



# Développement de calculs de puissance résiduelle pour un concept de réacteur à neutrons rapides et à sels fondus

Stage réalisé au Laboratoire Subatech



Dans l'équipe Structure et Energie Nucléaires

14/05/2018 – 31/07/2018

Sous la direction de  
Lydie Giot  
Enseignant Chercheur  
02 51 85 86 66

Pitois Hugo 2A GEN

## **Remerciements :**

Je tiens tout d'abord à remercier Lydie Giot, qui m'a permis d'effectuer ce stage, qui m'a accordé le temps et les moyens nécessaires à ce qu'il se déroule dans de très bonnes conditions. Je remercie également Axel Laureau pour sa modélisation du cœur du réacteur MSFR.

Je remercie ensuite Elsa Merle-Lucotte pour m'avoir conseillé de faire ce stage et pour ses travaux de présentation du MSFR, qui m'ont permis de mieux comprendre ce réacteur. J'adresse aussi mes remerciements à Daniel Heuer pour ses nombreuses conférences pédagogiques sur le MSFR.

Enfin, je remercie Stéphanie Jagot pour s'être occupée des procédures administratives.

## Sommaire

Remerciements :.....	2
Présentation de l'entreprise [1].....	4
Introduction.....	5
I Physique et MSFR .....	7
1) Contexte général.....	7
2) Cycle et combustible.....	9
3) Molten Salt Fast Reactor [13] .....	10
4) Modélisation du cœur du MSFR - simulation SERPENT .....	12
II Recherche des noyaux suspects Pandémonium .....	14
1) Description de l'effet Pandémonium.....	14
2) Méthode TAS [22].....	14
III Simulations : pulses de fission et cœur du MSFR .....	17
1) Etude de pulses de fission.....	17
2) Analyse et résultats pour les pulses.....	19
3) Analyse et résultats des simulations sous SERPENT 2 du MSFR .....	21
IV Noyaux pandémonium .....	26
1) Désintégration $\beta^-$ .....	26
2) Critères pandémonium .....	28
3) Analyse et résultat des noyaux suspectés pandémonium .....	29
Première analyse .....	<b>Erreur ! Signet non défini.</b>
Analyse multicritères .....	<b>Erreur ! Signet non défini.</b>
Conclusion .....	30
Glossaire .....	31
Annexes .....	33
Diagramme de Gantt du stage.....	33
Simulations en cycle U/Pu et comparaisons.....	33
Bibliographie.....	36
Index des figures.....	38
Index des tableaux.....	39
Résumé .....	40
Abstract .....	40

## Présentation de l'entreprise [1]

Subatech est un laboratoire de recherche sous la tutelle de trois organismes : l'IMT Atlantique (21 personnes), l'IN2P3 (CNRS, 66 membres) et l'Université de Nantes (18 personnes). En ajoutant le personnel externe, il emploie aujourd'hui 180 membres (1/3 de femmes), principalement des chercheurs ou des enseignants chercheurs. Fondé en 1994, ses activités se concentrent autour du nucléaire et de la physique des particules.

Le laboratoire est composé de huit équipes rattachées à un ou plusieurs de ses grands axes de recherche qui sont :

- Nucléaire et Environnement
- Nucléaire et Santé
- Univers à Haute Energie

Les projets du laboratoire étant variés et nombreux, on s'intéressera ici à ceux de l'équipe SEN qui a accueilli ce stage.

Le groupe SEN (Structure et Energie Nucléaires), anciennement inclus dans le groupe ERDRE (pour Experimental Research on Data, Reactors and Energy), a développé des nouveaux outils pour la simulation de cœur de réacteurs, avec deux objectifs principaux :

- premièrement, réaliser des estimations des spectres d'antineutrinos. Les antineutrinos sont des particules à masse très faible (négligeable devant celle des électrons) produites lors des désintégrations  $\beta^-$ . Les réacteurs nucléaires génèrent un flux d'antineutrinos très important du fait des décroissances  $\beta^-$  des produits de fission, et sont donc utilisés pour étudier notamment les propriétés de ces particules. En particulier, l'expérience Double Chooz [2] conduite sur les deux réacteurs de type REP de Chooz (dans les Ardennes) a eu pour objectif de mieux caractériser l'angle de mélange  $\theta_{13}$  associé à l'oscillation de saveur dont les neutrinos sont sujets.

- deuxièmement, contribuer à proposer une nouvelle technique de surveillance des réacteurs nucléaires par l'analyse de leur spectre d'antineutrinos. Ces particules interagissent très peu avec la matière ( $\sigma_{\text{interaction}} \approx 6.3 \cdot 10^{-20}$  barns soit moins de trois détections par heure dans le cadre de l'expérience de Reines et Cowan [3]) et ne peuvent donc pas être piégées dans les installations. Par conséquent, deux applications pourraient être envisagées. Principalement, lutter contre la prolifération, la mesure du spectre d'antineutrinos pouvant éventuellement servir de signature de la matière fissile. Deuxièmement, surveiller la puissance et la composition isotopique du combustible des réacteurs actuellement installés [4].

Pour ces deux objectifs, il est nécessaire de pouvoir prédire le spectre d'antineutrinos, ce qui nécessite de simuler l'inventaire du cœur en fonction de son historique de fonctionnement. Le groupe SEN a développé un certain nombre de codes et de méthodes en ce sens [5].

Depuis 2015, en complément, le groupe SEN développe ses compétences de calcul de puissance résiduelle pour les REP/REB et les réacteurs de génération IV. Dans cette optique, il est nécessaire de compléter les développements réalisés informatiquement pour les simulations de spectres d'antineutrinos par de nouvelles mesures d'énergie moyenne électromagnétique et de particules légères sur certains noyaux clés issus des fissions.

## Introduction

La puissance résiduelle d'un réacteur représente la chaleur produite après l'arrêt des réactions en chaîne en cœur. Elle est générée par les désintégrations  $\beta^-$  et décroissances  $\gamma$  des produits de fission, ainsi que par les décroissances  $\alpha$ ,  $\beta^-$  et décroissances  $\gamma$  des actinides. Cette chaleur résiduelle ne représente dans les REP que quelques pourcents de sa puissance nominale (7% après une seconde d'arrêt), comme illustré sur la figure 1, mais sa gestion est primordiale pour des raisons de sûreté. Si elle n'est pas évacuée, elle peut entraîner la vaporisation du caloporteur puis la fonte du cœur. C'est ce qui a eu lieu par exemple dans 3 des 6 réacteurs du site de Fukushima, après l'arrêt des systèmes de refroidissement de secours [6].

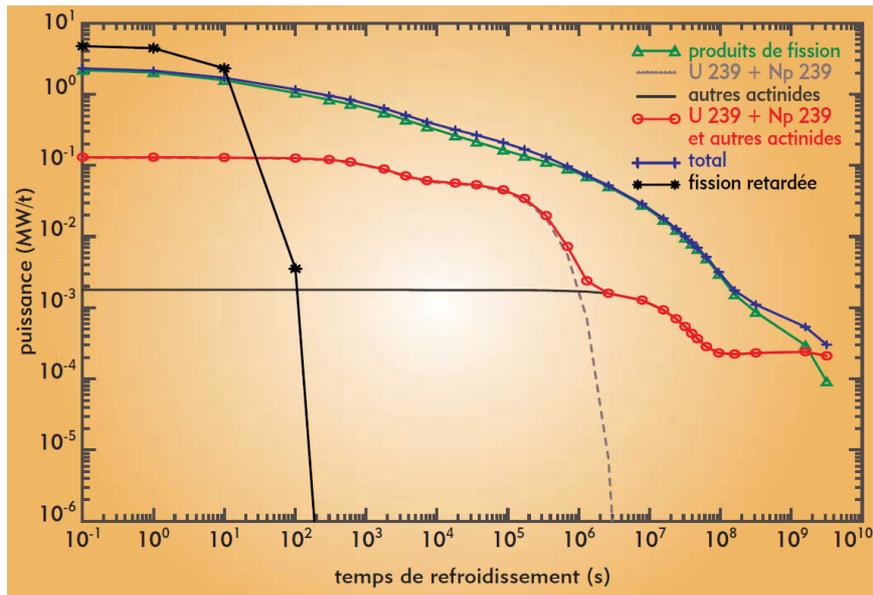


Figure 1 : puissance résiduelle d'un REP [7]

Pour calculer cette puissance résiduelle, on somme donc les contributions des noyaux radioactifs (cf (1)[8]).

$$f(t) = \sum_i (\bar{E}_{\beta,i} + \bar{E}_{\gamma,i} + \bar{E}_{\alpha,i}) \lambda_i N_i(t) \quad (1)$$

Avec  $\bar{E}_{x,i}$  l'énergie moyenne associée à la radioactivité  $x$  du noyau  $i$ ,  $\lambda_i$  la constante de désintégration du noyau  $i$ ,  $N_i$  la quantité de noyaux  $i$ , et  $t$  le temps de refroidissement considéré.

Ce calcul implique de bien connaître leurs énergies de décroissances  $\beta^-$  et de décroissances  $\gamma$ . Cependant, pour certains noyaux, il existe un phénomène appelé effet Pandémonium (détaillé dans le paragraphe II. 1), conduisant à une mauvaise estimation de ces énergies, et donc à une mauvaise estimation de la puissance résiduelle.

Pour pouvoir réaliser des estimations de cette puissance pour un réacteur de type MSFR, ce stage s'est déroulé en trois parties.

Tout d'abord, l'analyse de pulses de fission en spectre neutronique rapide (détail dans le paragraphe III. 1) pour avoir une idée des noyaux contributeurs à la puissance résiduelle, que ce soit

en cycle Th/U ou en cycle U/Pu (I. 2); et le développement des outils numériques (macros python) nécessaires à l'extraction des données requises pour calculer cette puissance.

Ensuite, une étape de simulation du cœur d'un réacteur MSFR (Molten Salt Fast Reactor, voir paragraphes I.3 et I.4) avec le code SERPENT, pour établir une liste des principaux noyaux contributeurs à la puissance résiduelle et la comparer à celle établie pour les pulses. Elle servira de liste des noyaux suspectés d'être pandémonium et qui nécessiteront d'être investigués plus en détails.

Enfin, une analyse de la structure de ces noyaux en fonction de plusieurs critères afin de déterminer s'ils sont effectivement pandémonium ou non et s'ils nécessiteraient donc de nouvelles mesures, afin d'avoir une meilleure estimation de la puissance résiduelle.

# I Physique et MSFR

## 1) Contexte général

Dans un contexte de demande croissante d'énergie et d'une émission de gaz à effet de serre à minimiser, les centrales électronucléaires peuvent apporter une contribution intéressante à la production. Il existe actuellement, en juillet 2018, 453 réacteurs civils dans le monde dont 450 de génération II, ce qui inclut l'ensemble du parc français (58 Réacteurs à Eau Pressurisée, REP)[9]. En 2008 eut lieu le Forum International Génération IV pour choisir les futurs modèles possibles de réacteur nucléaire. Ce forum, comptant 13 pays membres a défini les critères suivants à respecter pour qu'un modèle soit accepté [10] :

### (i) Durabilité

Il faut pouvoir produire à long terme de l'énergie avec les contraintes suivantes : ne pas émettre de gaz à effet de serre ; avoir une utilisation efficiente des ressources (prolonger la disponibilité du combustible) ; avoir une production de déchets minimale ; pouvoir gérer les déchets produits. En particulier le réacteur doit réduire les contraintes concernant les déchets de haute activité (plus de  $10^9$ Bq/g) à vie longue ( $T_{(1/2)} > 31$  ans)[11].

### (ii) Etre économiquement viable

Le projet du réacteur doit présenter un risque financier similaire à tout autre projet concernant l'énergie. Il doit présenter un net avantage par rapport à l'utilisation d'une autre forme d'énergie à propos de son cycle de fonctionnement (approvisionnement en combustible et retraitement, entretien des équipements). Cela passe par un recyclage permettant la récupération de la matière fertile ou fissile (terme défini dans le paragraphe I. 2).

### (iii) Proposer un très haut niveau de sûreté et de fiabilité

Il est attendu de ces nouveaux réacteurs un très haut niveau de sûreté au moins équivalent à celui de l'EPR (Evolutionary Power Reactor). Il ne doit plus nécessiter l'évacuation de la population vivant à proximité du site, même en cas d'accident. Il doit présenter une probabilité très faible de perdre le cœur du réacteur. Le cœur ne doit pas être irrécupérable, cela signifie qu'il ne doit pas fondre s'il est solide. Cela se traduit entre autres par la création et/ou l'amélioration de systèmes d'évacuation de la chaleur, en particulier des systèmes passifs, ces derniers pouvant fonctionner même en cas de perte d'alimentation électrique. De plus, la structure doit absolument pouvoir contenir les produits de fission (barrières de confinement entièrement sûres).

### (iv) Proposer un haut niveau de sécurité et limiter au mieux le risque de prolifération

Le réacteur doit être à l'abri des agressions extérieures, et le combustible utilisé doit être continûment résistant à la prolifération.

En fonction de ces critères, six modèles furent retenus à l'issue de ce forum pour des études approfondies :

1. Le GFR : Gas cooled Fast Reactor, refroidi par de l'hélium
2. Le LFR : Lead cooled Fast Reactor, refroidi par un mélange plomb-bismuth
3. Le MSR : Molten Salt Reactor, revu par la suite en MSFR (Molten Salt Fast Reactor), en cycle thorium
4. Le SCWR : Super Critical Water cooled Reactor, refroidi à l'eau dans un état supercritique

5. Le SFR : Sodium cooled Fast Reactor, refroidi au sodium
6. Le VHTR : Very High Temperature Reactor, refroidi à l'eau.

Parmi ces modèles, seul le VHTR n'a pas été envisagé pour un spectre neutronique rapide. Un spectre neutronique rapide signifie que, contrairement à un spectre thermique, les neutrons utiles à la fission ne sont pas ralentis par un élément appelé modérateur, comme l'eau par exemple. Les réacteurs SCWR et MSR sont possibles pour un spectre neutronique rapide ou thermique. Cependant le spectre rapide présente deux grands avantages.

Le premier avantage est la possibilité d'exploiter pleinement le combustible, en particulier la fraction d' $^{238}\text{U}$ . Les premiers réacteurs nucléaires ont été financés par l'armée et conçus pour pouvoir produire la matière nécessaire à la confection des bombes, en particulier le plutonium. Cela a conduit à deux choix technologiques : des réacteurs fonctionnant en cycle uranium/plutonium (U/Pu), en spectre thermique. Le seul noyau fissile (c'est-à-dire qu'il peut faire une fission quelque soit l'énergie du neutron qu'il absorbe) naturellement présent sur Terre est l' $^{235}\text{U}$ . Mais cet isotope ne représente que 0.7% de l'uranium naturel, le reste étant de l' $^{238}\text{U}$ . Les réacteurs commerciaux actuels de génération 2 (REP et REB, CANDU) ont contourné le problème par l'enrichissement ou l'utilisation d'eau lourde. Il n'en demeure pas moins que ces réacteurs fonctionnent grâce à l' $^{235}\text{U}$ , et qu'un nouveau modèle pouvant utiliser l' $^{238}\text{U}$  comme combustible ferait un bien meilleur usage de la ressource.

