution du coefficient de densité en fonction de la distance vase-coeur. Le coefficient de densité évolue suivant une forme rappelant une exponentielle décroissante avec la distance, jusqu'à atteindre une valeur limite (constante de l'équation : -16.8pcm/K) assimilable au cas où le vase est quasiment découplé neutroniquement du coeur. Si l'on souhaite, comme pour le MSFR-Cl, un taux de fission dans le vase qui n'excède pas 1% du total du combustible, alors une distance supérieure à 30cm est requise dans cette configuration. La valeur de 40cm est proposée ici, pour laquelle le coefficient de densité équivaut à la valeur convergée (compte tenu des incertitudes).

Le calcul du coefficient Doppler (effectué avec ce placement de vase) est de $-0.12(8)\text{pcm/K}$, ce qui est nettement plus faible (en valeur absolue) que pour le MSFR-Cl du fait de l'absence d'uranium.

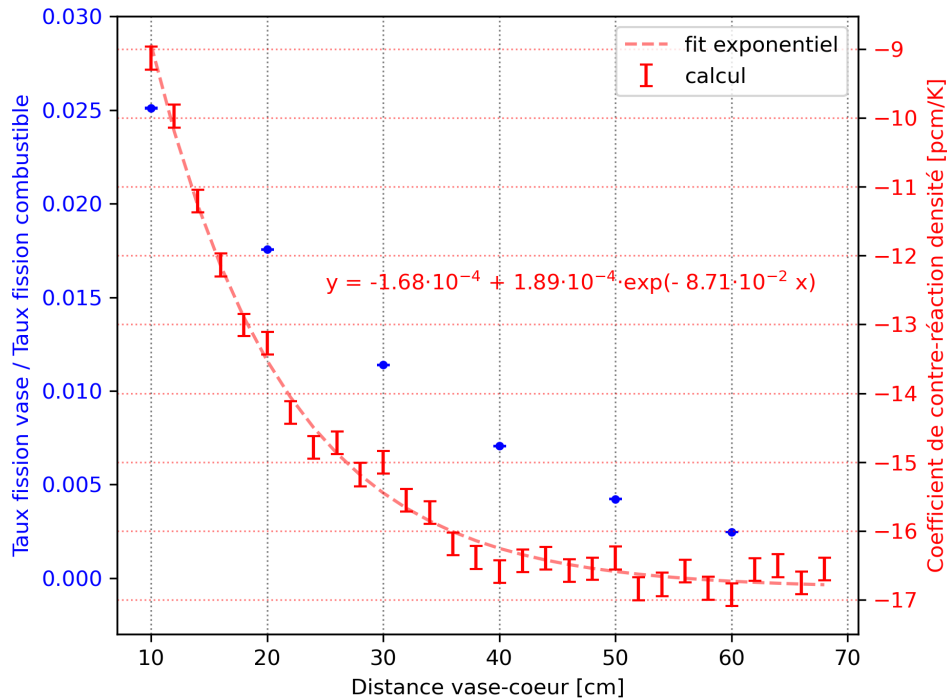


FIGURE 8.10 – Coefficient de densité et proportion de fissions dans le vase d'expansion en fonction de la distance vase-coeur

Ce système présente néanmoins une différence significative avec le MSFR-Cl. Comme mentionné dans la section 8.4.2.2, les calculs avec évolution de l'inventaire avec les contraintes appliquées (maintien de la criticité et de la valence) montrent que le volume augmente au cours du temps, avec la dégradation du vecteur TRU (là où le vecteur TRU du MSFR-Cl conserve une part importante de matière fissile par conversion continue d' ^{238}U en ^{239}Pu). Tel que choisi ici, le vase permet d'accueillir l'excès de volume pendant environ 30 ans, ce qui n'est pas une solution acceptable pour le dimensionnement. A ce stade, il semblerait logique que la simulation s'arrête, mais le vase a une importance si faible sur la criticité qu'un calcul réalisé en vidant le vase de 80% de son contenu (pour le ramener au taux de remplissage initial) donne le même k que le calcul avec le vase plein, aux incertitudes statistiques près. Par ailleurs le code REM conserve la matière indépendamment du calcul de transport pendant les pas d'intégration, et aucune des valeurs suivies (masses, taux de réaction) n'affiche de rupture de pente dans son évolution. Aussi les simulations et les bilans de matières qui en découlent peuvent être toujours considérées comme utilisables, bien qu'en toute rigueur de nouveaux calculs avec un vase plus grand seraient nécessaires pour le confirmer.

Un élément de solution employé ici consiste à enrichir le sel en $(\text{TRU})\text{Cl}_3$ par rapport au solvant, mais cela a des conséquences sur la température de fusion du sel qui augmente, réduisant les marges pour l'exploitation. L'option d'alimenter le réacteur avec un vecteur TRU de meilleure qualité que celui de départ, le combustible MOX utilisé, est peu attractive car elle viendrait à l'encontre de l'objectif même du système.

Un autre élément de solution qui pourrait être envisagé pour ce système est l'abandon du vase d'expansion au profit d'un coeur plus grand, qui ne serait pas rempli au démarrage. La détérioration du vecteur TRU pourrait être alors compensée par l'augmentation du volume du coeur au cours du fonctionnement. Davantage d'études seraient nécessaires pour confirmer la pertinence de cette stratégie et pour vérifier que le coefficient de densité

reste bien négatif pendant toute la durée de fonctionnement.

8.4.6 Utilisation du combustible UOX usé

Dans le cas où des stocks de combustibles UOX usés seraient disponibles (stocks résiduels pour la France, ou stocks en provenance de l'étranger), il peut être intéressant d'observer les performances de l'incinérateur vis-à-vis de cette matière.

Le tableau 8.11 donne le bilan de matières pour les actinides du combustible après 50 ans de fonctionnement du réacteur, résultat d'un nouveau calcul de neutronique en évolution avec le code REM. Du fait de la différence sur le vecteur TRU d'entrée, le réacteur brûle plus de plutonium (5262kg contre 4443kg) et moins d'actinides mineurs (395kg de Np et 135kg d'Am contre 595kg de Np et 777kg d'Am) lorsqu'il est chargé et alimenté avec du combustible UOX usé.

TABLE 8.11 – Bilan massique [kg] sur 50 ans pour les actinides du sel combustible utilisant le combustible UOX usé (coeur de 2m³)

Z	A	I	Composition initiale	Alimentation cumulée	Composition finale	Bilan
92	234	0	0	0	45.7	45.7
92	235	0	0	0	7.6	7.6
92	236	0	0	0	6	6
			0	0	59.3	59.3
93	237	0	128.2	379.5	112.8	-394.8
94	238	0	65.7	194.4	259.8	-0.3
94	239	0	1108.9	3281.9	884.0	-3506.8
94	240	0	537.6	1591	1356.3	-772.2
94	241	0	253	748.9	228.7	-773.2
94	242	0	167	494.2	451.6	-209.5
			2132.2	6310.4	3180.4	-5262
95	241	0	79.8	236.1	209.8	-106.1
95	242	1	0.2	0.6	9.8	9
95	243	0	39.4	116.5	118.3	-37.6
			119.4	353.2	337.9	-134.7
96	242	0	0	0	5.4	5.4
96	243	0	0.1	0.4	1	0.5
96	244	0	14.6	43.3	78.7	20.8
96	245	0	1.2	3.6	15.2	10.4
96	246	0	0.1	0.4	4.2	3.6
96	247	0	0	0	0.4	0.4
96	248	0	0	0	0.1	0.1
			16	47.7	105	41.2

Le tableau 8.12 compare les critères d'incinération WR et ITT suivant le combustible utilisé. A nouveau, du fait des différences de vecteur TRU, l'alimentation en TRU issu des combustibles UOX usés permet une meilleure performance sur l'incinération du Np et du Pu, mais une performance inférieure sur l'incinération de l'Am et du Cm.

TABLE 8.12 – Critères d'incinération WR et ITT [ans] à 50 ans par élément

Z	WR (UOX usé)	WR (MOX usé)	ITT (UOX usé)	ITT (MOX usé)
93	4.5	3.6	64.3	69.3
94	2.7	2.3	80.2	88.5
95	1.4	2.3	175.4	87.3
96	0.6	0.9	-	-

La production d'²³³U via la couverture fertile est légèrement plus élevée avec cette version du réacteur et représente 2133kg en 50 ans (contre 2045kg pour l'autre version).

La comparaison est faite ici à titre informatif et n'a pas vocation à choisir une configuration plutôt qu'une autre, le réacteur sera alimenté en fonction de la matière disponible pour le gestionnaire de combustibles. Il est également imaginable d'alimenter le réacteur avec un mélange de TRU issus des deux combustibles usés.

8.5 Scénarios pour un parc de type français

Cette étude a pour objectif d'estimer l'utilité du réacteur appliqué à un parc de type français. Les observables d'intérêt seront le nombre de réacteurs (SyRE et MSFR de référence) déployés, l'inventaire de combustibles usés, et la quantité d' ^{233}U mise à disposition.

Les réacteurs utilisés sont ceux présentés dans le chapitre 7, en plus des réacteurs SyRE utilisant les bilans de matières présentés dans les sections 8.4.4 et 8.4.6. Les scénarios sont modélisés avec le code ISF/SDF, la demande électrique est la même que celle proposée dans la section 7.1. Les SyRE sont supposés être déployables à partir de 2040 et contribuent à hauteur de 150MW_e (rendement de 50%) par unité à la production électrique, avec une durée de fonctionnement de 60 ans.

8.5.1 Déploiement des SyRE sans MSFR

Ce premier scénario a pour objectif d'observer l'impact du réacteur SyRE sur un parc de REP dans l'objectif de trouver un équilibre et permettre la gestion de tout le combustible MOX usé. ^{233}U n'est pas utilisé, sa production est simplement évaluée à titre informatif. La priorité au déploiement est la suivante : SyRE, REP MOXé, REP à combustible UOX.

La figure 8.11 présente l'évolution du parc pour ce scénario. La puissance générée par les SyRE pour incinérer les TRU issus des combustibles MOX usés s'équilibre avec celle générée par les REPs MOXés dans cette configuration, à hauteur de 9GW_e sur 85GW_e (10.5%). A raison de 150MW_e par unité, ceci représente un déploiement de 60 unités. Il s'agit d'une valeur optimiste car les incinérateurs ici ont un facteur de charge de 100% et un rendement vraisemblablement surévalué, le nombre de 70 unités serait plus réaliste. Il s'agit d'un déploiement conséquent, mais à mettre en perspective avec les possibilités de production en série supposées des réacteurs modulaires, la taille du système (plusieurs unités par site, le concepteur NuScale propose des sites accueillant jusqu'à 12 SMR [119]) et avec le service rendu à l'échelle d'un pays. Par ailleurs, cette simulation ne gère pas le traitement des TRU issus des SyRE extraits après leurs 60 ans de fonctionnement.

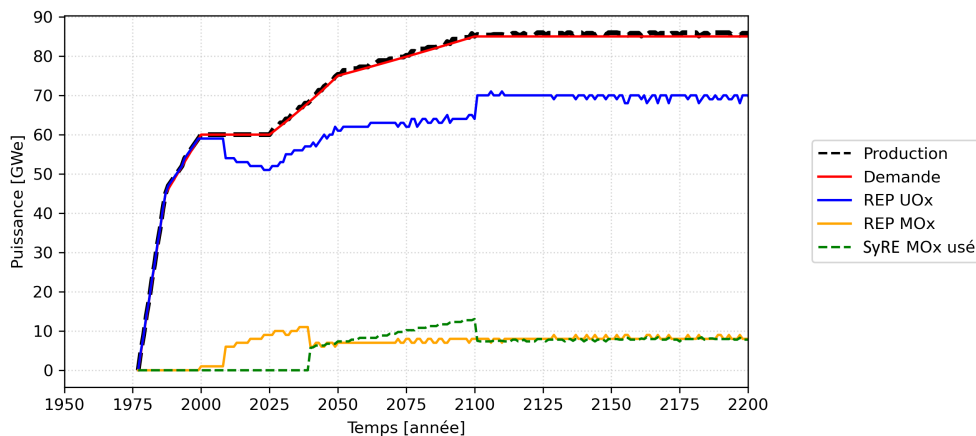


FIGURE 8.11 – Evolution du parc avec déploiement des SyRE

L'évolution complète des inventaires est disponible en Annexe E.1. Lorsque l'on compare ce scénario à celui des REP seuls, présenté dans la section 7.2, le déploiement des réacteurs "SyRE MOX usé" permet l'économie de 75kt d'uranium naturel (2100) sur les 996kt consommés dans le scénario avec REP uniquement, et la gestion des combustibles MOX usés. ^{233}U disponible en 2100 représente 157t ($\simeq 30$ MSFR de référence peuvent être démarrés, ce qui représente environ 43.5GW_e ou 51% du parc en 2100 avec la puissance requise postulée de 85GW_e).

8.5.2 Déploiement des SyRE puis des MSFR de référence

Dans ce scénario, les objectifs sont la gestion des combustibles usés puis le déploiement des MSFR de référence pour prendre le relais des REP. A ce titre, les SyRE sont déployés prioritairement par rapport aux MSFR pour assurer le premier objectif.

La figure 8.12 présente l'évolution du parc pour ce scénario. Les MSFR de référence se déploient progressivement, mais il faut attendre 2140 (1 siècle après le démarrage des SyRE) pour qu'ils représentent la quasi-totalité du parc, là où un démarrage $^{enr}U + TRU$ des MSFR atteignait cet objectif en 2080 (40 ans après leur déploiement, voir section 7.3). L'évolution complète des inventaires est disponible en Annexe E.2. En 2100, l'économie en uranium naturel se chiffre à 260kt sur 996kt (26% d'économie) comparé au scénario avec REP uniquement.

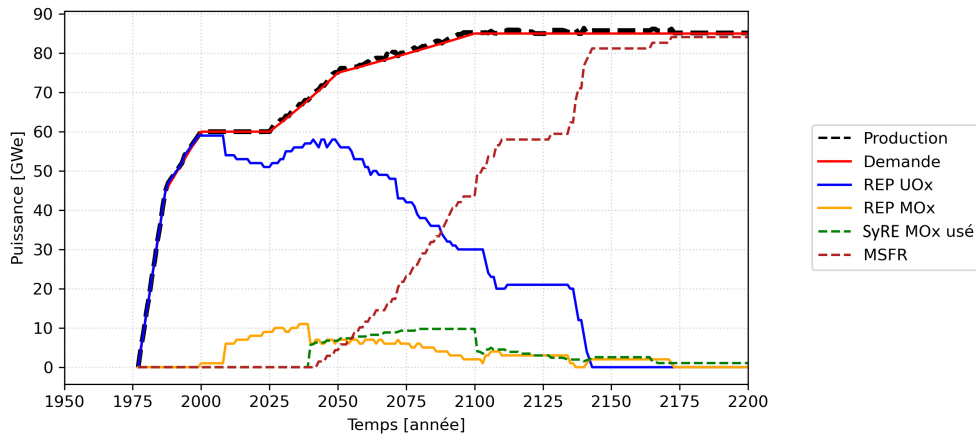


FIGURE 8.12 – Evolution du parc avec déploiement des SyRE puis des MSFR de référence

8.5.3 Arrêt anticipé de la production de MOX

Pour accélérer le déploiement des MSFR et réduire la production de MOX (qui engendre le combustible MOX utilisé mais aussi la mise en verre des AM issus des combustibles UOX usés), une option possible est de conserver le combustible UOX usé pour qu'il soit disponible pour le modèle SyRE en faisant usage. Dans le scénario suivant, le déploiement des réacteurs MOXés cesse à partir de 2025, et le réacteur "SyRE UOX usé" est démarré à partir de 2040 en même temps que la version principale "SyRE MOX usé".

La figure 8.13 présente l'évolution du parc pour ce scénario. Une partie des "SyRE MOX usé" est remplacée par les "SyRE UOX usé", et les REP MOXés s'arrêtent définitivement en 2055 (2025 pour le dernier déploiement + 30ans de fonctionnement). Cette stratégie permet d'accélérer un peu la substitution des REP par les MSFR, les premiers représentant 20GW_e en 2100, contre 32GW_e dans le scénario précédent. Ceci permet l'économie de 310kt d'uranium naturel par rapport au scénario avec REP uniquement (31% d'économie), soit 50kt de plus par rapport au scénario avec seulement les "SyRE MOX usé". L'évolution complète des inventaires est disponible en Annexe E.3.

8.6 Conclusion des études préliminaires

La gestion des combustibles usés actuellement générés par les REP via l'incinération en sels fondus est une option actuellement à l'étude. Cependant, cette méthode détruit de la matière fissile, dans un contexte où elle pourrait venir à manquer en cas de déploiement massif du nucléaire pour substituer une partie des sources d'énergie fossiles. Pour limiter la perte en matière fissile tout en produisant le combustible de prédilection du MSFR de référence, en partant de l'incinérateur RAPTOR de Laura Mesthiviers, ce chapitre s'est intéressé à l'ajout à un tel système d'une couverture fertile à sel thorié pour réaliser un incinérateur/régénérateur et favoriser la transition du cycle uranium vers le cycle thorium.

L'étude de la couverture fertile suggère que l'utilisation d'un sel fluorure est plus intéressante qu'un sel chlorure, ce choix permettant une meilleure régénération, un système plus compact et une géométrie plus simple,

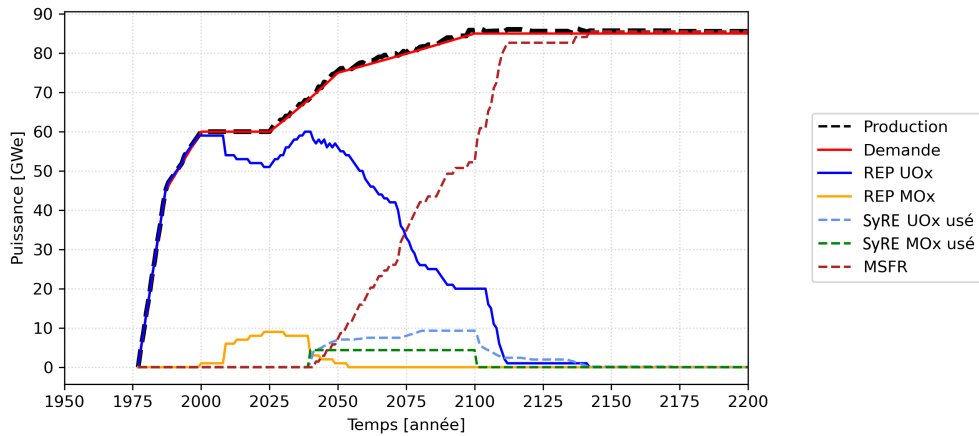


FIGURE 8.13 – Evolution du parc avec arrêt anticipé de la production de MOX

tout en réduisant les dommages d'irradiation sur les structures. Une épaisseur de 30cm de sel LiF-ThF_4 a été choisie ici, permettant un taux de capture sur le thorium d'environ 80% du maximum obtenu sur un cas fictif avec une couverture de 1m.

