

# THESE

présentée par

Alexis Nuttin

pour obtenir le titre de

Docteur de l'Université Joseph Fourier - Grenoble I

(Arrêtés ministériels du 5 juillet 1984 et du 30 mars 1992)

Spécialité : Physique

**Potentialités du concept de réacteur à sels fondus  
pour une production durable d'énergie nucléaire  
basée sur le cycle thorium en spectre épithermique**

Date de soutenance : 15 Novembre 2002

Composition du jury :

Daniel Guerreau	Président
Jean-Paul Schapira	Rapporteur
Marc Delpech	Rapporteur
Daniel Heuer	Directeur de thèse
Olivier Méplan	
Claude Garzenne	
Michel Allibert	

---

Thèse préparée au sein de l'Institut des Sciences Nucléaires.

53, Avenue des Martyrs. 38026 Grenoble Cedex.

## Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier Joël Chauvin, directeur de l'ISN Grenoble, pour m'avoir accueilli dans son laboratoire, ainsi que Jean-Marie Loiseaux, pour m'avoir accepté en thèse dans le groupe "Réacteurs Hybrides" et m'avoir guidé dans mon travail au gré d'échanges constructifs et stimulants. Cette thèse s'est déroulée sous la direction active de Daniel Heuer, que je remercie chaleureusement pour son soutien et sa confiance de tous les jours.

Mes remerciements vont ensuite à Daniel Guerreau, pour avoir accepté de présider le jury de cette thèse, et à mes deux rapporteurs, Marc Delpech et Jean-Paul Schapira, pour leur relecture attentive de ce rapport et l'ensemble de leurs remarques. Je remercie également Michel Allibert, Claude Garzenne et Olivier Méplan, qui ont accepté de faire partie du jury.

Au cours des trois dernières années, j'ai eu beaucoup de plaisir à travailler au sein du groupe "Réacteurs Hybrides". Je remercie pour cela tous ses membres : son chef Roger Brissot, Elisabeth Huffer, Christian Le Brun, Ludovic Mathieu, Elsa Merle, Hervé Nifenecker, Fabien Perdu, Nicolas Thiollière, Joachim Vollaire, et plus particulièrement Annick Billebaud et Eric Liatard pour leurs relectures efficaces. Je n'oublie pas les "anciens" : Alain Giorni, Denis Kerdraon, Maëlle Kerveno, Luc Perrot, Jean-Bernard Viano et Philippe Wachtarczyk. Dédicace toute spéciale à Sylvain David, qui a joué un rôle déterminant dans l'encadrement de ma thèse.

Bernard Bouterin, Christine Gondrand et Pascal Meyrand du Service Informatique m'ont souvent dépanné, je leur en suis reconnaissant. Je remercie également les enseignants de l'ENSPG qui m'ont épaulé pour les travaux pratiques d'instrumentation nucléaire. Merci à Claudine Tur pour son aide précieuse dans ma recherche bibliographique, et plus généralement à tous ceux avec qui j'ai eu l'opportunité de travailler ou de simplement discuter à l'ISN.

Ce travail s'est fait en collaboration avec le département de Physique des Réacteurs de la direction R&D d'EDF, que je remercie, avec le CNRS, pour le cofinancement de ma bourse de thèse. Merci en particulier à Jean Vergnes et David Lecarpentier d'EDF pour leur aide précieuse et nos échanges enrichissants. Je remercie en outre tous ceux qui m'ont fait profiter de leur expérience sur les réacteurs à sels fondus et la pyrochimie : Pierre Faugeras, Marcelle Gaune-Escard, Alfred Lecocq, Louis M. Toth, Jan Uhlř et Myriam Valade.

Pour leurs encouragements affectueux, je remercie mes parents, ma famille du Plat Pays et ma belle-famille des Terres Froides. Merci Guillaume, pour notre soutien mutuel et fraternel en période de rédaction. Merci Sylvie. Que serais-je sans toi que ce balbutiement?

# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>5</b>
<b>1 Gestion des déchets nucléaires et développement durable</b>	<b>7</b>
1.1 Le problème actuel de la gestion des déchets nucléaires . . . . .	7
1.1.1 L'énergie nucléaire aujourd'hui . . . . .	7
1.1.2 Etudes pour l'aval du cycle électronucléaire . . . . .	9
1.2 Aperçu des perspectives énergétiques mondiales d'ici 2050 . . . . .	9
1.2.1 Contexte énergétique global . . . . .	9
1.2.2 Impact écologique des énergies fossiles . . . . .	11
1.2.3 Développement durable des sources d'énergie . . . . .	13
1.3 Critères pour une production durable d'énergie nucléaire . . . . .	15
1.3.1 Utilisation optimale des ressources naturelles . . . . .	15
1.3.2 Minimisation des déchets . . . . .	17
1.3.3 Sûreté et non-prolifération . . . . .	20
<b>2 Présentation générale du concept de Réacteur à Sels Fondus (RSF)</b>	<b>23</b>
2.1 Rapide historique des études . . . . .	23
2.1.1 Les premiers travaux américains à l'ORNL . . . . .	23
a - Les réussites expérimentales . . . . .	23
b - Le projet MSBR . . . . .	25
2.1.2 Les projets ambitieux des années 1980 . . . . .	27
2.1.3 Plus de réalisme depuis les années 1990 . . . . .	28
2.2 Utilisation des sels fondus dans un réacteur nucléaire . . . . .	29
2.2.1 Caractéristiques physico-chimiques importantes . . . . .	29
2.2.2 Sels chlorures ou sels fluorures ? . . . . .	29
2.3 Principes d'un retraitement pyrochimique en ligne . . . . .	32
2.3.1 Etat de l'art des procédés de séparation . . . . .	32
2.3.2 Notions de pyrochimie pour l'extraction réductrice . . . . .	33
2.3.3 Le retraitement en ligne du projet MSBR . . . . .	35

<b>3</b>	<b>Principes et exemples d'utilisation des outils de simulation</b>	<b>39</b>
3.1	Utilisation du code Monte Carlo MCNP . . . . .	39
3.1.1	Présentation de la méthode Monte Carlo . . . . .	39
3.1.2	Dimensionnement d'un RSF à sels chlorures et cycle U/Pu . . . . .	41
3.2	Couplage de MCNP à un programme d'évolution . . . . .	47
3.2.1	Exploitation optimale des données . . . . .	48
3.2.2	Structure temporelle de l'intégration . . . . .	55
3.3	Exemples de résultats obtenus pour le RSF (U/Pu)Cl <sub>3</sub> . . . . .	63
3.3.1	Mises à l'équilibre . . . . .	63
3.3.2	Description neutronique de l'état d'équilibre . . . . .	63
3.3.3	Autres observables disponibles . . . . .	69
	a - Dommages dans les matériaux . . . . .	69
	b - Radiotoxicités induites . . . . .	70
	c - Coefficients de température . . . . .	71
3.4	<i>Le point sur</i> les outils de simulation développés . . . . .	72
<b>4</b>	<b>Réévaluation d'un projet de RSF surgénérateur en cycle thorium</b>	<b>73</b>
4.1	Dimensionnements préalables . . . . .	73
4.1.1	Neutronique . . . . .	73
	a - Choix des matériaux . . . . .	73
	b - Définition du système de référence . . . . .	76
	c - Encadrement des choix de référence . . . . .	82
4.1.2	Retraitement . . . . .	87
4.2	Mises à l'équilibre . . . . .	91
4.2.1	Produits de fission . . . . .	92
4.2.2	Actinides . . . . .	97
4.2.3	Surgénération . . . . .	104
4.3	Caractérisation de l'équilibre de référence . . . . .	108
4.3.1	Description neutronique de l'état d'équilibre . . . . .	108
4.3.2	Production de déchets . . . . .	114
	a - Radiotoxicités liées au cycle thorium . . . . .	114
	b - Tritium . . . . .	118
	c - Dégradation du graphite . . . . .	120
4.3.3	Coefficients de température . . . . .	124
4.4	<i>Le point sur</i> notre réévaluation du projet MSBR . . . . .	129

<b>5</b>	<b>Exploration des potentialités de la filière (Th/U)F<sub>4</sub></b>	<b>131</b>
5.1	Marges de manœuvre sur l'économie de neutrons . . . . .	131
5.1.1	Etude d'effets neutroniques favorables à la surgénération . . . . .	131
	a - Modification de la taille des canaux . . . . .	131
	b - Remplacement du BeF <sub>2</sub> par NaF . . . . .	140
	c - Réduction de la puissance totale . . . . .	144
5.1.2	Exploitation de la flexibilité du retraitement en ligne . . . . .	148
	a - Ajustement de la durée de retraitement $T$ . . . . .	148
	b - Suppression du stockage temporaire du protactinium extrait . . . . .	152
	c - Extraction continue du neptunium . . . . .	155
5.1.3	Exemples d'utilisation couplée des options étudiées . . . . .	158
5.2	Transmutation de produits de fission à vie longue . . . . .	161
5.2.1	Transmutation simultanée de l'iode et du technétium . . . . .	162
5.2.2	Remplacement du technétium par du thorium dans le graphite . . . . .	165
5.3	Apports du retraitement en ligne à la sûreté . . . . .	166
5.3.1	Contrôle de la réactivité . . . . .	166
5.3.2	Non-prolifération de l' <sup>233</sup> U . . . . .	172
5.4	<i>Le point sur</i> les éléments de flexibilité du RSF (Th/U)F <sub>4</sub> . . . . .	175
<b>6</b>	<b>Etude de transitions possibles vers la filière (Th/U)F<sub>4</sub></b>	<b>177</b>
6.1	Transition vers le cycle asymptotique <sup>232</sup> Th/ <sup>233</sup> U . . . . .	177
6.1.1	Utilisation du plutonium des combustibles REP usés . . . . .	177
	a - Transition Th/Pu → <sup>233</sup> U de référence . . . . .	177
	b - Sensibilité de la transition au type de plutonium utilisé . . . . .	183
6.1.2	Utilisation d'uranium enrichi à 33% en <sup>235</sup> U . . . . .	190
	a - Transition Th/ <sup>enr</sup> U → <sup>233</sup> U . . . . .	190
	b - Comparaison à la transition Th/Pu UOX 5 → <sup>233</sup> U . . . . .	191
6.2	Capacités incinératrices des RSF à sels fluorures . . . . .	195
6.2.1	Incinération de plutonium sur support fertile . . . . .	195
6.2.2	Incinération de fin de cycle sur support inerte . . . . .	201
	a - Arrêt de la filière REP actuelle . . . . .	201
	b - Arrêt de la filière RSF thorium . . . . .	207
6.3	Scénarios possibles de transition vers la filière (Th/U)F <sub>4</sub> . . . . .	212
6.3.1	Remplacement des REP actuels par des RSF . . . . .	212
6.3.2	Déploiement de RSF à partir des REP actuels . . . . .	216
6.3.3	Déploiement plus rapide de RSF basé sur des RNR . . . . .	218
6.4	<i>Le point sur</i> les modalités de transition vers la filière (Th/U)F <sub>4</sub> . . . . .	220

<b>Conclusion</b>	<b>223</b>
<b>Annexes</b>	<b>225</b>
<b>A Incinération d'actinides mineurs sur support inerte à sels chlorures</b>	<b>225</b>
A.1 Illustration du problème de l'accumulation du $^{238}\text{Pu}$ . . . . .	227
A.1.1 Augmentation rapide de la réactivité . . . . .	229
A.1.2 Compensation par un inventaire initial de plutonium . . . . .	231
A.2 Extraction en ligne du plutonium . . . . .	233
A.2.1 Mise à l'équilibre du plutonium en cœur . . . . .	233
A.2.2 Evaluation du bilan radiotoxique de la méthode . . . . .	235
<b>B Sensibilité aux données neutroniques du RSF (Th/U)F<sub>4</sub> de référence</b>	<b>237</b>
B.1 Incertitudes concernant les principaux noyaux lourds . . . . .	237
B.1.1 Modification de la section efficace de capture de l' $^{233}\text{U}$ . . . . .	237
B.1.2 Modification intégrale de la section efficace de capture du $^{232}\text{Th}$ . . . . .	239
B.2 Incertitudes concernant le modérateur graphite . . . . .	241
B.2.1 Modification de la section efficace de diffusion élastique . . . . .	241
B.2.2 Modification de la densité . . . . .	243
<b>Bibliographie</b>	<b>247</b>
<b>Table des figures</b>	<b>253</b>
<b>Liste des tableaux</b>	<b>261</b>

# Introduction

L'énergie nucléaire est aujourd'hui au cœur de débats politiques, centrés pour l'essentiel sur les déchets qu'elle génère. Basée sur l'utilisation d'uranium enrichi, elle s'accompagne en effet de rejets nocifs pour l'homme, en quantité suffisamment importante pour que se pose la question de leur gestion. Depuis une dizaine d'années, des études se concentrent en France sur l'aval du cycle électronucléaire, évaluant le recyclage des déchets dans les réacteurs électrogènes, leur incinération dans des réacteurs dédiés sous-critiques, ou leur stockage définitif.

Une approche complémentaire consiste à proposer des filières alternatives, minimisant la production de ces déchets. Cela implique d'étudier d'autres cycles du combustible, comme celui du thorium, et de rechercher les concepts de réacteurs et de combustibles les mieux adaptés à ces cycles. Les solutions sont multiples, et il est commode, pour les hiérarchiser, d'envisager une contribution significative du nucléaire pour répondre à l'augmentation importante des besoins énergétiques mondiaux dans les prochaines décennies. Dans cette optique, la contrainte d'utilisation optimale des ressources naturelles s'ajoute à l'objectif de minimisation des déchets.

Nous placerons donc tout d'abord la gestion des déchets nucléaires dans la perspective plus générale du problème mondial de l'énergie. En définissant les principaux critères d'évaluation d'une filière innovante pour une production durable d'énergie nucléaire, nous remarquerons que le cycle thorium en spectre thermique est a priori le plus intéressant.

Le deuxième chapitre est consacré à la présentation du concept de réacteur à sels fondus, basé sur l'utilisation d'un combustible liquide mobile. Un aperçu historique des études réalisées montrera qu'une telle particularité présente de nombreux avantages, parmi lesquels le retraitement en ligne du combustible est le principal. Dans le projet MSBR (Molten Salt Breeder Reactor) proposé aux Etats-Unis dès la fin des années 1960, la surgénération pourtant délicate en cycle thorium et spectre thermique est ainsi rendue possible par un retraitement en ligne adapté. Ce projet offre une solution pratique d'utilisation du thorium en spectre thermique, et nous le retenons comme point de départ de notre travail d'évaluation du concept de réacteur à sels fondus selon les critères définis au premier chapitre. Nous présenterons les principes des procédés pyrochimiques étudiés actuellement et pouvant servir au retraitement en ligne d'un réacteur à sels fondus, en donnant l'exemple de celui prévu par le projet MSBR.