Cependant, avec des neutrons thermiques ( $E = 0.025\text{ eV}$ ), la réaction de fission (n,f) de l' $^{238}\text{U}$  est très minoritaire en comparaison avec la capture radiative (n, $\gamma$ ), au vu des sections efficaces microscopiques mises en jeu, comme le montre la figure 3. A contrario, on voit que la réaction de fission (courbe bleue) domine lorsque l'on utilise des neutrons rapides ( $E \geq 1\text{ MeV}$ ).

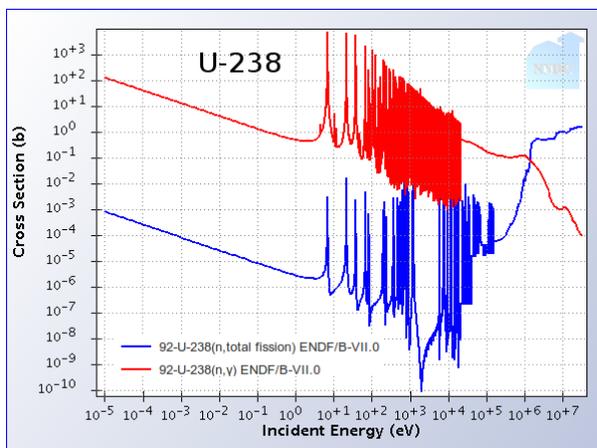


Figure 3 : sections efficaces microscopiques de capture et de fission de l' $^{238}\text{U}$  [12]

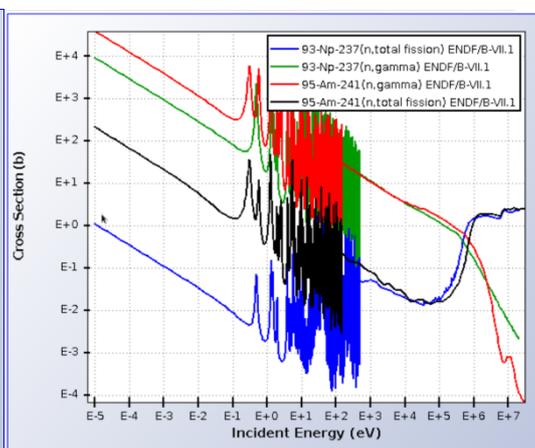


Figure 2 : sections efficaces microscopiques de capture et de fission pour le  $^{237}\text{Np}$  et l' $^{241}\text{Am}$ [12]

La deuxième bonne raison d'utiliser un spectre rapide est la possibilité d'incinérer les actinides mineurs. Les actinides mineurs sont des éléments plus lourds que l'uranium, formés par captures radiatives successives sur des noyaux lourds comme l' $^{238}\text{U}$ . Ces éléments représentent environ 0.1% du combustible utilisé des réacteurs actuels et sont dit déchets de haute activité (plus de  $10^9\text{ Bq/kg}$ ) à vie longue ( $T > 31\text{ ans}$ ), très radiotoxiques. Ils ne peuvent pas être incinérés par les réacteurs à neutrons thermiques. En revanche, dans les réacteurs rapides, la section efficace de fission de ces éléments est suffisante pour que la réaction ait lieu. Par exemple, pour l' $^{241}\text{Am}$  et le



Deuxièmement, une des réactions possibles en cœur de réacteur entraîne la formation d' $^{232}\text{U}$ , un isotope qui possède dans sa chaîne de désintégration une émission  $\gamma$  de 2,6MeV. La radiotoxicité de ce produit, couplé à sa signature facilement identifiable, limite considérablement le risque de détournement du combustible utilisé.

Troisièmement, il se trouve que l'utilisation de sels fondus, en particulier du LiF (fluorure de lithium), défavorise le cycle U/Pu (sans toutefois le rendre inutilisable). De plus le plutonium a une solubilité limitée dans ces sels. Néanmoins, dans le cadre de ce stage et pour des études de faisabilité, on s'intéressera également au cycle U/Pu.

Pour atteindre la criticité lors du démarrage du réacteur, il faut ajouter au combustible une certaine quantité d'isotope fissile. Il peut s'agir d' $^{235}\text{U}$  enrichi, comme dans les REPs ; du  $^{239}\text{Pu}$  actuellement produit par les réacteurs commerciaux ; d' $^{233}\text{U}$  produit par irradiation du  $^{232}\text{Th}$  que l'on aurait placé dans un REP. Le MSFR possède une grande souplesse dans le choix du combustible et peut être alimenté avec n'importe lequel de ces noyaux, y compris un mélange des trois [13].

En ce qui concerne le combustible utilisé sur le long terme, c'est un choix qui dépend de l'utilisation que l'on veut faire du réacteur.

Pour une utilisation en cycle U/Pu, le MSFR peut fonctionner avec de l'uranium naturel (comme en réacteur CANDU). On peut également utiliser de l'uranium appauvri (c'est-à-dire à faible teneur en  $^{235}\text{U}$ ), obtenu après centrifugation dans les usines d'enrichissement, ou par retraitement du combustible utilisé. Il est enfin possible d'utiliser du plutonium, en particulier celui qui a été produit par le parc de REPs et qui n'a pas encore été vitrifié. L'inventaire en France de plutonium dépasse les 80 tonnes et seule une faible partie est recyclée via la production de MOx, technique qui possède ses propres inconvénients (complexité de fabrication, toxicité plus importante, production accrue d'actinides mineurs en réacteur) [17].

Quel que soit le combustible envisagé, il est impératif d'effectuer des simulations de fonctionnement, et de déterminer la puissance résiduelle qu'il faudra gérer lors d'un arrêt ou d'un accident. Cela passe d'abord par une étape de modélisation du réacteur.

### **3) Molten Salt Fast Reactor [13]**

Le MSFR est un concept de référence pour des études multiphysiques, porté en France par le Laboratoire de Physique Subatomique et Cosmologie (Grenoble), rattaché au CNRS/IN2P3. Ils ont été rejoints récemment par L. Giot de l'équipe SEN de Subatech pour travailler sur la problématique de la puissance résiduelle. Le schéma actuel du circuit primaire du MSFR est présenté sur la figure 5.

Il s'agit d'un réacteur compact puisque pour un modèle basé sur les réacteurs de puissance à 3GWth, l'enveloppe ortho-cylindrique extérieure fait 2.25m (la cuve d'un REP fait 4m de diamètre et 12m de hauteur). Il contient  $18\text{m}^3$  de sel combustible, dont la moitié est en cœur, l'autre dans les boucles de refroidissement.

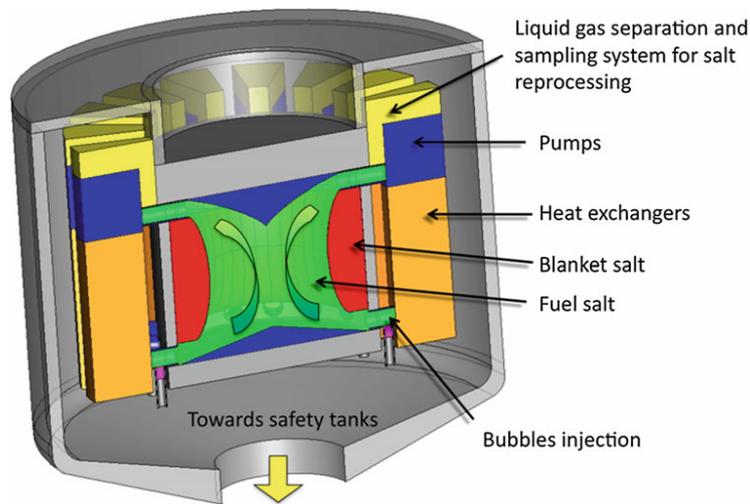


Figure 5 : Schéma du circuit primaire du MSFR [13]

Pour commencer, et c'est une différence majeure avec les autres types de réacteurs, le MSFR ne possède en cœur que le combustible sous forme liquide, dissous dans les sels fondus (en vert).

L'état liquide présente de nombreux avantages, par exemple :

- Sa composition peut être ajustée pendant le fonctionnement du réacteur, il n'y a pas besoin de l'arrêter. Cela permet entre autres d'extraire des produits de fission en continu.
- Le liquide est homogène, donc le combustible qu'il contient est brûlé uniformément.
- En cas de grave défaillance, le réacteur peut être vidangé et le sel étalé pour se refroidir de façon passive.

Le cœur peut être entouré d'une couverture fertile (blanket salt, en rouge) (composition donnée paragraphe I.4). Il s'agit d'un sel situé contre les parois de la cuve interne, riche en noyaux fertiles. Elle a pour but de permettre au réacteur d'être régénératif voire surgénératif. La régénération consiste, pour un réacteur, à fabriquer autant de matière fissile qu'il n'en consomme. On parle de surgénération quand il en produit plus qu'il n'en consomme. Dans le cas du MSFR, cette couche fertile capture les neutrons de fuite.

Le sel combustible (composition complète possible donnée paragraphe I.4) sous forme (NL)F avec NL correspondant au Noyau Lourd utilisé, est pompé depuis le haut du réacteur pour être envoyé dans des échangeurs de chaleur, dont la conception est en cours. Puis il est réinjecté au bas du cœur. Il y a sur ce modèle 16 boucles, et le liquide met 3 à 4 secondes pour en parcourir une.

On trouve à la base des échangeurs de chaleur un système d'injection de bulles, non présent sur les réacteurs actuels. Celui-ci est couplé avec un séparateur liquide-gaz. Le tout sert à nettoyer le sel de certains éléments pour le maintenir dans une propreté acceptable. En effet, il a été découvert fortuitement, sur le réacteur MSRE (Molten Salt Reactor Experiment – Etats-Unis, 1965), que le système de bullage, alors présent pour une autre raison, avait permis d'extraire certains produits de fission gazeux non solubles et des particules en suspension [18]. Le gaz employé serait un mélange de gaz nobles. Il existe aujourd'hui un prototype de cet appareil, en test au LPSC.

Pour finir, les structures externes et les échangeurs de chaleur sont entourés de réflecteurs à neutrons (alliages en nickel), eux-mêmes entourés d'une protection supplémentaire en  $B_4C$  d'une épaisseur de 20 cm qui absorbe le reste des neutrons de fuite.

#### 4) Modélisation du cœur du MSFR - simulation SERPENT

Pour simuler le cœur du MSFR et sa puissance résiduelle, le code SERPENT2 a été employé. SERPENT 2 est un code de transport 2D ou 3D développé par le VTT (Technical Research Centre of Finland [19]). C'est un code multiphysique utilisé ici pour la simulation de réacteurs nucléaires et le calcul en évolution de l'inventaire combustible. Il est très prisé pour le calcul de criticité ou encore la radioprotection, et compte environ 800 utilisateurs répartis en 200 organisations/universités.

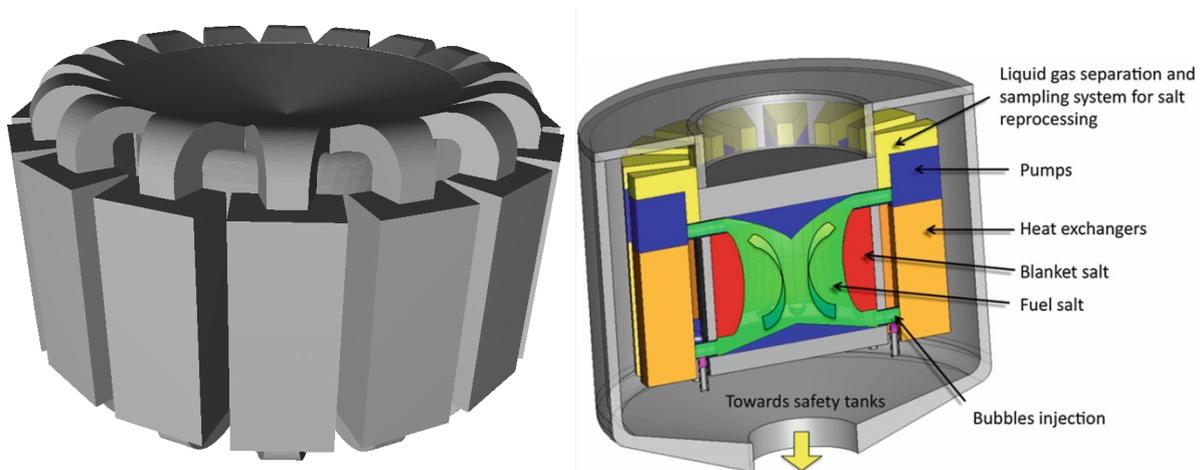
C'est un code Monte-Carlo qui simule le transport des neutrons et les différentes réactions qu'ils vont engendrer en cas de collision avec un noyau. De plus, pour pouvoir renseigner les activités des éléments, il résout entre chaque calcul de transport les équations de Bateman (2) [20].

$$\frac{\partial N_i}{\partial t} = -\lambda_i N_i + \sum_j \lambda_j^{j \rightarrow i} N_j + \sum_{j'} N_{j'} \langle \sigma_{j'} \rangle^{j' \rightarrow i} \langle \Phi \rangle - N_i \sum_{\nu r} \langle \sigma_i \rangle^{(\nu r)} \langle \Phi \rangle \quad (2)$$

Les deux premiers termes correspondent à des désintégrations, et les deux suivants à des réactions induites par un neutron. Le premier terme représente la décroissance radioactive du noyau, le deuxième correspond à sa production par ce biais. Le troisième terme est celui de la production de ce noyau par tous les mécanismes possibles via un neutron ((n, γ); (n, 2n) ...). Le dernier terme correspond à la disparition du noyau par ces mêmes mécanismes. L'évolution du combustible (burn-up) sera calculée selon les équations de Bateman résolues avec la méthode CRAM (pour Chebyshev Rational Approximation Method).

SERPENT2 s'appuie sur plusieurs bibliothèques de données, notamment une contenant les informations de décroissances, une pour les sections efficaces et une pour les rendements de fission. La première en particulier contient les mesures expérimentales sur la structure nucléaire et donc leur schéma de décroissance. Cela signifie que le choix de la bibliothèque a son importance (qui sera mis en évidence paragraphe III.1) mais également que si ces mesures ne sont pas correctes (noyaux souffrant de l'effet Pandémonium qui sera présenté dans la seconde partie de ce rapport), alors l'estimation de la puissance résiduelle sera faussée.

Dans le cadre de ce stage, la modélisation réalisée par Axel Laureau durant sa thèse [14] a été utilisée. La figure 6a représente cette modélisation qui est contenue dans un fichier STL (pour STéréoLithographie, permettant la création de surfaces en 3D) lisible par le code de calcul SERPENT 2.



Figures 6a et 6b : modélisation du cœur du MSFR (à gauche), associé au schéma de présentation (à droite)

Cette structure est composée des 16 boucles de circulation à l'intérieur desquels les sels circulent. Les pavés représentent les échangeurs de chaleurs, reliés au cœur de forme cylindrique, courbé vers l'intérieur pour laisser la place à l'ajout d'une couverture fertile (cf. rendu sous SERPENT présenté ci-dessous).

Voici le rendu du réacteur qu'il fournit pour la simulation basée sur ces données.