L'importance de la puissance volumique pour le système a été analysée. Les résultats suggèrent qu'il est intéressant de maximiser cette grandeur pour favoriser l'incinération, le principal facteur limitant étant l'extraction de chaleur. Cependant, à puissance totale imposée, réduire la taille du coeur dans une configuration du réacteur à secteurs limite également le volume disponible pour la couverture fertile, et conduit à une baisse de la régénération. Le choix de la puissance volumique devient alors un compromis entre l'incinération et la régénération. La configuration avec un coeur de 2m^3 issu du modèle RAPTOr, et 2.84m^3 de sel combustible supplémentaire pour les boucles d'extraction de chaleur, a été conservée pour les études suivantes mais ne résulte pas d'une optimisation poussée, et pourrait être améliorée dans le cadre de travaux ultérieurs.

La protection neutronique proposée, une épaisseur de 10cm de B_4C , permet de réduire d'un facteur 3 le flux neutronique perçu par les échangeurs. La contribution des neutrons retardés in-situ dans ce flux est négligeable dans ce système en comparaison de celle induite par les neutrons prompts, ceci est vraisemblablement dû au volume important des plenums couplé à la géométrie compacte et à la transparence du sel chlorure. Cette protection capture une partie des neutrons auparavant contributeurs à la régénération, aussi la production d' ^{233}U diminue de 10% environ. Elle réduit également la fraction de neutrons retardés effective, ramenant cette valeur de 192 à 140pcm.

La proximité du sel combustible avec le sel fertile au spectre neutronique moins rapide peut, en théorie, résulter en une diminution de l'incinération, avec retour de neutrons épi/thermiques de la couverture vers le coeur. Pour réduire ce phénomène, l'option d'une couche fine de B_4C placée entre les deux sels a été étudiée. Les résultats montrent que l'incinération n'est pas affectée de façon significative, en revanche la régénération sur le thorium chute de 30% et le changement du filtre engendre des problématiques de maintenance, aussi ce dernier n'a pas été conservé par la suite.

Les études préliminaires sur le vase d'expansion et son placement par rapport au coeur montrent une évolution du coefficient de contre-réaction de densité analogue à celle observée sur le réacteur MSFR-Cl, avec une augmentation de la valeur absolue du coefficient avec la distance. Le placement du vase à 40cm de distance dans les conditions étudiées permet d'avoir un taux de fission dans le vase inférieur à 1% du total du combustible, avec un coefficient de densité de l'ordre de -16.5pcm/K .

Néanmoins, du fait de la dégradation significative du vecteur TRU au cours de l'opération, le sel s'enrichit en $(\text{TRU})\text{Cl}_3$ pour rester critique et le volume du sel augmente au cours de l'opération. Une option plus intéressante à explorer serait de ne pas mettre de vase d'expansion, et de laisser un volume libre au dessus du coeur. Le volume du coeur augmenterait alors pendant l'opération, et la perte de réactivité pourrait être compensée de cette manière, par la géométrie, sous réserve que le coefficient de densité reste négatif pendant le fonctionnement.

Pour finir, l'impact de ce réacteur sur un parc de réacteurs type français a été estimé dans des scénarios de déploiement. Le premier montre que, dans l'optique d'obtenir un équilibre avec le parc de REP, la puissance électrique des incinérateurs représente 10% du parc environ. Pour un parc de 85GW_e , cela signifie entre 60 et 70 unités, une valeur élevée mais envisageable pour un pays comme la France sachant que plusieurs petits

réacteurs peuvent être regroupés dans un seul site.

Le deuxième scénario montre que l'utilisation de l' ^{233}U avec les réacteurs "SyRE MOx usé" pour seule source de production de cet isotope permet une substitution progressive des REP par des MSFR de référence. Pour accélérer la transition des REP vers les MSFR, une option, explorée dans le troisième scénario, consiste à conserver une partie du combustible UOX usé. En s'en servant pour alimenter une version alternative du réacteur SyRE, notée "SyRE UOX usé", davantage d' ^{233}U est produit. L'économie obtenue sur l'uranium naturel représente respectivement 75kt, 260kt et 310kt par rapport aux 996kt requis pour le scénario avec REP uniquement.

De façon générale, les études préliminaires suggèrent que ce système présente des intérêts certains pour la gestion des combustibles usés et la transition de cycle uranium vers le cycle thorium. De plus, il reste de nombreuses perspectives d'amélioration pouvant faire l'objet de travaux ultérieurs, parmi lesquels la recherche de géométries alternatives laissant plus d'espace à la couverture fertile, ou encore l'analyse de la gestion de la dégradation du vecteur TRU par l'augmentation du volume du coeur, en retirant le vase d'expansion.

Conclusions et perspectives

Le travail de cette thèse a principalement porté sur la conception et l'optimisation d'un réacteur à sels fondus de type Molten Salt Fast Reactor (MSFR), le MSFR-Cl. Ce réacteur est un concept de surrégénérateur de 3GW_{th} fonctionnant en cycle uranium et utilisant des sels chlorures. Le MSFR de référence développé et optimisé dans l'équipe avant ma thèse fonctionnant en cycle thorium et utilisant des sels fluorures, un des objectifs de la thèse a été de comparer les deux versions, que ce soit pendant la phase de conception, ensuite lors d'études de transitoires, puis lors de scénarios illustrant leur impact sur les inventaires de noyaux lourds.

Ces travaux ont été financés par le projet européen SAMOSAFER, dédié à l'étude poussée de la sûreté des réacteurs à sels fondus (en particulier appliquée au MSFR de référence). Deux sous-objectifs de ce projet sont l'étude de l'impact des choix de conception sur la sûreté, et sur l'usage des codes de calculs prenant en compte la spécificité du combustible liquide circulant. Ces deux points ont été abordés dans ces travaux, tels que décrit plus après.

Ce manuscrit a débuté par la présentation des notions nécessaires à la compréhension des études réalisées ensuite. Les disciplines indispensables pour la conception de réacteurs (neutronique, thermohydraulique) ont été présentées, ainsi que la chimie qui joue un rôle important dans le cas du MSFR. Quelques notions de sûreté et de prolifération ont été rappelées pour tenir compte de certaines contraintes qui leur sont liées dès la phase de conception.

Un état des lieux des programmes états-unis puis des différents projets de réacteurs à sels fondus a été fait, montrant que si le concept de réacteur à sels fondus chlorures existe depuis les années 50, aucun prototype n'a été construit pour les tester et beaucoup d'incertitudes perdurent (choix des matériaux de structure, enrichissement ou non du chlore en ^{37}Cl , fiabilité des données nucléaires du chlore).

Les outils utilisés ici pour la pré-conception du MSFR-Cl ont ensuite été présentés. En plus des codes neutroniques stochastiques MCNP ou Serpent2 déjà très utilisés dans la recherche, certains codes spécifiquement développés par l'équipe MSFR pour l'étude des RSF ont été réemployés, en lien avec un des sous-objectifs du projet SAMOSAFER. Sont concernés les codes suivants, employés dans cet ordre : SONGe (optimisation thermo-hydraulique du circuit combustible) ; REM (calcul neutronique en évolution tenant compte des alimentations et extractions en cours d'opération) ; LiCore (code système pour la modélisation de transitoires avec mouvement des précurseurs) ; SNCF (code système pour l'étude de la mise en place de la convection naturelle) ; et SDF/ISF (scénarios de déploiement de parc de réacteurs).

La conception du MSFR-Cl a commencé par la définition et l'optimisation d'un état initial.

En partant des noyaux lourds que l'on souhaite utiliser dans le réacteur, à savoir les TRU issus des combustibles UOX et MOX usés, il apparaît que les sels chlorures, sont attractifs car permettant la dissolution d'une quantité importante de TRU. Ils ont également l'avantage, par rapport aux sels fluorures, de moins thermaliser le spectre neutronique, ce qui favorise la régénération en cycle uranium. Ils ont le désavantage de requérir un enrichissement en ^{37}Cl pour réduire les captures parasites sur le ^{35}Cl , qui détériorent l'économie neutronique et mènent à la production de ^{36}Cl radioactif à vie longue. Pour éviter un inventaire trop important en noyaux lourds et faciliter l'extraction de chaleur en diminuant la puissance volumique, les espèces $(\text{U}, \text{TRU})\text{Cl}_3$ doivent être associées à un solvant. Parmi les alcalins et alcalino-terreux existants, plusieurs sont utilisables mais un semble particulièrement intéressant pour le MSFR-Cl : le sodium, abondant et très peu capturant. Le sel de référence retenu pour ces études est donc le mélange $\text{NaCl-UCl}_3\text{-(TRU)Cl}_3$.

En partant de la géométrie du MSFR de référence, celle du MSFR-Cl a été adaptée pour tenir compte des différences sur les propriétés thermodynamiques (masse volumique et chaleur spécifique plus faibles que pour les sels fluorures) et neutroniques (plus grande transparence neutronique du solvant). La stratégie d'utilisation d'une couverture fertile à l'image du MSFR de référence pour obtenir la surrégénération joue également un rôle. L'utilisation du code SONGe montre qu'un volume de sel d'au moins 20m^3 est requis dans les boucles de recirculation (25m^3 semble un choix raisonnable) munies d'échangeurs à plaques corruguées en admettant un écart de température entrée-sortie de 150K ; les calculs neutroniques en évolution avec le code REM montrent

qu'un coeur dépassant 20m³ conduit à un coeur surrégénérateur nécessitant l'extraction continue et variable d'actinides que l'on a choisi d'éviter ici. Le circuit combustible retenu à ce stade a donc un volume de 45m³ dont 20m³ dans le coeur et 25m³ dans les 24 boucles de recirculation, chacune munie d'un échangeur de chaleur.

Pour accommoder la dilatation du sel combustible en cas d'échauffement, un vase d'expansion est nécessaire. Ce dernier a été pré-dimensionné avec une capacité équivalente à une insertion de réactivité de 1000 pcm, et son placement a été optimisé pour le découpler neutroniquement du coeur, avec un taux de fission dans le vase inférieur à 1% du taux de fission du coeur.

Le dimensionnement de la couverture fertile dédiée à la surrégénération a été optimisé, avec une étude systématique sur son épaisseur et celle d'un réflecteur permettant de réduire l'inventaire en noyaux lourds pour une utilisation équivalente de l'²³⁸U, la matière fertile destinée à produire le ²³⁹Pu fissile. Cette étude se conclue avec le choix d'une couverture fertile de 80 cm et d'un réflecteur en acier 316H de 20 cm.

Pour finir, la protection neutronique en B₄C permettant de réduire le flux neutronique en provenance du coeur perçu par les échangeurs de chaleur (point le plus vulnérable du système) a été optimisée. En utilisant le code système LiCore pour obtenir la distribution spatiale des précurseurs, puis en modifiant la fonction de fission du code Serpent2, le flux neutronique tenant compte du mouvement des précurseurs par la circulation du combustible a été correctement modélisé. Cette approche a été vérifiée par une autre méthode indépendante basée sur l'approche par gerbe. La protection neutronique a été optimisée pour que le flux résultant des neutrons retardés in-situ dans les échangeurs soit deux fois plus grand que celui provenant du coeur, aboutissant au choix de 10cm d'épaisseur pour celle-ci.

Les compositions critiques et coefficients de contre-réaction (Doppler, densité) associés ont été déterminés pour 3 combustibles de départ différents, résultant d'un choix de matière fissile pouvant être les TRU issus des combustibles UOX usés, les TRU issus des combustibles MOX usés, ou de l'uranium enrichi. Quelle que soit la source de matière fissile, les coefficients sont strictement négatifs. Le coefficient Doppler est de l'ordre de -0.8pcm/K, le coefficient de densité vaut environ -19pcm/K. La valeur de ce dernier est fortement dépendante du placement du vase d'expansion, passant de -5pcm/K à -20pcm/K suivant son éloignement (et donc son degré de découplage neutronique) au coeur. L'impact de l'enrichissement en ³⁷Cl a été quantifié, il apparaît que l'enrichissement le plus élevé possible est souhaitable. Dans le cadre de ces travaux, cette valeur est choisie arbitrairement à 99%. La configuration standard du MSFR-Cl considère les TRU issus des combustibles UOX usés comme source de matière fissile.

En partant de cette configuration de référence, des calculs neutroniques en évolution ont été effectués pour analyser l'inventaire au cours du temps.

Après une première simulation sans intervention sur le système, la production des différents PF a été examinée. Ce schéma de traitement dédié aux sels chlorures (NaCl-AnCl₃) a été conçu en collaboration avec des experts en chimie en provenance du CNRS, du CEA et d'Orano. Celui-ci propose l'extraction des PF sous leurs différentes formes : extraction des PF gazeux et volatils par balayage du ciel du vase d'expansion inerté au départ à l'argon ; extraction des PF insolubles sur des pièges métalliques dans le vase d'expansion ; extraction des PF solubles, principalement des lanthanides, par électrolyse à compartiments séparés.

L'évolution de la couverture fertile a d'abord été modélisée. Elle constitue un point sensible en ce qui concerne la prolifération, et les calculs montrent que la matière fertile seule (uranium appauvri) conduit à la production de plutonium proliférant. La solution proposée ici consiste à injecter dans le sel fertile une faible fraction de (TRU)Cl₃, TRU issus des combustibles MOX usés au vecteur Pu dégradé et contenant des actinides mineurs complexifiant le détournement de cette matière. En maintenant constante cette fraction (TRU)Cl₃, ici à 0.5mol%, et en réglant correctement le débit d'extraction, ici à 150L/j, il est possible d'obtenir un vecteur plutonium dont la part de ²³⁹Pu est plafonnée, ici à 60%. Cette stratégie permet directement la réutilisation des combustibles MOX usés actuellement en attente d'une solution de gestion en France. Le vecteur TRU de sortie peut être réemployé pour faire du combustible MOX, alimenter un réacteur MSFR-Cl en opération, ou démarrer de nouvelles unités.

Le traitement du sel combustible a été ensuite analysé, en mettant en évidence l'effet des différents contrôles (criticité, fractions de noyaux lourds, valence) et extractions (gaz et espèces volatiles, PF insolubles, PF solubles) ajoutés dans les simulations avec le code REM. Ces simulations montrent entre autres que le réacteur accuse une faible perte de réactivité (1500 pcm) sans apport de matière fissile pendant l'opération (à puissance produite constante et à températures postulées constantes), et qu'une alimentation de l'ordre de 50kg/an suffit à maintenir le facteur de multiplication k à 1 pour les conditions définies au départ. La sensibilité au temps caractéristique d'extraction des PF insolubles montre qu'un temps égal ou inférieur à 1h est nécessaire pour éviter l'accumulation d'iode dans le sel combustible, issu des décroissances des éléments de nombre de masse 129 le précédant. L'optimisation du débit de traitement pour les PF solubles montrent qu'une valeur de 100L/j est intéressante pour éviter l'accumulation de PF en sel tout en limitant la contrainte sur l'unité de traitement. Une partie des PF, soit les alcalins, alcalino-terreux et halogènes autres que les constituants du solvant, sont considérés inextractibles sans un traitement poussé du fait de leur nature chimique similaire au sodium ou au chlore, et s'accumulent dans le sel combustible à hauteur d'environ 250kg par décennie.

Le bilan des matières sur les actinides révèle que le système (combustible + couverture) est consommateur des actinides mineurs à l'exception de l'Am, généré principalement dans le stockage de la couverture à partir de la décroissance du ^{241}Pu si la matière reste stockée hors flux. Du plutonium est massivement régénéré dans la couverture fertile, menant à un temps de doublement de l'ordre de 40 ans.

La puissance résiduelle a été évaluée et est équivalente à celle du MSFR de référence, bien que sa répartition dans les différentes zones de traitement ou stockage diffère du fait de la forme différente de certains éléments entre les sels fluorures et les sels chlorures (le zirconium notamment, volatil en sels chlorures et dissous en sel fluorures).

L'utilisation des TRU issus des combustibles MOX usés comme matière fissile au démarrage révèle une difficulté liée à leur forte teneur en matière fertile (notamment le ^{240}Pu) qui conduit à une surrégénération dans le sel combustible. A ce titre, sans changement de géométrie, il serait préférable de conserver cette matière pour la couverture fertile, pour l'alimentation du sel combustible démarré autrement, ou peut être de la mélanger à l'uranium enrichi qui montre un effet inverse.

L'étude préliminaire de sensibilité aux bibliothèques de données nucléaires montre l'importance de celles-ci sur le résultat : un calcul réalisé avec la bibliothèque plus ancienne ENDF-B6.8 résulte en un facteur de multiplication de +2000 pcm et à un combustible surrégénérateur en comparaison avec ENDF-B7.1 utilisée tout au long de ces travaux. En cas de nouvelles mesures modifiant les données nucléaires, il serait possible d'adapter les paramètres du coeur (dimensions, composition du combustible, ...) pour retrouver les caractéristiques souhaitées au départ.

La réponse du réacteur dans sa configuration standard a ensuite été testée dans différents transitoires.

Les transitoires incidentels ou accidentels sur des durées inférieures à 200s ont été modélisés avec le code LiCore. Qu'il s'agisse des insertions de réactivité, de suivis de charge ou du comportement en cas de sur-refroidissement à basse puissance, le MSFR-CI montre, tout comme le MSFR de référence, une très bonne résilience en revenant à un état stationnaire en moins de 100s. Une différence sur la capacité à amortir les perturbations a été observée. Dans le cas du MSFR-CI, un moins bon brassage du sel combustible en sortie de coeur, résultant du modèle thermohydraulique du code LiCore et des différences dans les paramètres neutroniques entre les deux MSFR, conduit à des oscillations de puissance et de température avec la circulation du sel combustible plus longues à dissiper, sans remettre en cause la sûreté du système.