La simulation de tels réacteurs demande de tenir compte de leurs caractéristiques originales, à commencer par le retraitement en ligne. Nous avons mis au point à cet effet une méthode de simulation basée sur le couplage du code Monte Carlo MCNP et d'un programme calculant l'évolution des caractéristiques physiques du réacteur étudié, comme par exemple la composition de son combustible et des rejets liés au retraitement. La description de cette méthode, illustrée par l'étude sommaire d'un réacteur rapide à sels fondus, fait l'objet du chapitre 3.

Devant l'intérêt présenté par le cycle thorium en spectre thermique, nous avons dans un premier temps entrepris de réévaluer le système proposé par le projet MSBR. Le but n'est pas seulement de vérifier les résultats de l'époque, à l'aide des données nucléaires actuelles et de nos outils de simulation. Il s'agit également de se réappropriier la compréhension du fonctionnement de ce réacteur, en définissant un système de référence qui nous servira de "témoin" dans la suite. Nous exposerons dans le chapitre 4 les résultats de la simulation de ce système, démarré avec un combustible  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ . Une étude détaillée de sa mise à l'équilibre nous permettra de justifier nos choix de référence. Nous décrirons enfin l'équilibre obtenu, notamment en termes de performances surgénératrices et de radiotoxicités induites.

A partir du fonctionnement de référence, nous pourrons explorer dans le chapitre 5 les différentes potentialités offertes par ce concept, à l'instar des études déjà menées par EDF dans le cadre du projet AMSTER. La bonne économie de neutrons du système de référence nous incitera d'abord à évaluer sa sensibilité à diverses options, basées sur des modifications du cœur ou du retraitement en ligne. Outre la surgénération, nous verrons qu'elle autorise la transmutation de certains produits de fission à vie longue.

Les avantages cumulés du cycle thorium et du spectre thermique en réacteur à sels fondus nous amèneront à étudier précisément dans le dernier chapitre les possibilités de démarrer cette filière, dont le noyau fissile principal ( $^{233}\text{U}$ ) n'existe pas à l'état naturel. Nous comparerons pour cela la faisabilité de démarrages basés sur l'utilisation d'uranium enrichi ou de plutonium issu des combustibles usés disponibles. Après avoir déterminé dans quelle mesure les capacités incinératrices de ces systèmes sont satisfaisantes, nous pourrons finalement proposer des scénarios de transition à la filière thorium, selon différents niveaux de déploiement requis.



# Chapitre 1

## Gestion des déchets nucléaires et développement durable

Ce travail s'inscrit dans le cadre des recherches menées en France depuis plus d'une dizaine d'années sur la production d'énergie nucléaire et la gestion des déchets générés par cette industrie. Mais l'étude approfondie du concept innovant de réacteur à sels fondus participe inévitablement d'une réflexion sur le rôle futur de l'énergie nucléaire. En donnant un aperçu de la situation énergétique mondiale et de son évolution dans les prochaines décennies, nous allons montrer que le problème de la gestion des déchets actuels s'intègre à la question plus globale de l'énergie. De ce contexte, nous pourrons alors dégager les principaux critères avec lesquels il est utile d'évaluer les potentialités offertes par les réacteurs à sels fondus.

### 1.1 Le problème actuel de la gestion des déchets nucléaires

#### 1.1.1 L'énergie nucléaire aujourd'hui

Actuellement, le parc nucléaire mondial totalise une puissance électrique d'environ 360 GWe, dont presque 90% sont installés dans les pays de l'OCDE. La France est, derrière les Etats-Unis et devant le Japon, le second producteur mondial d'électricité d'origine nucléaire, avec un parc de Réacteurs à Eau Pressurisée (REP) d'environ 60 GWe. Le type REP, utilisant de l'eau ordinaire comme modérateur et caloporteur, est le plus répandu dans le monde, avec 64% de la puissance installée totale [1]. Viennent ensuite avec 23% du total les Réacteurs à Eau Bouillante, dans lesquels, à la différence des REP, l'ébullition de l'eau est atteinte lors de la traversée du cœur. Le troisième type le plus répandu (6% du total) utilise de l'eau lourde, avec deux circuits séparés pour le modérateur et le caloporteur (concept canadien CANDU).

Mis à part le CANDU qui peut fonctionner avec de l'uranium naturel, tous ces réacteurs sont basés sur l'utilisation d'uranium enrichi de 3.5 à 4% en  $^{235}\text{U}$ , sous forme d'oxydes (combustible

UOX). L'appauvrissement du combustible en matière fissile et l'empoisonnement causé par les produits de fission neutrophages imposent des déchargements réguliers, effectués par tiers chaque année dans un REP. Le tableau 1.1 fournit le bilan matière d'une année de fonctionnement d'un REP pour une puissance de 1 GWe.

	masse initiale (kg)	masse finale (kg)
$^{235}\text{U}$	954	280
$^{236}\text{U}$	-	111
$^{238}\text{U}$	26328	25655
$^{239}\text{Pu}$	-	156
total plutonium	-	266
actinides mineurs	-	20
PF à vie longue	-	63
total PF	-	946

TAB. 1.1 – Inventaire d'un REP au démarrage et après un an de fonctionnement à 1 GWe [2].

Sont considérés comme déchets les produits de fission, parmi lesquels les noyaux de demi-vie supérieure à 30 ans sont tout particulièrement gênants. Mais c'est avant tout l'accumulation des stocks de plutonium, et dans une moindre mesure d'actinides mineurs (neptunium, américium et curium), qui est la plus préoccupante, du fait de la nocivité de ces éléments pour l'homme. Une solution consiste en l'enfouissement de ces déchets, tel qu'il est prévu aux Etats-Unis dans le centre de stockage souterrain de Yucca Mountain. Mais cela n'est envisageable que dans l'hypothèse d'un arrêt progressif de la filière actuelle d'ici une vingtaine d'années. Dans le cas de la poursuite, voire du déploiement, d'un cycle REP ouvert, le stockage définitif des déchets deviendrait irréaliste, du fait de l'importance des volumes à gérer.

Il ne reste alors comme solution que de procéder au retraitement des éléments les plus nocifs afin de les recycler au mieux, et de limiter ainsi leur accumulation. Seuls quelques pays, comme la France à l'usine COGEMA de La Hague, pratiquent d'ores et déjà ce type de retraitement pour le plutonium. Destinées à l'origine à la fabrication du combustible de Réacteurs à Neutrons Rapides surgénérateurs en cycle uranium, dont Superphénix fut le prototype, des techniques de retraitement permettent de recycler en REP une partie du plutonium sous la forme d'un combustible mixte uranium-plutonium (combustible MOX). Pour des raisons de sûreté et de conception des centrales, le chargement d'un REP est limité à 30% de combustible MOX, pour une teneur en plutonium de 8% environ. Un tel recyclage ne concerne qu'un tiers environ des réacteurs français, et permettrait tout au plus de stabiliser le stock de plutonium s'il était généralisé à l'ensemble du parc. Il est donc clair que la filière actuelle ne peut gérer seule ses propres déchets avec toute l'efficacité requise, et que d'autres moyens doivent être étudiés.

### 1.1.2 Etudes pour l’aval du cycle électronucléaire

C’est dans ce contexte que la loi du 30 décembre 1991 fixe le cadre français des études concernant la gestion des déchets nucléaires. Deux principaux axes de recherche sont définis; le stockage (provisoire, ou en formations géologiques profondes) et la transformation (incinération par fission, ou transmutation par capture) des déchets. Le premier axe est traité par les groupements de recherche PRACTIS (Physico-chimie des aCTInides et autres RADioéléments en Solutions et aux interfaces) et NOMADE (NOUveaux MATériaux pour DEchets). Le groupement de recherche GEDEON (GEstion des DEchets par des Options Nouvelles) entre le CEA, le CNRS, EDF et Framatome, a pour mission d’examiner toute solution innovante permettant de réduire la production de déchets. GEDEON évalue ainsi notamment les potentialités des réacteurs hybrides (réacteurs sous-critiques pilotés par accélérateur) pour l’incinération des transuraniens, ou la transmutation des produits de fission à vie longue.

GEDEON envisage également de nouveaux cycles du combustible, suite au constat des limites de la voie incinératrice. Pour illustrer ce constat, considérons le cas des Etats-Unis, où le problème de l’accumulation du plutonium est surtout perçu comme un risque de prolifération d’une matière fissile utilisable à des fins militaires. Dans le cadre du programme ATW (Accelerator-driven Transmutation of Waste), un scénario préconise l’utilisation de systèmes sous-critiques perfectionnés pour l’incinération du stock de plutonium américain en une centaine d’années, avant l’arrêt définitif de la filière REP [3]. Cet exemple montre bien que l’incinération exclusive des déchets de la filière actuelle ne constitue pas une solution réaliste, tant techniquement qu’économiquement parlant. Pour cette raison, des études se sont récemment concentrées sur l’amont du cycle du combustible, partant implicitement du principe que la meilleure façon de gérer les déchets est d’en produire le moins possible. L’utilisation du thorium comme combustible est ainsi étudiée dans divers systèmes innovants afin de produire de l’énergie tout en minimisant les rejets, et en offrant accessoirement des possibilités d’incinération. Cette nouvelle approche, consistant à rechercher des solutions durables aux problèmes du nucléaire actuel, résulte en partie d’une prise de conscience de la question mondiale de l’énergie.

## 1.2 Aperçu des perspectives énergétiques mondiales d’ici 2050

### 1.2.1 Contexte énergétique global

Rappelons dans un premier temps les différentes contributions à la production mondiale d’énergie primaire (énergie produite avant toute transformation, en électricité par exemple). Le tableau 1.2 compare la situation actuelle à celle de 1973, date du premier choc pétrolier. La production est largement dominée par les énergies dites “fossiles”, avec une légère diminution du pétrole et du charbon au profit du gaz. La part des sources d’énergies dites traditionnelles,

source d'énergie	1973		1999	
	Gtep	%	Gtep	%
pétrole	2.72	45.0	3.39	35.0
charbon	1.50	24.9	2.28	23.5
gaz	0.98	16.2	2.01	20.7
traditionnel	0.67	11.1	1.08	11.1
hydraulique	0.11	1.8	0.22	2.3
nucléaire	0.05	0.9	0.66	6.8
renouvelables	0.01	0.1	0.06	0.6
total	6.04	100.0	9.70	100.0

TAB. 1.2 – Evolution de la production annuelle d'énergie primaire en milliards de “tonnes équivalent pétrole” (Gtep), au cours des trente dernières années [4].

basées sur l'exploitation de la biomasse (bois essentiellement), est restée constante. Les autres sources, plus récentes, totalisent aujourd'hui à peine 10% de la production totale. La part de l'hydraulique a peu augmenté, du fait de la saturation du potentiel naturel. Les énergies nucléaire et renouvelables (géothermie, solaire et éolien) ont fortement progressé, même si leur production reste faible. Outre la concurrence des énergies fossiles bon marché, les principaux obstacles à un développement plus important de ces sources d'avenir sont pour le nucléaire un cycle du combustible inadapté, et pour les énergies renouvelables des coûts de revient encore peu compétitifs. Elles présentent néanmoins une complémentarité intéressante, dans la mesure où le nucléaire peut assurer l'approvisionnement massif de villes, tandis que les énergies renouvelables permettent une production répartie sur des régions vastes ou isolées, encouragée par le recours possible à l'hydrogène comme vecteur d'énergie sur de grandes distances.

source d'énergie	Gtep	années
pétrole	150	40
charbon	430	190
gaz	130	60
nucléaire	80	120

TAB. 1.3 – Réserves en Gtep [5], et en années d'exploitation au taux actuel de consommation.

Les combustibles fossiles, tout comme l'uranium tel qu'il est utilisé pour le moment dans les centrales nucléaires, sont extraits de gisements naturels limités. Le tableau 1.3 exprime les réserves évaluées pour chaque source d'énergie en nombre d'années d'exploitation, aux taux de

consommation et coûts d'extraction actuels. L'extraction de l'uranium de l'eau de mer, possible moyennant une augmentation de 50% du prix de l'électricité, n'est pas prise en compte ici. Cette limitation des réserves devient réellement préoccupante lorsqu'on tient compte de l'augmentation importante de la demande totale en énergie prévue pour les prochaines décennies, diminuant d'autant le nombre d'années d'exploitation restantes.

### 1.2.2 Impact écologique des énergies fossiles

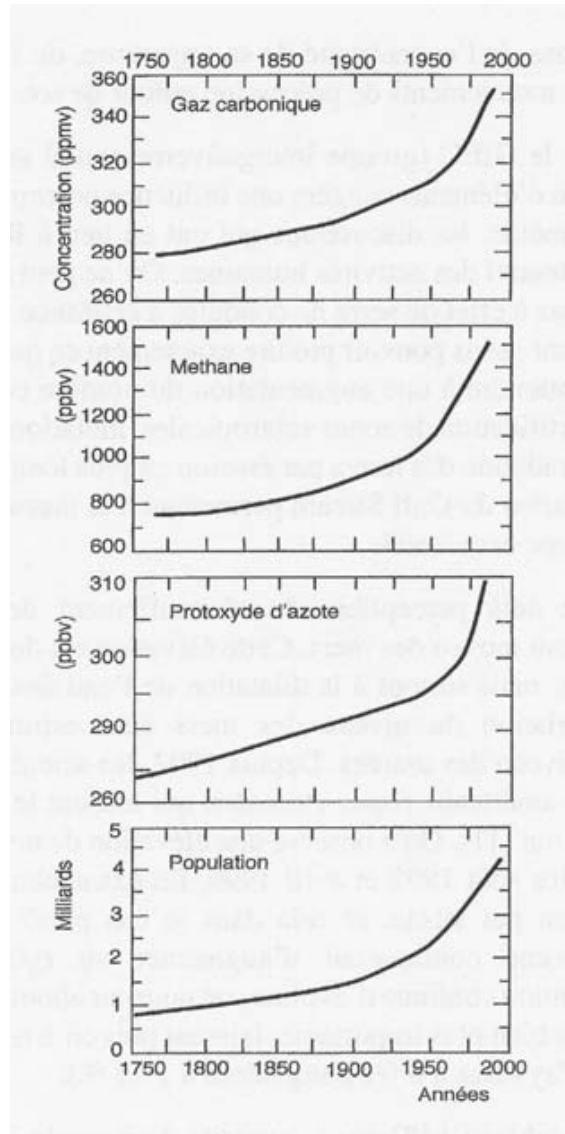


FIG. 1.1 – Evolution de la concentration atmosphérique des principaux gaz à effet de serre ( $CO_2$  en parts par million en volume, méthane et protoxyde d'azote en parts par milliard en volume) au cours des deux derniers siècles, comparée à celle de la population mondiale [6].