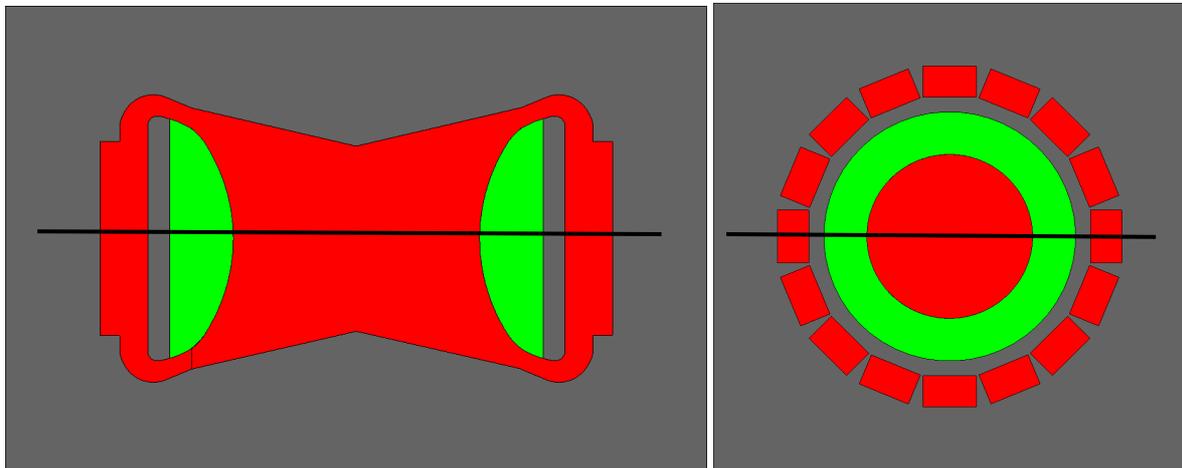


Figure 7 : Coupes verticale et horizontale de la modélisation du cœur du MSFR sous SERPENT 2

Le sel combustible est représenté en rouge, la couverture fertile est en vert, et le gris représente un réflecteur de neutrons simplifié. L'endroit où a lieu la coupe pour la représentation voisine est représenté par un trait noir.

La composition de ces trois corps utilisée dans nos simulations est donnée dans les tableaux 1 à 3. Tous les X composants autre que le fluor étant sous forme saline XF, on normalise en ne tenant pas compte du fluor.

Isotope	<sup>233</sup> U	<sup>232</sup> Th	<sup>7</sup> Li	<sup>6</sup> Li	<sup>19</sup> F
Fraction atomique	2.6%	19.9%	77.496125%	0.003875%	167.5%
Somme	100 %				

Tableau 1 : Composition atomique du sel combustible au démarrage du réacteur à l'<sup>233</sup>U, de densité 4,19 g.cm<sup>-3</sup>

Isotope	<sup>232</sup> Th	<sup>7</sup> Li	<sup>6</sup> Li	<sup>19</sup> F
Fraction atomique	22.5%	77.496125%	0.003875%	167.5%
Somme	100 %			

Tableau 2 : Composition de la couverture fertile, de densité 4,19 g.cm<sup>-3</sup>

Isotope	<i>nat</i> Ni	<i>nat</i> W	<i>nat</i> Cr
Fraction atomique	81.54%	10.24%	8.22%

Tableau 3 : Composition du réflecteur, de densité 10 g.cm<sup>-3</sup> [14]

## II Recherche des noyaux suspects Pandémonium

### 1) Description de l'effet Pandémonium

L'effet Pandémonium a été mis en évidence dans les années 1970 par J. Hardy [21]. Il s'agit d'un biais expérimental lié à l'efficacité en énergie des détecteurs germanium, utilisés pour la mesure des décroissances  $\gamma$ . Pour déterminer les niveaux d'énergie atteints après une désintégration  $\beta^-$ , on cherche à identifier la ou les décroissances  $\gamma$  associées. Certains noyaux ont des niveaux à des énergies importantes (plus de 3 MeV), et donc des  $\gamma$  associés très énergétiques. Malheureusement, l'efficacité en énergie des détecteurs germanium décroît rapidement avec l'énergie des  $\gamma$ . Par conséquent, le détecteur ne voit pas certaines décroissances à énergie élevée. Cela conduit à une sous-évaluation de la contribution  $\gamma$  et à une surestimation de la contribution  $\beta^-$  à basse énergie (illustré figure 8).

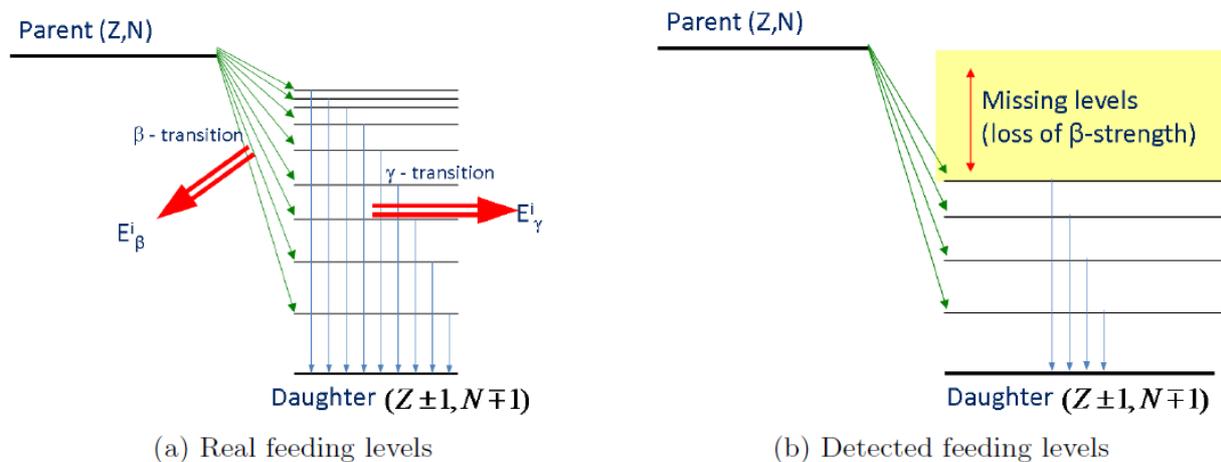


Figure 8 : schéma rendant compte de l'effet Pandémonium [22]

Pour obtenir des résultats plus fiables sur ces contributions, une technique alternative de mesure est utilisée très activement depuis 2004 : c'est la méthode TAS, pour Total Absorption Spectrometry.

### 2) Méthode TAS [22]

La méthode Total Absorption Spectrometry consiste à mesurer l'ensemble de la cascade des  $\gamma$  émis lors de la décroissance d'un haut niveau d'énergie, plutôt que de tenter d'isoler chaque raie. Ce principe est illustré sur la figure 9. C'est donc une très bonne solution pour calculer la distribution de force  $\beta$  ( $\beta$  strength), c'est-à-dire les niveaux d'énergie du noyau fils atteints directement après décroissance  $\beta^-$ . Pour la détection TAS, on utilise par exemple des scintillateurs, principalement parce qu'il est possible d'en fabriquer des volumes importants, disposés tout autour du noyau étudié. On obtient ainsi une efficacité géométrique proche de  $4\pi$ . Ils ont également une excellente efficacité énergétique,  $\gamma$  compris à haute énergie. Toutefois, les matériaux utilisés, comme les cristaux  $\text{BaF}_2$ , ont des résolutions énergétiques bien moindres que le germanium. Cette méthode est donc à utiliser en complément des détecteurs à haute résolution, elle n'a pas vocation à les remplacer.

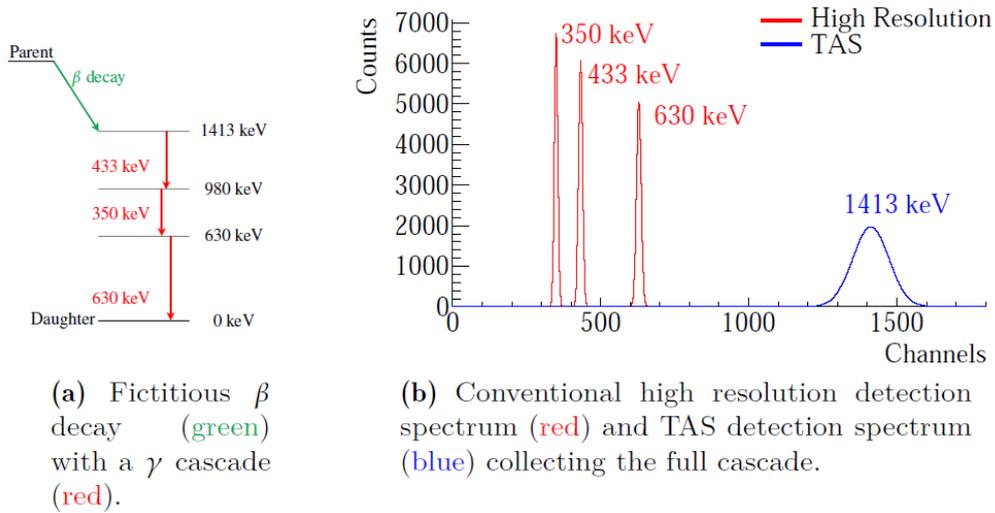


Figure 9 : Comparaison des spectres obtenus grâce à un détecteur Ge ou via la méthode TAS [22]

On peut voir ci-dessous l'importance de prendre en compte l'effet Pandémonium.

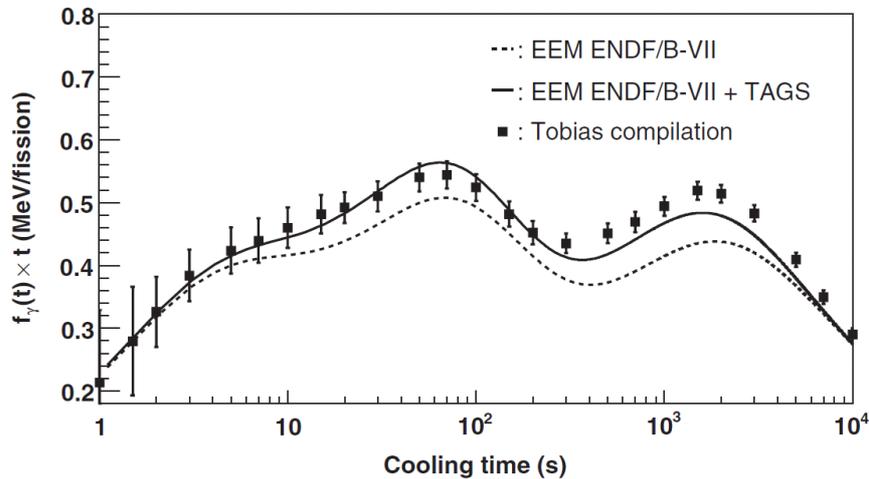


Figure 10 : énergie émise sous forme de gamma multipliée par le temps de refroidissement, suite à un pulse de fission thermique de Pu 239 [8]

Sur cette figure, la courbe en pointillés représente un calcul effectué avec la base de décroissance ENDF/B-VII sans tenir compte de l'effet Pandémonium affectant les mesures de certains noyaux. La courbe en trait plein a été obtenue en ajoutant à la bibliothèque de données ENDF/B-VII des nouvelles mesures sur 7 noyaux ( $^{102, 104, 105, 106, 107}$  Tc,  $^{105}$  Mo,  $^{101}$  Nb) réalisées avec la méthode TAS par Algora et al. dans le cadre d'une collaboration internationale [8]. Les deux courbes sont à comparer aux résultats expérimentaux [23]. Les points expérimentaux nommés Tobias compilation ont été obtenus par Tobias qui a lui-même utilisé les mesures de plusieurs groupes de chercheurs (dont Dickens et al. (1978, Oak Ridge, USA) [24] par exemple).

Les résultats d'Algora et al. sont plus proches des résultats expérimentaux de référence et présentent jusqu'à 10% d'écart relatif avec les résultats précédents. On en déduit que l'ajout de corrections sur un petit nombre de noyaux suspects Pandémonium peut avoir des répercussions importantes sur la justesse de la simulation. Il est donc primordial de les identifier pour avoir une mesure correcte de la puissance résiduelle.

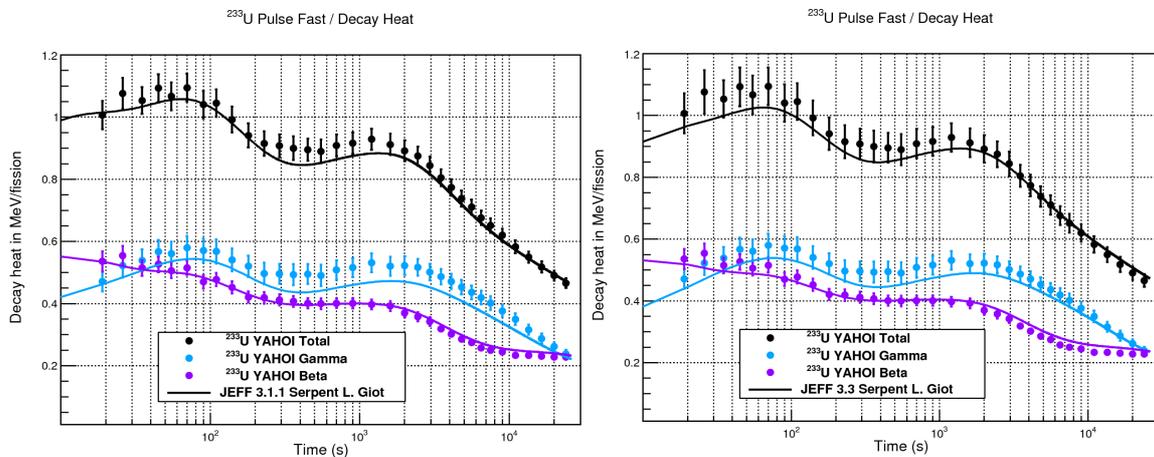
Avant d'étudier le MSFR, il est intéressant d'avoir une idée des noyaux qui sont issus des réactions de fission du combustible avec lequel on alimentera le réacteur. En particulier, on souhaite identifier les contributeurs majoritaires et s'assurer qu'ils sont ou ne sont pas pandémonium. Une première étape du stage a donc été l'analyse de pulses réalisés sous SERPENT avec des neutrons rapides pour 5 noyaux fissibles (c'est-à-dire que l'on peut faire fissionner avec des neutrons rapides) contributeurs des cycles U/Pu et Th/U : le  $^{232}\text{Th}$ , l' $^{233}\text{U}$ , l' $^{235}\text{U}$ , l' $^{238}\text{U}$  et le  $^{239}\text{Pu}$ .

### III Simulations : pulses de fission et cœur du MSFR

#### 1) Etude de pulses de fission

On a choisi d'étudier les pulses de fission de ces cinq noyaux car il y a des données expérimentales disponibles que nous pourrions comparer aux résultats fournis par les simulations sous SERPENT. Le pulse est une donnée expérimentale qui est la plus proche possible du résultat théorique de fission de par sa conception [25]. L'idée est d'avoir une fission qui donne toute la distribution de produits de fission. Pour cela, on soumet une cible à divers temps d'irradiation suivis d'un même temps de refroidissement, puis, par soustraction, on peut se ramener à un temps d'irradiation infinitésimal : on considère que toutes les fissions ont lieu au même moment. On normalise ensuite le résultat à une fission. La comparaison entre pulses de fission simulé et calculé de  $^{235}\text{U}$  et de  $^{239}\text{Pu}$  (et de  $^{241}\text{Pu}$ , non étudié ici) a déjà été réalisée pour des spectres neutroniques thermiques, mais pas pour des neutrons rapides. Elle n'a jamais été faite pour les noyaux  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{233}\text{U}$  et  $^{238}\text{U}$ . Les simulations pulses avec neutrons rapides ont été effectuées par Lydie Giot en utilisant le code SERPENT2 adapté par ses soins pour avoir accès aux contributions individuelles  $\beta^-$  et  $\gamma$ . Puis elles ont été confrontées aux données expérimentales disponibles, données réalisées dans le réacteur de recherche YAYOI (Tokyo) en 1997 [25].