Des études préliminaires pour un premier dimensionnement des boucles EPuR ont été réalisées dans le cadre du stage de Max Begue que j'ai encadré. Dans une situation où le circuit de conversion serait perdu et où les pompes ne sont plus alimentées en électricité, si les sels intermédiaire et combustible sont toujours dans leur circuit, il semble possible d'évacuer la chaleur résiduelle au travers d'un système de boucles EPuR sans recourir à la vidange d'urgence. Celles-ci sont constituées (hors circuit combustible) d'une boucle contenant du sel intermédiaire, d'une boucle d'air dans le bâtiment réacteur et de cheminées pour déposer la chaleur dans l'air extérieur représentant le puits ultime de chaleur. Ces boucles semblent pouvoir être dimensionnées pour être compatibles en terme de hauteur avec les enceintes de confinement actuelles des REP. Un point important révélé par ces études porte sur le vase d'expansion, dont le critère de pré-dimensionnement pourrait être remis en cause. Une approche pertinente semble être de dimensionner le vase et les boucles EPuR de concert, pour s'assurer que la température moyenne atteinte dans le combustible ne dépasse pas une certaine valeur conditionnée par la capacité d'extraction de chaleur des boucles EPuR, pour un scénario déterminé à l'avance.

Les capacités de déploiement du MSFR-CI ont ensuite été testées dans différents scénarios, de type français ou mondiaux, et comparées à celles du MSFR de référence.

Dans le cas français, avec un déploiement postulé à partir de 2040, il apparaît que l'ajout du MSFR-CI permet un flux tendu sur les combustibles UOX et MOX usés en provenance des REP, et la consommation totale des TRU issus des MOX usés en fin de scénario. La stratégie de résistance à la prolifération est à double tranchant : les combustibles MOX usés sont réutilisés mais sont limitants pour un déploiement massif. Des TRU issus des combustibles UOX usés restent dans l'inventaire final et le réacteur n'est pas auto-suffisant pour substituer les REP. Sur des temps très longs, le parc évolue vers un équilibre composé à 54% de MSFR-CI, de 29.5% de REP à combustible MOX et 16.5% de REP à combustible UOX, ce qui est correct pour la gestion des combustibles usés mais n'est pas satisfaisant du point de vue de la consommation de l'uranium.

Le MSFR de référence quant à lui prend efficacement le rôle des REP et permet, suivant les modèles envisagés, de gérer les combustibles usés (probablement sur des temps plus longs pour la gestion des combustibles MOX usés) et de se substituer intégralement aux REP. A ce titre, et malgré le recours à de l'uranium enrichi à 13% pour une de ses versions utilisée au démarrage, il est plus économe en uranium naturel ici.

Pour des scénarios mondiaux (voir annexes), avec la demande d'électricité mondiale postulée dans ces travaux, l'utilisation de REP uniquement conduit à un épuisement des 23Mt d'uranium naturel postulées aux environs de 2060. L'usage du MOX n'offre qu'un répit de 3 ans sur l'année de décrochage entre demande et production et ne constitue pas une solution pérenne, il faut donc des réacteurs surrégénérateurs. Dans le cas du MSFR de référence, avec un déploiement postulé en 2040, ceux-ci prennent le relais des REP sans problème et parviennent à répondre en tout temps à la demande. La consommation finale d'uranium naturel s'élève à 13.5Mt.

Dans le cas sans réserves de combustibles MOX usés significatives, il faut une nouvelle stratégie de résistance à la prolifération pour déployer le MSFR-CI. Proposition est faite d'assurer la résistance à la prolifération par l'ajout de 5% de ^{238}Pu dans le vecteur Pu de sortie, ^{238}Pu généré à partir du ^{237}Np extrait des combustibles UOX usés. Cette stratégie n'est pas suffisante pour permettre un déploiement capable de faire face à la demande, et ne permet la production que de 19% de la valeur attendue, après épuisement de l'uranium naturel.

Dans le cas théorique où l'on ne tient pas compte de la contrainte liée à la prolifération, alors le déploiement s'effectue sans problème, à l'image du MSFR de référence, avec une consommation légèrement moindre d'uranium naturel (12.75Mt). Ceci mène à la conclusion que le concept du MSFR-CI avec couverture fertile est compliqué à déployer.

Dans le cas où l'on souhaiterait continuer à utiliser le cycle uranium, ces travaux de thèse suggèrent que l'étude d'un concept de MSFR-CI sans couverture serait intéressant. La possibilité de mélanger les sources de matière fissile, permise par le concept flexible MSFR, offre des perspectives de gestion intéressantes de la matière tout en limitant les dérives sur le facteur de multiplication k observées dans les études préliminaires de sensibilité au combustible de démarrage. Un soin particulier sur le dimensionnement du vase d'expansion devrait être apporté, en définissant dès le début les exigences sur la température moyenne maximale acceptable du sel combustible en cas de transitoire faisant appel aux boucles EPUr. Le placement astucieux du vase d'expansion pourrait permettre d'obtenir un coefficient de contre-réaction moins élevé que celui obtenu dans ces travaux pour éviter un comportement trop brusque du réacteur en cas de variation de température du sel combustible.

Dans la continuité directe de ces travaux, il serait intéressant de mener des études de sensibilité sur la densité des sels combustible et fertile, jouant un rôle majeur dans le dimensionnement au niveau de l'extraction de chaleur. Des calculs sur les dommages d'irradiation, estimés plus importants dans le MSFR-CI que dans le MSFR de référence du fait du spectre neutronique plus rapide, seraient utiles à réaliser. Il semble également possible d'optimiser les boucles EPUr pour une meilleure extraction de chaleur. Des études de sensibilité en utilisant des compositions de combustibles MOX refroidis depuis plus longtemps seraient intéressantes à mener pour estimer l'impact sur les temps de traitement nécessaires et sur le déploiement.

Pour un aspect plus expérimental, les tenues à la corrosion dans les sels fondus de l'acier 316H et du SiC, envisagés pour les structures, devraient être mises à l'épreuve. Dans le but de faciliter les opérations, des premiers tests avec des éléments non radioactifs pour les produits de fission et l'usage d'uranium appauvri peu actif pour le sel combustible seront intéressants pour valider les données thermodynamiques des sels.

Dans le contexte actuel où tous les pays nucléarisés ont des réserves de combustible UOX ou MOX usés, où les gestionnaires de combustibles montrent de l'intérêt pour des concepts de réacteurs incinérateurs, et où l'on serait prêt à effectuer une transition vers le cycle thorium, alors un réacteur à coeur incinérateur et couverture fertile thoriée semble intéressant à étudier.

Le dernier chapitre de ce manuscrit propose quelques études préliminaires de ce système, nommé ici SyRE (Système pour le Recyclage et l'Exploitation). En partant de l'incinérateur RAPTOR résultant des travaux de thèse de L. Mesthiviers, une première étude suggère que l'ajout d'une couverture fertile à sel fluorure LiF-ThF_4 d'au moins 30cm permet une collecte efficace des neutrons de fuite récupérables dans cette configuration, là où un sel NaCl-ThCl_4 serait moins compact et éventuellement plus complexe en cas d'ajout d'un modérateur. L'épaisseur de la couverture fertile pourrait être ajustée en fonction des besoins en ^{233}U .

Une étude sur l'impact de la puissance volumique montre l'intérêt de maximiser cette dernière du point de vue de l'incinération (coeur plus petit à puissance totale fixée), néanmoins les contraintes liées à la géométrie en secteurs utilisée ici limitent dans ce cas l'espace disponible pour la couverture fertile, diminuant la régénération sur le thorium. D'autres géométries pourraient être envisagées suivant que l'on souhaite privilégier l'incinération ou la régénération.

Un dimensionnement préliminaire de la protection neutronique des échangeurs est proposé, et suggère que la contribution des neutrons retardés au flux neutronique dans les échangeurs est très faible comparée à celles des neutrons prompts en provenance du coeur, aussi un critère basé sur l'atténuation de ce flux direct a été choisi. Une épaisseur de 10cm de B_4C permet une atténuation d'un facteur 3. En revanche, elle provoque aussi une baisse de la régénération estimée à 10%, et une réduction de la fraction effective de neutrons retardés de 25%, mettant en exergue l'importance des zones hors coeur du point de vue neutronique sur un petit réacteur, en comparaison du MSFR-CI.

La possibilité de mettre un filtre à neutrons thermiques entre le coeur et la couverture fertile pour favoriser l'incinération a été évaluée, et jugée peu intéressante car elle dégrade significativement la régénération pour un gain mineur sur l'incinération.

Pour finir, des études préliminaires de déploiement de SyRE dans un parc de type français ont été réalisées. Ces études montrent que l'utilisation de ce système permet de réduire significativement l'inventaire de combustibles usés tout en permettant le déploiement progressif des MSFR de référence, même si le démarrage de MSFR avec TRU issus des combustibles usés et uranium enrichi reste plus intéressant.

Les méthodes et outils employés pour la conception du MSFR-CI dans le cadre de cette thèse ne sont pas spécifiques à ce concept en particulier, et ont été réemployés ensuite pour la conception du SyRE. La méthode de dimensionnement de la protection neutronique pourrait être intéressante à réutiliser, en particulier la modélisation du flux statique corrigé avec la distribution des précurseurs pourrait permettre une meilleure estimation des dégâts d'irradiation subis par les matériaux, pour les concepts à combustible liquide circulant. Pour finir, ce concept du MSFR-CI pourrait servir à tester de nouveaux outils en cours de conception, ou bien servir de point de départ pour des concepts alternatifs (réacteur de puissance intermédiaire type AMR).

Acronymes

AM = Actinide Mineur
AMR = Advanced Modular Reactor
ARE = Aircraft Reactor Experiment
BR = Breeding Ratio (ou facteur de régénération)
CEA = Commissariat à l'Énergie Atomique et aux énergies alternatives
CFD = Computational Fluid Dynamics
CNRS = Centre National de la Recherche Scientifique
DPA = Déplacement par Atome
EDF = Électricité de France
EPuR = Évacuation de la Puissance Résiduelle
GIEC = Groupe d'experts Intergouvernemental sur l'Évolution du Climat
GIF = Generation IV International Forum (Forum international dédié aux réacteurs de IV^{ème} génération)
HX = Heat eXchanger (échangeur de chaleur)
ISAC = Innovative System for Actinide Conversion
MCFR = Molten Chloride Fast Reactor (réacteur rapide à sels chlorures fondus)
MCNP = Monte-Carlo N Particles
MIMOSA = Multi-recycling strategies of LWR SNF focusing on MOlten SAlt technology
(Stratégies de multi-recyclage des combustibles usés en provenance des réacteurs à eau légère orientées sur les technologies à sels fondus)
MIT = Massachusetts Institute of Technology
MOx = Mixed Oxides (ou mélange d'oxydes)
MSBR = Molten Salt Breeder Reactor
MSFR = Molten Salt Fast Reactor (réacteur rapide à sels fondus)
MSRE = Molten Salt Reactor Experiment
NL = Noyau Lourd
NRC = Nuclear Regulatory Commission (Autorité de sûreté des États-Unis d'Amérique)
ORNL = Oak Ridge National Laboratory
PF = Produit de Fission
PMCN = Pression Motrice de Convection Naturelle
RAPTO_r = Réacteur Alimenté en Plutonium et autres Transuraniens pour Orano
REP = Réacteur à Eau Pressurisée
REM = Règles pour les calculs d'Évolution avec MCNP
RNR = Réacteur à Neutrons Rapides
RSF = Réacteur à Sels Fondus
SAMOSAFER = Severe Accident Modeling and Safety Assessment for Fluid-fuel Energy Reactors
(Modélisation d'accidents graves et analyse de sûreté pour réacteurs à combustibles fluides)
SDF/ISF = Scénarios Du Futur / Innovative Scenarios for the Future
SMR = Small Modular Reactor
SNCF = Simulateur Numérique de Circulation de Fluides
SONGe = Système d'Optimisation Numérique par algorithme Génétique
TFM = Transient Fission Matrix
TRT = TRansThorien
TRU = TRansUranien
UNGG = Uranium Naturel Graphite Gaz (réacteur de I^{ère} génération)
UOx = Uranium oxide (oxydes d'uranium)
X = halogène

Bibliographie

- [1] IEA. *Key World Energy Statistics 2020*. Technical report. IEA, 2020.
- [2] Veronika EYRING et al. “Human influence on the climate system. In climate change 2021 : the physical science basis. Contribution of working group I to the sixth assessment report of the intergovernmental panel on climate change”. In : *IPCC Sixth Assessment Report (2021)*.
- [3] M. COLLINS et al. “Long-term Climate Change : Projections, Commitments and Irreversibility”. In : *Climate Change 2013 : The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom et New York, NY, USA, 2013. Chap. 12.
- [4] Willis SHIRK. ““Atoms for Peace” in Pennsylvania”. In : *Pennsylvania Heritage - Spring 2009 (2009)*. URL : <https://paheritage.wpengine.com/article/atoms-peace-in-pennsylvania/>.
- [5] SAMOSA FER - *Severe Accident Modeling and Safety Assessment for Fluid-fuel Energy Reactors*. <https://samosafer.eu>.
- [6] Thibault LEMEUTE. “Modélisation d’un scénario d’insertion de réactivité dans un réacteur à sel fondu de génération IV”. Thèse de Doctorat. Université Grenoble Alpes, Grenoble, France, 2022.
- [7] T SORNAY et al. “Coupled Neutronics and Thermal-Hydraulics Calculations on the Molten Salt Fast Reactor : Identification and Study of Cliff Edge Effects”. In : *proceedings of International Conference on Mathematics and Computational Methods Applied to Nuclear Science and Engineering (M&C 2023), Niagara Falls, Canada*. 2023.
- [8] Laura MESTHIVIERS. “Capacité de conversion des transuraniens en Réacteurs à Sels Fondus (RSF)”. Thèse de Doctorat. Université Grenoble Alpes, Grenoble, France, 2022.
- [9] Paul REUSS. “Précis de neutronique”. In : *Précis de neutronique*. EDP sciences, 2003.
- [10] Axel LAUREAU. “Développement de modèles neutroniques pour le couplage thermohydraulique du MSFR et le calcul de paramètres cinétiques effectifs”. Thèse de Doctorat. Université Grenoble Alpes, Grenoble, France, 2015.
- [11] *Transformations nucléaires – évolution temporelle*. 2022. URL : <https://webphysique.fr/transformation-nucleaire-evolution-temporelle/>.
- [12] N. SOPPERA, M. BOSSANT et E DUPONT. “JANIS 4 : An Improved Version of the NEA Java-based Nuclear Data Information System”. In : *Nuclear Data Sheets* 120 (juin 2014), p. 294-296.
- [13] G. MARLEAU, R. ROY et A HÉBERT. *DRAGON : A Collision Probability Transport Code for Cell and Supercell Calculations*. Report IGE-157. Institut de génie nucléaire, École Polytechnique de Montréal, Québec, 1994.
- [14] Ahmed BENTAÏB, Hervé BONNEVILLE et Gérard CÉNÉRINO. *Les accidents de fusion du coeur des réacteurs nucléaires de puissance : état des connaissances*. EDP sciences, 2013.
- [15] Mariya BROVCHENKO. “Etudes préliminaires de sûreté du réacteur à sels fondus MSFR”. Thèse de Doctorat. Université de Grenoble, France, 2013.
- [16] Pierre-Louis VIOLLET. *Mécanique des fluides appliquée : écoulements incompressibles dans les circuits, canaux et rivières, autour des structures et dans l’environnement*. Sous la dir. de Presses de l’Ecole NATIONALE DES PONTS ET CHAUSSÉES. 2003.
- [17] Xavier DOLIGEZ. “Influence du retraitement physico-chimique du sel combustible sur le comportement du MSFR et sur le dimensionnement de son unité de retraitement”. Thèse de Doctorat. Institut National Polytechnique de Grenoble, Grenoble, France, 2010.
- [18] O BENES et R.J.M. KONINGS. “Thermodynamic evaluation of the NaCl–MgCl₂–UCl₃–PuCl₃ system”. In : *Journal of Nuclear Materials* 375.2 (avr. 2008), p. 202-208.
- [19] Sylvie DELPECH et Laure MARTINELLI. *Introduction à la corrosion dans les sels fondus*. Présentation technique. Bootcamp Sels Fondus Avignon 2021, 2021.
- [20] S DELPECH et al. “Reactor physic and reprocessing scheme for innovative molten salt reactor system”. In : *Journal of fluorine chemistry* 130.1 (2009), p. 11-17.
- [21] Mathieu GIBILARO, Laurent MASSOT et Pierre CHAMELOT. “A way to limit the corrosion in the Molten Salt Reactor concept : the salt redox potential control”. In : *Electrochimica Acta* 160 (2015), p. 209-213.