Dans la comparaison de l'énergie nucléaire aux énergies fossiles, l'autonomie n'est pas le seul critère; il faut également tenir compte des déchets inévitablement produits. Nous avons déjà vu que ceux de la filière REP sont pour l'essentiel concentrés dans les combustibles usés, stockés ou retraités. Au contraire, les déchets issus des combustibles fossiles sont gazeux et s'échappent dans l'atmosphère, ne posant ainsi aucun problème de gestion. Cependant, depuis la fin des années 1950, la concentration de  $\text{CO}_2$ , principal gaz émis par les énergies fossiles, est régulièrement mesurée. Cela a permis de constater que cette concentration augmente régulièrement. Des mesures des concentrations antérieures ont alors été réalisées par analyse des bulles d'air piégées dans les glaces arctiques, et ont permis de retracer son évolution au cours des 400 000 dernières années. Sur cette période, avant le début de l'ère industrielle, la concentration de  $\text{CO}_2$  n'a jamais dépassé la valeur de 280 ppmv. La figure 1.1 montre qu'au cours des deux derniers siècles, cette valeur a largement été dépassée pour atteindre 370 ppmv aujourd'hui, avec un taux d'accumulation de 1.5 ppmv/an. Cette accumulation de  $\text{CO}_2$  dans l'atmosphère résulte indéniablement de l'intensification des rejets industriels.

Parallèlement à l'accumulation du  $\text{CO}_2$  a été constaté un phénomène climatologique de "réchauffement global", se traduisant par une augmentation de la température moyenne à la surface de la planète. Depuis peu, un consensus s'établit parmi les spécialistes du climat pour reconnaître que le  $\text{CO}_2$  émis par l'homme est le principal responsable de ce réchauffement. L'explication donnée est que ce  $\text{CO}_2$  renforce le phénomène naturel d'effet de serre, qui consiste à piéger dans l'atmosphère une partie du rayonnement solaire réémis sous forme d'infrarouges. Sans cet effet, dont la vapeur d'eau contribue à hauteur de 70%, la température moyenne à la surface du globe serait d'environ  $-20\text{ }^\circ\text{C}$ . Le  $\text{CO}_2$ , le méthane et le protoxyde d'azote absorbent bien le rayonnement infrarouge réémis par la surface; ils sont appelés "gaz à effet de serre". Depuis quelques dizaines d'années, leur accumulation dans l'atmosphère est suffisante pour expliquer le réchauffement global par un renforcement anthropique de l'effet de serre, auquel le seul  $\text{CO}_2$  contribue à plus de 60%. La figure 1.2 montre que le réchauffement climatique s'est réellement manifesté à partir de la fin des années 1970. Auparavant, la contribution positive des gaz à effet de serre semble avoir été en partie compensée par l'émission importante et aujourd'hui réduite d'aérosols (fines gouttelettes de sulfates et de nitrates), dont l'effet est "réfrigérant".

D'ici la fin du siècle, l'augmentation moyenne de température prévue est comprise entre  $+1$  et  $+7\text{ }^\circ\text{C}$ , selon les modèles et les scénarios retenus. Cette augmentation globale s'accompagnerait de différences locales plus fortes, avec même des régions se refroidissant. Dans tous les cas, ces changements climatiques entraîneraient des conséquences graves pour l'homme, du fait de la concentration des populations et des infrastructures modernes. C'est la raison pour laquelle, en vertu du principe de précaution, des négociations internationales ont fixé comme objectif la stabilisation de la concentration de  $\text{CO}_2$  à 500 ppmv, soit un peu moins de deux fois le niveau pré-industriel. Le problème est que l'évolution de la concentration des gaz à effet de serre dans

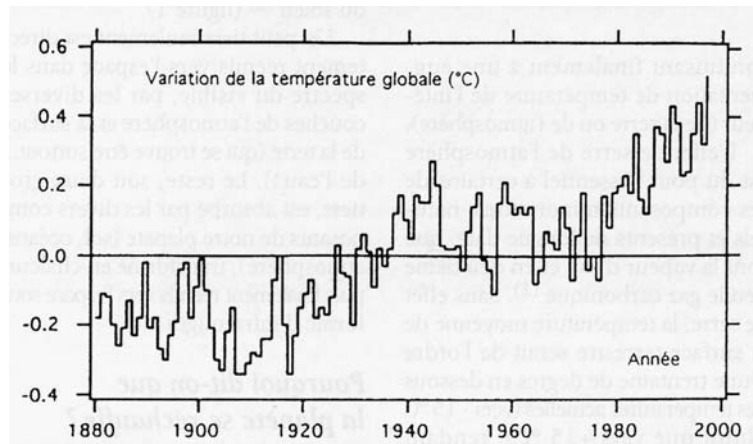


FIG. 1.2 – Variations de la température moyenne globale entre 1880 et 2000, ramenées à la moyenne sur cette période [7].

l’atmosphère présente une inertie considérable, sur des temps de plusieurs dizaines d’années. Le protocole de Kyoto de 1997 donne ainsi l’objectif d’une réduction de 5% d’ici 2010 des émissions de gaz à effet de serre par rapport à leur niveau de 1990.

### 1.2.3 Développement durable des sources d’énergie

La récente prise de conscience de la dimension écologique de la question de l’énergie s’inscrit dans un mouvement plus général, organisé autour de la notion de “développement durable”. Un rapport de l’ONU le définit dès 1987 comme un “développement qui répond aux besoins du présent sans compromettre la capacité des générations futures de répondre aux leurs” [8]. L’objectif principal est ainsi de préserver voire d’accroître l’ensemble des actifs naturels, produits, humains et sociaux, tout en assurant une certaine équité dans leur partage entre les individus, entre les pays et entre les générations. Dans le domaine de l’énergie, il implique en pratique une évaluation comparative objective des différentes options possibles tenant compte des aspects économiques, environnementaux et sociaux, tant à l’échelle locale qu’à l’échelle mondiale. Ces évaluations sont régulièrement discutées lors de sommets mondiaux, depuis celui de Rio en 1992 jusqu’au dernier tenu à Johannesburg cette année. Dans cette optique, une modification significative des modes de production d’énergie apparaît nécessaire d’ici 2050. Il s’agit notamment de réduire la contribution des énergies fossiles au profit des énergies renouvelables et du nucléaire, en exploitant au mieux la complémentarité de ces dernières.

Selon les appréciations et les intérêts des évaluateurs, il existe de nombreuses variantes proposées pour l’évolution des contributions de chaque source d’énergie. Ainsi, les scénarios “pétroliers” ne concèdent qu’une diminution minimale de la part des énergies fossiles, maintenue à 60% en 2050 [9]. D’autres scénarios exploitent au maximum les possibilités d’économie d’énergie (scé-

nario Noé du CNRS). Afin de dégager quelques tendances globales moyennes, nous proposons de nous baser sur les évaluations plus complètes de l'IIASA (International Institute for Applied System Analysis), distinguant plusieurs types de scénarios selon des impératifs différents de croissance ou d'écologie [10]. Il ressort de l'ensemble de ces scénarios que la part du nucléaire est amenée à augmenter pour satisfaire de 20 à 40% des besoins mondiaux en énergie primaire en 2050. Nous considérons dans la suite un facteur multiplicatif moyen de 4 pour la part du nucléaire d'ici 2050, sachant qu'elle s'élève actuellement à un peu moins de 7%. Cette hypothèse d'augmentation moyenne de la part du nucléaire est par ailleurs en accord avec l'extrapolation de l'évolution des parts de marché, suivie depuis le début de l'ère industrielle dans l'étude de C. Marchetti de l'IIASA et représentée par la figure 1.3. La variable  $F$  exprimée en pourcents pour chaque source d'énergie est sa part de marché, qui tient compte de la concurrence des autres options possibles. Un modèle simple, dit "diffusif", permet d'extrapoler ces évolutions jusqu'en 2050. On constate, outre la diminution de la part de marché du pétrole puis du gaz, une nette augmentation de la contribution du nucléaire, secondé par les énergies renouvelables ou futuristes comme la fusion ("Solfus").

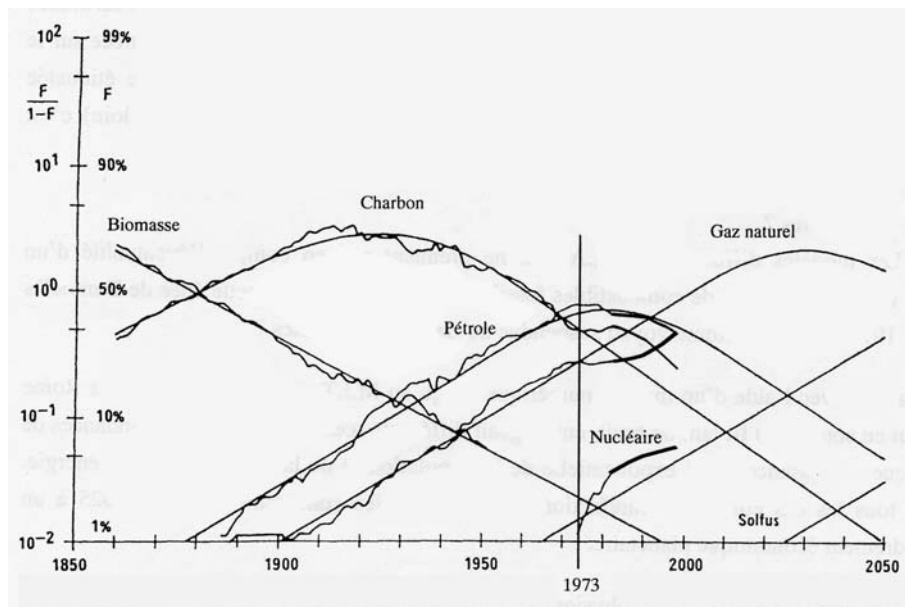


FIG. 1.3 – Evolution des parts de marché de l'énergie [6]. Les courbes lisses représentent les prévisions du modèle utilisé, et les lignes brisées l'évolution réelle.

Pour obtenir un facteur moyen d'augmentation totale de la puissance nucléaire installée, il reste à évaluer l'augmentation totale de la demande énergétique mondiale. Selon les évaluations, cette dernière augmente d'un facteur compris entre 2 et 3 d'ici 2050. Nous supposons donc dans la suite que la demande énergétique mondiale  $E$  sera multipliée par un facteur moyen de 2.5 au cours des cinquante prochaines années. Remarquons que ce taux d'augmentation

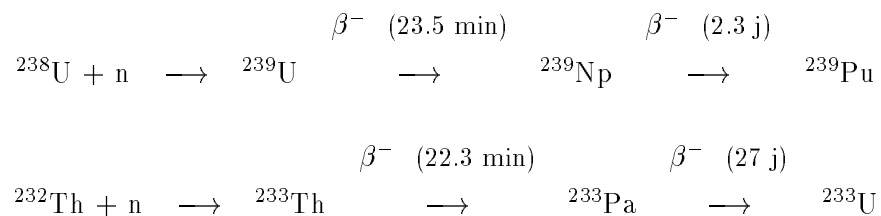


est le même que celui observé au cours du dernier quart de siècle, et qu'il tient compte de façon significative des économies d'énergie, possibles à hauteur de 50%. D'après les évaluations précédentes, la puissance nucléaire installée mondiale est donc appelée à être multipliée par un facteur caractéristique de  $4 \times 2.5 = 10$ , que nous conserverons comme hypothèse de travail dans toute la suite. Si cette prévision se vérifie, il convient de disposer de systèmes nucléaires de production d'énergie conformes aux directives du développement durable. Ces dernières se traduisent en critères que nous allons énoncer, et qui permettront d'évaluer différentes formes du concept de réacteur à sels fondus.

## 1.3 Critères pour une production durable d'énergie nucléaire

### 1.3.1 Utilisation optimale des ressources naturelles

Un premier critère de "sobriété" concerne l'utilisation des ressources naturelles, à savoir l'uranium et le thorium. Cette sobriété implique la régénération des noyaux fissiles ( $^{239}\text{Pu}$  et  $^{233}\text{U}$ ) par capture neutronique sur les noyaux fertiles (respectivement  $^{238}\text{U}$  et  $^{232}\text{Th}$ ) :



A tout instant pour un réacteur basé sur un des deux cycles précédents, on peut définir le taux de régénération  $\tau$ , qui rapporte la quantité de matière fissile régénérée à la quantité consommée dans le même temps par absorption neutronique (fission et capture). Dans le cas du cycle uranium, ce taux est le simple rapport du taux de capture de l' $^{238}\text{U}$  sur le taux d'absorption du  $^{239}\text{Pu}$ , du fait des décroissances rapides de l' $^{239}\text{U}$  et du  $^{239}\text{Np}$ . Dans le cas du cycle thorium, la demi-vie du  $^{233}\text{Pa}$  est suffisamment longue pour lui permettre de capturer un neutron avant de décroître en  $^{233}\text{U}$ . Le taux de capture du  $^{232}\text{Th}$  est donc diminué du taux de capture du  $^{233}\text{Pa}$ , avant d'être divisé par le taux d'absorption de l' $^{233}\text{U}$  pour obtenir son taux de régénération.

Si le taux de régénération  $\tau$  est égal à 1, le réacteur est dit régénérateur; il consomme autant de matière fissile qu'il en régénère. Les réserves d'uranium et de thorium exploitées dans ce mode permettraient chacune plus de 10 000 ans de production d'énergie au taux actuel [6]. Si  $\tau < 1$ , le réacteur est dit sous-générateur et nécessite un apport extérieur de matière fissile pour fonctionner. Si  $\tau > 1$ , le réacteur est dit surgénérateur, et produit de la matière fissile pouvant être utilisée pour démarrer d'autres réacteurs. Le temps nécessaire à un tel réacteur pour en démarrer un nouveau est appelé temps de doublement.