Une simulation de pulses de fission est une simulation particulière : on crée une sphère du matériau fissible à analyser, on y place une source de neutrons rapides, et on paramètre le code de sorte que les seules réactions autorisées soient des fissions. Elles ont lieu pendant un court intervalle de temps d'irradiation (de l'ordre de la microseconde), puis on calcule la puissance résiduelle pendant la phase de décroissance (cooling). On normalise ensuite le résultat à une fission.



Figures 11a et 11b : résultats obtenus pour la chaleur résiduelle via une simulation SERPENT avec la librairie JEFF 3.3.1 (gauche) et avec la librairie JEFF 3.3 (droite) comparée à l'expérience

Les bibliothèques JEFF 3.1.1 (Novembre 2007) et JEFF 3.3 (Novembre 2017) ont été utilisées pour ces simulations. Ce sont des bases de données (l'acronyme signifie Joint Evaluated Fission and Fusion) qui regroupent les résultats des laboratoires de 27 pays concernant la structure des noyaux [26]. Elles incluent les informations de sections efficaces, de décroissance et de distribution des produits de fission.

On peut voir sur les figures 11a et 11b qu'il y a un accord correct entre les deux résultats, même si la simulation SERPENT donne des résultats trop faibles en ce qui concerne la participation  $\gamma$ , en

particulier pour la figure 11a. C'est un indice concernant l'importance de l'effet Pandémonium, puisque la librairie JEFF 3.1.1 ne contient pas de mesures récentes sur les noyaux sujets à cet effet.

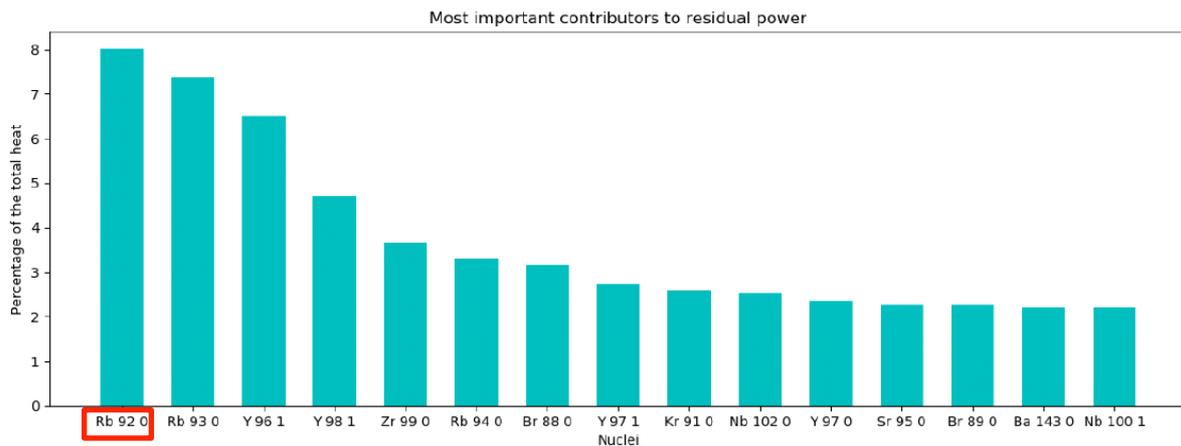
La simulation sous SERPENT fournit en sortie un fichier texte très volumineux, de plusieurs dizaines de milliers de lignes, inexploitable directement. Le premier travail a donc été la réalisation de macros sous Python pour :

- (i) Extraire les contributions de chaque noyau à la puissance résiduelle pour un pas de temps considéré. Cette puissance est renseignée sous forme d'une matrice dont chaque ligne représente un isotope parmi les 1500 étudiés et chaque colonne, un pas de temps.
- (ii) Identifier les principaux contributeurs (les 15 premiers pour cette étude) par pas de temps représentatif, regarder quelle fraction de la chaleur émise ils représentent.
- (iii) Vérifier si certains isotopes contribuent régulièrement voire systématiquement à cette puissance.
- (iv) Lister ces noyaux, il faudra s'assurer qu'ils sont ou ne sont pas pandémonium.

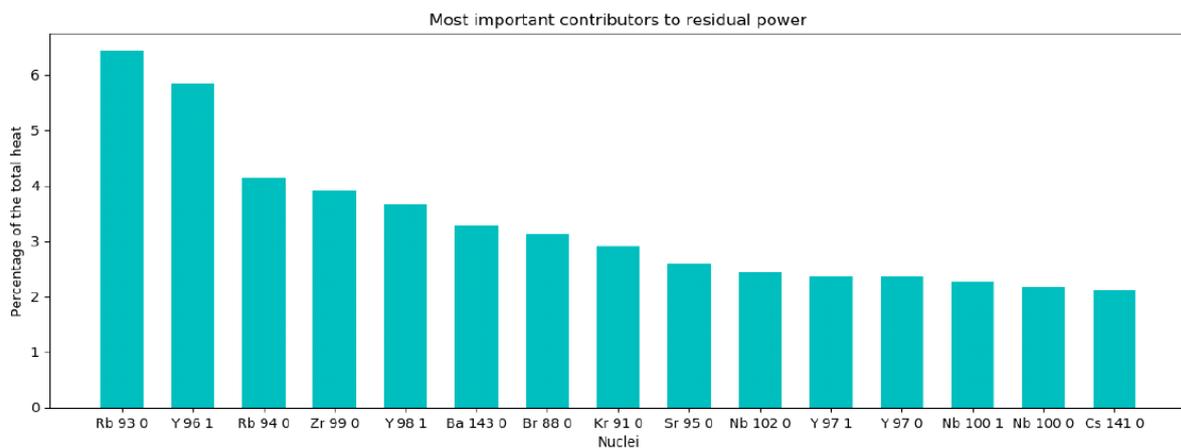
Au total, les 5 études de pulses de fission ont été réalisées avec 2 bibliothèques de données (JEFF 3.1.1 et JEFF 3.3, JEFF pour Joint Evaluated Fission and Fusion, ce sont des bibliothèques européennes) pour les désintégrations  $\beta^-$ , les décroissances  $\gamma$  et le total, ce qui fait 30 simulations à analyser. Les pas de temps ont été choisis de façon à être représentatifs compte tenu des périodes de demi-vie des différents produits de fission, qui s'étendent de 0,5s (0.548 s pour le  $^{98}\text{Y}$ ) à plusieurs dizaines d'années (30 ans pour le  $^{137}\text{Cs}$ ), tout en ménageant le temps de calcul nécessaire.

La figure 12 représente un des graphiques obtenus, conçus sous Python avec la librairie Matplotlib. On peut voir que suivant la bibliothèque utilisée, la contribution de certains noyaux est différente (ici, le Rb 92 0 (encadré en rouge) est 1<sup>er</sup> contributeur avec JEFF 3.1.1, absent des 15 premiers avec JEFF 3.3). Le 0 venant après le nombre de masse indique si le noyau est un isomère, c'est-à-dire s'il est dans un état excité (noté 1 ou M1 pour le premier isomère, 2 ou M2 pour le suivant ...) ou s'il est dans son état fondamental (noté 0). Si la contribution de certains noyaux diffère entre ces deux bibliothèques, cela est dû au fait que JEFF 3.3 inclut de nouvelles mesures sur le  $^{92}\text{Rb}$  qui est un noyau pandémonium [27].

Material : 233U | Participation : gamma | Time : 5 s | Data base : Jeff 3.1.1



Material : 233U | Participation : gamma | Time : 5 s | Data base : Jeff 3.3



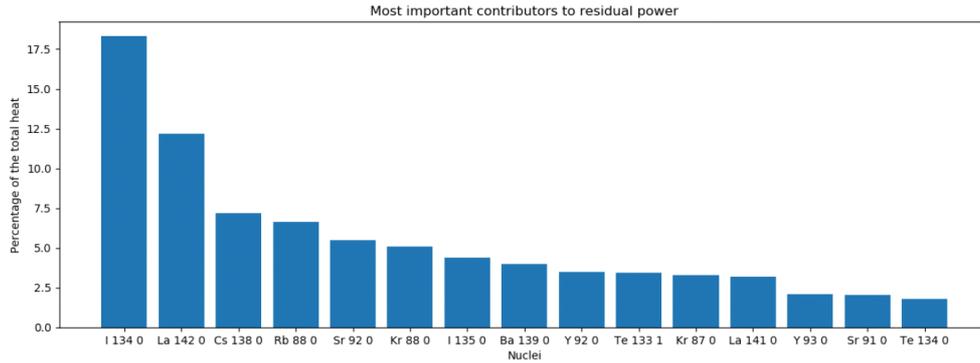
Figures 12a et 12b : exemple de résultat obtenu après extraction et formatage des données brutes

## 2) Analyse et résultats pour les pulses

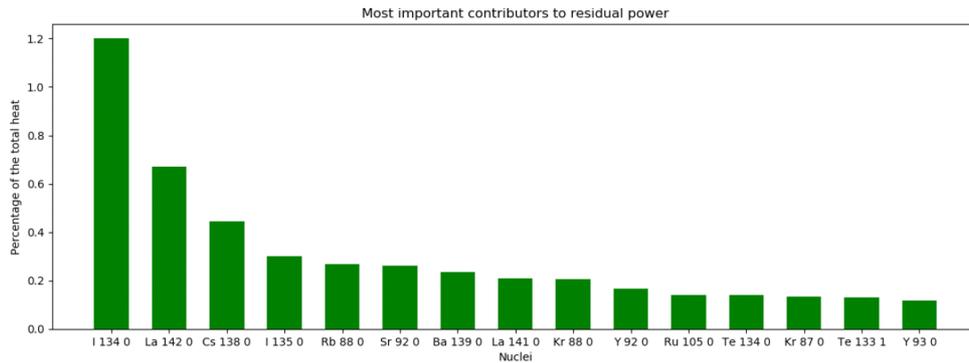
L'étude de ces pulses a fourni plusieurs résultats utiles. En termes de données brutes, cela a abouti à la production de 240 graphes comme ceux des figures 12a et 12b. Ces graphes représentent les contributions  $\beta$ ,  $\gamma$  et totale des 15 plus gros contributeurs à la puissance résiduelle, pour 8 pas de temps (1s – 5s – 10s – 100s – 1000s – 5000s – 10000s – 20000s) choisis comme représentatifs des temps de refroidissement. Pour obtenir de bons résultats, chaque simulation a nécessité environ 24h de temps de calcul sur la ferme locale de Subatech, avec un suivi en évolution de l'ensemble des produits de fission.

Les graphes ont permis de mettre en évidence certaines similarités dans les distributions de puissance résiduelle.

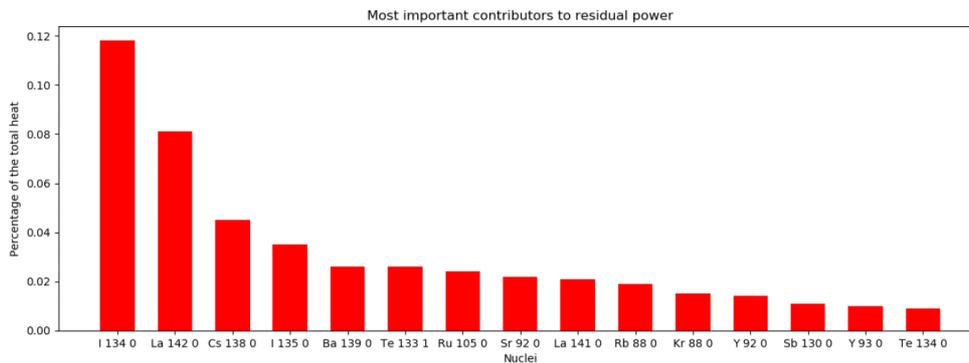
Material :  $^{235}\text{U}$  | Participation : total | Time : 10000 s | Data base : Jeff 3.1.1



Material :  $^{238}\text{U}$  | Participation : tot | Time : 10000 s | Data base : Jeff 3.1.1



Material :  $^{239}\text{Pu}$  | Participation : tot | Time : 10000 s | Data base : Jeff 3.1.1



Figures 13 a b et c : Distribution de la puissance résiduelle pour  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  et  $^{239}\text{Pu}$  à  $t=10000\text{s}$

Cela se voit très bien pour certains pas de temps, comme illustré sur la figure 13. Sur cette même figure, on voit que les trois premiers contributeurs sont toujours les noyaux suivants : I 134 0, suivi de La 142 0, puis le Cs 138 0.

Afin de vérifier si l'on retrouvait souvent les mêmes contributeurs à la puissance résiduelle, plusieurs macros sous Python ont été créées. Ces outils seront réutilisés pour l'étude du MSFR et de sa puissance résiduelle. En ce qui concerne les pulses, ils ont permis de conclure ceci : de façon générale, pour un même pas de temps, les 5 noyaux lourds étudiés présentent entre 6 et 14 contributeurs communs parmi les 15 premiers. En particulier, passés les 1000s, le nombre de noyaux en commun s'accroît. C'est intéressant car cela permet de dresser une liste des noyaux à surveiller lorsque l'on s'intéressera ensuite à la puissance résiduelle du MSFR. Ces noyaux seront également à analyser pour être identifiés ou non Pandémonium.

En confrontant les résultats des 5 pulses pour une bibliothèque de données choisie, ici JEFF 3.1.1 (car elle ne contient pas de données récentes donc pas de Pandémonium déjà pris en compte à priori), on aboutit au résultat suivant



**Tableau 4: Récapitulatif des PF communs aux cinq noyaux lourds étudiés (confidentiel)**

La ligne « Plus fréquents » contient les noyaux qui apparaissent le plus souvent, ici pour 3 pas de temps différents.

On peut également faire cet exercice en isolant les cycles, c'est-à-dire en confrontant séparément  $^{232}\text{Th} - ^{233}\text{U}$  et  $^{235}\text{U} - ^{238}\text{U} - ^{239}\text{Pu}$ , et ce pour les contributions  $\gamma$ , total ou  $\beta^-$ .

Finalement, les noyaux qui ressortent le plus après confrontation pour le total et pour la contribution  $\beta^-$  sont également ceux de la dernière ligne du tableau 4. Par la suite, on regardera si ces noyaux apparaissent aussi lors des simulations SERPENT 2 du MSFR. Ils seront les premiers à être confrontés aux critères pandémonium pour savoir s'ils sont ou non sujet à cet effet.

### 3) Analyse et résultats des simulations sous SERPENT 2 du MSFR

Dans le cadre de stage, plusieurs simulations du MSFR en cycle Thorium ont été effectuées, en faisant varier le temps de fonctionnement du réacteur (densité de puissance : 40,4W/g ; 3 GWth) avant l'arrêt puis le calcul de la puissance résiduelle pour différents pas en temps.

On présentera ici les cas de réacteurs ayant fonctionné pendant 3 ans et pendant 40 ans, et l'observation de la puissance résiduelle sur une durée de  $10^8$  secondes (soit 3 ans et 2 mois). La durée de trois ans a été choisie en référence au temps d'irradiation d'un assemblage classique de REP, la durée de 40 ans a été prise pour des raisons techniques (temps de calcul et mémoire limitée sur la ferme locale à Subatech) et physique (production plus conséquente d'actinides mineurs).