- [22] Delphine GÉRARDIN. “Développement d’outils numériques et réalisation d’études pour le pilotage et la sûreté du réacteur à sels fondus MSFR”. Thèse de Doctorat. Université Grenoble Alpes, Grenoble, France, 2018.
- [23] *NRC’s Support to U.S. Nonproliferation Objectives*. U.S. Nuclear Regulatory Commission. 2020. URL : <https://www.nrc.gov/materials/fuel-cycle-fac/support-us-nonproliferation-objectives.html>.
- [24] W B COTTRELL et al. *Operation of the Aircraft Reactor Experiment*. ORNL-1845(Del.), 4237975. 1^{er} sept. 1955, ORNL-1845(Del.), 4237975. DOI : 10.2172/4237975. URL : <http://www.osti.gov/servlets/purl/4237975/> (visité le 03/11/2021).
- [25] C. B. Mills W. K. ERGEN A. D. Callihan et Dunlap SCOTT. “The Aircraft Reactor Experiment—Physics”. In : *Nuclear Science and Engineering* 2.6 (1957), p. 826-840. DOI : 10.13182/NSE57-A35496.
- [26] R. C. ROBERTSON. *MSRE Design and Operations report Part I : Description of the reactor design*. Rapport technique ORNL-TM-728. Oak Ridge National Laboratory, 1965.
- [27] Charles W FORSBERG, Per F PETERSON, HaiHua ZHAO et al. “An advanced molten salt reactor using high-temperature reactor technology”. In : *proceedings of ICAPP*. T. 4. American Nuclear Society. La Grange, United States of America, 2004.
- [28] Fabien PERDU. “Contributions aux études de sûreté pour des filières innovantes de réacteurs nucléaires”. Thèse de Doctorat. Université Joseph Fourier, Institut des Sciences Nucléaires, Grenoble, France, 2003.
- [29] M.W. ROSENTHAL, R. B. BRIGGS et P.R. KASTEN. *Molten Salt Reactor program semi-annual progress report for period ending february 28, 1969*. Technical report. Oak Ridge National Laboratory, 1969. DOI : 10.2172/4780471.
- [30] Charles FORSBERG. “Molten Salt Reactor Experience Applicable to LS-VHTR Refueling”. In : *LS-VHTR Meeting, Oak Ridge, TN, Apr.* T. 18. United States of America, 2006, p. 6.
- [31] Alvin WEINBERG. *The First Nuclear Era : The Life and Times of a Technological Fixer*. 1994. ISBN : 1-56396-358-2.
- [32] Kazuo FURUKAWA et al. “The combined system of accelerator molten-salt breeder (AMSB) and molten-salt converter reactor (MSCR)”. In : *proceedings of the Japan-US seminar on thorium fuel reactors*. Nara, Japan, 1985.
- [33] Kazuo FURUKAWA 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.
- [34] Kazuo FURUKAWA et al. “New primary energy source by thorium molten-salt reactor technology”. In : *Electrochemistry* 73.8 (2005), p. 552-563.
- [35] ED GREAVES et al. “The case for the thorium molten salt reactor”. In : *AIP Conference proceedings*. T. 1423. 1. American Institute of Physics. 2012, p. 453-460.
- [36] Yafen LIU et al. “Criticality properties and control rod worth of the critical experiment device for MSR research”. In : *Nuclear Technology* 204.2 (2018), p. 203-212.
- [37] IAEA. *Status of Molten Salt Reactor Technology*. Technical Reports Series No. 489. IAEA, 2021.
- [38] Jérôme SERP et al. “The molten salt reactor (MSR) in generation IV : overview and perspectives”. In : *Progress in Nuclear Energy* 77 (2014), p. 308-319.
- [39] V IGNATIEV et al. “Molten salt actinide recycler and transforming system without and with Th-U support : Fuel cycle flexibility and key material properties”. In : *Annals of Nuclear Energy* 64 (2014), p. 408-420.
- [40] M SALVATORES, I SLESSAREV et V BERTHOU. “Review and proposals about the role of accelerator driven systems nuclear power”. In : *Progress in Nuclear Energy* 38.1-2 (2001), p. 167-178.
- [41] Alexis NUTTIN. “Potentialités du concept de réacteur à sels fondus pour une production durable d’énergie nucléaire basée sur le cycle thorium en spectre épithermique”. Thèse de Doctorat. Université Joseph Fourier, Grenoble, France, 2002.
- [42] Ludovic MATHIEU. “Cycle Thorium et Réacteurs à Sel Fondu : Exploration du champ des Paramètres et des Contraintes définissant le Thorium Molten Salt Reactor”. Thèse de Doctorat. Institut National Polytechnique de Grenoble, Grenoble, France, 2005.
- [43] Claude RENAULT et al. “The Molten Salt Reactor (MSR) in generation 4 : overview and perspectives”. In : *Proceedings of Gen-IV international forum (GIF)* (2009).
- [44] *GIF - Molten Salt Reactor (MSR)*. https://www.gen-4.org/gif/jcms/c_9359/msr.

- [45] Mariya BROVCHENKO et al. “Neutronic benchmark of the molten salt fast reactor in the frame of the EVOL and MARS collaborative projects”. In : *EPJ Nuclear Sciences & Technologies* 5 (2019), p. 2. ISSN : 2491-9292. DOI : 10.1051/epjn/2018052. URL : <https://www.epj-n.org/10.1051/epjn/2018052> (visité le 03/11/2021).
- [46] Michel ALLIBERT et al. “Preliminary proliferation study of the molten salt fast reactor”. In : *EPJ Nuclear Sciences & Technologies* 6 (2020), p. 5.
- [47] Zander MAUSOLFF, Mark DEHART et Sedat GOLUOGLU. “Design and assessment of a molten chloride fast reactor”. In : *Nuclear Engineering and Design* 379 (2021), p. 111181. ISSN : 0029-5493. DOI : <https://doi.org/10.1016/j.nucengdes.2021.111181>. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0029549321001333>.
- [48] ANDRA. *Les essentiels 2023*. (visité le 16/03/2023). 2023. URL : <https://inventaire.andra.fr/les-donnees/les-dechets-radioactifs/dechets-radioactifs-bilan-fin-2021>.
- [49] C GOODMAN et al. *Nuclear problems of non-aqueous fluid fuel reactors*. Technical report, MIT-5000, Reactors - Research and Power. Massachusetts Institute of Technology, 1952.
- [50] J. J. BULMER et et AL. *Fused salt fast breeder*. Technical report - CF-56-8-204. ORNL, 1956.
- [51] P.A. NELSON et al. *Fuel properties and nuclear performance of fast reactors fueled with molten chlorides*. Technical report. Argonne National Laboratory, 1966.
- [52] Eric H. OTTEWITTE. *Cursory First Look at the Molten Chloride Fast Reactor as an Alternative to the Conventional BATR Concept*. Technical report. 1992.
- [53] Nuclear NEWS. *Get to know MCRE, the fast-spectrum MSR from Southern and TerraPower*. Sous la dir. d’American Nuclear SOCIETY. 2023. URL : <https://www.ans.org/news/article-4873/get-to-know-mcre-the-fastspectrum-msr-from-southern-and-terrapower/>.
- [54] M. TAUBE et J LIGOU. “Molten Plutonium Chloride Fast Breeder Reactor cooled by molten uranium chloride”. In : *Annals of Nuclear Science and Engineering* 1 (1974), p. 277-281.
- [55] W. Heer M. TAUBE. *Reactor with very low fission product inventory*. Technical report EIR -Report 411. Swiss Federal Institute of Reactor Technology, 1980.
- [56] A. MOUROGOV et P. M. BOKOV. “Potentialities of the fast spectrum molten salt reactor concept : REBUS-3700”. In : *Energy Conversion and Management* 47 (2006), p. 2761-2771. DOI : 10.1016/j.enconman.2006.02.013.
- [57] *ISAC - Innovative System for Actinides Conversion*. https://www.gouvernement.fr/sites/default/files/contenu/piece-jointe/2022/12/20221209_dp_laureats_aap_dechets_nucleaires_vdef.pdf.
- [58] *MIMOSA - Multi-recycling strategies of LWR SNF focusing on MOLten SAlT technology*. <https://www.mimosa-euratom.eu>.
- [59] Giorgio LOCATELLI, Chris BINGHAM et Mauro MANCINI. “Small modular reactors : A comprehensive overview of their economics and strategic aspects”. In : *Progress in Nuclear Energy* 73 (2014), p. 75-85.
- [60] D LEBLANC. “The integral molten salt reactor (IMSR)”. In : *Canadian Nuclear Society Bulletin* 35 (2014).
- [61] *Terrestrial Energy (Canada)*. <https://www.terrestrialenergy.com>.
- [62] *Seaborg*. <https://www.seaborg.com>.
- [63] Jeff LATKOWSKI. *TerraPower’s Molten Chloride Fast Reactor (MCFR)*. 2021. URL : <https://www.nationalacademies.org/documents/embed/link/LF2255DA3DD1C41COA42D3BEF0989ACAECE3053A6A9B/file/DB0D308269688B2BD7B1AF60BAA143D48890C2DE80BB?noSaveAs=1>.
- [64] *TerraPower*. <https://www.terrapower.com>.
- [65] R O’SULLIVAN et J LAURIE. “Moltex Energy’s stable salt reactors”. In : *Revue Generale Nucleaire* (2016), p. 48-52.
- [66] *Moltex Energy*. <https://www.moltexenergy.com>.
- [67] *NAAREA*. <https://www.naarea.fr>.
- [68] Alexandre CHMAKOFF. “Compréhension des mécanismes de corrosion en environnement réacteurs du futur à combustible et caloporteur sels fondus”. Thèse de Doctorat. Université Paris-Saclay, France, 2023. URL : <https://theses.hal.science/tel-04021912>.
- [69] Mark B CHADWICK et al. “ENDF/B-VII. 1 nuclear data for science and technology : cross sections, covariances, fission product yields and decay data”. In : *Nuclear data sheets* 112.12 (2011), p. 2887-2996.

- [70] Arjan JM PLOMPEN et al. “The joint evaluated fission and fusion nuclear data library, JEFF-3.3”. In : *The European Physical Journal A* 56.7 (2020), p. 1-108.
- [71] JF VIDAL et al. “New modelling of LWR assemblies using the APOLLO2 code package”. In : *proceedings of Joint Int. Top. Mtg. on Mathematics & Computation and Supercomputing in Nuclear Applications (M&C+ SNA 2007)* (2007), p. 15-19.
- [72] Didier SCHNEIDER et al. “APOLLO3® CEA/DEN deterministic multi-purpose code for reactor physics analysis”. In : *PHYSOR 2016–Unifying Theory and Experiments in the 21st Century*. 2016.
- [73] *Les codes de calcul de la neutronique et le calcul haute performance*. Monographie du CEA/DEN, CEA Saclay et Editions Le Moniteur, 2013.
- [74] Alain HÉBERT. “DRAGON5 : designing computational schemes dedicated to fission nuclear reactors for space”. In : *proceedings of Int. Conf. on Nuclear and Emerging Technologies for Space, Albuquerque, NM*. 2013.
- [75] Richard SANCHEZ et al. “APOLLO2 year 2010”. In : *Nuclear engineering and technology* 42.5 (2010), p. 474-499.
- [76] Nathan GREINER et al. “A New Calculation Strategy for Molten Salt Reactor Neutronic–Thermal–Hydraulic Analysis Implemented with APOLLO3® and TRUST/TrioCFD”. In : *Nuclear Science and Engineering* (2023), p. 1-22.
- [77] Michel NOWAK et al. “Monte Carlo power iteration : Entropy and spatial correlations”. In : *Annals of Nuclear Energy* 94 (août 2016), p. 856-868. ISSN : 03064549. DOI : 10.1016/j.anucene.2016.05.002. URL : <https://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/S0306454916302377> (visité le 12/05/2023).
- [78] X-5 Monte Carlo TEAM. *MCNP - Version 5, Vol. I : Overview and Theory*. Technical report LA-UR-03-1987. Los Alamos National Laboratory, 2003.
- [79] Colin James JOSEY et al. *MCNP® Code Version 6.3.0 Verification & Validation Testing*. Rapp. tech. LA-UR-22-32951, Rev. 1. Los Alamos, NM, USA : Los Alamos National Laboratory, déc. 2022.
- [80] Jaakko LEPPÄNEN et al. “The Serpent Monte Carlo code : Status, development and applications in 2013”. In : *Annals of Nuclear Energy* 82 (2015). Joint International Conference on Supercomputing in Nuclear Applications and Monte Carlo 2013, SNA + MC 2013. Pluri- and Trans-disciplinarity, Towards New Modeling and Numerical Simulation Paradigms, p. 142-150. ISSN : 0306-4549. DOI : <https://doi.org/10.1016/j.anucene.2014.08.024>. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0306454914004095>.
- [81] Paul K. ROMANO et al. “OpenMC : A state-of-the-art Monte Carlo code for research and development”. In : *Annals of Nuclear Energy* 82 (2015). Joint International Conference on Supercomputing in Nuclear Applications and Monte Carlo 2013, SNA + MC 2013. Pluri- and Trans-disciplinarity, Towards New Modeling and Numerical Simulation Paradigms, p. 90-97. ISSN : 0306-4549. DOI : <https://doi.org/10.1016/j.anucene.2014.07.048>. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S030645491400379X>.
- [82] Louiliam CLOT. *Etude des contraintes inhérentes au déploiement massif de réacteurs à sels fondus*. Rapport de stage M1. Grenoble INP / Phelma, LPSC-IN2P3-CNRS, Grenoble, France, 2021.
- [83] Daniel HEUER. *Méthode de dimensionnement du MSFR*. Rapport technique. LPSC-IN2P3-CNRS, 2012.
- [84] Manuel Technique du GRETH. “Pertes de pression et transfert de chaleur dans les échangeurs à plaques en simple phase”. In : *Document Confidentiel* (1999).
- [85] VN DESYATNIK et al. “Density, surface tension, and viscosity of uranium trichloride-sodium chloride melts”. In : *Soviet Atomic Energy* 39.1 (1975), p. 649-651.
- [86] Austin Alan BATY. “Molecular dynamics simulation of the transport properties of molten transuranic chloride salts”. Thèse de doctorat. Texas A&M University, United States of America, 2013.
- [87] A. LAUREAU et al. “The LiCore power plant simulator of the Molten Salt Fast Reactor”. In : *EPJ Web of Conferences* 247 (2021). Sous la dir. de M. MARGULIS et P. BLAISE, p. 06030. ISSN : 2100-014X. DOI : 10.1051/epjconf/202124706030. URL : <https://www.epj-conferences.org/10.1051/epjconf/202124706030> (visité le 21/02/2023).
- [88] Hugo PITOIS. *Convection naturelle dans le MSFR*. Rapport de stage M2. Grenoble INP / Phelma, LPSC-IN2P3-CNRS, 2020.
- [89] Max BEGUE. *Modélisation des échanges de chaleur dans un MSFR en convection naturelle*. Rapport de stage M1. Grenoble INP / Phelma, LPSC-IN2P3-CNRS, 2022.
- [90] Jeremy Lloyd CONLIN et al. “NJOY21 : Next generation nuclear data processing capabilities”. In : *EPJ Web of Conferences*. T. 146. EDP Sciences. 2017, p. 09040.

- [91] Pierre ALLEGRE et al. *Preliminary drawings of the MSFR fuel circuit*. Deliverable 6.1. Version 0. projet SAMOSAFER, Programme Horizon 2020, Euratom, 2021.
- [92] *A Technology Roadmap for Generation IV Nuclear Energy Systems*. Technical report. U.S. DOE Nuclear Energy Research Advisory Committee et the Generation IV International Forum, 2002. URL : https://www.gen-4.org/gif/jcms/c_40481/technology-roadmap.
- [93] *Pre-conceptual design study of ASTRID core*. T. 1. Chicago, United States of America, juin 2012.
- [94] *Réacteurs nucléaires à caloporteur sodium*. Monographie du CEA/DEN, CEA Saclay et Editions Le Moniteur, 2014.
- [95] Donald R. OLANDER et J. L. CAMAHORT. “Reaction of chlorine and uranium tetrachloride in the fused lithium chloride-potassium chloride eutectic”. In : *AIChE Journal* 12.4 (1966), p. 693-699. DOI : <https://doi.org/10.1002/aic.690120414>. eprint : <https://aiche.onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1002/aic.690120414>. URL : <https://aiche.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/aic.690120414>.
- [96] P. F. TORTORELLI, J. H. DEVAN et J. E. SELLE. “Effects of nitrogen and nitrogen getters in lithium on the corrosion of type 316 stainless steel”. In : (jan. 1979). URL : <https://www.osti.gov/biblio/6380623>.
- [97] Atlas STEELS. https://www.atlassteels.com.au/documents/Atlas_Grade_datasheet_316_rev_Jan_2011.pdf.
- [98] Sandmeyer Steel COMPANY. <https://www.sandmeyersteel.com/316H.html>.
- [99] *HASTELLOY N alloy*. Haynes International, 2020. URL : <https://haynesintl.com/docs/default-source/pdfs/new-alloy-brochures/corrosion-resistant-alloys/brochures/n-brochure.pdf?sfvrsn=18>.
- [100] Gary Lynn HARRIS. *Properties of silicon carbide*. 13. Iet, 1995.
- [101] David R. LIDE. *CRC Handbook of Chemistry and Physics*. Sous la dir. de CRC Press INC. 90^e éd. 2009, p. 2804.
- [102] Corinne BOURGÈS-MONNIER. *Propriétés du Molybdène et des Alliages à Base de Molybdène*. Ed. Techniques de l'Ingénieur. URL : <https://books.google.fr/books?id=NYHNxtcCsmQC>.
- [103] AZO MATERIALS. <https://www.azom.com/properties.aspx?ArticleID=42>.
- [104] Thierry BECK et al. “Conceptual design of ASTRID radial shielding sub-assemblies”. In : *Nuclear Engineering and Design* 330 (2018), p. 129-137.
- [105] Sylvie DELPECH et Laure MARTINELLI. *Introduction à la corrosion dans les sels fondus*. Bootcamp Sels Fondus Avignon, 2021.
- [106] B BALLOT et D ROCHAIS. *Les réacteurs à haute température : un passé récent et un futur proche*. Sous la dir. de CEA. CLEFS CEA 55. 2007, p. 51-60.
- [107] Bruno PELLAUD. “Proliferation aspects of plutonium recycling”. In : *Comptes Rendus Physique* (2002).
- [108] M et al. ALLIBERT. *D1.1 Description of initial reference design and identification of safety aspects*. Deliverable. Version 4. Project SAMOFAR, 7^{ème} PCRD, Euratom, 2017.
- [109] P FELLNER, I VOTAVA et M CHRENKOVÁ-PAUČIROVÁ. “Density of the molten system lithium LiCl—NaCl—KCl”. In : *Chemical Papers* 34.3 (1980), p. 330-334.
- [110] Arthur D. PELTON et Patrice CHARTRAND. “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 (2001), p. 1361-1383.
- [111] Jie WU 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 : <https://doi.org/10.1016/j.molliq.2017.11.068>. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0167732217331719>.
- [112] *Futurs énergétiques 2050*. Résumé Exécutif. Réseau de Transport de l'Électricité (RTE), 2021.
- [113] Léa TILLARD, Laura MESTHIVIERS, Elisa CAPELLI et al., éd. *Estimation of the vitrified canister production for PWR fleets integrating MSRs with different fuel cycle strategies*. proceedings of GLOBAL2022. Reims, France, 2022.
- [114] Luminita GRANCEA et al. *Uranium resources, production and demand 2020*. Rapp. tech. NEA, IAEA, 2020.
- [115] Elsa MERLE et al. “Launching the Thorium Fuel Cycle with the Molten Salt Fast Reactor”. In : proceedings of ICAPP 2011. Nice, France, 2011.