En cycle uranium comme en cycle thorium, la régénération dépend fortement du spectre en énergie des neutrons dans le réacteur. Pour s'en convaincre, raisonnons sur une fission dans un réacteur critique et déterminons le nombre moyen  $N_d$  de neutrons restants une fois la régénération assurée. La fission considérée produit  $\nu$  neutrons, dont  $1+\alpha$  sont utilisés pour provoquer une nouvelle fission et entretenir ainsi la réaction en chaîne,  $\alpha$  étant le rapport de la section efficace de capture du noyau fissile sur sa section efficace de fission. Pour régénérer les  $1+\alpha$  noyaux fissiles ainsi consommés, il faut que le noyau fertile capture  $1+\alpha$  neutrons. Il reste donc une fois cette condition de régénération remplie  $N_d = \nu - 2(1+\alpha)$  neutrons disponibles, destinés aux inévitables pertes (captures stériles et fuites) et à la surgénération (captures supplémentaires dans le noyau fertile). Ce raisonnement se généralise pour toute valeur du facteur de multiplication effectif  $k_{eff}$  du réacteur considéré en écrivant que pour une fission :

$$k_{eff} = \frac{\nu}{2(1+\alpha) + N_d} \quad (1.1)$$

A partir de la formule 1.1, on évalue le nombre  $N_d$  pour les cycles uranium et thorium en spectre rapide ou thermique, pour deux valeurs de  $k_{eff}$  [11]. Le tableau 1.4 regroupe ces résultats qui ne sont qu'indicatifs, car ils supposent que seul le noyau fissile principal de chaque cycle contribue à la fission, alors qu'une partie des fissions est assurée par le noyau fertile et des noyaux fissiles produits par captures successives. Rappelons que le taux de pertes moyen, généralement compris entre 0.2 et 0.3 neutron par fission, n'est pas décompté du nombre  $N_d$ .

type de spectre	rapide		thermique	
$k_{eff}$	1.00	0.95	1.00	0.95
cycle $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$	0.4	0.6	-0.3	-0.2
cycle $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$	0.3	0.4	0.3	0.4

TAB. 1.4 – Approximation du nombre  $N_d$  de neutrons disponibles par fission pour les pertes et la surgénération selon le combustible, le type de spectre et le  $k_{eff}$ .

Dans tous les cas, la sous-criticité équivaut à un apport extérieur de neutrons, favorable à l'économie de neutrons. Cet apport est toutefois insuffisant pour le cycle uranium en spectre thermique, qui est largement sous-générateur. La surgénération n'est ainsi possible qu'avec un spectre rapide en cycle uranium, alors qu'elle l'est avec les deux types de spectre en cycle thorium, avec toutefois une marge neutronique plus serrée. Ces valeurs s'expliquent par la dépendance du nombre  $N_d$  avec l'énergie, représentée pour le  $^{239}\text{Pu}$  et l' $^{233}\text{U}$  sur la figure 1.4.

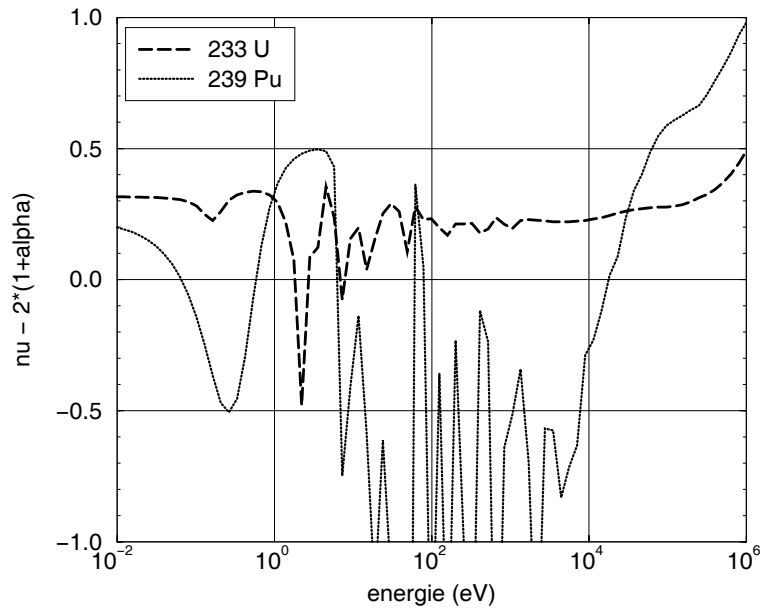


FIG. 1.4 – Evolution pour  $^{233}\text{U}$  et le  $^{239}\text{Pu}$  du nombre  $N_d(E) = \nu(E) - 2(1 + \alpha(E))$ .

### 1.3.2 Minimisation des déchets

Il s’agit également de minimiser la quantité et la nocivité des déchets produits, ce qui se traduit par un second critère, dit de “propreté”. Un premier indicateur possible est le “facteur de puissance”, exprimé en W/Ci, qui donne la puissance associée à la désintégration d’un noyau radioactif. Une autre grandeur tenant mieux compte de la nocivité des rayonnements émis est la radiotoxicité par ingestion, dont le calcul précis est expliqué au chapitre 3. La radiotoxicité d’un noyau est proportionnelle à sa constante de désintégration. La constante de proportionnalité, appelée facteur de dose et exprimée en Sv/Bq, dépend de la nocivité du rayonnement émis pour les tissus humains dans le cas d’une ingestion du noyau radioactif. Le Sievert (Sv) correspond au dépôt d’une énergie de 1 J/kg par des photons, quelle que soit leur énergie. A titre de comparaison, la même énergie déposée par des neutrons de 1 MeV est plus nocive pour l’organisme et correspond à une radiotoxicité de 20 Sv.

Le tableau 1.5 fournit les deux indicateurs de nocivité évoqués pour les produits de fission à vie longue ou moyenne et les actinides. Les facteurs de dose sont ceux indiqués par la publication 76 de la Commission Internationale de Protection Radiologique [12]. On remarque qu’à facteur de puissance comparable, les isotopes du plutonium ont un facteur de dose environ 5 fois plus élevé que les isotopes de l’uranium, ce qui explique que le plutonium contribue à plus de 90% de la radiotoxicité des actinides rejetés par la filière REP. A partir des ces facteurs de dose, il est possible de calculer l’évolution de la radiotoxicité d’un stock de noyaux.

Noyau	Demi-vie	Facteur de puissance (W/Ci)	Facteur de dose (Sv/Bq)
<sup>79</sup> Se	6.5 10 <sup>4</sup> ans	3.1 10 <sup>-4</sup>	2.3 10 <sup>-9</sup>
<sup>90</sup> Sr	28.8 ans	1.2 10 <sup>-3</sup>	3.9 10 <sup>-8</sup>
<sup>93</sup> Zr	1.5 10 <sup>6</sup> ans	2.9 10 <sup>-4</sup>	4.2 10 <sup>-10</sup>
<sup>99</sup> Tc	2.1 10 <sup>5</sup> ans	5.0 10 <sup>-4</sup>	3.4 10 <sup>-10</sup>
<sup>107</sup> Pd	6.5 10 <sup>6</sup> ans	5.5 10 <sup>-5</sup>	3.7 10 <sup>-11</sup>
<sup>126</sup> Sn	1.0 10 <sup>5</sup> ans	1.1 10 <sup>-3</sup>	5.1 10 <sup>-9</sup>
<sup>129</sup> I	1.6 10 <sup>7</sup> ans	4.8 10 <sup>-4</sup>	7.4 10 <sup>-8</sup>
<sup>135</sup> Cs	2.3 10 <sup>6</sup> ans	3.3 10 <sup>-4</sup>	1.9 10 <sup>-9</sup>
<sup>137</sup> Cs	30.1 ans	1.0 10 <sup>-3</sup>	1.4 10 <sup>-8</sup>
<sup>151</sup> Sm	90 ans	7.4 10 <sup>-4</sup>	9.1 10 <sup>-11</sup>
<sup>232</sup> Th	1.4 10 <sup>10</sup> ans	2.4 10 <sup>-2</sup>	2.3 10 <sup>-7</sup>
<sup>231</sup> Pa	3.3 10 <sup>4</sup> ans	3.0 10 <sup>-2</sup>	7.1 10 <sup>-7</sup>
<sup>233</sup> Pa	27.0 jours	2.4 10 <sup>-3</sup>	8.8 10 <sup>-10</sup>
<sup>232</sup> U	68.9 ans	3.2 10 <sup>-2</sup>	2.9 10 <sup>-7</sup>
<sup>233</sup> U	1.6 10 <sup>5</sup> ans	2.9 10 <sup>-2</sup>	5.0 10 <sup>-8</sup>
<sup>234</sup> U	2.5 10 <sup>5</sup> ans	2.8 10 <sup>-2</sup>	4.9 10 <sup>-8</sup>
<sup>235</sup> U	7.0 10 <sup>8</sup> ans	2.7 10 <sup>-2</sup>	4.6 10 <sup>-8</sup>
<sup>236</sup> U	2.3 10 <sup>7</sup> ans	2.7 10 <sup>-2</sup>	4.6 10 <sup>-8</sup>
<sup>238</sup> U	4.5 10 <sup>9</sup> ans	2.5 10 <sup>-2</sup>	4.4 10 <sup>-8</sup>
<sup>237</sup> Np	2.1 10 <sup>6</sup> ans	2.9 10 <sup>-2</sup>	1.1 10 <sup>-7</sup>
<sup>238</sup> Pu	87.7 ans	3.3 10 <sup>-2</sup>	2.3 10 <sup>-7</sup>
<sup>239</sup> Pu	2.4 10 <sup>4</sup> ans	3.0 10 <sup>-2</sup>	2.5 10 <sup>-7</sup>
<sup>240</sup> Pu	6.6 10 <sup>3</sup> ans	3.1 10 <sup>-2</sup>	2.5 10 <sup>-7</sup>
<sup>241</sup> Pu	14.4 ans	7.2 10 <sup>-5</sup>	4.7 10 <sup>-9</sup>
<sup>242</sup> Pu	3.7 10 <sup>5</sup> ans	2.9 10 <sup>-2</sup>	2.4 10 <sup>-7</sup>
<sup>241</sup> Am	432 ans	3.3 10 <sup>-2</sup>	2.0 10 <sup>-7</sup>
<sup>242m</sup> Am	141 ans	1.2 10 <sup>-3</sup>	1.9 10 <sup>-7</sup>
<sup>243</sup> Am	7.4 10 <sup>3</sup> ans	3.2 10 <sup>-2</sup>	2.0 10 <sup>-7</sup>
<sup>242</sup> Cm	163 jours	3.6 10 <sup>-2</sup>	1.3 10 <sup>-8</sup>
<sup>243</sup> Cm	29.1 ans	3.6 10 <sup>-2</sup>	2.0 10 <sup>-7</sup>
<sup>244</sup> Cm	18.1 ans	3.4 10 <sup>-2</sup>	1.6 10 <sup>-7</sup>
<sup>245</sup> Cm	8.5 10 <sup>3</sup> ans	3.3 10 <sup>-2</sup>	3.0 10 <sup>-7</sup>
<sup>246</sup> Cm	4.7 10 <sup>3</sup> ans	3.2 10 <sup>-2</sup>	2.9 10 <sup>-7</sup>

TAB. 1.5 – *Demi-vie et nocivités (puissance dégagée et radiotoxicité par ingestion [12]) des principaux produits de fission (vie longue ou moyenne) et actinides produits en réacteur.*

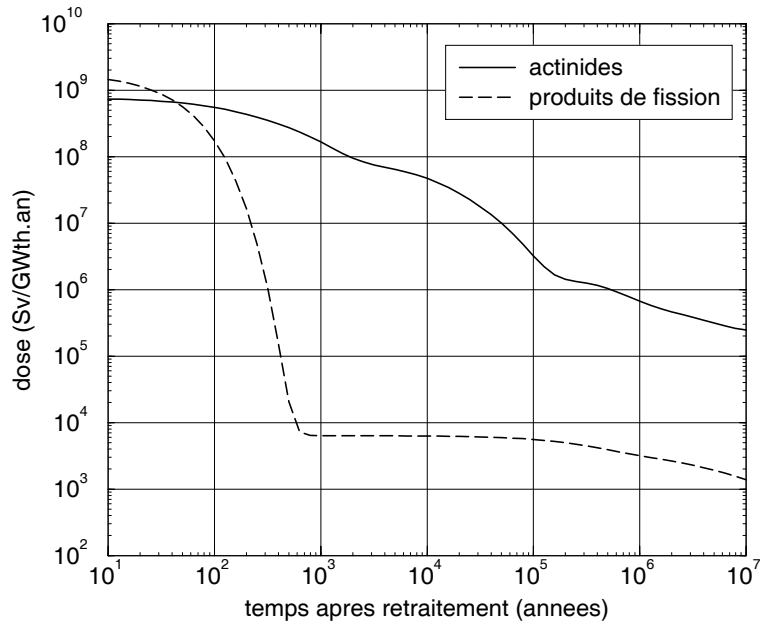


FIG. 1.5 – Evolution de la radiotoxicité par ingestion du combustible déchargé d'un REP pour une énergie fournie de 1 GWth.an.

La figure 1.5 représente la radiotoxicité des produits de fission et des actinides issus du combustible utilisé d'un REP. Pendant les premières centaines d'années suivant le déchargement, la radiotoxicité des produits de fission est dominée par les noyaux à vie courte ou moyenne. Au-delà, ce sont les noyaux à vie longue qui dominent la radiotoxicité des produits de fission, cette dernière restant alors faible devant celle générée par les actinides.

Une étude comparative récente des cycles thorium et uranium en spectre rapide pour la production d'énergie montre que le cycle thorium présente des avantages considérables en termes de radiotoxicités induites par les rejets en actinides, inférieures de presque deux ordres de grandeurs à celles liées au cycle uranium [13]. Il reste donc à déterminer quel type de spectre permet de minimiser la production de déchets en cycle thorium, directement reliée à l'inventaire d'uranium et de transuraniens. Un point de comparaison possible est ainsi la concentration initiale d' $^{233}\text{U}$  nécessaire dans le combustible. On écrit pour cela la condition de régénération à l'aide des inventaires  $N$  et des sections efficaces  $\sigma$  du  $^{232}\text{Th}$  et de l' $^{233}\text{U}$  :

$$\frac{N_{233\text{U}}}{N_{232\text{Th}}} = \frac{\sigma_{\text{capture}}^{232\text{Th}}}{\sigma_{\text{fission}}^{233\text{U}} + \sigma_{\text{capture}}^{233\text{U}}} \quad (1.2)$$

Ce rapport de l'inventaire d' $^{233}\text{U}$  sur celui du  $^{232}\text{Th}$  est évalué dans le tableau 1.6 à partir des sections efficaces caractéristiques d'un spectre rapide [13] et d'un spectre thermique, à 0.025 eV. On constate que la concentration d' $^{233}\text{U}$  nécessaire à la régénération est nettement plus faible en

spectre thermique qu'en spectre rapide. Sous l'hypothèse de puissances volumiques comparables, il en est de même pour l'inventaire d' $^{233}\text{U}$ , ce qui sera vérifié en détail dans la suite. Cela implique, à taux de pertes égaux au retraitement, des rejets radiotoxiques d'uranium plus faibles en spectre thermique. Il ressort donc des considérations précédentes que le cycle thorium en spectre thermique est a priori le meilleur candidat à une production d'énergie nucléaire minimisant les rejets radiotoxiques, tout en exploitant au mieux les ressources naturelles.

type de spectre	rapide	thermique
$\sigma_{capture}^{232\text{Th}}$ (barn)	0.3	7.4
$\sigma_{fission}^{233\text{U}}$ (barn)	2.7	530
$\sigma_{capture}^{233\text{U}}$ (barn)	0.3	46
$\frac{N_{233\text{U}}}{N_{232\text{Th}}}$ (% mol.)	10.0	1.3

TAB. 1.6 – Influence du type de spectre sur l'inventaire d' $^{233}\text{U}$ , ramené à celui de  $^{232}\text{Th}$ , nécessaire dans un réacteur basé sur le cycle  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ .

### 1.3.3 Sûreté et non-prolifération

Le dernier critère d'évaluation du "nucléaire du futur" est la sûreté, qui constitue actuellement la principale raison de la non-acceptation publique de l'énergie nucléaire. La sûreté des réacteurs actuels est satisfaisante, avec une probabilité d'accident grave (fusion du cœur) estimée à  $10^{-5}$  par an et par réacteur. Si la puissance installée est multipliée par 10, il convient de réduire cette probabilité du même facteur au moins.

Dans un réacteur critique, le nombre moyen de neutrons issus de fission provoquant une nouvelle fission est 1; c'est la définition du facteur de multiplication effectif  $k_{eff}$ . Une faible proportion de ces neutrons apparaît avec un retard par rapport à l'instant de la fission de laquelle ils sont issus; ce sont les neutrons retardés et leur proportion est de l'ordre de quelques centaines de pcm (parties pour cent mille). Ils sont émis quelques secondes après la fission lors de la désintégration  $\beta^-$  de produits de fission appelés "précurseurs". Ce retard dans l'évolution de la réactivité rend possible le pilotage d'un réacteur critique, par des contre-réactions mécaniques (barres de pilotage). La valeur moyenne effective de la proportion totale de neutrons retardés d'un réacteur, notée  $\beta_{eff}$ , dépend des noyaux qui fissionnent, comme l'indique le tableau 1.7. Remarquons que les noyaux fertiles  $^{232}\text{Th}$  et  $^{238}\text{U}$  ont chacun une proportion de neutrons retardés nettement supérieure à celle des noyaux fissiles présentés. Malgré leur plus faible section efficace de fission, ils peuvent donc contribuer de manière significative à la valeur de  $\beta_{eff}$ .

Certains combustibles à faible  $\beta_{eff}$ , par exemple riches en actinides mineurs, sont délicats à utiliser dans un réacteur critique, devenant moins stable. Ils nécessitent le recours au régime

sous-critique, pour lequel des neutrons sont amenés dans le cœur par la réaction de spallation d'un faisceau de protons d'une énergie de l'ordre du GeV sur une cible de noyaux lourds.

	noyau	$\beta$ (pcm)
fertiles	$^{232}\text{Th}$	2030
	$^{238}\text{U}$	1480
fissiles	$^{233}\text{U}$	260
	$^{235}\text{U}$	640
	$^{239}\text{Pu}$	210
	$^{241}\text{Pu}$	540

TAB. 1.7 – *Proportion de neutrons retardés de quelques noyaux, fertiles et fissiles [11].*

Un autre paramètre important pour la sûreté d'un réacteur est la sensibilité de sa réactivité à une augmentation de température. Plusieurs effets y contribuent, tous fortement dépendants des matériaux utilisés et de leur agencement dans le cœur. Chacun de ces effets est quantifié par un coefficient dit de température, positif ou négatif selon les cas, qui est le rapport de la variation de réactivité due à cet effet sur la variation de température. Pour qu'un réacteur critique soit stable, son coefficient de température global doit être négatif.

Un effet de température caractéristique est l'effet Doppler, dû à l'agitation thermique dans le milieu de propagation des neutrons qui implique une variation de leur vitesse relative par rapport aux noyaux cibles. Tout se passe comme si les sections efficaces de ces derniers étaient convoluées par une gaussienne dont la largeur est proportionnelle à la température du milieu, et donc comme si leurs résonances étaient élargies. Un neutron en cours de ralentissement a alors plus de chances d'avoir une énergie correspondant à une de ces résonances, et donc d'être capturé. Le coefficient de température associé à l'effet global de cet élargissement des résonances sur la réactivité est appelé coefficient Doppler. Un coefficient Doppler négatif est une condition indispensable à la stabilité d'un réacteur critique. C'est la résonance de capture ( $n, \gamma$ ) de l' $^{238}\text{U}$  située à 6.7 eV qui domine cet effet dans un REP, assurant le comportement stable du réacteur avec un coefficient Doppler d'environ  $-2$  pcm/ $^{\circ}\text{C}$ .

Un dernier critère, proche du critère de sûreté du réacteur à proprement parler, est celui dit de non-prolifération. Le risque évité est ici celui d'un détournement illicite de combustible nucléaire à concentration suffisamment forte en noyaux fissiles pour permettre la fabrication d'une bombe. De tels détournements sont toujours possibles, et de nombreuses réserves peuvent être émises quant à la pertinence d'un tel critère. On peut ainsi objecter que la technologie d'enrichissement de l'uranium naturel en  $^{235}\text{U}$  est suffisamment connue à l'heure actuelle pour être préférée, par d'éventuels terroristes, au vol d'un combustible irradié. On peut ajouter à cela

qu'un approvisionnement suffisant en énergie, d'origine nucléaire par exemple, des populations en développement peut être un facteur d'apaisement politique.

Dans l'optique d'un développement durable de l'énergie nucléaire, il convient néanmoins de limiter au maximum les risques de prolifération, en empêchant ou compliquant fortement toute possibilité d'extraction de matière fissile d'un réacteur. Il est également possible d'opter pour des systèmes produisant des matières fissiles plus facilement détectables que d'autres. Nous prendrons soin de garder cette contrainte à l'esprit, et d'en discuter dans les études à suivre.



## Chapitre 2

# Présentation générale du concept de Réacteur à Sels Fondus (RSF)

Il ressort du chapitre précédent que le cycle thorium en spectre thermique est une option intéressante pour une production durable d'énergie nucléaire. Nous allons voir qu'il est nécessaire dans ce cas de retraiter rapidement le combustible afin d'en extraire certains poisons neutroniques, particulièrement gênants en spectre thermique. Le concept de réacteur à sels fondus offre une solution pratique, en utilisant un combustible liquide qui peut être retraité en ligne. Nous allons présenter ici les avatars historiques de ce concept, puis nous attarder sur les principes physiques et chimiques de l'utilisation d'un combustible sous forme de sels fondus.

### 2.1 Rapide historique des études

#### 2.1.1 Les premiers travaux américains à l'ORNL

Le concept de RSF est imaginé aux Etats-Unis au début des années 1950, à l'Oak Ridge National Laboratory (Tennessee), lors de la phase de créativité débridée à l'origine du nucléaire civil actuel. Fondé en 1943 pour la fabrication de plutonium destiné à la bombe atomique, l'ORNL participe aujourd'hui à des travaux divers sur l'énergie et l'environnement. Introduit expérimentalement, le concept de RSF y est progressivement étudié jusqu'à la fin des années 1970 pour une production d'énergie basée sur le thorium.

##### a - Les réussites expérimentales

Le premier RSF expérimental est issu d'un programme militaire américain sur la propulsion nucléaire des avions, devant allier autonomie, compacité et légèreté. L'Aircraft Reactor Experiment (ARE) est mis en service en 1954, et fonctionne de façon satisfaisante une centaine d'heures à la puissance de 2.5 MWth [14].

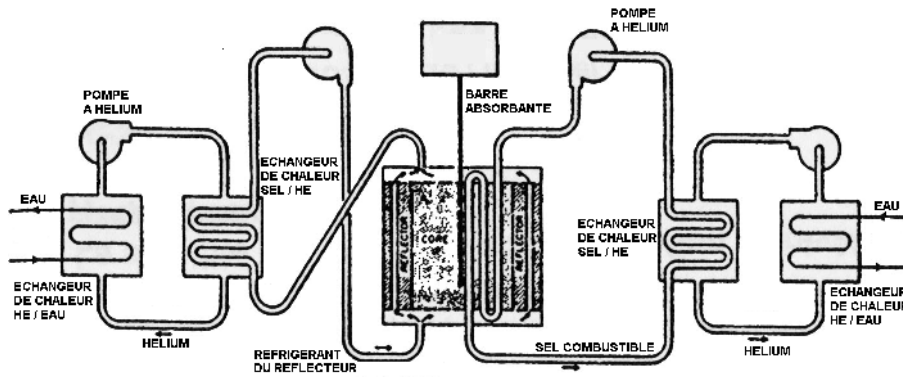


FIG. 2.1 – Schéma de principe de l'expérience ARE.

L'ensemble du système est représenté sur la figure 2.1. Le sel combustible est un mélange de fluorures (53% NaF - 41% ZrF<sub>4</sub> - 6% UF<sub>4</sub> en proportion molaire) dont la température de fusion est 500 °C. Il circule dans le cœur, constitué d'un simple bloc modérateur d'oxyde de béryllium, avant d'échanger sa chaleur à la température de 850 °C. Mis à part un problème de corrosion rapidement résolu, le bilan de cette expérience est positif, avec une stabilité suffisante du réacteur et un bon comportement du sel sous irradiation.

Le programme de propulsion nucléaire est arrêté en 1957, mais les bons résultats de l'ARE encouragent la poursuite des recherches sur les RSF à l'ORNL. Les études s'orientent alors vers un usage plus civil, pour la production d'électricité, et débouchent sur la mise en service en 1964 d'un réacteur expérimental plus avancé, le Molten Salt Reactor Experiment (MSRE), d'une puissance de 8 MWth [15]. Le cœur est constitué de graphite, percé de canaux pour les barres de contrôle et la circulation du sel combustible. La température de sortie du cœur de ce dernier est d'environ 700°C, et la chaleur est échangée avec un autre sel (66% LiF - 34% BeF<sub>2</sub>), lui-même refroidi par de l'air. La première composition du sel combustible, utilisée de 1965 à 1968, est en proportion molaire 65% <sup>7</sup>LiF - 29% BeF<sub>2</sub> - 5% ZrF<sub>4</sub> - 1% UF<sub>4</sub>, avec de l'uranium enrichi à 30% en <sup>235</sup>U. Remarquons que le lithium utilisé est enrichi à 99.995% en <sup>7</sup>Li, afin de réduire la consommation neutronique du <sup>6</sup>Li. Le même sel est conservé dans la suite, en remplaçant l'uranium enrichi par de l'<sup>233</sup>U pur entre 1968 et 1969 (en faisant ainsi le premier réacteur basé sur la fission de l'<sup>233</sup>U), et par du <sup>239</sup>Pu en 1969.

Au cours de ces cinq années d'expérience, le réacteur fonctionne sans incident avec un facteur de charge de 85%, et contribue à enrichir l'expertise acquise lors de l'ARE. La mise au point d'un matériau plus résistant pour la cuve et les tuyauteries, l' Hastelloy-N (68% Ni - 17% Mo - 7% Cr - 5% Fe), permet de résoudre les problèmes de corrosion rencontrés. Outre la tenue des matériaux, l'expérience démontre la stabilité des sels fluorures. Un pilotage de la réactivité

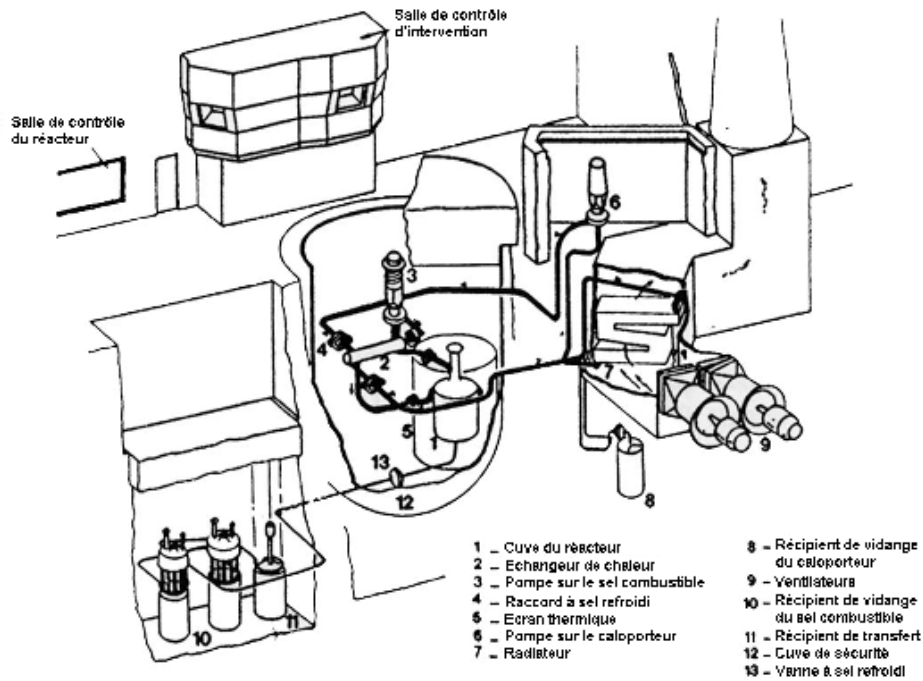


FIG. 2.2 – Coupe du réacteur expérimental MSRE.

assisté par ordinateur permet d'établir la faisabilité du fonctionnement d'un tel système en régime critique. Toutefois, l'expérience n'est pas suffisante pour le passage direct à un réacteur de puissance basé sur le cycle thorium, pour lequel un retraitement en ligne efficace est nécessaire. La seule opération chimique du MSRE a en effet consisté en la volatilisation de l'uranium enrichi par fluoration avant son remplacement par de l' $^{233}\text{U}$ . Le succès de l'expérience justifie néanmoins des études de conception d'un réacteur de puissance à support thorium, associé à une véritable usine de retraitement; le Molten Salt Breeder Reactor (MSBR).