La première de ces deux simulations est présentée figure 14 (les points rouges et bleus sont superposés). Tout comme la seconde, elle a été réalisée sous SERPENT 2 avec la modélisation présentée figure 6a précédemment, et la présence de la couverture fertile (blanket).

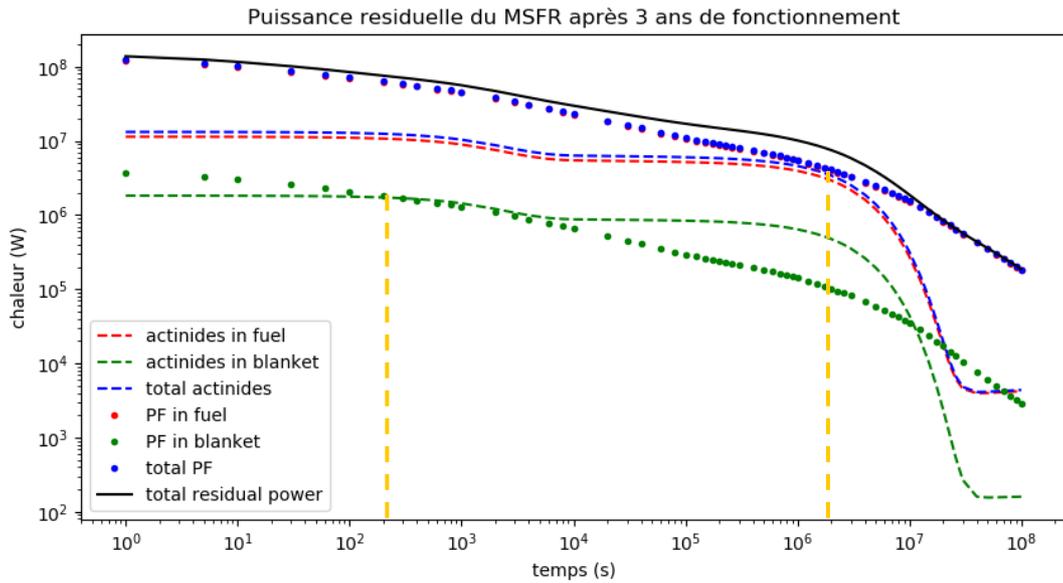


Figure 14 : puissance résiduelle du MSFR suite à l'arrêt du réacteur après 3 ans de fonctionnement

On voit en comparant la courbe en trait plein noir aux courbes rouges que suite à 3 ans de fonctionnement, la puissance résiduelle est due à plus de 90% au sel combustible (fuel), et ce quel que soit le pas de temps observé. C'est principalement parce que le temps de fonctionnement de 3 ans ne permet pas à la couverture fertile de convertir assez de thorium en matière fissile. Les produits de fission sont plus contributeurs que les actinides dans le sel (car la masse totale de produits de fission dépasse largement (facteur 10) celle des actinides actifs, et leur demi-vie est généralement plus courte que celle des actinides). En revanche, dans le cas de la couverture fertile, les actinides le sont davantage pour un temps compris entre 300 et  $10^7$  s. L'explication de ce dernier point se trouve en traçant l'activité des principaux contributeurs parmi les produits de fission, représentée figure 15.

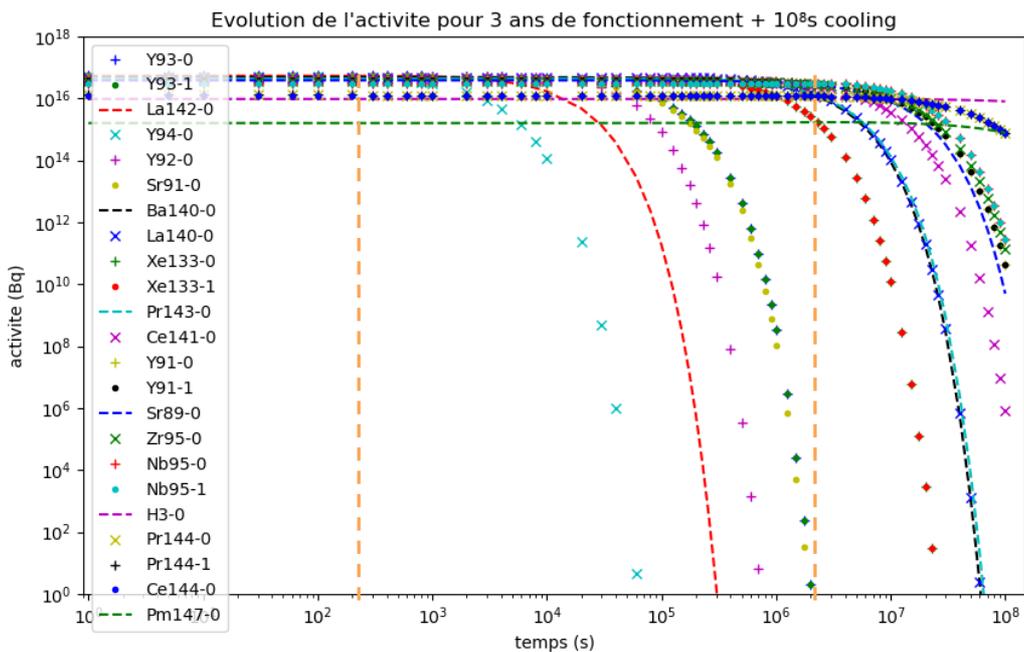


Figure 15 : principaux contributeurs à l'activité de la couverture fertile parmi les produits de fission

On voit que régulièrement, des éléments parmi ceux qui ont la plus forte activité disparaissent, d'où une décroissance régulière de l'activité totale de la couverture fertile. En faisant la même étude pour les actinides, on peut déterminer qu'il n'y a qu'un seul élément à disparaître pour un temps compris entre  $300$  et  $10^7$  s (il s'agit du  $^{233}\text{Th}$  avec une activité de  $10^{19}\text{Bq}$  pendant  $1000\text{s}$  ;  $T_{(1/2)}(^{233}\text{Th}) = 22\text{min}$  soit  $1320\text{s}$ ) . Voilà pourquoi les actinides contribuent davantage pendant cette période.

Par ailleurs on observe une chute de la contribution des actinides à partir de  $2 \cdot 10^6$  s. Cette chute est également observée dans pour le cas d'un fonctionnement de 40 ans et sera expliquée en s'appuyant sur ce deuxième cas.

Si on s'intéresse maintenant au cas du fonctionnement pendant 40 ans présenté figure 16, on peut observer plusieurs choses :

- L'allure de la puissance résiduelle totale est la même sauf à partir de  $10^7$  s, ou elle est plus importante dans le cas du fonctionnement plus long du réacteur ( $2 \cdot 10^8\text{W}$  émis à  $t=10^8\text{s}$  contre  $2 \cdot 10^5\text{W}$  pour le même  $t$  au cas précédent). Cela vient du fait qu'on a produit plus de produits de fission donc plus de produits à longue vie.
- La contribution de la couverture fertile est plus importante, ce qui est normal puisque plus le temps a passé, plus ses noyaux fertiles se sont convertis en noyaux fissiles et ont fissionné
- La participation des actinides du sel combustible est moindre, au profit de ceux dans la couverture fertile, pour les raisons précédemment évoquées.

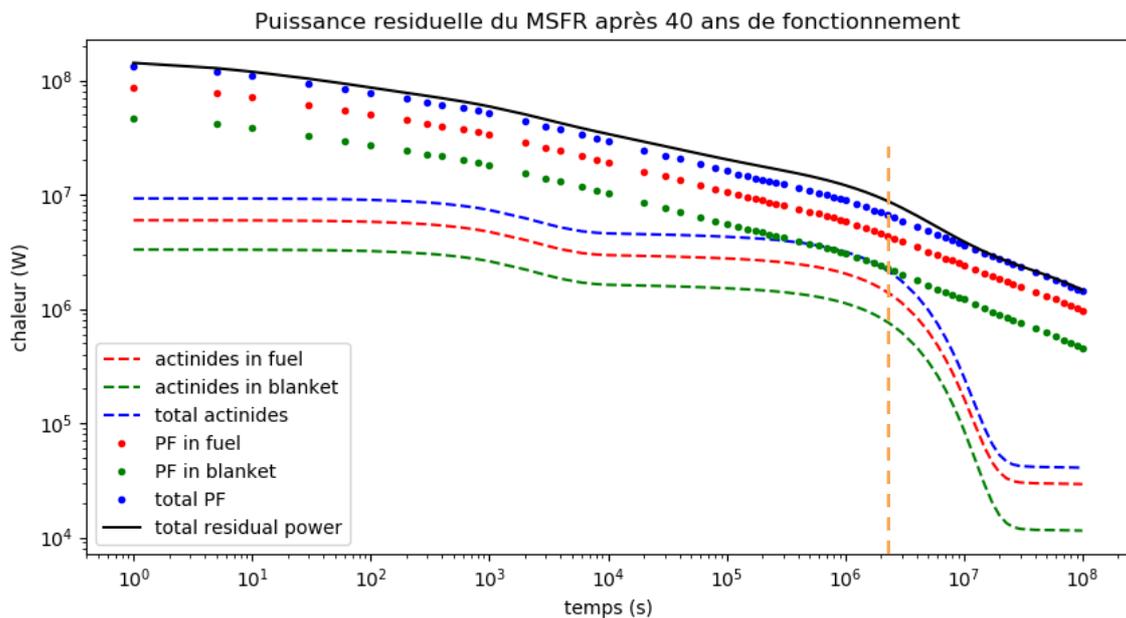


Figure 16 : puissance résiduelle du MSFR suite à l'arrêt du réacteur après 40 ans de fonctionnement

Comme évoqué précédemment, on note la présence d'une chute de la contribution des actinides d'un facteur 1000 entre  $2 \cdot 10^6$  et  $2 \cdot 10^7$  s pour les deux simulations. Pour l'expliquer, on peut regarder comment évolue la contribution des noyaux générant le plus de chaleur. La figure 17 présente un échantillon de ces noyaux.

Cette figure permet d'expliquer toutes les variations brutales pour la courbe « actinides in fuel » figure 16. La première chute entre  $10^3$  et  $10^4$  secondes est attribuable à la décroissance du  $^{233}\text{Th}$  ( $T_{(1/2)}$

= 22 min) ; la seconde chute, à partir de  $2 \cdot 10^6$  s, est due à la disparition du  $^{238}\text{Np}$  ( $T_{(1/2)} = 2.12\text{j}$ ), suivie par celle de l' $^{237}\text{U}$  ( $T_{(1/2)} = 6.75\text{j}$ ) et dans une moindre mesure, le  $^{232}\text{Pa}$  (1.31j). Enfin, après  $10^7$  s, le plus gros contributeur à savoir le  $^{233}\text{Pa}$  ( $T_{(1/2)} = 27\text{j}$ ) commence à disparaître à son tour. On considère qu'un élément disparaît après un temps correspondant à 10 fois sa période de demi-vie, et c'est bien ce que l'on peut voir ici.

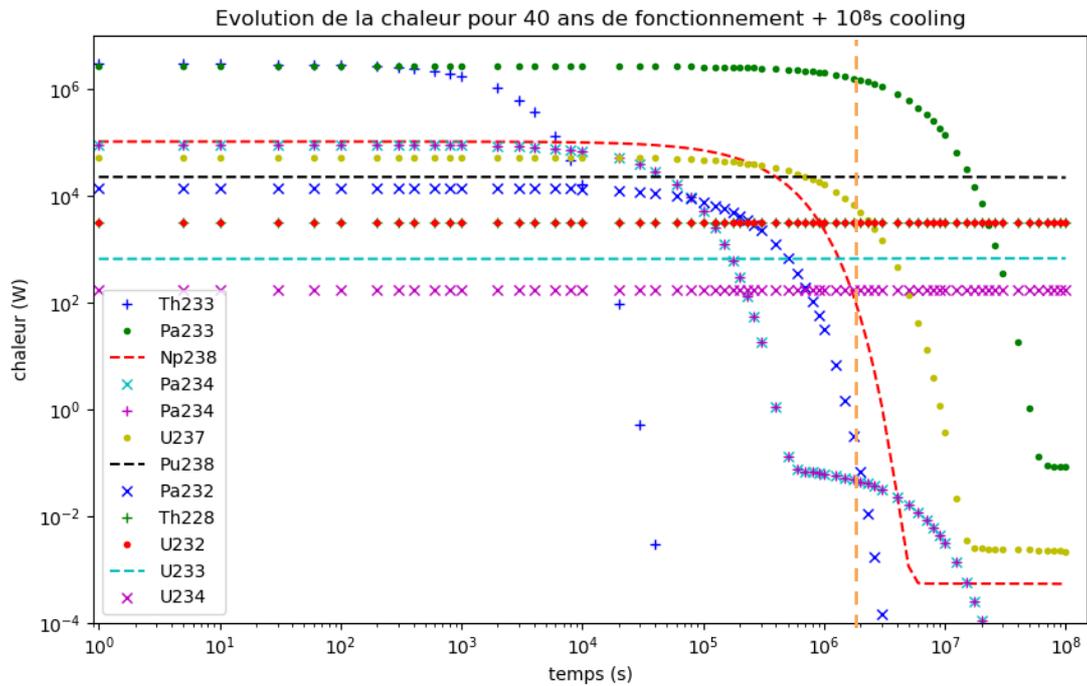


Figure 17 : Contribution des 12 actinides les plus contributeurs au cours du temps à la puissance résiduelle dans le sel combustible

La formation des noyaux évoqués est renseignée dans le tableau 5.

Noyau	Chaîne de formation
$^{233}\text{Pa}$	$^{232}\text{Th} \xrightarrow{n,\gamma} (^{21,8m})^{233}\text{Th} \xrightarrow{\beta^-} (^{5,1ms})^{233}\text{Pa}$
$^{237}\text{U}$	$(^{5.1ms})^{233}\text{Pa} \xrightarrow{n,\gamma} (^{6.7h})^{234}\text{Pa} \xrightarrow{\beta^-} (^{2.4 \cdot 10^5 a})^{234}\text{U} \xrightarrow{n,\gamma} (^{7.10e8 a})^{235}\text{U} \xrightarrow{n,\gamma} (^{2.3 \cdot 10^7 a})^{236}\text{U} \xrightarrow{n,\gamma} (^{6.7j})^{237}\text{U}$
$^{238}\text{Np}$	$(^{6.7j})^{237}\text{U} \xrightarrow{\beta^-} (^{2,14 \cdot 10^6 a})^{237}\text{Np} \xrightarrow{\beta^-} (^{2.1j})^{238}\text{Np}$
$^{232}\text{Pa}$	$^{232}\text{Th} \xrightarrow{n,2n} (^{25,5h})^{231}\text{Th} \xrightarrow{\beta^-} (^{32800a})^{231}\text{Pa} \xrightarrow{n,\gamma} (^{1,32j})^{232}\text{Pa}$

Tableau 5 : formation des noyaux  $^{233}\text{Pa}$ ,  $^{237}\text{U}$ ,  $^{238}\text{Np}$ ,  $^{232}\text{Pa}$

Par ailleurs, tout comme pour les analyses de pulses, on peut extraire les 15 premiers contributeurs à la chaleur résiduelle pour les pas de temps choisis. Puis, en comparant les résultats de la simulation MSFR et ceux des pulses, on extrait les noyaux en commun par pas de temps, ainsi que ceux qui apparaissent le plus. Le tableau 6 en fait l'inventaire.