- [116] Jaén A. OCÁDIZ FLORES et al. “Thermodynamic Description of the ACI-ThCl₄ (A = Li, Na, K) Systems”. In : *Thermo* 1.2 (2021), p. 122-133. ISSN : 2673-7264. DOI : 10.3390/thermo1020009. URL : <https://www.mdpi.com/2673-7264/1/2/9>.
- [117] Thermfact/CRCT - GTT-TECHNOLOGIES, éd. *Fact Sage database*. 2023. URL : https://www.crct.polymtl.ca/fact/phase_diagram.php?xlabel=&ylabel=&maxx=1&minx=0&maxy=1150&miny=50&calc=1&file=LiF-ThF4.jpg&y=&cat=sa&dir=FTsalt&lang=&type=b&coords=.
- [118] J.H BULTMAN. “Actinide transmutation in nuclear reactors”. Ph.D thesis. Technical University Delft, 1995. ISBN : 90-9007889-4.
- [119] *NuScale website*. 2023. URL : <https://www.nuscalepower.com/en/products>.
- [120] E. MERLE-LUCOTTE et al. “Scenarios for a worldwide deployment of nuclear power”. In : *International Journal of Nuclear Governance, Economy and Ecology* 1.2 (2006), p. 168-192. DOI : 10.1504/IJNGEE.2006.011240.

Table des figures

1.1	Réaction de fission [10]	11
1.2	Section efficace microscopique de capture de l' ^{238}U (base de données ENDFB-7.1)	12
1.3	Effet du modérateur sur l'énergie moyenne des neutrons	13
1.4	Diagramme de Segré [11]	14
1.5	Spectre d'émission des neutrons prompts et retardés par fission du ^{239}Pu (base de données ENDFB-7.1)[12]	15
1.6	Effet de la température sur des résonances de capture et de diffusion élastique de l' ^{238}U	16
1.7	Régénération théorique pour ^{233}U et le ^{239}Pu	17
1.8	Sections efficaces de capture et de fission de l' ^{241}Am (base de données ENDF-B7.1)	18
1.9	Spectres neutroniques d'un REP et du MSFR de référence	18
1.10	Illustration d'un thermosiphon	21
1.11	Diagramme de prédominance de quelques éléments en sel fluor [17]	23
1.12	Diagramme binaire NaCl-PuCl ₃ [18]	23
1.13	Diagramme ternaire NaCl-MgCl ₂ -PuCl ₃ [18]	24
2.1	Schéma du fonctionnement de l'ARE [24]	28
2.2	Schéma du MSRE [27]	29
2.3	Schéma fonctionnel d'un MSBR [30]	30
2.4	Schéma du système FUJI [34, 35]	31
2.5	Schéma du réacteur TMSR-LF1 [37]	32
2.6	Schéma du réacteur MOSART [38]	32
2.7	Schéma de principe du circuit combustible du MSFR [10]	33
2.8	Schéma de principe du retraitement du MSFR de référence [17]	34
2.9	Schéma du circuit combustible du réacteur de l'ORNL (1956) [50]	35
2.10	Schéma du circuit combustible du réacteur d'Argonne (1966) [51]	36
2.11	Schéma du circuit combustible du MCFR de Mausolff et al. [47]	37
2.12	Schéma du circuit combustible de CHLOROPHIL (1974) [54]	37
2.13	Schéma du circuit combustible de SOFT (1980) [55]	38
3.1	Exemples de discrétisation multi-échelle de la géométrie d'un REP pour un code déterministe	41
3.2	Schéma de calcul du code REM [41]	44
3.3	Evolution des masses d'actinides dans le sel combustible pour une configuration du MSFR de référence démarré avec (TRU + ^{enr}U)	45
3.4	Schéma de calcul du code SDF/ISF [82]	45
3.5	Évolution du parc simple	46
3.6	Évolution de l'inventaire associé au parc simple	47
3.7	Géométrie du circuit combustible des MSFR modélisés par SONGe [83] (sel combustible en vert, couverture fertile en rouge, protections neutroniques en gris, échangeurs de chaleur en orange)	47
3.8	Interface du code LiCore, suivi de charge de 3 GW _{th} à 2 GW _{th} [87]	49
3.9	Simulation dynamique du MSFR de référence par ALICES [87]	50
3.10	Les différentes boucles de fluide utiles pour la convection naturelle	50
3.11	Corrélations utilisées selon les valeurs de Re et Pr	51
4.1	Vue isométrique du MSFR de référence centrée sur le circuit combustible [91]	53
4.2	Spectres de référence de différents types de réacteurs (MSFR désigne le MSFR de référence à sels fluorures ici) [94]	55
4.3	Sections efficaces de capture des isotopes naturels du chlore	55
4.4	Sections efficaces de diffusions élastique et inélastique du ^{19}F	56
4.5	Sections efficaces de diffusion élastique des isotopes naturels du baryum	57
4.6	Diagramme ternaire du sel NaCl-UCl ₃ -PuCl ₃ [18]	58
4.7	Spectre neutronique représentatif du sel combustible du MSFR-Cl	58
4.8	Modélisation du MSFR-Cl dans le code Serpent2 (sel combustible en rouge; sel fertile en vert; protections neutroniques en noir; couche protectrice en gris foncé; réflecteur en gris clair; gaz inerte + PF gazeux en mauve)	59
4.9	Évolution de la réactivité pour trois volumes de cœur différents (en m ³)	61

4.10	Ratio des taux de fissions dans le vase / dans le coeur, et coefficient de densité en fonction de la distance du vase au coeur (l'incertitude statistique associée est plus petite que les points pour les taux de fissions)	65
4.11	Facteur de multiplication en fonction de la distance vase-coeur	65
4.12	Sections efficaces microscopiques des réactions (n, γ) sur le ^{35}Cl et (n,2n) sur le ^{37}Cl	66
4.13	Taux de réactions (n, γ) sur le ^{35}Cl et (n,2n) sur le ^{37}Cl selon l'enrichissement en ^{37}Cl pour le sel combustible, avec grossissement à droite sur les enrichissements élevés	67
4.14	Taux de réactions (n, γ) sur le ^{35}Cl et (n,2n) sur le ^{37}Cl selon l'enrichissement en ^{37}Cl pour le sel fertile, avec grossissement à droite sur les enrichissements élevés	67
4.15	Taux de production total de ^{36}Cl selon l'enrichissement en ^{37}Cl , avec grossissement à droite sur les enrichissements élevés	68
4.16	Facteur de multiplication selon l'enrichissement en ^{37}Cl	68
4.17	Impact du matériau utilisé pour le réflecteur entourant le circuit combustible sur le spectre du sel combustible	70
4.18	Cartes des facteurs de régénération pour la composition initiale	72
4.19	Utilisation de l' ^{238}U	73
4.20	Carte de la population neutronique en fonction du rayon, sans modérateur	74
4.21	Carte de la population neutronique en fonction du rayon, avec modérateur	74
4.22	Facteur de multiplication selon le niveau de remplissage de la couverture fertile	75
4.23	Flux neutronique suivant le rayon - comparaison entre le calcul kcode et l'approche par gerbe	77
4.24	Flux neutronique suivant le rayon - comparaison calcul kcode, approche par gerbe et repositionnement direct des neutrons retardés selon une distribution homogène	77
4.25	Interface de LiCore - recherche de la distribution des précurseurs	78
4.26	Flux neutronique suivant le rayon avec la distribution des précurseurs de LiCore	78
4.27	Comparaison du flux neutronique à mi-hauteur et proche d'un plenum	79
4.28	Flux à mi-hauteur en fonction de l'épaisseur de la protection neutronique	79
4.29	Ratio des flux à mi-hauteur en fonction de l'épaisseur de la protection neutronique	80
4.30	Évolution du k et du coefficient de densité pendant le remplissage	81
5.1	Evolution de la réactivité pour une simulation sans contrôle	84
5.2	Évolution de la part en ^{239}Pu dans le vecteur Pu du sel fertile, pour une évolution sans contrôle	85
5.3	Composition du sel combustible (source fissile : "UOX usé") au bout de 10 ans, évolution sans contrôle (les rayures indiquent un élément métallique et les bulles indiquent un gaz ou un élément volatil pour les sels NaCl-AnCl_3)	85
5.4	Forme identifiée des éléments dans le sel ternaire $\text{NaCl-UCl}_3\text{-PuCl}_3$ (la couleur indique la valence)	86
5.5	Schéma de principe du traitement des sels chlorures NaCl-AnCl_3	88
5.6	Évolution du vecteur Pu du sel fertile en fonction du débit de traitement pour une fraction de 0.5mol% de $(\text{TRU})\text{Cl}_3$ (TRU issus des combustibles MOX usés refroidis 5 ans)	89
5.7	Évolution des masses totale, de noyaux lourds et de PF suivant les différents contrôles implémentés, pour le MSFR-Cl	92
5.8	Évolution des nombres de moles de chlore et d'actinides (An) suivant les différents contrôles mis en place, pour le MSFR-Cl	93
5.9	Évolution du facteur de multiplication suivant les différents contrôles mis en place, pour le MSFR-Cl	94
5.10	Évolution du vecteur Pu suivant les différents contrôles mis en place, pour le MSFR-Cl	95
5.11	Impact du temps d'extraction des PF insolubles sur la quantité totale de PF et d'iode dans le combustible	96
5.12	Distribution des produits de fission rapide (500 keV) de ^{239}Pu	96
5.13	Impact du débit d'extraction des PF solubles sur la quantité totale de PF dans le combustible	97
5.14	Alimentation cumulée et évolution de la composition du sel combustible du MSFR-Cl en configuration standard	98
5.15	Alimentation cumulée, évolution de la composition du sel fertile et extraction cumulée du MSFR-Cl en configuration standard	100
5.16	Bilan sur les PF - comparaison MSFR-Cl et MSFR de référence (démarrage TRU + $^{\text{enr}}\text{U}$)	101
5.17	Puissance résiduelle des combustibles	104
5.18	Puissance résiduelle des couvertures fertiles	105
5.19	Evolution du facteur de multiplication pour la configuration standard du MSFR-Cl, avec ou sans vase d'expansion	106
5.20	Evolution du facteur de multiplication pour la configuration standard du MSFR-Cl selon le combustible de démarrage	107
5.21	Évolution du facteur de multiplication pour la configuration standard du MSFR-Cl selon la librairie de données utilisée	108

6.1	Modélisation du MSFR-Cl dans le code LiCore (droite) à partir de la géométrie définie pour les calculs neutroniques (modélisation avec le code Serpent2 à gauche)	112
6.2	Rampe de réactivité linéaire sur 1s	113
6.3	Injection linéaire de 1000 pcm sur des périodes de 0.001s à 1s	114
6.4	Injection linéaire de 1000 pcm sur des périodes de 0.001s à 1s - MSFR de référence	115
6.5	Injection linéaire de 1000 pcm en 0.001s - comparaison MSFR-Cl - MSFR de référence	116
6.6	Suivi de charge de 1.5GW à 3GW sur le MSFR-Cl	117
6.7	Comparaison des suivis de charge de 1.5GW à 3GW sur les MSFR pour la période de 30s	117
6.8	Sur-refroidissement à basse puissance du MSFR-Cl	118
6.9	Sur-refroidissement à basse puissance du MSFR-Cl - intervalle [0.99s; 1.07]	119
6.10	Sur-refroidissement à puissance de départ de 1kW	119
6.11	Sur-refroidissement à puissance de départ de 1kW - intervalle [0.95s; 1.09s]	120
6.12	Les différentes boucles de fluide utiles pour la convection naturelle	120
6.13	Évolutions de la température du cœur et de la puissance de fission pour un transitoire SNCF standard	122
6.14	Évolution de la vitesse moyenne du sel combustible pour un transitoire SNCF standard	122
6.15	Température moyenne maximale atteinte pendant le transitoire en fonction de la géométrie des boucles pour le MSFR de référence [89]	123
6.16	Température moyenne maximale atteinte pendant le transitoire en fonction de la géométrie des boucles pour le MSFR-Cl avec 60m ³ de sel combustible [89]	124
7.1	Évolution d'un parc de type français basé exclusivement sur des REP	128
7.2	Évolution des inventaires d'un parc de type français basé exclusivement sur des REP	128
7.3	Évolution d'un parc de type français avec déploiement des MSFR de référence	130
7.4	Évolution des stocks d'un parc de type français avec déploiement des MSFR de référence	130
7.5	Évolution d'un parc de type français avec déploiement des MSFR-Cl	131
7.6	Évolution des stocks d'un parc de type français avec déploiement des MSFR-Cl	131
7.7	Évolution d'un parc de type français avec déploiement des MSFR-Cl	132
7.8	Évolution des stocks d'un parc de type français avec déploiement des MSFR-Cl	132
8.1	Diagramme binaire du sel NaCl-ThCl ₄ [116]	137
8.2	Diagramme binaire du sel LiF-ThF ₄ [117]	137
8.3	Cartes de spectre pour le réacteur suivant le sel fertile	138
8.4	Taux de capture et taux de conversion sur le ²³² Th en fonction du rayon dans le sel fertile	138
8.5	Evolution des masses en sel fertile suivant le débit de traitement	139
8.6	Evolution de la masse d' ²³³ U disponible dans le stockage suivant le débit de traitement	140
8.7	Diagramme ternaire du sel NaCl-MgCl ₂ -PuCl ₃ [18]	141
8.8	Flux neutronique radial suivant l'épaisseur de la protection en B ₄ C devant les échangeurs de chaleur (cœur de 2m ³)	145
8.9	Cartes de spectre neutronique sans filtre (à gauche) et avec filtre (à droite)	145
8.10	Coefficient de densité et proportion de fissions dans le vase d'expansion en fonction de la distance vase-cœur	147
8.11	Evolution du parc avec déploiement des SyRE	149
8.12	Evolution du parc avec déploiement des SyRE puis des MSFR de référence	150
8.13	Evolution du parc avec arrêt anticipé de la production de MOX	151
A.1	Récapitulatif des différents réacteurs étudiés	171
C.1	Température moyenne maximale atteinte pendant le transitoire en fonction de la géométrie des boucles pour le MSFR de référence [89]	174
C.2	Température moyenne maximale atteinte pendant le transitoire en fonction de la géométrie des boucles pour le MSFR-Cl avec 60m ³ de sel combustible [89]	175
D.1	Demandes d'électricités mondiales (DEM), la nouvelle demande (rouge) est utilisée pour les scénarios [82]	176
D.2	Évolution d'un parc mondial constitué uniquement de REP à combustible UO _x	177
D.3	Évolution des inventaires pour un scénario mondial avec déploiement uniquement des REP UO _x	177
D.4	Évolution d'un parc mondial constitué de REP à combustible UO _x ou MOX	177
D.5	Évolution des inventaires pour un scénario mondial avec déploiement des REP UO _x et MOX	178
D.6	Évolution d'un parc mondial avec déploiement des REP UO _x uniquement selon la réserve d'uranium naturel disponible [Mt]	178

D.7	Évolution d'un parc mondial avec REP à combustible UOx et MSFR de référence (* démarrage avec les TRU issus de la composition finale du MSFR ^{233}U)	179
D.8	Évolution d'un parc mondial avec déploiement du MSFR-CI basé sur le ^{237}Np pour la stratégie de résistance à la prolifération (redémarré signifie ici démarré avec la composition finale du sel combustible du MSFR-CI C-Pu89 F-NpU)	180
D.9	Évolution des inventaires pour le parc avec déploiement du MSFR-CI basé sur le ^{237}Np pour la stratégie de résistance à la prolifération	181
D.10	Évolution d'un parc mondial avec déploiement des MSFR-CI sans contrainte liée à la prolifération (redémarré signifie ici démarré avec la composition finale du sel combustible du MSFR-CI C-Pu9 F-U8)	181
D.11	Évolution des inventaires pour un scénario mondial avec déploiement des MSFR-CI sans considération de la prolifération	182
E.1	Evolution des inventaires pour le scénario avec déploiements des SyRE sans MSFR	183
E.2	Evolution des inventaires pour le scénario avec déploiement des SyRE et des MSFR	183
E.3	Evolution des inventaires pour le scénario avec déploiement des SyRE pour les combustibles UOX usés et MOX usés, et des MSFR	184

Liste des tableaux

1.1	Méthodes d'extraction	25
3.1	Description des réacteurs simplifiés pour un scénario simple	46
3.2	Propriétés physiques du combustible LiF - ThF ₄ (78% - 22%)	48
3.3	Propriétés physiques du combustible NaCl - UCl ₃ (67% - 33%)	48
3.4	Viscosité dynamique [mPa.s] du mélange NaCl-UCl ₃ pour plusieurs températures et suivant la proportion de UCl ₃	49
4.1	Critères et solutions techniques associées pour la conception du MSFR-Cl	54
4.2	Vecteur TRU des combustibles UOX usés et MOX usés considérés	60
4.3	Contraintes et variables principales utilisées pour l'optimisation du circuit combustible du MSFR-Cl par le code SONGe	62
4.4	Sous-ensemble de paramètres optimisés par SONGe utilisés pour la définition de la configuration de référence du MSFR-Cl	63
4.5	Premier dimensionnement du vase d'expansion	64
4.6	Deuxième dimensionnement du vase d'expansion	64
4.7	Composition de l'acier 316H	69
4.8	Propriétés de l'acier 316H [97, 98]	69
4.9	Composition de l'alliage NiCrW (à partir de [99])	69
4.10	Propriétés de l'alliage NiCrW [99]	69
4.11	Composition du SiC	70
4.12	Facteur de multiplication pour une même composition de sel combustible suivant le matériau entourant le circuit combustible	70
4.13	Poids en réactivité équivalent ²³⁹ Pu calculés pour les isotopes du plutonium	72
4.14	Caractéristiques de la configuration standard du MSFR-Cl	80
4.15	Compositions initiales	80
4.16	Paramètres neutroniques à l'état initial	81
5.1	Contrôles et observables associées	91
5.2	Bilan massique sur 50 ans pour les actinides du sel combustible	99
5.3	Bilan massique sur 50 ans pour les actinides du sel fertile	101
5.4	Bilan massique des actinides sur 50 ans sur le sel combustible du MSFR de référence	102
5.5	Bilan massique des actinides sur 50 ans sur le sel fertile du MSFR de référence	102
5.6	Taux de consommation des actinides sur 50 ans suivant le réacteur	103
5.7	Bilan massique du sel combustible sur 50 ans - comparaison avec ou sans vase d'expansion	106
5.8	Bilan massique du sel combustible sur 50 ans pour les actinides, pour trois combustibles différents	108
5.9	Bilan massique du sel combustible sur 50 ans pour les actinides suivant la base de données utilisée	109
6.1	Paramètres neutroniques du MSFR-Cl utilisés avec le code LiCore	112
6.2	Caractéristiques utilisées pour la boucle combustible dans la configuration obtenue d'après SONGe	121
6.3	Propriétés thermodynamiques des sels intermédiaires	121
6.4	Paramètres thermohydrauliques de référence pour les boucles dans le code SNCF [89]	123
7.1	Calcul de la puissance installée requise pour le scénario de type français	127
7.2	Caractéristiques des REP utilisés pour les scénarios	127
7.3	Caractéristiques des MSFR principaux	129
7.4	Inventaires en 2100 avec déploiement du MSFR de référence ou des MSFR-Cl	133
7.5	Inventaires en 2100 avec déploiement du MSFR de référence ou des MSFR-Cl	133
8.1	Taux de capture cumulé sur le ²³² Th en fonction du rayon dans la couverture fertile avec le sel LiF-ThF ₄	139
8.2	Configurations initiales selon la puissance volumique choisie	141
8.3	Fraction de neutrons retardés selon la puissance volumique choisie	142
8.4	Bilan massique détaillé [kg] sur 50 ans pour les actinides du sel combustible pour le coeur de 2m ³	143
8.5	Bilan massique [kg] sur 50 ans pour les actinides du sel combustible	143
8.6	Bilan massique [kg] sur 50 ans pour les actinides du sel fertile	144