### b - Le projet MSBR

Ce projet propose dès 1969 un réacteur surgénérateur à combustible  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ , d'une puissance thermique de 2500 MWth environ [16]. L'ensemble des études réalisées forme un tout cohérent et très complet, tant au niveau de la thermohydraulique [17], qu'au niveau du retraitement en ligne [18]. La figure 2.3 illustre le principe de fonctionnement du système complet, qui s'organise autour du circuit de sel combustible. Le cœur est constitué d'un bloc de graphite percé de canaux dans lesquels le sel combustible remonte en se réchauffant d'une centaine de degrés, la température moyenne dans le cœur étant de 650 °C environ. La chaleur est ensuite échangée avec un circuit de sel secondaire (92%  $\text{NaBF}_4$  - 8%  $\text{NaF}$ ), pour finalement produire de l'électricité avec un rendement compris entre 40 et 45% (puissance électrique de 1 GWe).

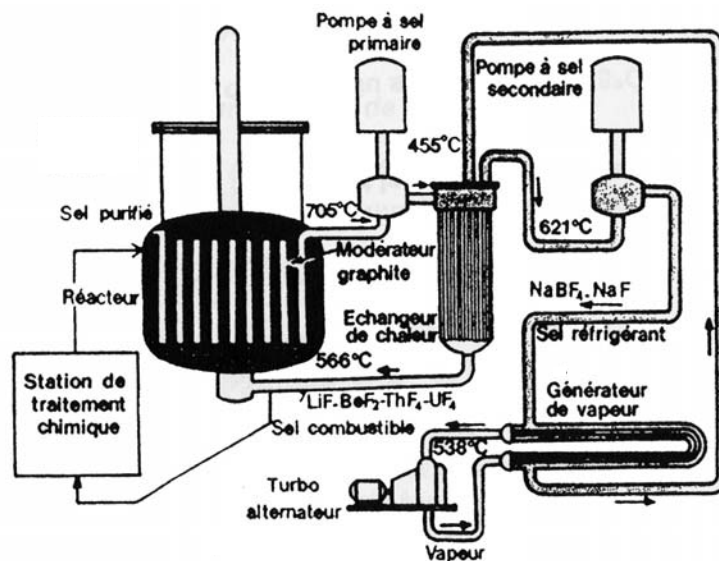


FIG. 2.3 – Vue d'ensemble du projet MSBR.

Le sel combustible est un sel de fluorures, de composition molaire approximative 72%  ${}^7\text{LiF}$  - 16%  $\text{BeF}_2$  - 12%  $(\text{Th}+\text{U})\text{F}_4$ . Le tableau 2.1 donne ses principales caractéristiques. Pour donner des points de comparaison, la viscosité du sel est double de celle du kérosène. Sa chaleur spécifique volumique  $C_p$  est proche de celle de l'eau (valant  $4.2 \text{ J}\cdot\text{cm}^{-3}\cdot\text{K}^{-1}$ ), tandis que sa conductivité thermique est plus du double de celle de l'eau.

densité ( $\text{g}/\text{cm}^3$ ) à $650 \text{ }^\circ\text{C}$	3.3
coefficient de dilatation ( $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}\cdot\text{K}^{-1}$ )	$-6.7 \cdot 10^{-4}$
température de fusion ( $^\circ\text{C}$ )	500
pression de vapeur à $650 \text{ }^\circ\text{C}$ (Pa)	13
viscosité à $650 \text{ }^\circ\text{C}$ (Pa.s)	$7 \cdot 10^{-3}$
chaleur spécifique $C_p$ ( $\text{J}\cdot\text{cm}^{-3}\cdot\text{K}^{-1}$ )	4.5
conductivité thermique ( $\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ )	1.2

TAB. 2.1 – Caractéristiques du sel combustible  ${}^7\text{LiF} - \text{BeF}_2 - (\text{Th}+\text{U})\text{F}_4$  du projet MSBR.

L'usine de retraitement en ligne, représentée très sommairement sur la figure 2.3, assure l'extraction des produits de fission les plus gênants (terres rares), en traitant l'ensemble du sel combustible ( $50 \text{ m}^3$  environ) en une dizaine de jours. Elle permet également d'extraire le  ${}^{233}\text{Pa}$  formé par capture sur le  ${}^{232}\text{Th}$ , et de le laisser décroître en  ${}^{233}\text{U}$ , qui est ensuite réinjecté en partie afin de maintenir le réacteur critique. De cette manière, le système est surgénérateur, avec un taux de régénération de 1.05 environ [16]. L'inventaire d' ${}^{233}\text{U}$  nécessaire pour démarrer est de l'ordre de la tonne, et le temps de doublement est estimé à 25 ans.

Ce projet de surgénérateur se heurte rapidement à la concurrence des réacteurs surgénérateurs à neutrons rapides, de conception plus classique et basé sur le cycle uranium. Pour des raisons financières et politiques, liées à l'isolement de l'ORNL qui est alors le seul laboratoire à travailler sur les RSF aux Etats-Unis, les études sont définitivement arrêtées en 1976. Elles sont reprises en France par EDF et le CEA jusqu'en 1983, avant d'être suspendues pour des raisons similaires. Ces travaux de réévaluation ont notamment permis d'approfondir les problèmes de sûreté et d'acquérir une meilleure connaissance du retraitement en ligne.

### 2.1.2 Les projets ambitieux des années 1980

Suite à l'intérêt suscité par le projet MSBR, de nombreuses études sont menées dans les années 1980, toujours dans l'optique d'utiliser des sels fondus comme combustible dans un réacteur destiné à la production d'énergie. Ainsi, le projet japonais Thorims-NES (Thorium Molten Salt Nuclear Energy Synergetics) juge la surgénération trop délicate dans le MSBR, et propose de séparer la fonction de surgénération de celle de production d'énergie [19].

La production d'énergie est alors assurée par des RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  régénérateurs ou légèrement sous-générateurs (concept FUJI). La surgénération d' $^{233}\text{U}$  est réalisée de façon intensive dans un système sous-critique, l'Accelerator Molten Salt Breeder (AMSB), dans lequel un faisceau intense de protons de 1 GeV produit des neutrons par spallation directe sur le sel combustible. L'AMSB peut dans ces conditions surgénérer environ 1 t d' $^{233}\text{U}$  par GWe, mais au prix d'une complexité qui est à l'origine de son abandon.

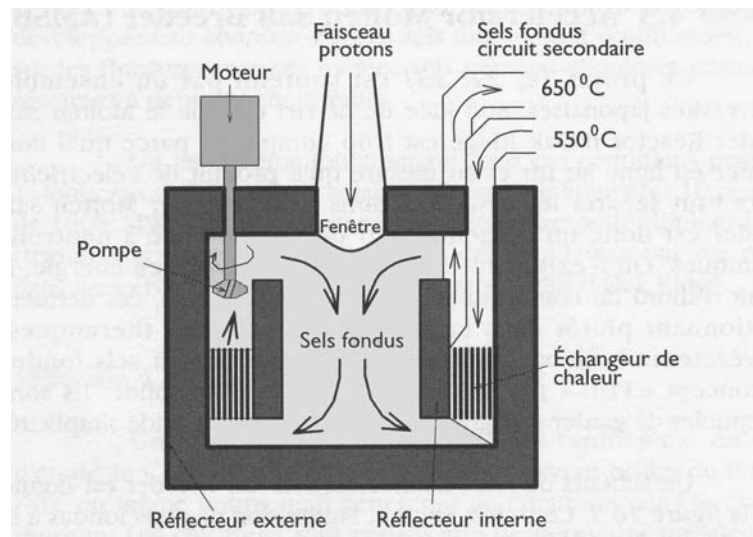


FIG. 2.4 – Le projet de réacteur sous-critique à sels fondus chlorures du JAERI pour l'incinération de transuraniens en spectre rapide.

Vers la fin des années 1970, des études ont privilégié l’option opposée au cycle thorium en spectre thermique: le cycle uranium en spectre rapide. Dans ce cas, le sel combustible utilisé est à base de chlorures, et le cœur est dépourvu de modérateur. Ces systèmes sont juste régénérateurs du fait de captures parasites trop nombreuses dans le chlore du sel combustible [20].

Le laboratoire japonais JAERI a alors jugé plus intéressante l’utilisation de ce type de réacteur pour l’incinération de transuraniens sur support inerte [21]. Ce mode de fonctionnement implique le régime sous-critique, le sel combustible faisant office de cible de spallation, comme le montre la figure 2.4. Comme les projets de producteur d’énergie, ce système bénéficie d’un retraitement en ligne élémentaire pour l’extraction des produits de fission.

### 2.1.3 Plus de réalisme depuis les années 1990

Le projet d’incinérateur précédent montre que les études sont progressivement passées du thème de la production d’énergie à celui de l’incinération des déchets nucléaires de la filière REP. Le projet américain de C. Bowman adapte ainsi le concept de RSF à modérateur graphite et sels fluorures, utilisé par le projet MSBR, à l’incinération du plutonium industriel en spectre thermique [22]. Ce système est sous-critique, et doté d’une cible de spallation en plomb. Son retraitement est de type “once-through”, c’est à dire que chaque jour un volume de sel est extrait et remplacé par du sel frais. Il permet une incinération ou une dénaturation efficace du plutonium, et son étude a été reprise en France par le CNRS [23] et le CEA [24].

Nous avons remarqué au chapitre précédent que les études sur la gestion des déchets nucléaires avaient depuis peu changé leur approche, en privilégiant le remplacement des REP par une filière plus “propre”. Cette remarque s’applique tout particulièrement aux dernières études françaises de RSF. Ainsi, le concept TASSE (Thorium based Accelerator driven System with Simplified fuel cycle for long term Energy production) du CEA préconise un retraitement lent afin de minimiser les rejets, l’empoisonnement neutronique supplémentaire étant compensé grâce au régime sous-critique [25]. Le concept AMSTER (Actinide Molten Salt TransmutER) d’EDF reprend les principales options du projet MSBR dans différents modes de fonctionnement, en recherchant également la minimisation des rejets [26]. Notre travail résulte d’une collaboration avec EDF débutée sur le concept AMSTER, en mettant l’accent sur le cycle thorium.

Toutes ces études s’accompagnent d’un renouveau des efforts expérimentaux. Le programme européen MOST est ainsi chargé d’établir le bilan des recherches sur les RSF précédemment évoquées, dans le but de définir les besoins en R&D. Par ailleurs, un démonstrateur de réacteur proche du projet MSBR, d’une puissance de 250 MWth, a récemment été proposé [27].

## 2.2 Utilisation des sels fondus dans un réacteur nucléaire

A travers l'historique des différents projets de RSF proposés jusqu'à présent, nous avons vu que le sel combustible est un élément clé autour duquel s'organise tout le système. L'utilisation comme combustible nucléaire nécessite un choix judicieux des sels fondus, qui résulte d'un compromis entre leurs propriétés physico-chimiques et les contraintes neutroniques classiques.

### 2.2.1 Caractéristiques physico-chimiques importantes

L'utilisation des sels fondus est liée à la chimie à haute température, appelée pyrochimie, largement employée de nos jours dans l'industrie chimique. Il s'agit ici de décrire leurs propriétés générales, en gardant à l'esprit les implications de leur utilisation en RSF. Pour cet usage, les sels fondus présentent des avantages certains, à de nombreux points de vue :

- L'état liquide à partir de 500 °C dans la plupart des cas est l'avantage principal des sels fondus. Il leur permet de cumuler les fonctions de combustible, de caloporteur et éventuellement de cible de spallation. Les dommages mécaniques liés à l'irradiation, tels ceux subis par les combustibles solides, n'existent plus.
- Les sels fondus sont en particulier de bons caloporteurs. Ils possèdent une grande capacité calorifique. Leur conductivité de la chaleur est moyenne, ce qui réduit les chocs thermiques. Leur pression de vapeur est basse, et permet l'absence de grande pression dans le cœur.
- L'inertie chimique des sels fondus vis-à-vis de l'air et de l'eau est grande. Il est en outre aisé de modifier leur composition selon les besoins.

Tant sur le plan physique que chimique, les sels fondus présentent donc des caractéristiques intéressantes à exploiter. Cependant, l'emploi de tels milieux dans un réacteur nucléaire s'accompagne d'effets "secondaires" gênants, qui nuancent les avantages précédents :

- La corrosion à haute température nécessite la mise au point de matériaux de structure plus résistants que ceux utilisés habituellement.
- Le passage du sel combustible dans les échangeurs peut poser problème si la radioactivité est trop élevée. Il faut alors envisager des moyens de contrôle et d'entretien à distance.

### 2.2.2 Sels chlorures ou sels fluorures ?

Aux propriétés physico-chimiques des sels fondus conditionnant leur utilisation en réacteur, il convient d'ajouter les contraintes neutroniques à respecter pour une production durable d'énergie nucléaire. Plus précisément, il est nécessaire d'atteindre au moins la régénération, soit en cycle uranium et spectre rapide, soit en cycle thorium et spectre thermique.

## a - Sels chlorures pour le cycle uranium en spectre rapide

Comme nous l'avons vu avec les systèmes étudiés par le passé, l'usage des sels chlorures est réservé aux réacteurs à spectre rapide. Pour disposer d'un spectre suffisamment rapide dans un cœur de RSF dépourvu de modérateur, il est en effet nécessaire de disposer en outre de fortes concentrations d'actinides dans le sel combustible. Les sels chlorures sont les seuls qui autorisent des concentrations suffisantes, en conservant des températures de fusion d'environ 500 °C, ce qui permet de fonctionner à des températures comprises entre 600 et 700 °C. Les diagrammes de phase de la figure 2.5 donnent la dépendance de la température de fusion des sels NaCl-UCl<sub>3</sub> et NaCl-PuCl<sub>3</sub> avec leur composition. Un sel de référence pour un réacteur rapide en cycle U/Pu est ainsi, en proportion molaire, 64% NaCl - 36% (U+Pu)Cl<sub>3</sub>, avec une température de fusion proche de 500 °C. C'est ce sel que nous utiliserons au chapitre suivant pour l'étude d'un tel réacteur, destinée à illustrer la présentation de nos outils de simulation.

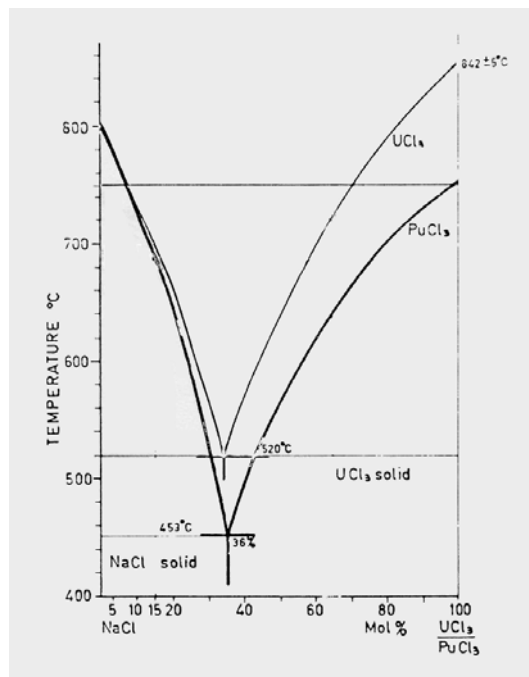


FIG. 2.5 – Diagramme de phase des sels NaCl-UCl<sub>3</sub> et NaCl-PuCl<sub>3</sub> [20].