Tableau 6 : tableau bilan des 15 noyaux qui contribuent le plus à la puissance résiduelle du MSFR par pas de temps (confidentiel)

Pour cette simulation, le MSFR fonctionne en cycle thorium, aussi il est intéressant de comparer ces principaux contributeurs à ceux des pulses de fission pour les noyaux  $^{232}\text{Th}$  et  $^{233}\text{U}$ .



Tableau 7 : Récapitulatif des PF communs entre le MSFR et les noyaux analysés en pulses, pour le cycle Thorium (confidentiel)

Le tableau 7 regroupe les produits de fission communs parmi les 15 premiers contributeurs, pour les pulses des noyaux du cycle thorium et la simulation MSFR. Ils seront à examiner par la suite (voir partie IV.3). On voit qu'il y a peu de noyaux en commun avec les pulses, en particulier pour les pas de temps courts. Au moins deux explications sont possibles. D'abord, cette comparaison est faite entre une simulation de 40 ans et un pulse de fission instantanée, il se peut que des produits de fission formés à partir de décroissances d'autres produits de fission en réacteurs apparaissent. De plus, on s'est limité aux 15 premiers noyaux et on peut avoir coupé les contributeurs suivants qui ont des poids d'importance équivalents aux derniers de la liste des 15. Ces études seront approfondies par la suite.

Il aurait été intéressant de faire les simulations avec une deuxième librairie de données, en l'occurrence JEFF 3.3 pour pouvoir comparer les résultats avec les pulses de fission une seconde fois. Cependant JEFF 3.3 ne contient pas toutes les informations nécessaires pour cela à l'heure actuelle, en particulier les sections efficaces microscopiques ne sont pas disponibles pour les températures mises en jeu dans le cœur du MSFR (données indisponibles pour  $T = 900\text{K}$ ). Ces données seront produites avec le code NJOY par L.Giot d'ici la fin de l'année.

Pour ne pas surcharger ce paragraphe, les résultats de la simulation en cycle U/Pu ainsi que la comparaison avec le cycle Th/U seront mis en annexes.

## IV Noyaux pandémonium

Après avoir établi une liste de noyaux à regarder plus en détail, il s'agit de vérifier s'ils sont ou non candidats Pandémonium. Pour cela, on définit certains critères qui seront développés dans ce paragraphe, liés au processus de la désintégration  $\beta^-$ . Plus un noyau aura de critères pandémonium, plus il y a de chances qu'il soit pandémonium. Ce travail préliminaire sera complété après ce stage par une étude plus approfondie en collaboration avec la partie du groupe SEN travaillant sur les expériences TAS.

### 1) Désintégration $\beta^-$

Ce mécanisme a lieu pour les noyaux présentant un excès de neutrons.



Avec X le noyau père radioactif, qui forme le noyau fils Y en émettant un électron et un antineutrino.

Dans le diagramme ci-dessous, on peut voir une distribution des produits de fission de  ${}^{233}\text{U}$  induite par des neutrons d'1MeV. La quasi-totalité de ces produits de fission riches en neutrons effectueront une ou plusieurs désintégrations  $\beta^-$  pour former des noyaux stables.

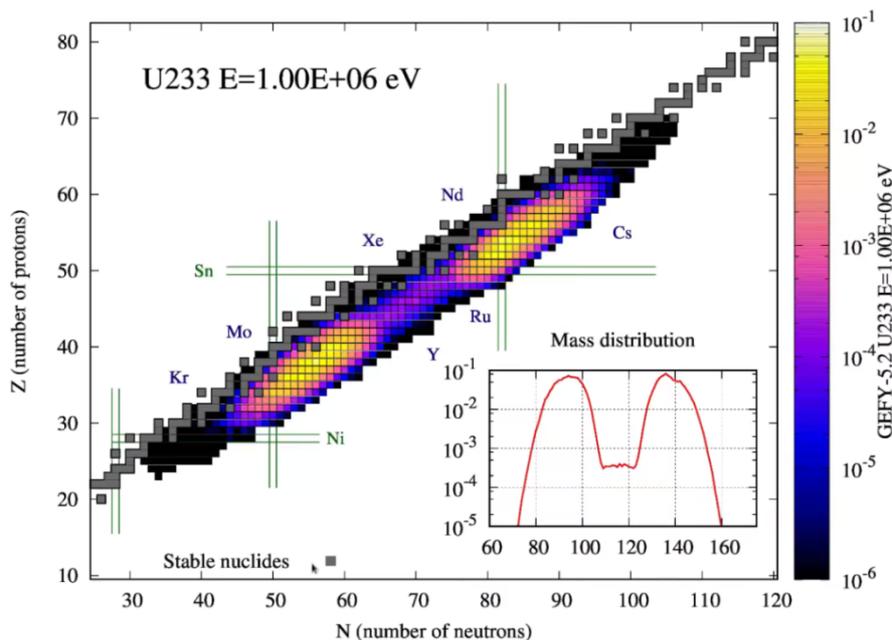


Figure 18 : diagramme N Z présentant la distribution des produits de fission pour  ${}^{233}\text{U}$  (fission rapide) [28]

La désintégration  $\beta^-$  présente plusieurs caractéristiques : l'énergie de réaction notée  $Q_\beta$  ; l'état du noyau fils, c'est-à-dire son niveau d'énergie et le type de transition qui a aboutit à sa formation.

Tout d'abord,  $Q_\beta$  représente l'énergie disponible suite à une décroissance  $\beta^-$ . C'est la différence de masse totale du système avant et après la décroissance. Elle est répartie entre les trois corps sous forme d'énergie cinétique, et en énergie d'excitation si le noyau fils n'est pas produit dans son état fondamental. Si la désintégration  $\beta^-$  produit le noyau fils dans un état excité, ce dernier cas est alors suivi par une ou plusieurs décroissances  $\gamma$ . Ces mécanismes sont illustrés dans la figure 19 qui représente une partie du schéma de décroissance du  ${}^{97}\text{Sr}$ .

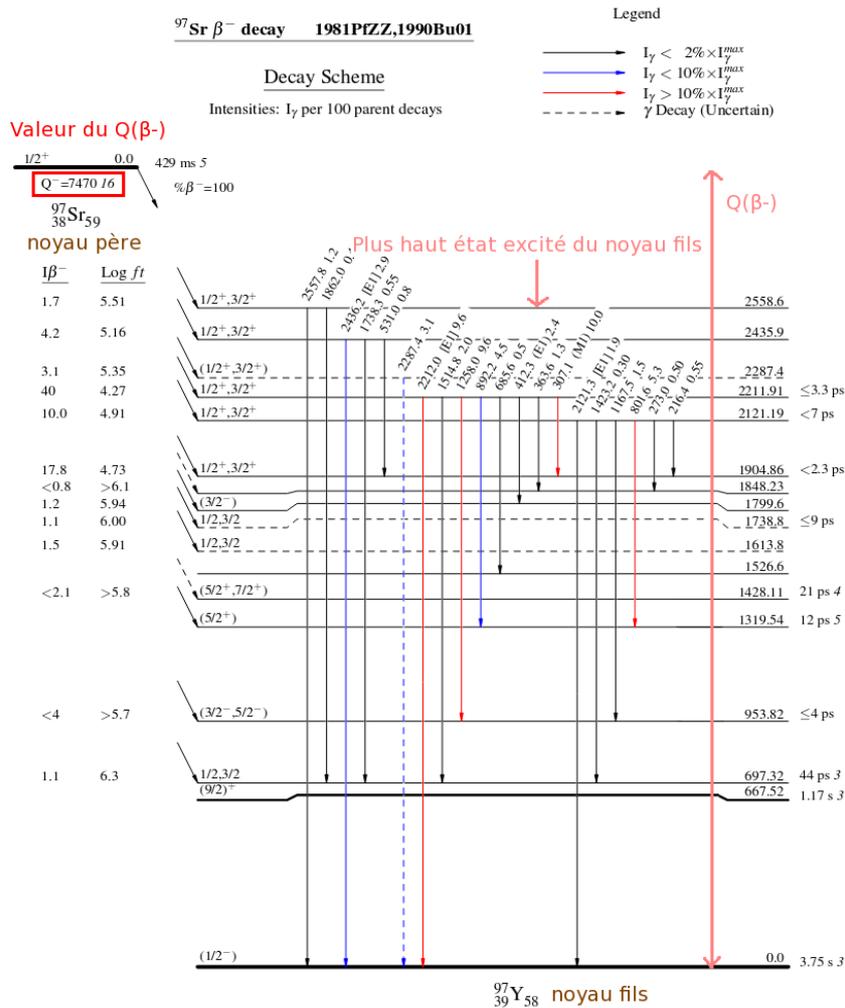


Figure 19 : décroissance β<sup>-</sup> du <sup>97</sup>Sr (Q<sub>β<sup>-</sup></sub> et les valeurs des niveaux sont en keV) [29]

Dans cet exemple, on voit que le <sup>97</sup>Sr peut décroître vers plusieurs états excités du <sup>97</sup>Y. La désintégration β<sup>-</sup> sera suivie d'une ou plusieurs décroissances γ.

En ce qui concerne les transitions, elles peuvent être autorisées ou interdites, de Fermi ou de Gamow Teller. Elles sont renseignées dans le tableau 8. Comme indiqué dans ce tableau, la nature de la transition dépend du changement de spin et de parité que l'on peut attribuer à chaque niveau d'un noyau. L et S sont des nombres quantiques, respectivement le moment orbital et le moment cinétique de spin, et leur somme vectorielle donne le spin nucléaire J.

Type	ΔJ	L	Δπ
Super-permise (0+→0+), Permise	0 0, ±1	0	non
Interdite 1 <sup>er</sup> ordre Interdite 1 <sup>er</sup> ordre unique	0, ±1 ±2	1	oui
Interdite 2 <sup>e</sup> ordre Interdite 2 <sup>e</sup> ordre unique	±1, ±2 ±3	2	non
Interdite 3 <sup>e</sup> ordre Interdite 3 <sup>e</sup> ordre unique	±2, ±3 ±4	3	oui

Tableau 8 : types de transition β<sup>-</sup>

Si la transition implique un changement du moment cinétique de spin  $S$ , c'est une transition de Gamow-Teller. Sinon, il s'agit d'une transition de Fermi.

Dans l'exemple de la figure 19 et de la transition vers le plus haut niveau excité,  $\Delta J = |1/2 - 1/2| = 0$ , on passe de  $1/2 +$  à  $1/2 +$  donc la parité ne change pas. En se référant au tableau, on en conclut qu'il s'agit d'une transition autorisée de Fermi.

Le « log ft » indiqué en face de chaque niveau est le logarithme de la valeur ft appelée demi-vie comparée ; on en prend le logarithme car elle peut varier de moins d'une seconde à plusieurs millions d'années. Cette valeur construite à partir de plusieurs données nucléaires non détaillées dans ce rapport, permet de comparer les probabilités de désintégration  $\beta^-$  des noyaux entre eux quand bien même leur structure serait différente. Elle permet enfin de donner une autre définition des types de transition : les transitions ayant les ft les plus courts (log ft =3-4) sont permises, voire super-permises ( $0+ \rightarrow 0+$ ) [30].

$I(\beta^-)$  représente l'intensité du rayonnement correspondant à cette transition. Il est directement lié à la probabilité qu'a le noyau père à décroître vers ce niveau. Cela dépend du type de transition impliquée et de l'énergie de ce niveau excité.

## 2) Critères pandémonium

Tout d'abord, l'effet pandémonium n'interviendra que pour les noyaux présentant des transitions  $\gamma$  d'une énergie de plusieurs MeV, typiquement au dessus de 3-4 MeV (en dessous, les détecteurs Ge ont une efficacité suffisante pour que l'effet ne se manifeste pas, cf. paragraphe II.1). Cela permet de définir deux premiers critères :

- Un  $Q_\beta$  élevé (>4-5 MeV) sera considéré comme le premier critère d'un noyau pandémonium (pour que des décroissances  $\gamma$  de haute énergie puissent avoir lieu)
- Avoir un écart d'énergie élevé (>1-2 MeV) entre le plus haut niveau excité et la valeur du  $Q_\beta$ . sera le deuxième critère puisque cela suggère qu'il y a des niveaux d'énergie supplémentaires qui n'ont pas pu être mesurés jusqu'à présent (cf. figure 20)

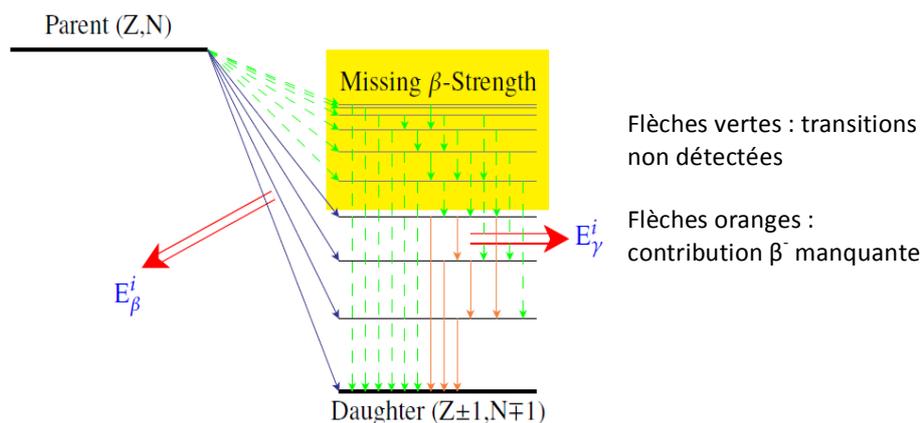


Figure 20 : illustration de l'effet pandémonium [22]

Comme expliqué au paragraphe II.1, lorsqu'un noyau est sujet à l'effet pandémonium, certaines transitions  $\gamma$  ne sont pas comptées par les détecteurs Ge habituels, ce qui conduit à une mauvaise estimation des contributions  $\beta^-$  et  $\gamma$ , illustré figure 20.

Chaque désintégration  $\beta^-$  a une certaine intensité relative reliée à sa probabilité d'occurrence. Un troisième critère pandémonium est une somme de ces intensités relatives différente de 1.

Le quatrième critère pandémonium étudié concerne le niveau fondamental du noyau fils. Chaque niveau du noyau atteignable par radioactivité  $\beta^-$  est produit dans une certaine quantité relative, on parle d'alimentation (feeding). Elle représente la facilité avec laquelle le noyau fils est obtenu dans cet état, et dépend donc du type de transition (autorisée ou interdite). Un noyau qui répond aux trois premiers critères et qui possède également un niveau fondamental alimenté (ground state feeding) de façon très importante (dur à quantifier mais typiquement au-delà de 20% par exemple) aura de grandes chances d'être pandémonium.

Le critère suivant auquel on s'intéressera sera le seuil neutron, noté  $S(n)$ . Il s'agit de l'énergie à fournir pour arracher le neutron le moins lié de son noyau. Si la valeur de ce seuil pour le noyau fils est très au-dessus (2-3 MeV) de son dernier niveau mesuré, cela signifie qu'il manque une partie de l'intensité  $\beta^-$  notamment la contribution  $\beta^-n$ .

Dans le cadre de futures études, il m'a également été demandé d'extraire les informations relatives au type de transition.