8.7	Critère d'incinération WR à 50 ans par élément	144
8.8	Critère d'incinération ITT [ans] à 50 ans par élément	144
8.9	Bilan massique [kg] sur 50 ans pour les actinides du sel fissile	146
8.10	Bilan massique [kg] sur 50 ans pour les actinides du sel fertile	146
8.11	Bilan massique [kg] sur 50 ans pour les actinides du sel combustible utilisant le combustible UOX usé (coeur de 2m ³)	148
8.12	Critères d'incinération WR et ITT [ans] à 50 ans par élément	148
D.1	Inventaires finaux pour les scénarios mondiaux utilisant uniquement des REP	178
D.2	Bilan massique des actinides du sel fertile sur 60 ans du MSFR-CI C-1 F-NpU	179
D.3	Caractéristiques des MSFR-CI utilisant du ²³⁷ Np	180

Annexe A Aide-mémoire : les différents réacteurs étudiés

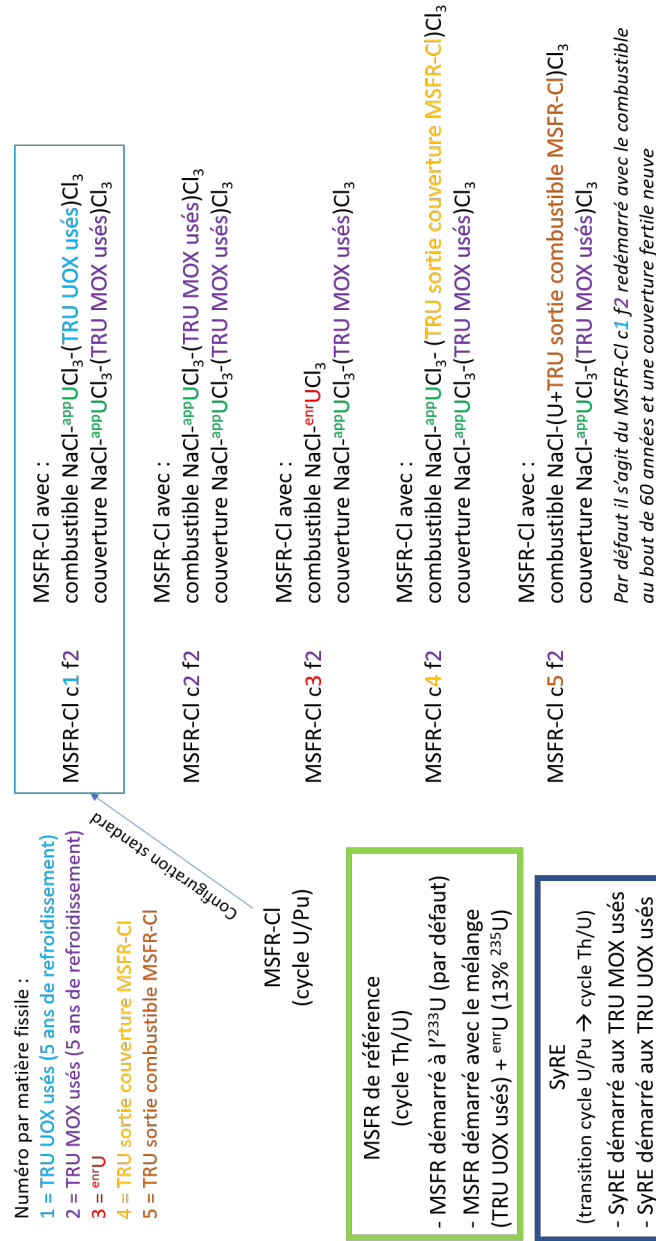


FIGURE A.1 – Récapitulatif des différents réacteurs étudiés

Annexe B Fichiers d'entrée pour une simulation simple (sphère de ^{239}Pu de 5cm de rayon) avec les codes MCNP, Serpent2 et OpenMC

B.1 Fichier d'entrée – code MCNP

```
c TestSimple
c Cellules : exterieur et sphere
11 1 -19.85 -1 imp :n=1
12 0 1 imp :n=0

c Geometrie : sphere simple de Pu9
1 so 5.0

c Materiaux et cards
m1 94239 1.0
ksrc 0 0 0
kcode 5000 1.0 100 500
print
```

B.2 Fichier d'entrée – code Serpent2

```
% — parametres
set title "Sphere 239Pu"
set acelib "lien vers base de donnée des sections efficaces;"
set pop 5000 400 100 % n, actifs, inactifs

% — Geometrie
surf Sphere sph
0 0 0 5.0

% — Cellules
cell core
0
fuel
-Sphere

cell ext
0
outside
Sphere

% — Materials
mat fuel -19.8
94239g.0300 1
```

B.3 Fichier d'entrée – code OpenMC

Remarque : il s'agit ici du fichier python utilisé pour générer automatiquement les fichiers .xml, qui sont ensuite utilisés après exécution du code OpenMC depuis le répertoire qui les contient.

```
import openmc

# Materials
fuel = openmc.Material()
fuel.set_density('g/cm3', 19.85)
fuel.add_nuclide('Pu239', 1.0, 'ao')
fuel.temperature = 900

materials = openmc.Materials()
materials.append(fuel)
materials.cross_sections = ""
materials.export_to_xml()

# Geometry
Core = openmc.Sphere(0,0,0,5.0, boundary_type='vacuum')

core = openmc.Cell(name='core', fill=fuel, region=-Core)
exterieur = openmc.Cell(name='exterieur', fill=None, region=+Core)

universe = openmc.Universe(cells=[core, exterieur])
geometry = openmc.Geometry(universe)
geometry.export_to_xml()

# cards
settings = openmc.Settings()
settings.run_mode = 'eigenvalue'
settings.particles = 5000
settings.inactive = 100
settings.batches = 500
settings.export_to_xml()
```

Annexe C Prédimensionnement des boucles EPuR - cartes complètes

C.1 Optimisation pour le MSFR de référence

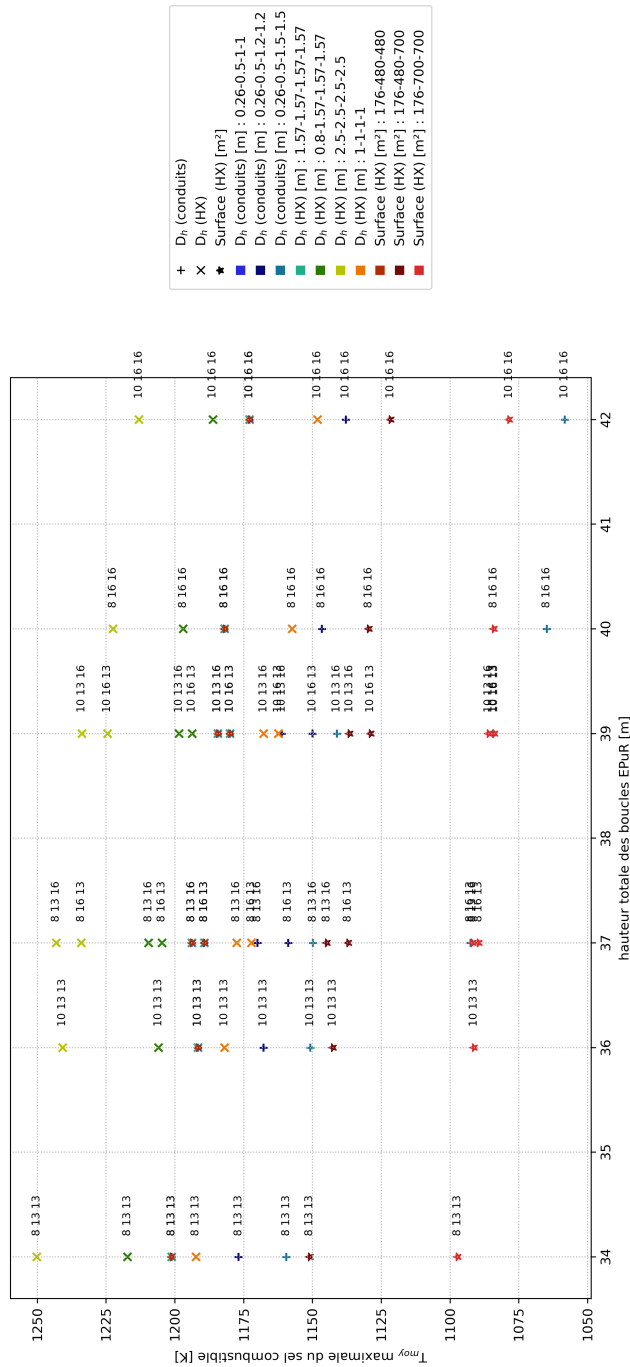


FIGURE C.1 – Température moyenne maximale atteinte pendant le transitoire en fonction de la géométrie des boucles pour le MSFR de référence [89]

C.2 Optimisation pour le MSFR-CL (60m³ de sel combustible)

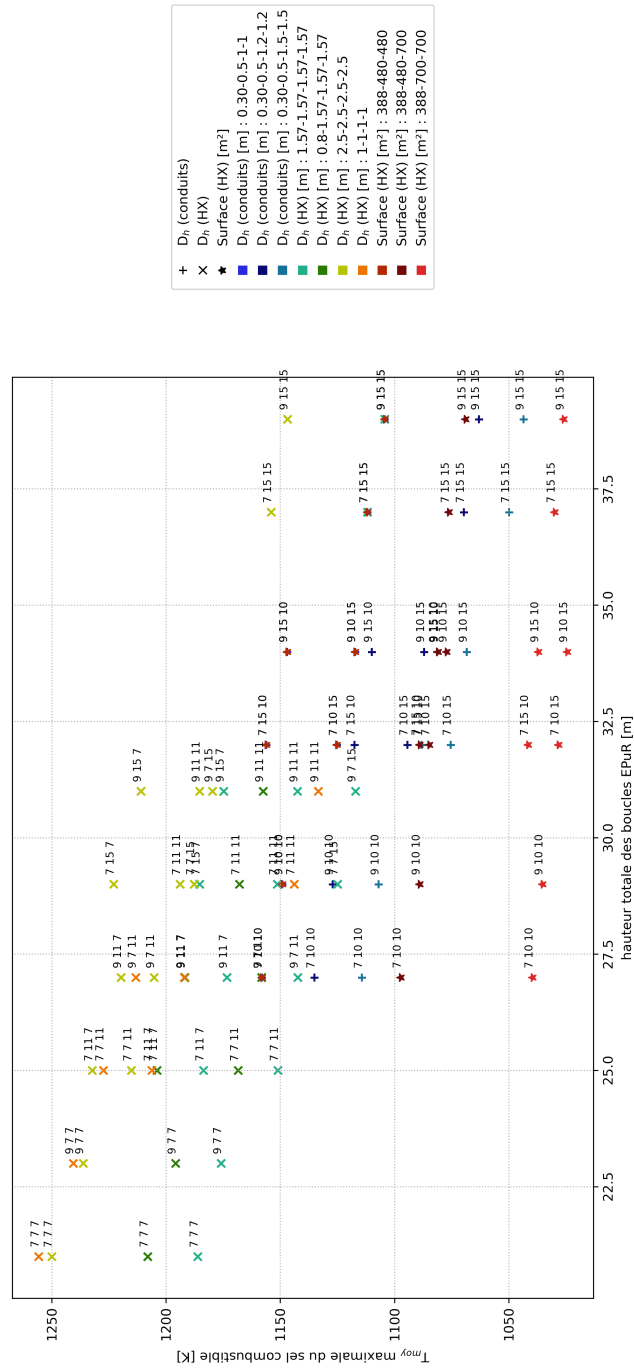


FIGURE C.2 – Température moyenne maximale atteinte pendant le transitoire en fonction de la géométrie des boucles pour le MSFR-Cl avec 60m³ de sel combustible [89]

Annexe D Scénarios avec le code SDF/ISF

D.1 Scénarios mondiaux

Pour ces scénarios, la demande mondiale d'électricité considérée est celle recalculée par Louiliam Clot dans le cadre de son stage [82]. La figure D.1 représente cette demande.

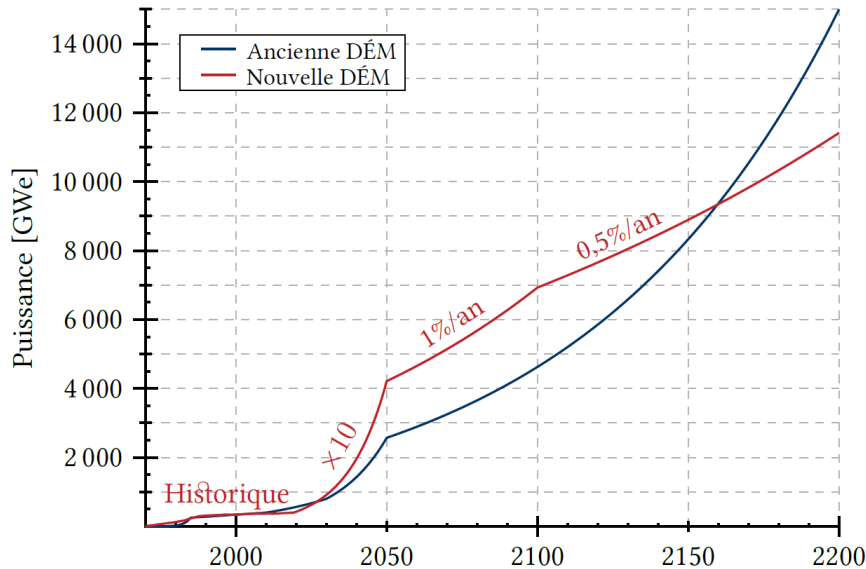


FIGURE D.1 – Demandes d'électricités mondiales (DEM), la nouvelle demande (rouge) est utilisée pour les scénarios [82]

La réserve mondiale disponible d'uranium naturel est une donnée importante lorsque l'on envisage comme ici un déploiement massif. L'hypothèse des 23Mt [120] est conservée ici. Dans ces scénarios, le temps d'extraction de la ressource n'est pas considéré, l'uranium est disponible instantanément tant que la réserve n'est pas épuisée. Il n'y a pas de limite à la vitesse de déploiements des unités, l'objectif consiste uniquement à observer les contraintes sur les inventaires en noyaux lourds.

Au niveau mondial, la génération de combustible MOX utilisé est très faible, du fait que seule la France recycle tous ses assemblages de combustibles UOX usés pour en faire du combustible MOX. (D'autres pays comme le Japon soustraite à la France la fabrication de MOX, et la Russie possède également des installations pour retraiter le combustible. Cela reste marginal à l'échelle mondiale). A l'exception d'un scénario témoin n'utilisant que des REP, les déploiements seront faits en considérant qu'aucun combustible MOX n'est produit. Pour pouvoir déployer le MSFR-Cl qui nécessite les TRU issus des combustibles MOX usés pour sa couverture fertile en configuration standard, une stratégie alternative de résistance à la prolifération est proposée.

D.1.1 Scénarios mondiaux de référence : déploiement de REP avec ou sans combustible MOx

Les parcs obtenus en supposant un déploiement de REP uniquement sont présentés figure D.2 (sans combustible MOx) et figure D.4 (avec combustible MOx). Dans les deux cas, la réserve d'uranium naturelle s'épuise et un décrochage est observé entre production et demande. L'utilisation du combustible MOx à partir de 2025 permet de repousser l'année du décrochage de 2063 à 2066, et la production de $1.62 \cdot 10^5$ TWh supplémentaires représentant 10.5% de la production totale de ce second scénario.

Les inventaires finaux sont présentés dans le tableau D.1. A l'échelle mondiale, l'utilisation de MOx ne constitue pas une solution pérenne, car elle est insuffisante pour répondre à la demande tout en produisant un inventaire final plus complexe à gérer. Le déploiement de réacteurs surrégénérateurs est nécessaire pour satisfaire la demande.