Les sels chlorures présentent cependant des inconvénients, qui confèrent aux RSF à spectre rapide le statut de réacteurs “exotiques” :

- A l'état naturel, le chlore est composé à 76% environ de <sup>35</sup>Cl, le reste étant du <sup>37</sup>Cl. Ce <sup>35</sup>Cl est nuisible à l'économie de neutrons, en particulier par la réaction (n,p). Par capture, il produit en outre du <sup>36</sup>Cl, émetteur  $\beta^-$  à demi-vie longue ( $3 \cdot 10^5$  ans).



- Les sels chlorures sont particulièrement corrosifs, notamment du fait de la production de soufre par la réaction  $^{35}\text{Cl}(n,p)$  évoquée ci-dessus. Il semble possible d'utiliser comme matériaux de structure du molybdène, ou du graphite à paroi froide (sel solidifié en surface), mais aucune expérience concluante n'a encore été réalisée [28].
- Les tensions de vapeur de sels chlorures sont élevées, ce qui nuit à leur stabilité. Ils sont en outre très hygroscopiques, et donc difficiles à manipuler et à conserver purs.

## b - Sels fluorures pour le cycle thorium en spectre thermique

Les sels fluorures sont particulièrement appropriés aux RSF à spectre thermique, basés sur l'utilisation d'un modérateur graphite. Par rapport aux sels chlorures, ils acceptent à températures de fusion comparables des concentrations en actinides plus faibles. Ils sont en outre plus stables, et sont moins corrosifs, ce qui les rend compatibles avec des matériaux tel l'Hastelloy-N déjà mis au point. Ils ont enfin bénéficié d'études complètes portant sur leur retraitement en ligne, notamment à l'ORNL.

Le principal inconvénient des sels fluorures est d'avoir des points de fusion élevés, ce qui nécessite l'utilisation de sels à plusieurs composantes légères, par exemple LiF et  $\text{BeF}_2$  (type "FLiBe"). C'est le cas du sel LiF -  $\text{BeF}_2$  -  $\text{ThF}_4$  retenu par le projet MSBR, dont le diagramme de phase est représenté sur la figure 2.6. On voit que la contrainte d'une température de fusion proche de 500 °C limite la concentration molaire de  $\text{ThF}_4$  à 10% environ.

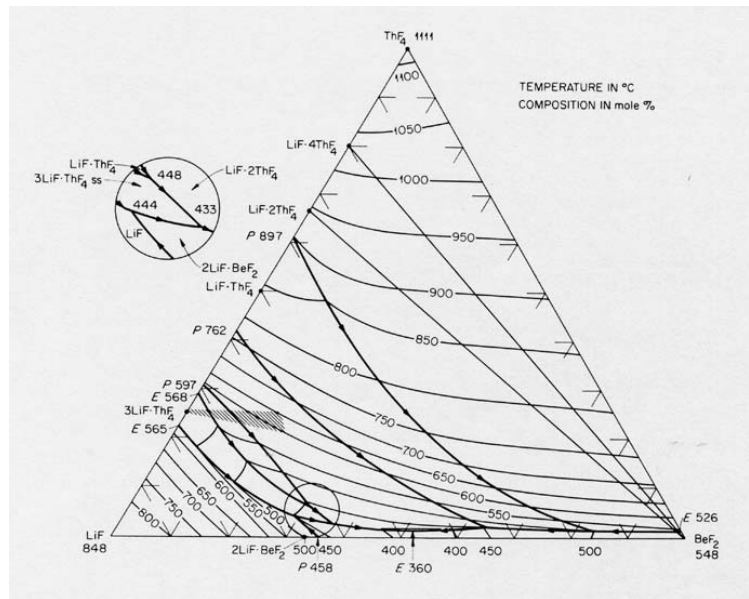


FIG. 2.6 – Diagramme de phase du sel LiF- $\text{BeF}_2$ - $\text{ThF}_4$  [29].

## 2.3 Principes d'un retraitement pyrochimique en ligne

La plupart des systèmes présentés dans ce chapitre, et la totalité de ceux étudiés dans la suite, ont recours à un retraitement en ligne de leur sel combustible. Ce retraitement est basé sur la chimie à haute température propre aux sels fondus : la pyrochimie.

### 2.3.1 Etat de l'art des procédés de séparation

La pyrochimie est aujourd'hui largement utilisée par l'industrie chimique, par exemple dans la fabrication de l'aluminium. Elle est également étudiée dans le cadre du retraitement des combustibles usés de la filière REP, notamment aux Etats-Unis (ANL), au Japon (JAERI), et en Europe (programme PYROREP). Les sels les plus étudiés dans ce cadre sont les chlorures, qui permettent de travailler à des températures moins élevées qu'en sels fluorures. En France, le Laboratoire d'Etudes des Procédés Pyrochimiques du CEA étudie à Marcoule les trois types de procédés pyrochimiques d'extraction connus, représentés sur la figure 2.7.

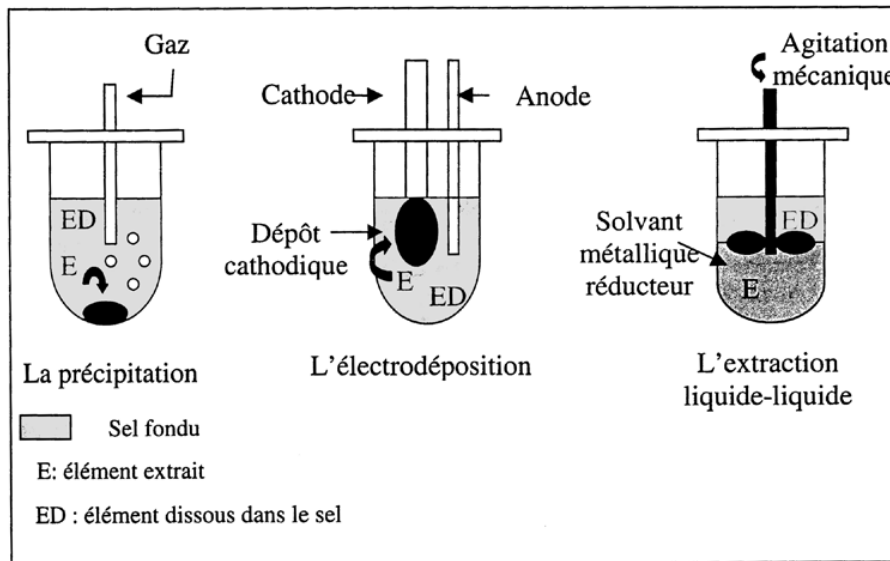


FIG. 2.7 – Procédés pyrochimiques étudiés pour le retraitement des combustibles usés [30].

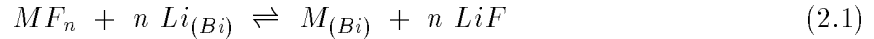
La précipitation résulte de l'ajout d'un réactif gazeux ou solide dans le sel, tandis que l'électrodéposition est obtenue par réduction électrochimique des éléments à extraire sur une cathode. Le troisième et dernier procédé est l'extraction liquide-liquide, également appelée extraction réductrice, qui consiste à faire passer par réduction les éléments à extraire de leur milieu salin d'origine vers un métal liquide réducteur. Dans ce dernier cas, les deux phases peuvent être mises en mouvement dans des sens opposés, et le procédé est alors utilisable de façon continue. Nous nous intéresserons donc dans la suite tout particulièrement à l'extraction réductrice, en

vue de son utilisation pour le retraitement en ligne d'un RSF. Les études réalisées sur ce procédé en sels chlorures annoncent des efficacités de  $10^{-5}$  à  $10^{-6}$  pour les séparations entre lanthanides et actinides. A titre d'exemple, le samarium est facilement extrait d'un sel LiCl-KCl contenant également de l'uranium, avec un rapport à l'équilibre de la concentration d'uranium sur celle de samarium de  $0.5 \cdot 10^{-5}$  dans la phase métallique [31].

### 2.3.2 Notions de pyrochimie pour l'extraction réductrice

Dans le projet MSBR, le retraitement en ligne est basé sur l'extraction réductrice du sel LiF-BeF<sub>2</sub>-ThF<sub>4</sub> vers du bismuth liquide, riche en lithium qui joue le rôle de l'élément réducteur. Le choix du bismuth se justifie par son inertie chimique vis-à-vis des composants du sel, son point de fusion assez bas (270 °C) et son haut point d'ébullition (1480 °C). Le lithium, les produits de fission et les actinides y ont par ailleurs une bonne solubilité. Avant de détailler le retraitement en ligne du MSBR, il convient d'introduire quelques notions élémentaires de pyrochimie, utiles pour l'utilisation ultérieure qui sera faite de l'extraction réductrice.

En se basant sur le formalisme utilisé dans les études de l'ORNL [18], écrivons la réaction chimique d'extraction d'un élément  $M$  de valence  $n$ , du sel vers le bismuth :



Selon la nature des éléments présents dans le sel combustible, on souhaite les extraire le plus efficacement possible (produits de fission, protactinium), ou au contraire les conserver (thorium). La propension de chaque élément  $M$  à être extrait peut être quantifiée à partir de constante d'équilibre  $K$  de la réaction chimique 2.1. Pour simplifier l'expression de cette constante, on suppose que les éléments sont suffisamment dilués dans leurs phases respectives pour que les solutions puissent être considérées idéales [32]. La constante d'équilibre s'écrit alors simplement en fonction des fractions molaires  $X$  (rapport du nombre de moles de l'élément considéré sur le nombre de moles total dans sa phase) des espèces ( $M$  et  $Li$ ) intervenant dans les deux phases en présence (sel et bismuth) :

$$K = \frac{X_{M_{(Bi)}} X_{LiF}^n}{X_{MF_n} X_{Li_{(Bi)}}^n} \quad (2.2)$$

Il est intéressant de définir pour chaque espèce le rapport de la fraction molaire dans la phase métallique sur celle dans la phase saline. Cette grandeur est appelée coefficient de partage  $D$  et s'écrit  $D_M = \frac{X_{M_{(Bi)}}}{X_{MF_n}}$  pour  $M$ , et  $D_{Li} = \frac{X_{Li_{(Bi)}}}{X_{LiF}}$  pour  $Li$ . A partir de la formule 2.2, on obtient l'expression du coefficient de partage de  $M$  en fonction de sa valence  $n$ , de  $D_{Li}$  et de  $K$  :

$$\log D_M = n \log D_{Li} + \log K \quad (2.3)$$

On reconnaît l'équation d'une droite, appelée droite de partage, de pente  $n$ , et d'ordonnée à l'origine  $\log K$ . La constante  $K$  peut éventuellement tenir compte de la non-idéalité des solutions en présence. La variable est la répartition du lithium entre les deux phases, qui conditionne celle de chaque élément présent dans le sel. La figure 2.8 représente les droites de partage de quelques actinides et lanthanides, mesurées pour le sel combustible du projet MSBR mis en contact avec du bismuth enrichi en lithium. La valence de chaque espèce représentée se manifeste par la pente de la droite de partage associée. Ainsi, thorium et protactinium sont de valence 4, tandis qu'uranium et transuraniens sont préférentiellement de valence 3. Les lanthanides sont de valence 3 comme le néodyme, ou 2 comme l'euporium.

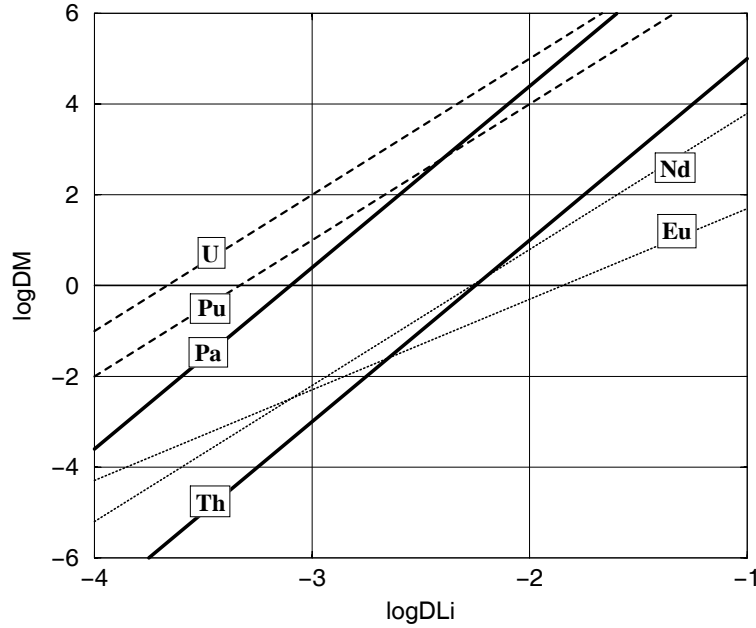


FIG. 2.8 – Coefficients de partage mesurés à  $600\text{ }^{\circ}\text{C}$  entre le sel  $\text{LiF-BeF}_2\text{-ThF}_4$  (72-16-12 % molaire) et du bismuth enrichi en lithium [33].

On remarque sur la figure 2.8 que dans ce système d'extraction, les actinides forment un groupe assez compact. La droite de partage du neptunium est comprise entre celle de l'uranium et celle du plutonium, tandis que l'américium et le curium se situent légèrement sous le plutonium. Les lanthanides constituent un autre groupe, pour l'extraction duquel une plus forte concentration de lithium est nécessaire dans le bismuth, à coefficient de partage identique. Seules sont représentées les droites de partage du néodyme et de l'euporium, qui encadrent celles des autres terres rares, comme le lanthane ou le samarium.

Cette répartition en deux groupes bien distincts impose le principe d'une extraction en ligne des produits de fission en deux temps. Afin de ne pas les extraire avec les produits de fission, il convient en effet de procéder à une extraction préalable des actinides, à l'aide d'une faible

concentration de lithium dans le bismuth ( $D_{Li} \simeq 10^{-3}$ ). Il est ensuite possible d'extraire les lanthanides, en utilisant une concentration plus forte de lithium dans le bismuth ( $D_{Li} \simeq 10^{-2}$ ). Remarquons que lors de cette deuxième étape, le thorium, similaire aux terres rares du point de vue de son coefficient de partage, est extrait avec elles. Cela peut sembler gênant a priori, mais des solutions pratiques existent, comme celle proposée pour le retraitement en ligne du MSBR que nous allons à présent décrire.