### 3) Analyse et résultat des noyaux suspectés pandémonium

Pour extraire les données nécessaires aux critères précédemment évoqués, il a fallu développer plusieurs macros python. Celles-ci ont été conçues pour pouvoir relire des bibliothèques de données au format ENDF (Evaluated Nuclear Data File, américaine) et ENSDF (Evaluated Nuclear Structure Data File, internationale). Elles peuvent extraire toutes les informations relatives à la décroissance  $\beta^-$  (niveaux d'énergie du noyau fils, énergies des électrons ou des  $\gamma$  émis, types de transition) et pourront être réutilisées. Une fois ces informations extraites pour les noyaux fréquemment rencontrés lors des études précédentes, on peut établir un tableau bilan (tableau 9) présenté ci-dessous.



Tableau 9 : Confrontation des noyaux d'intérêt aux critères pandémonium (données extraites de la librairie JEFF 3.3.1), confidentiel

L'analyse des résultats est confidentiel et non présentée dans la version publique de ce rapport disponible sur le web.

## Conclusion

Après une introduction sur le contexte global présentant les réacteurs de génération IV et la notion de puissance résiduelle, une première partie a été consacrée au MSFR, réacteur d'intérêt pour ce stage. Ses caractéristiques de fonctionnement (spectre neutronique rapide, cycle et composition possible du liquide combustible, géométrie) ont été détaillées.

La deuxième partie du rapport fut dédiée à l'effet pandémonium et aux études menées pour trouver les noyaux les plus contributeurs à la puissance résiduelle. Ces études furent des pulses de fission et des simulations SERPENT 2 du MSFR et ont permis d'établir une liste de noyaux à examiner en priorité pour la suite. Les outils développés sous Python pourront être réutilisés pour de futurs travaux sur d'autres types de réacteurs, notamment les réacteurs rapides refroidis au sodium.

La troisième partie a davantage détaillé la physique associée à la désintégration  $\beta^-$  et les critères pandémonium choisis, pour ensuite les confronter aux noyaux listés en deuxième partie. On a pu en conclure que les résultats obtenus étaient cohérents avec les résultats disponibles dans la littérature, en retrouvant certains noyaux comme le  $^{88}\text{Rb}$  ou le  $^{92}\text{Sr}$  et les caractéristiques associées. De nouveaux noyaux potentiellement pandémonium ont pu être trouvés (confidentiel) et seront à étudier plus en détail.

Ce travail pourrait être poursuivi par l'analyse des noyaux considérés pandémonium. En particulier, il faudra déterminer si ces noyaux peuvent être mesurés avec la technique TAS par exemple. Cela implique entre autres qu'ils doivent avoir une période de demi-vie suffisamment longue et qu'il est possible de les produire et de les isoler. Les macros sur les critères pandémonium devraient être réutilisées à la suite d'un autre stage portant sur la vérification des mesures effectuées par Rudstam et al. [32], certaines mesures effectuées à l'époque portant sur des noyaux suspectés d'être pandémonium.

A titre personnel, ce stage m'a permis d'avoir un aperçu du travail de chercheur dans le domaine du nucléaire. Si une part de ce travail était conforme aux idées que j'en avais, certaines occupations comme la documentation (lecture de thèses, recherches de publications...) demandent un temps et une concentration que je ne suis pas sûr de pouvoir investir sur le long terme pour en faire mon métier. De plus, certaines problématiques entourant la recherche en France (financement complexe, très peu de nouveaux postes) ou même dans le monde (système de publication critiquable) tendent à me dissuader de rejoindre ce milieu. Je n'exclus cependant pas la possibilité de faire une thèse, en particulier sur le MSFR, si l'occasion se présente et si le sujet me convient.

Par ailleurs, j'ai pu voir pendant ce stage l'application concrète de notions vues en cours, comme l'importance d'avoir les connaissances les plus précises possibles sur les fissions et ses produits dans un réacteur, afin d'en estimer la puissance résiduelle.

Enfin, j'ai pu découvrir et m'intéresser à d'autres types de réacteurs que ceux actuellement en exploitation et ainsi avoir une meilleure vue d'ensemble de la situation du nucléaire et de ses possibilités d'évolution, en France et dans le monde.

## Glossaire

AIEA : Agence Internationale pour l'Énergie Atomique

CANDU : pour CANada Deuterium Uranium, réacteur fonctionnant à l'uranium naturel et modéré à l'eau lourde

CNRS : Centre National de la Recherche Scientifique

Effet Pandémonium : biais expérimental issu de la faible efficacité des détecteurs Germanium à haute énergie, conduisant à une mauvaise interprétation des données expérimentales (de décroissances  $\beta^-$  et  $\gamma$  et de structure du noyau)

ENDF : Evaluated Nuclear Data File, bibliothèque de données nucléaires américaine

ENSDF : Evaluated Nuclear Structure Data File, bibliothèque de données internationale contenant des informations sur la structure des noyaux (niveaux d'énergie par exemple)

ERDRE : Experimental Research on Data, Reactors and Energy : ancienne équipe de recherche du laboratoire Subatech

Fertile : noyau qui, par capture neutronique, forme un noyau fissile

Fissile : noyau qui peut fissionner par absorption d'un neutron rapide

Fissile : noyau qui peut fissionner quelle que soit l'énergie du neutron qu'il absorbe

IMT : Institut Mines-Télécom

IN2P3 : Institut National de Physique Nucléaire et de Physique des Particules

Incinération d'un actinide : fission ou transmutation d'un actinide mineur souvent très radiotoxique, en vue de le faire disparaître, ou de le transformer en un élément moins dangereux.

Isomère : état excité d'un noyau. C'est une configuration différente et instable du noyau à l'état fondamental.

JEFF : Joint Evaluated Fission and Fusion, bibliothèque de données européenne de structure nucléaire

Méthode CRAM : pour Chebyshev Rational Approximation Method, méthode de résolution des équations de Bateman.

MOX : pour Mélange d'Oxydes, combustible fabriqué en recyclant le plutonium contenu dans le combustible usé des réacteurs. Il est plus toxique mais permet d'économiser des ressources en uranium et de réduire l'inventaire en plutonium.

PF : abréviation pour Produits de Fission

Prolifération : capacité à détourner un combustible nucléaire à des vues militaires (ou terroristes)

Puissance résiduelle : chaleur générée après l'arrêt des réactions de fission par les décroissances des produits de fission et des actinides mineurs

Radiotoxique : toxicité de nature radioactive d'un élément

REB : Réacteur à Eau Bouillante (en spectre thermique, refroidi et modéré à l'eau légère)

Régénérateur : capacité d'un réacteur à produire autant de matière fissile qu'il n'en consomme.

REP : Réacteur à Eau Pressurisé (en spectre thermique, refroidi et modéré à l'eau légère)

SEN : Structure et Energie Nucléaires

Surgénérateur : capacité d'un réacteur à produire davantage de matière fissile qu'il n'en consomme.

TAS : Total Absorption Spectrometry, méthode de mesure évitant l'effet Pandémonium en collectant l'intégralité d'une cascade de décroissances gamma, via un détecteur à bonne efficacité de détection, y compris à haute énergie.

## Annexes

### Diagramme de Gantt du stage

	Semaine 20	Semaine 21	Semaine 22	Semaine 23	Semaine 24	Semaine 25
	14/05/2018	21/05/2018	28/05/2018	04/06/2018	11/06/2018	18/06/2018
Macros python contribution noyaux et analyses Pulses						
Prise en main du code Serpent						
Simulations Serpent du MSFR et de sa puissance résiduelle						
Macro python criteres Pandemonium pour les noyaux						
Redaction rapport par parties						
	Semaine 26	Semaine 27	Semaine 28	Semaine 29	Semaine 30	Semaine 31
	25/06/2018	02/07/2018	09/07/2018	16/07/2018	23/07/2018	30/07/2018
Macro python criteres Pandemonium pour les noyaux						
Redaction rapport par parties						
Préparation soutenance						
Rapport premier rendu			09/07/2018			
Rapport version definitive					25/07/2018	
Répetition soutenance 1					26/07 10h	
Répetition soutenance 2						30/07 10h

Le diagramme a été globalement respecté. Certaines simulations Serpent ont été effectuées plus tard que prévu. Les dernières simulations ont été faites pendant la semaine 29 afin de tester une nouvelle composition de sel combustible pour le MSFR en cycle U/Pu, fournie par D. Heuer du LPSC, Grenoble, à la demande de L. Giot.

### Simulations en cycle U/Pu et comparaisons

Deux simulations en cycle U/Pu ont été réalisées. La première utilisa comme combustible une composition à l'équilibre provenant d'une simulation d'un réacteur rapide à sel fondus russe abrégé FMSR (Fast Molten Salt Reactor) [33]. La seconde utilisa une composition à l'équilibre venant d'une simulation réalisée par Daniel Heuer du réacteur REBUS, un modèle destiné à incinérer les actinides mineurs. C'est un réacteur rapide à sels fondus mais qui utilise des sels chlorures et non fluorures [34]. Pour ces deux cas, comme la composition était à l'équilibre, la simulation n'a consisté qu'en l'étape de cooling (i.e décroissances de l'inventaire) dans la géométrie du MSFR.

**Paramètres de la simulation 1** : densité de puissance :  $0.150\text{kW.g}^{-1}$  ; masse de combustible : 64,8t

Allure de la puissance résiduelle :

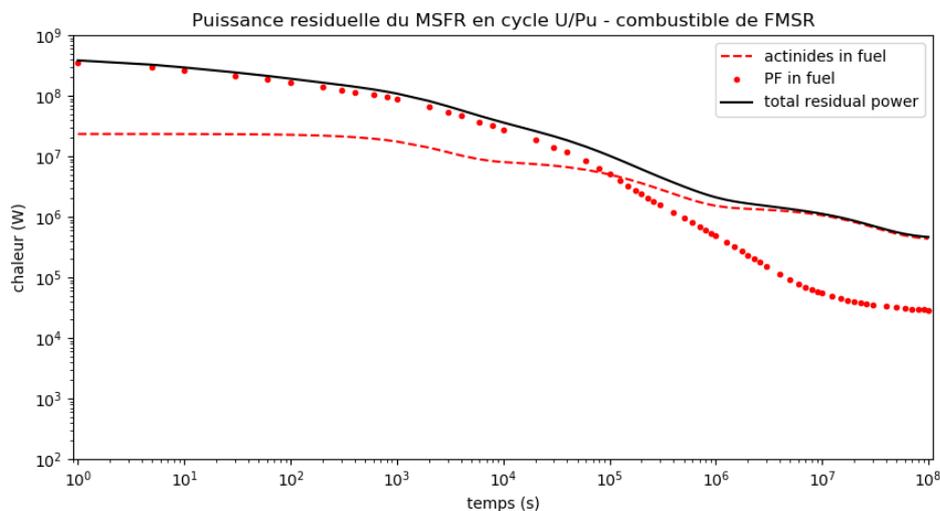


Figure 21 : puissance résiduelle d'un MSFR avec un combustible issu du FMSR

Principaux contributeurs :

Tableau 10 : bilan des 15 noyaux qui contribuent le plus à la puissance résiduelle du MSFR chargé au combustible FMSR (confidentiel)

Comparaison avec les pulses de fission (confidentiel)

Tableau 11 : Récapitulatif des PF communs entre le MSFR chargé au combustible FMSR et les noyaux analysés en pulses, pour le cycle U/Pu (confidentiel)

L'interprétation de ces données sera effectuée en même temps que pour celle de la simulation suivante.

**Paramètre de la simulation 2** : densité de puissance : 0.205kW/g ; masse de combustible 55,8t:

Allure de la puissance résiduelle :

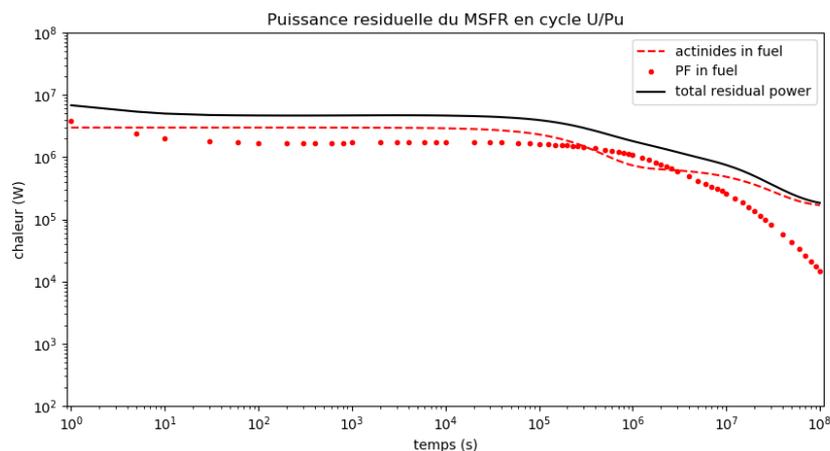


Figure 22 : Puissance résiduelle d'un MSFR avec un combustible issu du concept REBUS

Principaux contributeurs (confidentiel)

Tableau 12 : bilan des 15 noyaux qui contribuent le plus à la puissance résiduelle du MSFR chargé au combustible REBUS

Comparaison avec les pulses de fission :

Tableau 13 : Récapitulatif des PF communs entre le MSFR chargé au combustible REBUS et les noyaux analysés en pulses, pour le cycle U/Pu

**Analyse préliminaire :**

L'allure des puissances résiduelles diffère d'un combustible à l'autre, surtout pour des temps inférieurs à  $10^5$  s. Entre 1 et  $10^5$  s on voit que dans le cas du combustible FMSR, la puissance

résiduelle est majoritairement due aux produits de fissions parmi lesquels plusieurs gros contributeurs disparaissent régulièrement (cf paragraphe III.3). Dans le cas du combustible REBUS, ce sont les actinides qui sont majoritaires d'où la stabilité de la puissance résiduelle au cours du temps. Néanmoins on voit qu'il y a un facteur 30 dans la valeur de la puissance résiduelle directement après l'arrêt des réactions en chaîne. L'explication vient de la composition du combustible (REBUS est chargé en actinides mineurs puisque son rôle est de les incinérer, alors que le FMSR a une composition plus standard) et de la masse totale de combustible (64.8t contre 55.8t).

En ce qui concerne les similitudes avec les pulses, on voit que les deux combustibles donnent des résultats différents. Le combustible FMSR a des éléments en commun avec les pas en temps courts (<100s), alors que le combustible REBUS a des éléments en commun avec les pas en temps longs (1000s). Même en poussant la recherche aux 30 premiers contributeurs pour les simulations FMSR et REBUS, et en les comparant aux résultats des pulses, la tendance reste la même. Dès lors, au moins deux explications sont possibles. La première est que l'on utilise des compositions à l'équilibre pour ces deux simulations, alors que le pulse est une fission instantanée. Cela signifie que si des produits de fission sont formés à partir de décroissances d'autres produits de fission, seulement après un certain temps en réacteur, alors ils n'apparaîtront pas dans les pulses. La deuxième explication concerne les noyaux pandémonium qui donnent des résultats biaisés. En effet, pour la puissance résiduelle, on regarde leur contribution qui est le produit entre l'énergie moyenne de la décroissance et l'activité du noyau. Aussi, si la première valeur est surestimée, alors ces noyaux apparaîtront préférentiellement. Et c'est effectivement le cas pour les noyaux tels que (confidentiel) qui sont pandémonium ou hautement suspects pandémonium. Des études complémentaires seront effectuées suite à ce stage sur ces aspects.