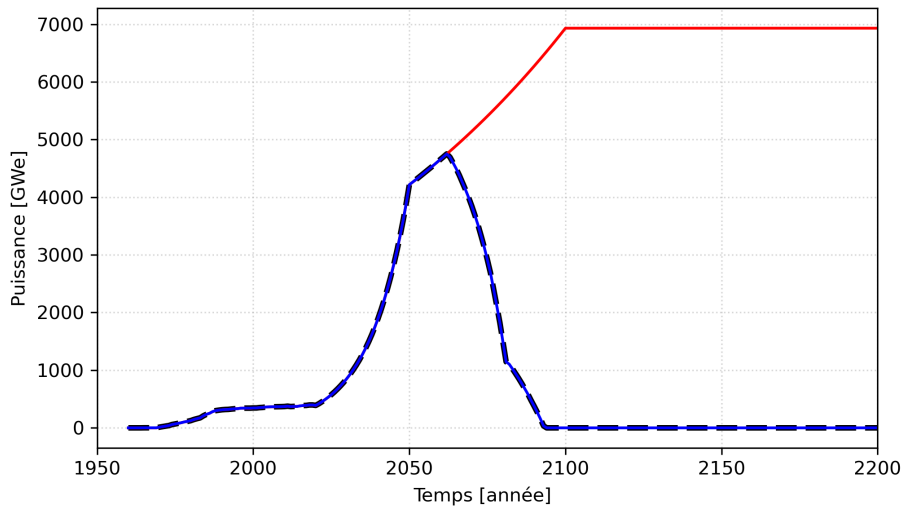


FIGURE D.2 – Évolution d'un parc mondial constitué uniquement de REP à combustible UOx

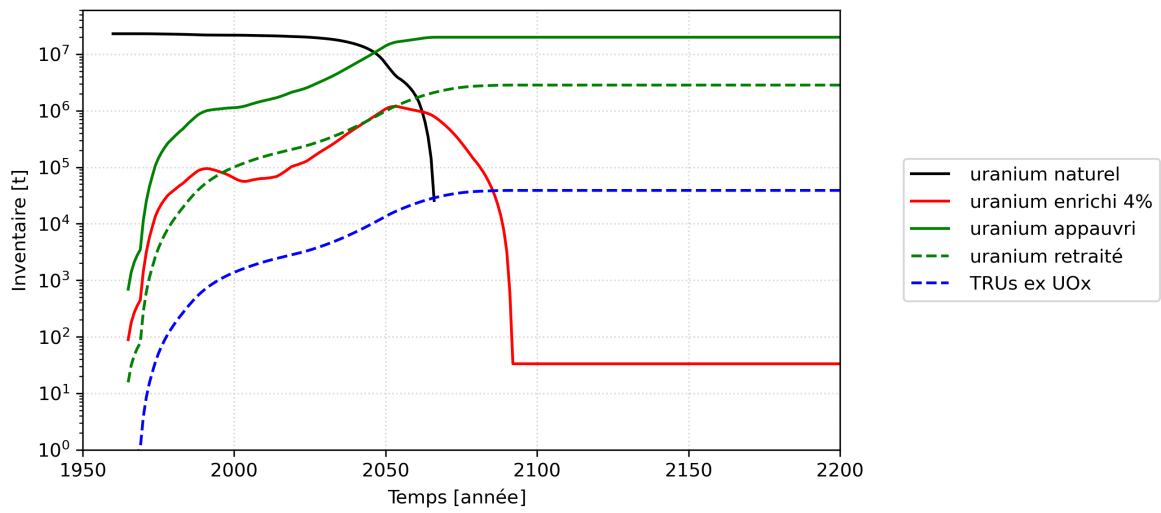


FIGURE D.3 – Évolution des inventaires pour un scénario mondial avec déploiement uniquement des REP UOx

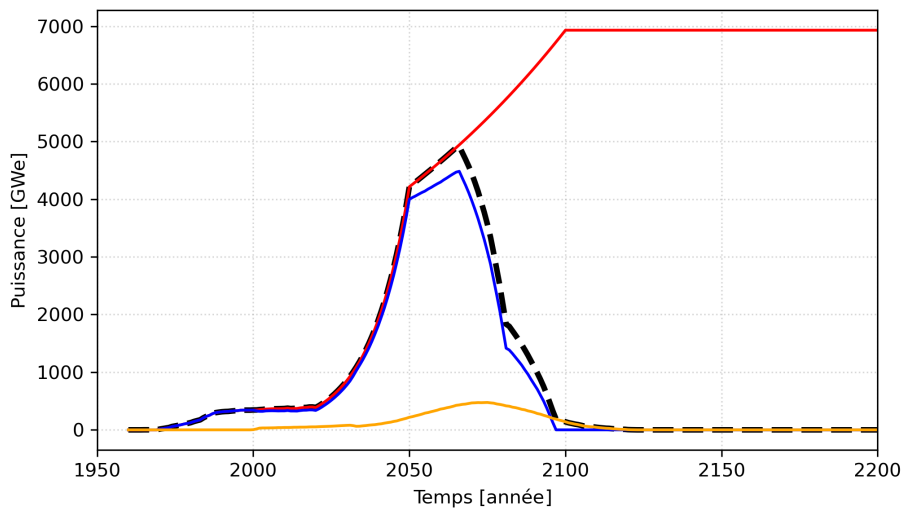


FIGURE D.4 – Évolution d'un parc mondial constitué de REP à combustible UOx ou MOx

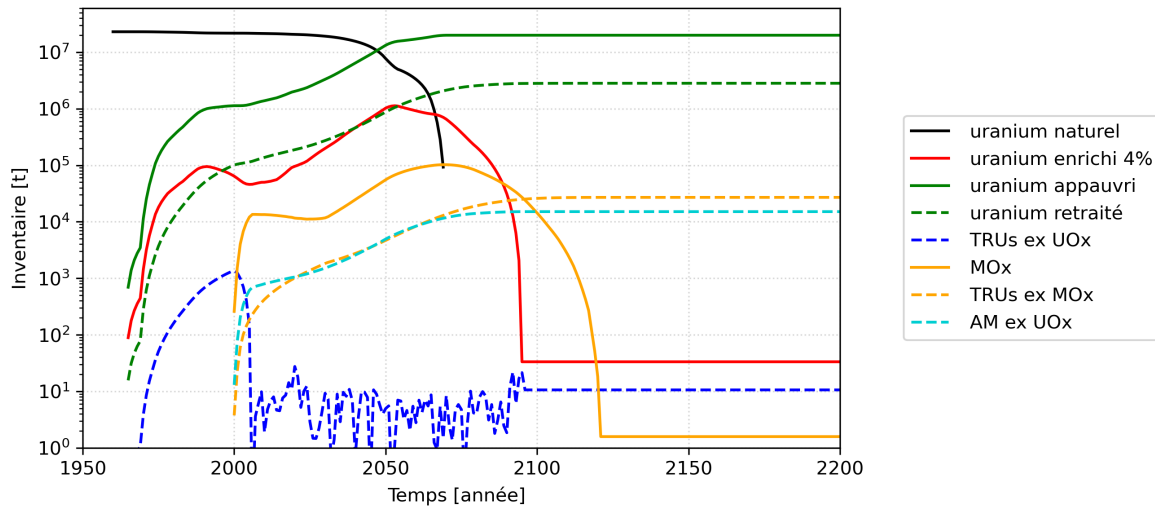


FIGURE D.5 – Évolution des inventaires pour un scénario mondial avec déploiement des REP UOx et MOx

TABLE D.1 – Inventaires finaux pour les scénarios mondiaux utilisant uniquement des REP

Scénario	Uranium naturel consommé	TRU issus des combustibles UOx usés	TRU issus des combustibles MOx usés
Scénario sans combustible MOx	23 Mt	$3.9 \cdot 10^4$ t	0 t
Scénario avec combustible MOx	23 Mt	10t (virtuellement épuisé)	$2.7 \cdot 10^4$ t

A titre informatif, la figure D.6 teste le déploiement d'un parc mondial uniquement constitué de REP à combustible UOx suivant la réserve d'uranium naturel postulée, et montre qu'il faudrait environ 60Mt pour suivre la demande jusqu'en 2100.

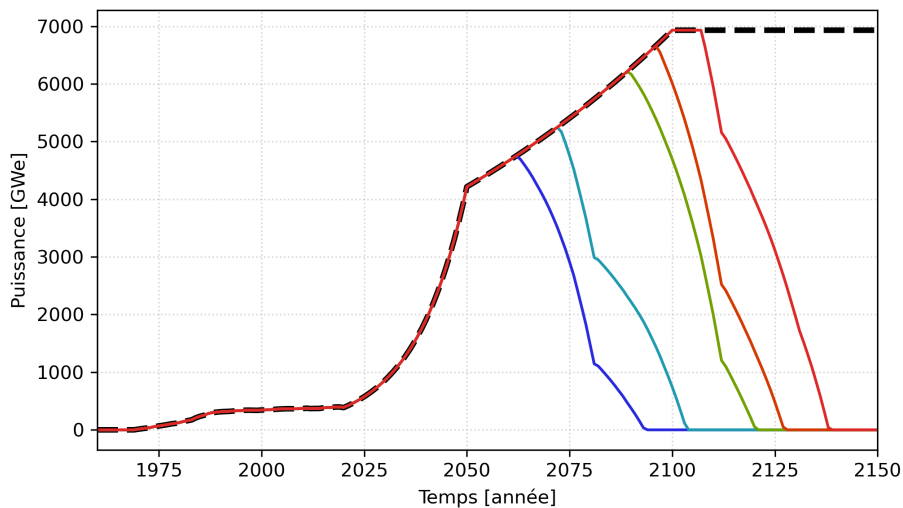


FIGURE D.6 – Évolution d'un parc mondial avec déploiement des REP UOx uniquement selon la réserve d'uranium naturel disponible [Mt]

D.1.2 Scénarios mondiaux avec déploiement des MSFR de référence

Dans cette section, les MSFR de référence sont ajoutés à partir de 2040 au parc de REP utilisant uniquement le combustible UOx. La figure D.7 représente l'évolution du parc ainsi déployé. Dans ce scénario, les MSFR de référence permettent d'assurer la demande mondiale en tout temps. Une fois le dernier REP arrêté, la consommation totale d'uranium naturel représente 13.5Mt. La quantité de TRU issus des combustibles UOx

usés s'équilibre à 1.78 kt, mais il est possible de les éliminer complètement en démarrant prioritairement plus de MSFR démarrés avec cette matière et l'uranium enrichi, et/ou envisager de la mélanger avec de l' ^{233}U , et/ou de s'en servir pour alimenter les MSFR pendant leur opération.

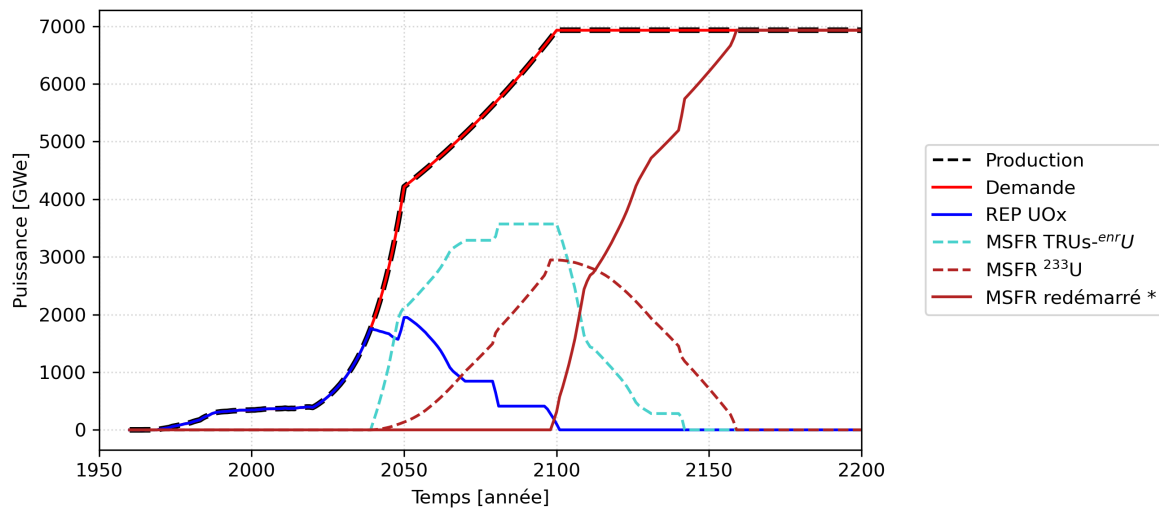


FIGURE D.7 – Évolution d'un parc mondial avec REP à combustible UOx et MSFR de référence (* démarrage avec les TRU issus de la composition finale du MSFR ^{233}U)

D.1.3 Scénarios mondiaux avec déploiement des MSFR-CI

Deux scénarios sont proposés ici pour permettre le déploiement des MSFR-CI, afin de prendre en compte la non-disponibilité de combustibles MOx usés en quantités suffisantes au niveau mondial pour l'utiliser à des fins de résistance à la prolifération dans la couverture fertile.

Le premier modifie la stratégie de résistance à la prolifération en substituant les TRU issus des combustibles MOx usés par une faible quantité de ^{237}Np destinée à être convertie en ^{238}Pu , très efficace pour réduire l'attractivité du plutonium final pour un usage militaire. Le second scénario ne tient pas compte de la résistance à la prolifération, et est utilisé pour estimer la capacité de déploiement théorique du réacteur si cette contrainte est levée.

D.1.3.1 Utilisation du ^{237}Np pour la couverture fertile

On considère ici que 5% de ^{238}Pu dans le vecteur Pu suffisent pour rendre ce dernier peu attractif. Des simulations menées avec le code REM montrent que la couverture fertile requiert environ 280kg de ^{237}Np au démarrage puis une alimentation de 25kg/an pour que cette condition soit remplie. Le tableau D.2 donne le bilan massique détaillé sur le sel fertile.

TABLE D.2 – Bilan massique des actinides du sel fertile sur 60 ans du MSFR-CI C-1 F-NpU

Z	A	I	Composition initiale [kg]	Alimentation sur 50 ans [kg]	Extraction sur 50 ans [kg]	Composition finale [kg]	Bilan [kg]
92	234	0	0.0	0.0	274.4	2.9	277.3
92	235	0	72.0	50.4	19.4	8.1	-94.9
92	236	0	0.0	0.0	1.4	11.8	13.2
92	237	0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
92	238	0	36389.3	25482.8	0.0	36269.8	-25602.3
93	237	0	277.4	27749.9	26283.6	273.8	-1469.9
93	239	0	0.0	0.0	0.1	3.8	3.9
94	238	0	0.0	0.0	1113.7	14.8	1128.5
94	239	0	0.0	0.0	23155.3	242.7	23398.0
94	240	0	0.0	0.0	470.9	5.1	476.0
94	241	0	0.0	0.0	3.8	0.1	3.9
94	242	0	0.0	0.0	0.2	0.0	0.2
95	241	0	0.0	0.0	7.4	0.0	7.4

Le ^{237}Np a une demi-vie de $2.1 \cdot 10^6$ années, sa quantité une fois stockée hors d'un réacteur est donc considérée invariante dans ces simulations. Il représente respectivement 5.41 at% et 7.66at% des vecteurs des combustibles UOx usés et MOx usés refroidis 5 ans, soit environ 5kg/100kg et 7kg/100kg. Pour ce scénario sans déploiement de REP MOxés, le ^{237}Np est supposé être extrait des combustibles UOX usés et le reste des TRU est utilisé pour démarrer les premiers MSFR-Cl. L'approximation est faite que le retrait du ^{237}Np n'est pas significatif sur la quantité de matière requise pour le démarrage des MSFR-Cl. La couverture contenant un mélange ($^{237}\text{Np} + {}^{\text{app}}\text{U}$) est appelée F-NpU. Le combustible contenant 5% de ^{238}Pu et 95% de ^{239}Pu (traces de ^{240}Pu ignorées) est appelé C-Pu89. Le tableau D.3 indique les caractéristiques de ces nouveaux réacteurs.

TABLE D.3 – Caractéristiques des MSFR-Cl utilisant du ^{237}Np

Réacteur	Entrée	Sortie
MSFR-Cl C-1 F-NpU	TRU ex-UOx : 13.5t + 54kg/an ${}^{\text{app}}\text{U}$: 98.5t + 1.5t/an ^{237}Np : 250kg + 25kg/an	Pu89 : 412kg/an ${}^{\text{app}}\text{U}$: 98.5t TRU ex-MSFR-Cl : 13.3t ^{237}Np : 275kg
MSFR-Cl C-Pu89 F-NpU	Pu89 : 8.9t + 68kg/an ${}^{\text{app}}\text{U}$: 102.9t + 1.5t/an ^{237}Np : 250kg + 25kg/an	Pu89 : 412 kg/an ${}^{\text{app}}\text{U}$: 102.7 t TRU ex-MSFR-Cl : 13.7t ^{237}Np : 275kg

La figure D.8 représente l'évolution du parc avec déploiement de ces MSFR-Cl. On constate que ces réacteurs ne permettent pas de répondre à la demande, le ^{237}Np est très rapidement limitant comme l'illustre l'évolution des stocks présentés par la figure D.9. Les MSFR-Cl représentent au maximum une capacité de 1324GW_e en 2100, sur les 6930GW_e demandés soit 19%.

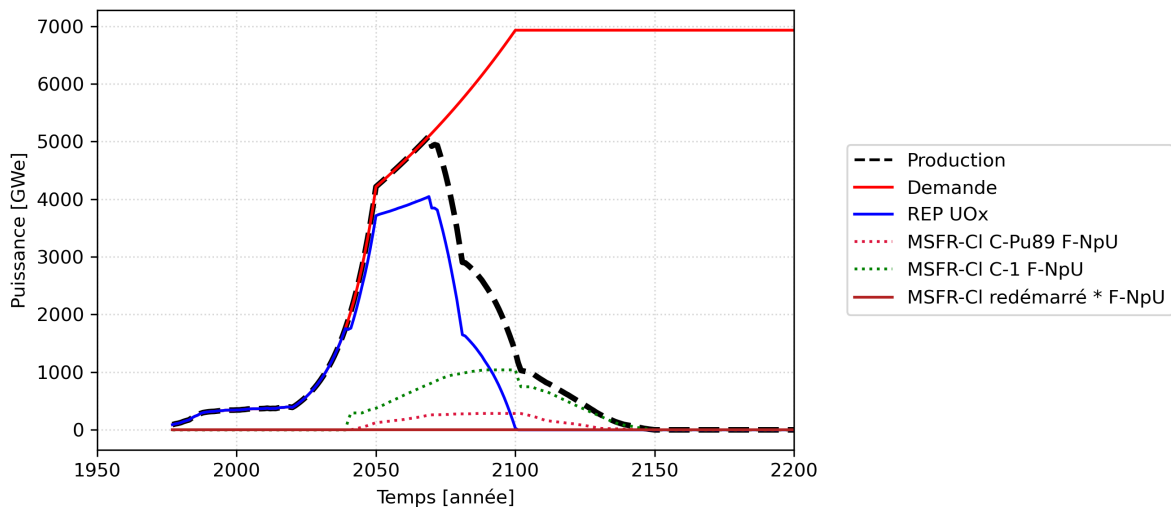


FIGURE D.8 – Évolution d'un parc mondial avec déploiement du MSFR-Cl basé sur le ^{237}Np pour la stratégie de résistance à la prolifération (redémarré signifie ici démarré avec la composition finale du sel combustible du MSFR-Cl C-Pu89 F-NpU)

D.1.3.2 Déploiement sans considération de la prolifération

Les études sur le cas français et mondial montrent que le MSFR-Cl est limité dans son déploiement par sa couverture fertile et la stratégie de résistance à la prolifération qu'elle exige. Dans cette section, on s'intéresse au cas théorique où la contrainte de la prolifération est levée. Les réacteurs utilisés sont les mêmes que ceux présentés dans le tableau D.3 en ignorant les flux de ^{237}Np . On note Pu9 le plutonium formé en couverture, dont le ^{239}Pu représente plus de 98% du vecteur (le reste étant du ^{240}Pu), et U8 la matière dans la couverture fertile ne contenant que l'uranium appauvri.

La figure D.10 montre le parc ainsi déployé. La demande est suivie en tout temps par la production, ce qui confirme que la stratégie de résistance à la prolifération est bien le facteur limitant. Le dernier REP UOx

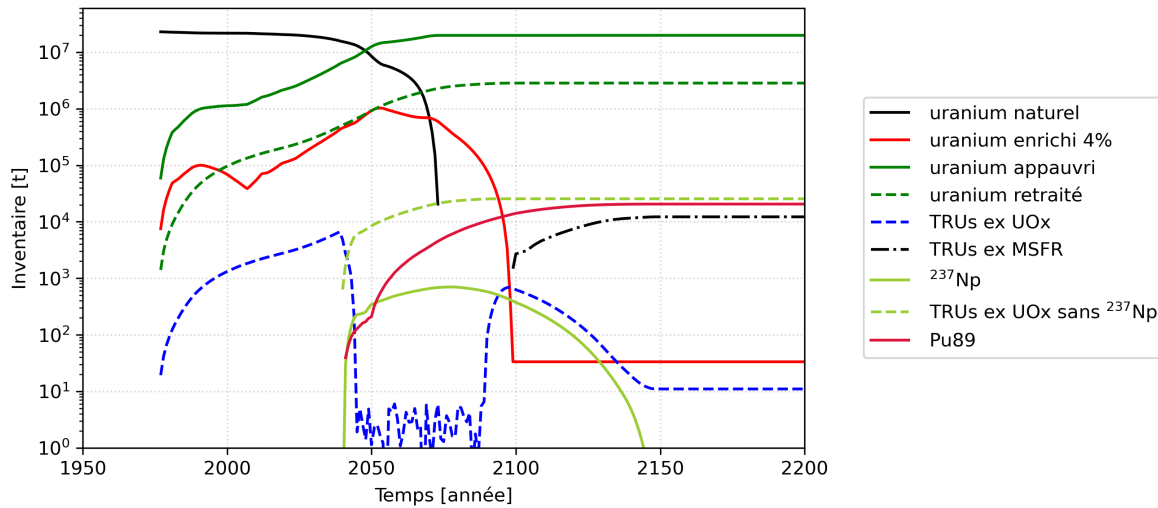


FIGURE D.9 – Évolution des inventaires pour le parc avec déploiement du MSFR-CI basé sur le ^{237}Np pour la stratégie de résistance à la prolifération

est arrêté en 2080. La consommation finale d'uranium naturel est de 12.75Mt, légèrement inférieure au cas du déploiement avec MSFR de référence (13.5Mt). Ceci est probablement dû au fait qu'il n'y a pas besoin d'uranium enrichi à 13% avec ces MSFR-CI. L'inventaire de TRU issu des combustibles UOx utilisés est complètement utilisé.

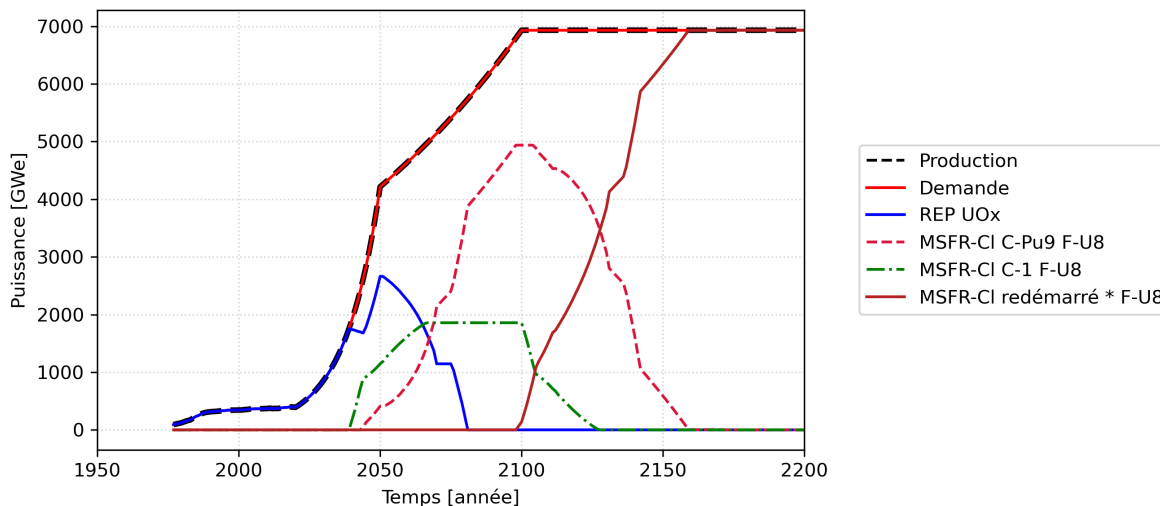


FIGURE D.10 – Évolution d'un parc mondial avec déploiement des MSFR-CI sans contrainte liée à la prolifération (redémarré signifie ici démarré avec la composition finale du sel combustible du MSFR-CI C-Pu9 F-U8)

Les scénarios mondiaux montrent que pour la demande envisagée, l'utilisation des REP n'est pas suffisante et conduit à l'épuisement des réserves d'uranium naturel postulées ici à 23Mt.

Le déploiement des MSFR de référence à partir de 2040 permet de répondre en tout temps à la demande, et d'effectuer une transition vers le cycle thorium après consommation de 13.5Mt d'uranium naturel.

Le MSFR-CI dans sa configuration standard n'est pas déployable à l'échelle mondiale dans un contexte où seule la France possède un inventaire de combustibles MOx usés significatifs. Une stratégie alternative basée sur l'utilisation du ^{237}Np pour assurer la résistance à la prolifération est testée, mais les résultats montrent que ceci ne permet pas un déploiement massif des MSFR-CI qui produisent en 2100 uniquement 19% de la puissance totale demandée.

Un test de déploiement réussi en ignorant la contrainte de la résistance à la prolifération confirme que cette contrainte est bien le facteur limitant. Ces études préliminaires suggèrent que le modèle du MSFR-CI avec couverture fertile sera compliqué à déployer. Dans l'optique où l'on souhaite continuer à utiliser le cycle uranium, une configuration alternative du MSFR-CI sans couverture fertile et surrégénérateur en coeur serait intéressante à étudier.

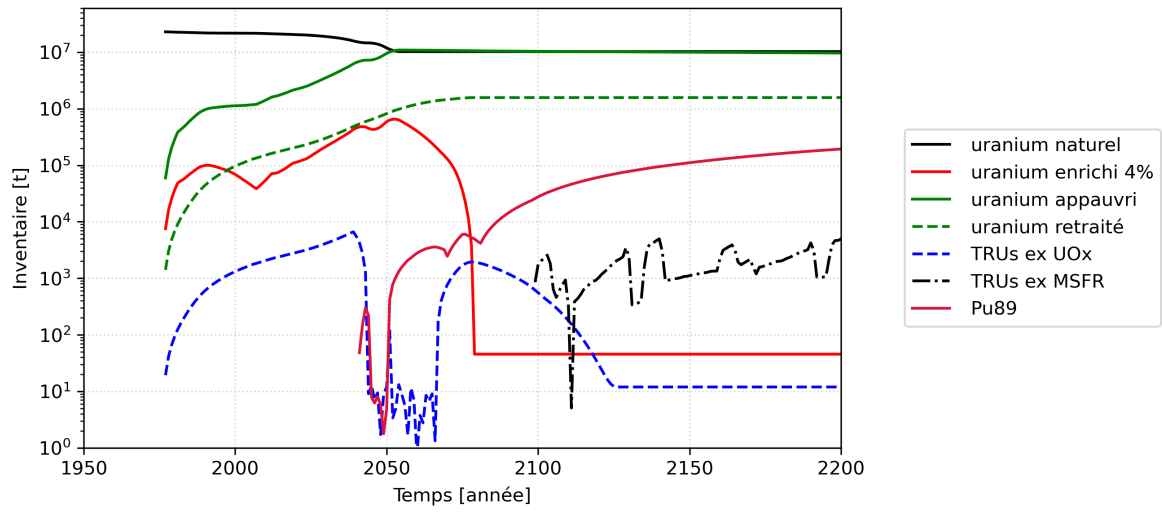


FIGURE D.11 – Évolution des inventaires pour un scénario mondial avec déploiement des MSFR-CI sans considération de la prolifération

Annexe E Inventaires des scénarios avec le concept SyRE

E.1 Evolution des inventaires pour le scénario avec déploiements des SyRE sans MSFR

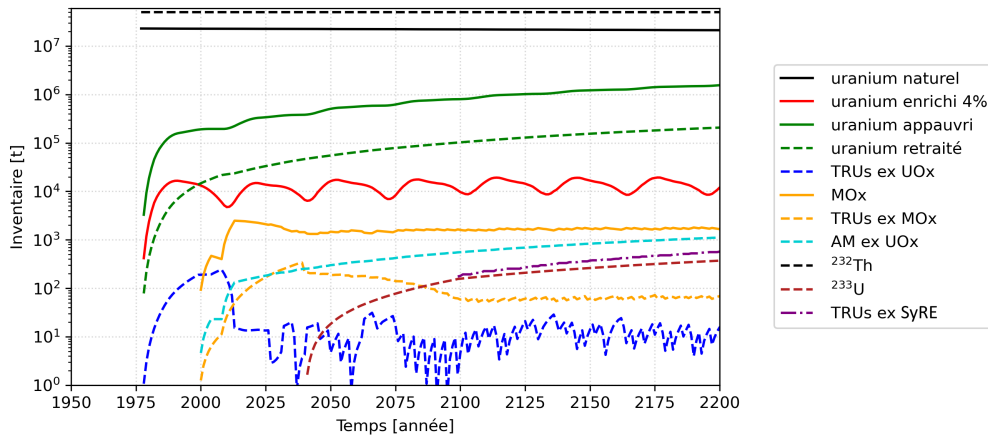


FIGURE E.1 – Evolution des inventaires pour le scénario avec déploiements des SyRE sans MSFR

E.2 Evolution des inventaires pour le scénario avec déploiement des SyRE et des MSFR

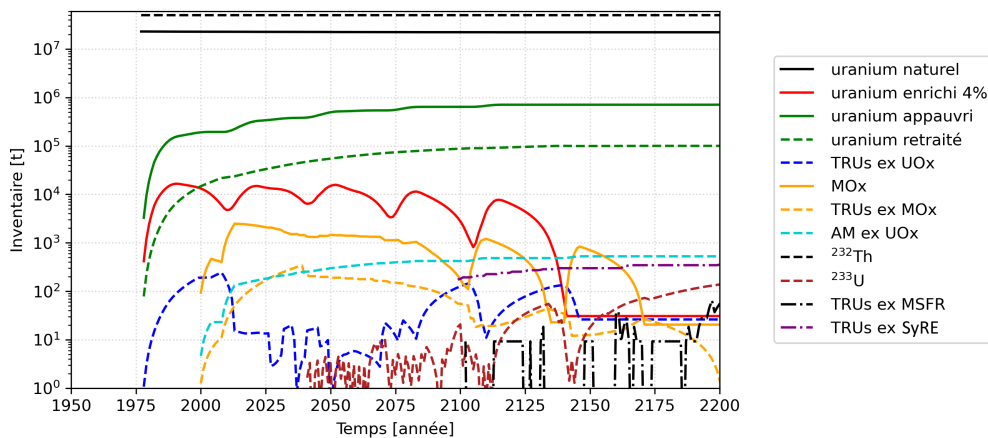


FIGURE E.2 – Evolution des inventaires pour le scénario avec déploiement des SyRE et des MSFR

E.3 Evolution des inventaires pour le scénario avec déploiement des SyRE pour les combustibles UOX usés et MOX usés, et des MSFR

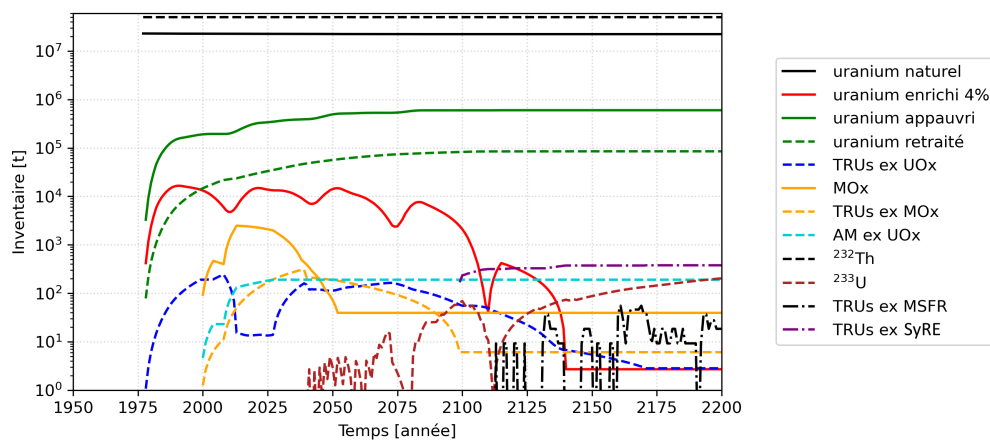


FIGURE E.3 – Evolution des inventaires pour le scénario avec déploiement des SyRE pour les combustibles UOX usés et MOX usés, et des MSFR

Résumé

Depuis le début des années 2000 et suite à la loi Bataille en France, l'équipe MSFR du LPSC de Grenoble a repris le concept des réacteurs à sels fondus, donnant progressivement forme au Molten Salt Fast Reactor (MSFR) de référence. Ce sursurrégénérateur de 3GW_{th} utilise des sels à base fluor et le cycle thorium. Dans l'optique de proposer un modèle plus à même d'utiliser les matières disponibles (uranium appauvri et noyaux lourds des combustibles usés), cette thèse porte sur l'étude d'un MSFR en cycle uranium.

Pour s'affranchir d'éventuels problèmes de solubilité des transuraniens (TRU) en sels fluorures, le sel combustible retenu est un mélange eutectique $\text{NaCl-}^{\text{app}}\text{UCl}_3\text{-(TRU)Cl}_3$. Ce sel étant un moins bon caloporteur et plus transparent aux neutrons que son équivalent du MSFR fluorure de référence, les travaux de thèse ont d'abord porté sur des études du volume optimal de sel combustible, qui a été porté de 18m^3 (MSFR de référence) à 45m^3 (MSFR-Cl). Un volume de 20m^3 se trouve dans le coeur (optimisation neutronique) et 25m^3 sont dans les boucles de recirculation contenant les échangeurs de chaleur (optimisation thermique). Pour améliorer le facteur de régénération du réacteur, une couverture fertile radiale est placée autour de la zone centrale. La composition du sel fertile résulte d'une optimisation principalement entre le débit de retraitement et la résistance à la prolifération. Les études de conception effectuées durant la thèse incluent le dimensionnement des protections neutroniques en tenant compte de la circulation des précurseurs de neutrons retardés, et du vase d'expansion dédié à accommoder la dilatation du sel combustible.

Pour tirer un maximum de bénéfices de la forme liquide des sels, le réacteur peut être connecté à une unité de traitement. L'extraction régulière des produits de fission permet ainsi de réduire le terme source et les processus de corrosion tout en améliorant l'économie neutronique, et ce sans besoin d'arrêt du réacteur. Un schéma de principe du traitement envisagé a été conçu durant la thèse en collaboration avec des experts en chimie.

Des calculs neutroniques statiques puis en évolution ont été réalisés avec divers codes neutroniques (MCNP couplé au code d'évolution REM, Serpent2) pour évaluer les performances du système (contre-réactions, bilans massiques). Des études préliminaires de déploiement de ce type de réacteurs ont été menées pour évaluer l'impact de l'insertion du MSFR-Cl dans un parc de REP, en comparaison du MSFR de référence.

Pour finir, et suite aux limites rencontrées avec le MSFR-Cl, un modèle innovant d'incinérateur de petite taille en cycle uranium à couverture fertile thoriée a été étudié, pour proposer un outil de transition du cycle uranium vers le cycle thorium.

Abstract

Since early 2000s, following Bataille law in France, MSFR team of LPSC (Grenoble) has taken up molten salt reactors concepts, resulting in the current reference Molten Salt Fast Reactor. This 3GW_{th} breeder reactor uses fluoride salts and the thorium cycle. To perhaps better use available matters (spent nuclear fuel TRU, depleted uranium), this thesis focuses on a the study of a MSFR using uranium cycle (Cl-MSFR).

To avoid potential concerns on TRU solubility in fluoride salt, the fuel salt is chosen to be the eutectical mix $\text{NaCl-}^{\text{app}}\text{UCl}_3\text{-(TRU)Cl}_3$. This salt being a comparatively worst coolant and more transparent to neutrons than its counterpart in reference MSFR, first studies were dedicated to optimal fuel volumes, raising this value from 18^3 (reference MSFR) to 45m^3 . 20m^3 are located in the core (neutronic optimisation) and 25m^3 are in circulation loops (heat extraction optimisation). To increase the breeding factor, a radial fertile blanket is set around the core. The fertile salt composition results of an optimisation considering mainly reprocessing flowrate and proliferation resistance. Design studies include neutronic shielding sizing considering the motion of delayed neutron precursors, and the expansion vessel that receives the excess volume of fuel due to dilatation.

To take full benefits of the liquid form of salts, the reactor can be connected to a processing unit. Regular fission product extraction reduces source term, corrosion processes and increases neutron economy without requesting the reactor shutdown. A principle diagram of the foreseen processing was designed in collaboration with experts in chemistry.

Static and depletion neutronic calculations were performed using various codes to evaluate the system performances (safety feedback coefficients, mass balances). Preliminary studies of deployment were investigated to assess the impact of a Cl-MSFR in a PWR-based nuclear fleet, in comparison with the reference MSFR.

Finally, and following the limits founded for Cl-MSFR, a innovative concept of a small burner in uranium cycle equipped with thorium-filled fertile blanket was studied to propose a tool for the transition from uranium cycle to thorium cycle.