Les résultats préliminaires entre cycle Th/U et cycle U/Pu sont assez différents, tant sur les noyaux contributeurs à la puissance résiduelle que sur la similitude avec les pulses. Le premier point peut s'expliquer par la différence de masse entre les isotopes qui fissionnent et qui se répercute sur celle des produits de fission.

## Bibliographie

1 Site de SUBATECH, consulté en juillet 2018

[http://intranet-subatech/direction/Docs\\_pour\\_tous/ScientificReport2011-2013.pdf](http://intranet-subatech/direction/Docs_pour_tous/ScientificReport2011-2013.pdf)

2 Site de l'expérience Double Chooz, consulté le 17/08/2018

<http://doublechooz.in2p3.fr/Public/French/welcome.php>

3 C. L. Cowan Jr., F. Reines, F. B. Harrison, H. W. Kruse and A. D. McGuire- Detection of the Free Neutrino: A Confirmation - Science, New Series, Vol. 124, No. 3212 (Jul. 20, 1956), pp. 103-104

4 A. Bernstein et al. - Nuclear Security Applications of Antineutrino Detectors: Current Capabilities and Future Prospects - Science & Global Security, 2010, p127

5 Anthony ONILLON - Prédiction des taux de fission des cœurs de Chooz et estimation des incertitudes associées dans le cadre de l'expérience Double Chooz – Thèse à l'Université de Nantes Angers Le Mans, 2014

6 IRSN Le déroulement de l'accident de Fukushima Daiichi – site web, consulté le 17/07/2018

[https://www.irsn.fr/FR/connaissances/Installations\\_nucleaires/Les-accidents-nucleaires/accident-fukushima-2011/lecons/comprendre/Pages/sommaire-comprendre.aspx#.W03HKmeNh2k](https://www.irsn.fr/FR/connaissances/Installations_nucleaires/Les-accidents-nucleaires/accident-fukushima-2011/lecons/comprendre/Pages/sommaire-comprendre.aspx#.W03HKmeNh2k)

7 Jean-Claude Nimal - Sûreté et puissance résiduelle – Les clefs du CEA n°45 – 2011 page 2

8 A. Algora et al. - Reactor Decay Heat in  $^{239}\text{Pu}$ : Solving the  $\gamma$  Discrepancy in the 4–3000-s Cooling Period – Physics Review Letters 105, 202501 (2010)

9 Site web de l'Agence Internationale de l'Energie Atomique, consulté en juillet 2018

<https://www.iaea.org/PRIS/WorldStatistics/OperationalReactorsByType.aspx>

10 Site web du Forum International de Génération IV, consulté en juillet 2018

[https://www.gen-4.org/gif/jcms/c\\_59461/generation-iv-systems](https://www.gen-4.org/gif/jcms/c_59461/generation-iv-systems)

11 Plan National de Gestion des Matières et des Déchets Radioactifs 2016-2018 – ASN – Version en ligne : <https://www.asn.fr/Informer/Dossiers-pedagogiques/La-gestion-des-dechets-radioactifs/Plan-national-de-gestion-des-matieres-et-dechets-radioactifs/PNGMDR-2016-2018>

12 Site web NNDC (National Nuclear Data Center), consulté en juillet 2018

Courbes : <https://www.nndc.bnl.gov/sigma/>

13 E. Merle-Lucotte et al. - Introduction to the Physics of Thorium Molten Salt Fast Reactor (MSFR) Concepts – Springer International Publishing Switzerland 2016 J.-P. Revol et al. (eds.), Thorium Energy for the World

14 Axel Laureau - Développement de modèles neutroniques pour le couplage thermohydraulique du MSFR et le calcul de paramètres cinétiques effectifs, Université Grenoble-Alpes, 2006

15 Encyclopédie Universalis

<https://www.universalis.fr/encyclopedie/thorium/>

- 16 Uranium 2014: Resources, Production and Demand - A Joint Report by the OECD Nuclear Energy Agency and the International Atomic Energy Agency (2014) p40
- 17 Site laradioactivite.com géré par le CNRS, consulté en juillet 2018  
<http://www.laradioactivite.com/site/pages/InventairePlutonium.htm>  
<http://www.laradioactivite.com/site/pages/combustiblesmixteslemox.htm>
- 18 Mariya Brovchenko - Études préliminaires de sûreté du réacteur à sels fondus MSFR, Université de Grenoble, 2013, p36
- 19 Site officiel de SERPENT, consulté en juillet 2018  
<http://montecarlo.vtt.fi/>
- 20 Harry Bateman, « Solution of a System of Differential Equations Occurring in the Theory of Radio-active Transformations », Proc. Camb. Phil. Soc., vol. 16, 1910, p. 423
- 21 J.C. Hardy, L.C. Carraz, B. Jonson and P.G. Hansen – The essential decay of pandemonium : a demonstration of errors in complex b-decay, CERN, Geneva, Switzerland, PHYSICS LETTERS Volume 71 B, number 2 - 14 September 1977, p307
- 22 Simon James Rice - Decay Heat Measurements of Fission Fragments  $^{86}\text{Br}$ ,  $^{91}\text{Rb}$  &  $^{94}\text{Sr}$  Using Total Absorption gamma-ray Spectroscopy - University of Surrey, July 2014
- 23 Tobias, A.- Derivation of decay heat benchmarks for U235 and Pu239 by a least squares fit to measured data, Central Electricity Generating Board, Berkeley (UK). Berkeley Nuclear Labs, 1989
- 24 A. Tobias - DECAY HEAT Central Electricity Generating Board, Berkeley Nuclear Laboratories, Berkeley, Gloucestershire GL1 3 9PB, England – p24-29
- 25 Masatsugu AKIYAMA ,Yoshiaki OKA and Shigehiro AN, MEASUREMENT OF DECAY HEAT OF FAST NEUTRON FISSION PRODUCTS, University of Tokyo, 1997, p237-238
- 26 Site de l'Agence pour l'Energie Nucléaire, consulté en juillet 2018  
[https://www.oecd-nea.org/dbforms/data/eva/evatapes/jeff\\_31/index-JEFF3.1.1.html](https://www.oecd-nea.org/dbforms/data/eva/evatapes/jeff_31/index-JEFF3.1.1.html)
- 27 A.-A. Zakari-Issoufou et al - Total Absorption Spectroscopy Study of  $^{92}\text{Rb}$  Decay: A Major Contributor to Reactor Antineutrino Spectrum Shape - PRL 115, 102503 (2015)
- 28 Site de l'autorité britannique de l'énergie nucléaire  
<http://fispact.ukaea.uk/nuclear-data/fission-yields/>
- 29 N. Nica NDS 111, 525 (2010), From ENSDF - Evaluated November 2009
- 30 P. Velten. Mesure du paramètre de corrélation angulaire bêta-neutrino dans la désintégration de  $^6\text{He}$ . Physique Nucléaire Théorique [nucl-th]. Université de Caen, 2011 - p19
- 31 Paraskevi Dimitriou and Alan L. Nichols - Total Absorption Gamma-ray Spectroscopy for Decay Heat - Calculations and Other Applications Summary Report of Consultants' Meeting IAEA Headquarters Vienna, Austria 15 – 17 December 2014 – p21

32 G Rudstam et al. beta and gamma spectra of short-lived fission products - atomic data and nuclear data tables 45,239-320 (1990)

33 L.I. Ponomarev, (A.A.Bochvar High Technology Research Institute of Inorganic Materials, Moscow), Fast Molten Salt Reactor with U-Pu Fuel, Vienna 2016

34 A. Mourogov, P.M. Bokov, Potentialities of the fast spectrum molten salt reactor concept: REBUS-3700, Energy Conversion and Management 47 (2006) 2761–2771

## Index des figures

Figure 1 : puissance résiduelle d'un REP [7] .....	5
Figure 2 : sections efficaces microscopiques de capture et de fission pour le $^{237}\text{Np}$ et l' $^{241}\text{Am}$ [12] .....	8
Figure 3 : sections efficaces microscopiques de capture .....	8
Figure 4 : les cycles du combustible nucléaire [14] .....	9
Figure 5 : Schéma du circuit primaire du MSFR [13].....	11
Figures 6a et 6b : modélisation du cœur du MSFR (à gauche), associé au schéma de présentation (à droite) .....	12
Figure 7 : Coupes verticale et horizontale de la modélisation du cœur du MSFR sous SERPENT 2.....	13
Figure 8 : schéma rendant compte de l'effet Pandémonium [22] .....	14
Figure 9 : Comparaison des spectres obtenus grâce à un détecteur Ge ou via la méthode TAS [22] ..	15
Figure 10 : énergie émise sous forme de gamma multipliée par le temps de refroidissement, suite à un pulse de fission thermique de Pu 239 [8] .....	15
Figures 11 a et 11b : résultats obtenus pour la chaleur résiduelle via une simulation SERPENT avec la librairie JEFF 3.3.1 (gauche) et avec la librairie JEFF 3.3 (droite) comparée à l'expérience.....	17
Figures 12a et 12b : exemple de résultat obtenu après extraction et formatage des données brutes	19
Figures 13 a b et c : Distribution de la puissance résiduelle pour $^{235}\text{U}$ , $^{238}\text{U}$ et $^{239}\text{Pu}$ à $t=10000\text{s}$ .....	20
Figure 14 : puissance résiduelle du MSFR suite à l'arrêt du réacteur après 3 ans de fonctionnement	22
Figure 15 : principaux contributeurs à l'activité de la couverture fertile parmi les produits de fission	22
Figure 16 : puissance résiduelle du MSFR suite à l'arrêt du réacteur après 40 ans de fonctionnement .....	23
Figure 17 : Contribution des 12 actinides les plus contributeurs au cours du temps à la puissance résiduelle dans le sel combustible .....	24
Figure 18 : diagramme N Z présentant la distribution des produits de fission pour l' $^{233}\text{U}$ (fission rapide) [28] .....	26
Figure 19 : décroissance $\beta^-$ du $^{97}\text{Sr}$ ( $Q_{\beta^-}$ et les valeurs des niveaux sont en keV) [29] .....	27
Figure 20 : illustration de l'effet pandémonium [22].....	28
Figure 21 : puissance résiduelle d'un MSFR avec un combustible issu du FMSR .....	33
Figure 22 : Puissance résiduelle d'un MSFR avec un combustible issu du concept REBUS .....	34

## Index des tableaux

Tableau 1 : Composition atomique du sel combustible au démarrage du réacteur à l' $^{233}\text{U}$ , de densité $4,19 \text{ g.cm}^{-3}$ .....	13
Tableau 2 : Composition de la couverture fertile, de densité $4,19 \text{ g.cm}^{-3}$ .....	13
Tableau 3 : Composition du réflecteur, de densité $10 \text{ g.cm}^{-3}$ [14] .....	13
Tableau 4: Récapitulatif des PF communs aux cinq noyaux lourds étudiés .....	21
Tableau 5 : formation des noyaux $^{233}\text{Pa}$ , $^{237}\text{U}$ , $^{238}\text{Np}$ , $^{232}\text{Pa}$ .....	24
Tableau 6 : tableau bilan des 15 noyaux qui contribuent le plus à la puissance résiduelle du MSFR par pas de temps.....	25
Tableau 7 : Récapitulatif des PF communs entre le MSFR et les noyaux analysés en pulses, pour le cycle Thorium .....	25
Tableau 8 : types de transition $\beta^-$ .....	27
Tableau 9 : Confrontation des noyaux d'intérêt aux critères pandémonium (données extraites de la librairie JEFF 3.3.1).....	29
Tableau 10 : Classement des noyaux selon leur nombre de critères validés . <b>Erreur ! Signet non défini.</b>	
Tableau 11 : bilan des 15 noyaux qui contribuent le plus à la puissance résiduelle du MSFR chargé au combustible FMSR .....	34
Tableau 12 : Récapitulatif des PF communs entre le MSFR chargé au combustible FMSR et les noyaux analysés en pulses, pour le cycle U/Pu .....	34
Tableau 13 : bilan des 15 noyaux qui contribuent le plus à la puissance résiduelle du MSFR chargé au combustible REBUS.....	34
Tableau 14 : Récapitulatif des PF communs entre le MSFR chargé au combustible REBUS et les noyaux analysés en pulses, pour le cycle U/Pu .....	34

## Résumé

Dans le cadre d'études sur un concept de réacteur à sel fondus à neutrons rapides nommé MSFR, ce stage a porté sur l'analyse des produits de fission responsables de sa puissance résiduelle. Cette dernière doit être connue et maîtrisée pour des raisons de sûreté, en cas d'arrêt du réacteur. Elle est calculée par la sommation des contributions  $\alpha$ ,  $\beta^-$  et  $\gamma$  individuelles des noyaux, ce qui nécessite une bonne connaissance des propriétés de la structure de ces derniers. Or certains noyaux sont sujets à l'effet pandémonium, un biais expérimental conduisant à une mauvaise estimation des contributions  $\beta^-$  et  $\gamma$ . Ce stage a donc eu pour objectif d'identifier ces noyaux pandémonium.

Le stage s'est déroulé en trois parties. La première a consisté en l'analyse de pulses de fission induite par des neutrons rapides sur les noyaux fissibles impliqués dans les deux cycles du nucléaire : le cycle U/Pu ( $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ) et le cycle Th/U ( $^{232}\text{Th}$ ,  $^{233}\text{U}$ ). Des macros python utiles à l'identification des produits de fission les plus contributeurs à la puissance résiduelle ont été développées. La seconde partie a été consacrée à la simulation d'un cœur de MSFR avec le code de calcul SERPENT2 pour identifier les noyaux les plus contributeurs à la puissance résiduelle et former une liste des noyaux suspectés d'être pandémonium. La dernière partie a eu pour but d'établir la nature pandémonium ou non de ces suspects en comparant certaines de leurs caractéristiques de structure et de leur décroissance  $\beta^-$  à des critères pandémonium établis auparavant.

Les résultats ont pu mettre en évidence la contribution importante de quelques noyaux à la puissance résiduelle. Parmi eux, certains, comme (confidentiel), semblent sujets à l'effet pandémonium et devraient être investigués avec la méthode TAS par exemple.

## Abstract

Within the framework of research about a molten salt reactor concept with fast neutrons called MSFR, this internship was dedicated to the study of fission products responsible of its residual power. It must be known and contained for safety issues when the reactor stops. This power is calculated by doing the sum of  $\alpha$ ,  $\beta^-$  and  $\gamma$  individual contribution of nuclei, which required a good knowledge of their structural proprieties. Some of those nuclei have a pandemonium nature due to an experimental bias which leads to miscalculated  $\beta^-$  and  $\gamma$  contributions. The purpose of this internship was the identification of those pandemonium nuclei.

The internship was organised into three parts. The first one was the analysis of fast-fission pulses on fissionable nuclei that are part of the two nuclear cycles: U/Pu cycle ( $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ), and Th/U cycle ( $^{232}\text{Th}$ ,  $^{233}\text{U}$ ). Macros in Python for the identification of the largest contributors to residual power for the fission products were created. A second part was dedicated to run simulations of the MSFR core with SERPENT2 computing code, to identify the largest contributors to residual power and to compile a list of potential pandemonium nuclei. The last part was the highlighting of the pandemonium nature of some of those nuclei, by comparing their structural characteristics to pandemonium criteria pre-determined.

Results showed that a few nuclei contribute significantly to the residual power. Some of them such as (confidential) seem to have a pandemonium nature and should be re-measured. The TAS measurement method for instance should be considered if those nuclei can be produced and isolated.