### 2.3.3 Le retraitement en ligne du projet MSBR

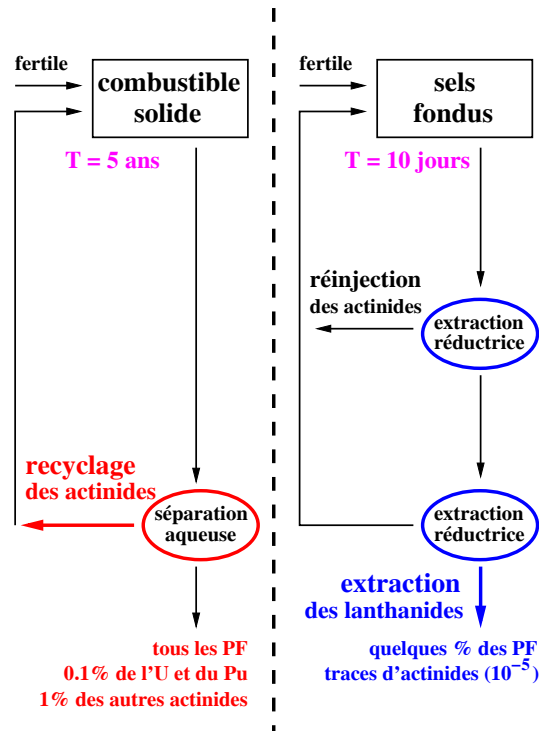


FIG. 2.9 – Comparaison de principe du retraitement d'un combustible solide et du retraitement en ligne du sel combustible d'un RSF de type MSBR.

Le principe du retraitement en ligne d'un RSF à sels fluorures comme le MSBR est comparé sur la figure 2.9 à celui d'un combustible solide classique. Dans ce dernier cas, le retraitement consiste en l'extraction des actinides par dissolution du combustible en milieu aqueux, comme dans le procédé PUREX mis au point pour l'extraction du plutonium des combustibles REP usés. Ces actinides sont ensuite recyclés sur une période de plusieurs années pour fabriquer du combustible neuf. A l'inverse, un retraitement en ligne de RSF a pour fonction principale l'extraction réductrice continue des produits de fission, en les séparant au préalable des actinides qui sont ensuite réinjectés dans le sel combustible. Des durées de cycle et des efficacités de

séparation caractéristiques données par la figure 2.9 résultent des taux de pertes en actinides comparables, de l'ordre de  $10^{-4}$  par an.

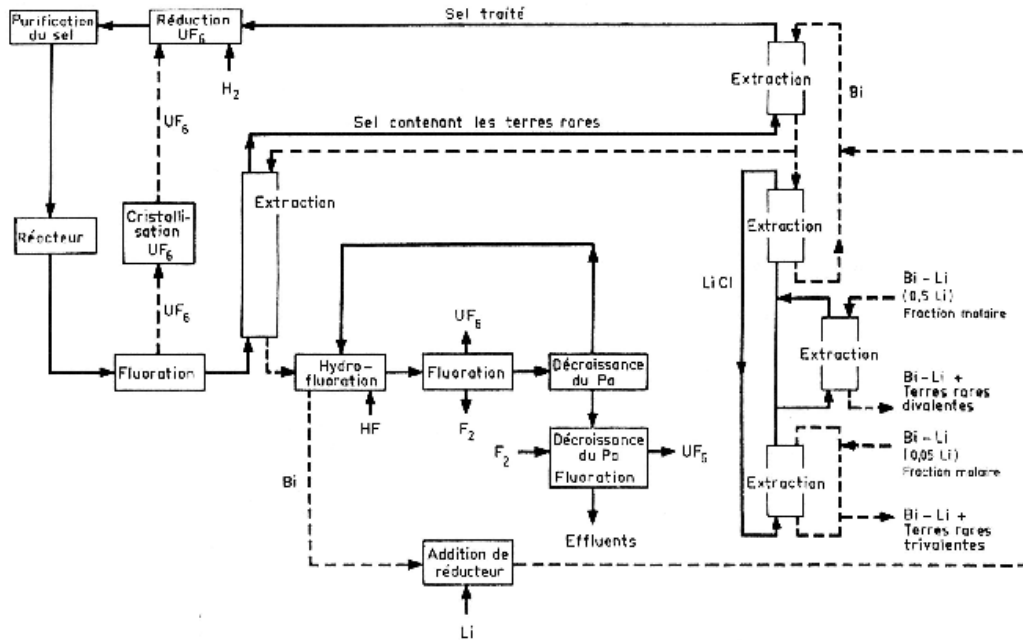


FIG. 2.10 – Schéma de principe détaillé du retraitement en ligne du MSBR.

Le schéma de la figure 2.10 représente l'organisation détaillée des procédés pyrochimiques dans le retraitement en ligne du projet MSBR. On distingue quatre étapes successives :

- La première étape de fluoration permet la volatilisation de l'uranium du sel sous forme d' $UF_6$ . Dans ce procédé, le sel est dispersé à  $600\text{ }^\circ\text{C}$  dans un contre courant de fluor. L' $UF_6$  est ensuite réduit en  $UF_4$  et aussitôt réinjecté dans le sel retournant dans le cœur.
- Le sel débarrassé de l'uranium subit une première extraction réductrice du protactinium, accompagné de traces de transuraniens. Le sel passe pour cela dans un extracteur à contre-courant, dans lequel le protactinium est transféré dans du bismuth liquide par l'intermédiaire de lithium réparti selon  $D_{Li} = 10^{-3}$ . Le protactinium est extrait du bismuth et stocké le temps de décroître en  $^{233}\text{U}$ , qui est alors récupéré par fluoration.
- Le sel débarrassé du protactinium subit une extraction réductrice similaire à la première, avec  $D_{Li} = 10^{-2}$ . Les terres rares, accompagnées de thorium, passent dans le bismuth liquide, qui est ensuite mis en contact avec du  $\text{LiCl}$ . Les coefficients de partage entre le bismuth et le  $\text{LiCl}$  sont tels que seules les terres rares passent dans le sel, laissant le circuit

de bismuth saturé en thorium. Le sel LiCl chargé en terres rares subit finalement deux extractions réductrices, permettant d'en extraire les terres rares selon leur valence.

- Le sel combustible récupère finalement l'uranium fluoré lors de la première étape, et est réinjecté dans le cœur. Par ailleurs, une partie de l' $^{233}\text{U}$  obtenu par décroissance du protactinium est également réinjectée, accompagnée des transuraniens extraits avec le protactinium. L' $^{233}\text{U}$  surgénéré est maintenu hors flux et stocké en vue de son utilisation ultérieure pour le démarrage d'un nouveau réacteur.





## Chapitre 3

# Principes et exemples d'utilisation des outils de simulation

La simulation de réacteurs à sels fondus nécessite des outils informatiques adéquats. Nous avons développé une méthode d'évolution qui permet de gérer la succession de calculs statiques réalisés par un code de transport de type Monte Carlo, afin de déterminer comment évoluent les principales caractéristiques physiques des systèmes étudiés. Nous choisissons ici d'illustrer cette méthode par l'étude d'un concept simple de réacteur à sels fondus à sels chlorures et spectre rapide, évoqué au chapitre précédent. Cette étude sera l'occasion d'introduire des résultats types, que nous utiliserons dans toute la suite.

### 3.1 Utilisation du code Monte Carlo MCNP

MCNP (Monte Carlo N Particles) est un code de transport Monte Carlo développé au Los Alamos National Laboratory. Pour les systèmes critiques, nous utilisons la version MCNP 4B [34], qui calcule le transport des neutrons d'énergie inférieure à 20 MeV. Dans le cas de systèmes sous-critiques, pilotés par accélérateur, nous utilisons son extension MCNPX 2.1.5 [35]. Ce code intègre notamment le code LAHET (Los Alamos High Energy Transport), qui traite les réactions caractéristiques de neutrons de spallation, entre 150 MeV et quelques GeV.

#### 3.1.1 Présentation de la méthode Monte Carlo

Le recours à la simulation Monte Carlo est devenue intéressante depuis peu par l'augmentation considérable de la puissance de calcul disponible. Nous allons détailler ses principes, basés sur le tirage aléatoire, et les contraintes que cela implique pour l'utilisateur.

## a - Principes

Le principe de base d'un code Monte Carlo est de suivre la propagation d'une particule dans la matière en appliquant les lois caractéristiques de ce mouvement. Ce travail se décompose en quelques opérations élémentaires successives, réalisées par MCNP pour chaque neutron suivi. La première de ces étapes consiste à calculer la section efficace macroscopique d'interaction  $\Sigma^{tot}$  égale au produit  $\sum_i N_i \sigma_i^{tot}$ , avec  $N_i$  le nombre de noyaux  $i$  par  $\text{cm}^3$ , et  $\sigma_i^{tot}$  la section efficace microscopique totale d'interaction du noyau  $i$  en  $\text{cm}^2$ . Le libre parcours moyen  $\lambda$  du neutron suivi est alors l'inverse de  $\Sigma^{tot}$ , et fournit la probabilité d'interaction de ce neutron par cm. Associé à un nombre aléatoire  $p$  tiré uniformément dans  $[0,1[$ ,  $\lambda$  permet ensuite de déterminer la distance  $\ell$  parcourue avant l'interaction suivante, selon la loi  $\ell = -\lambda \ln(1-p)$ . Toujours à partir du tirage d'un nombre aléatoire, le noyau sur lequel la réaction a lieu, puis le type de la réaction en question sont déterminés. Il reste alors à déterminer la suite de l'histoire du neutron suivi. Dans le cas d'une réaction absorbante, cette histoire s'arrête définitivement, et un nouveau neutron (neutron "source", dont l'énergie et la position initiales sont définies par l'utilisateur) est suivi. Dans le cas contraire, un ou plusieurs neutrons sont réémis, leur énergie étant tirée au hasard selon des lois caractéristiques du type de réaction qui les a créés.

Dans chaque cellule ou élément de volume  $V$ , le flux des neutrons à l'énergie  $E$  peut s'écrire comme le rapport de la longueur totale  $L$  que parcourent les neutrons à cette énergie, calculée à partir des trajets élémentaires  $\ell$ . C'est de cette manière qu'est calculé le flux  $\phi(E, \vec{r})$  à toute énergie  $E$  et en tout point  $\vec{r}$  par MCNP. A partir de ce flux, il est possible de calculer le flux moyen  $\phi$ , intégré sur une plage d'énergie et moyenné sur la position dans une cellule ou un groupe de cellules :

$$\phi = \frac{1}{V} \int_E \int_{\vec{r}} \phi(E, \vec{r}) dE d^3\vec{r} \quad (3.1)$$

De même, MCNP peut calculer des sections efficaces moyennes  $\sigma$ , qui correspondent à des moyennes sur l'énergie et la position, pondérées par le flux :

$$\sigma = \frac{\int_E \int_{\vec{r}} \sigma(E) \phi(E, \vec{r}) dE d^3\vec{r}}{\int_E \int_{\vec{r}} \phi(E, \vec{r}) dE d^3\vec{r}} \quad (3.2)$$

On peut donc disposer pour chaque cellule  $c$  de la géométrie, du flux moyen  $\phi_c$  et des sections efficaces moyennes  $\sigma_c$ . Pour un ensemble  $g$  de cellules groupées, une section efficace moyenne  $\sigma_g$  peut se calculer à partir de la section efficace moyenne  $\sigma_c$  et du flux moyen  $\phi_c$  dans chaque cellule  $c$  de volume  $V_c$ , en appliquant la formule 3.2 :

$$\sigma_g = \frac{\sum_{c \in g} V_c \sigma_c \phi_c}{\sum_{c \in g} V_c \phi_c} \quad (3.3)$$

La formule 3.3 sera utilisée par la suite pour calculer les sections efficaces moyennes sur l'ensemble du circuit de sel combustible. Ces sections efficaces moyennes qualifiées de “globales” seront à distinguer des sections efficaces moyennes relatives à une partie seulement du circuit. Le flux moyen “global”  $\phi_g$  associé est calculé d’après la formule 3.1 comme la somme des flux  $\phi_c$ , pondérée par le volume  $V_c$  des cellules correspondantes :

$$\phi_g = \frac{\sum_{c \in g} V_c \phi_c}{\sum_{c \in g} V_c} \quad (3.4)$$

Si cela n’est pas précisé, une grandeur moyenne (section efficace ou flux) est globale, c’est-à-dire caractérise l’ensemble du circuit de sel combustible du système.

## **b - Contraintes**

L’utilisation de MCNP implique donc le découpage précis de la géométrie en cellules, se distinguant par leur volume et leur composition. Il faut donc disposer dans chaque cas d’une description réaliste détaillée du réacteur à simuler. Nous utiliserons par la suite un programme de construction automatique de la géométrie pour MCNP, qui facilitera les dimensionnements préalables aux calculs d’évolution, pour lesquels on ne s’intéresse qu’à l’influence de la variation de quelques paramètres seulement. Ce programme permet entre autres de manipuler des formes prédéfinies (cylindres, hexagones, ...), et de définir leur position et leur matériau.

Les données nucléaires sont disponibles pour un grand nombre de noyaux, sous la forme de fichiers qui résultent d’une procédure d’évaluation, c’est-à-dire de confrontation de mesures expérimentales à des modèles théoriques. Ils sont traduits dans le format standard ENDF (Evaluated Nuclear Data File), lisible par les codes de calcul, et regroupés en bases ou bibliothèques. Les bases les plus complètes sont actuellement la base américaine ENDF/B-VI, la base japonaise JENDL 3.2, et la base européenne JEF 2.2, que nous utiliserons dans cet ordre de priorité en fonction de la disponibilité des noyaux.

### **3.1.2 Dimensionnement d’un RSF à sels chlorures et cycle U/Pu**

Comme annoncé en introduction de ce chapitre, nous nous proposons d’illustrer la présentation des outils de calcul par l’étude sommaire d’un RSF à sels chlorures, basé sur le cycle U/Pu en spectre rapide, et fonctionnant en régime critique. Ce RSF “(U/Pu)Cl<sub>3</sub>” s’inspire des études suisses présentées au chapitre précédent [20]. Nous allons décrire brièvement la géométrie et les dimensions retenues pour les calculs MCNP, puis le retraitement en ligne associé. L’exemple choisi est caractéristique d’un système producteur d’énergie et va nous permettre d’introduire les outils utilisés pour de telles simulations. Pour compléter cette illustration de nos méthodes

de simulation, un incinérateur sous-critique d'actinides mineurs sur support inerte, toujours à sels chlorures et spectre rapide, est étudié en annexe A.

### a - Géométrie type

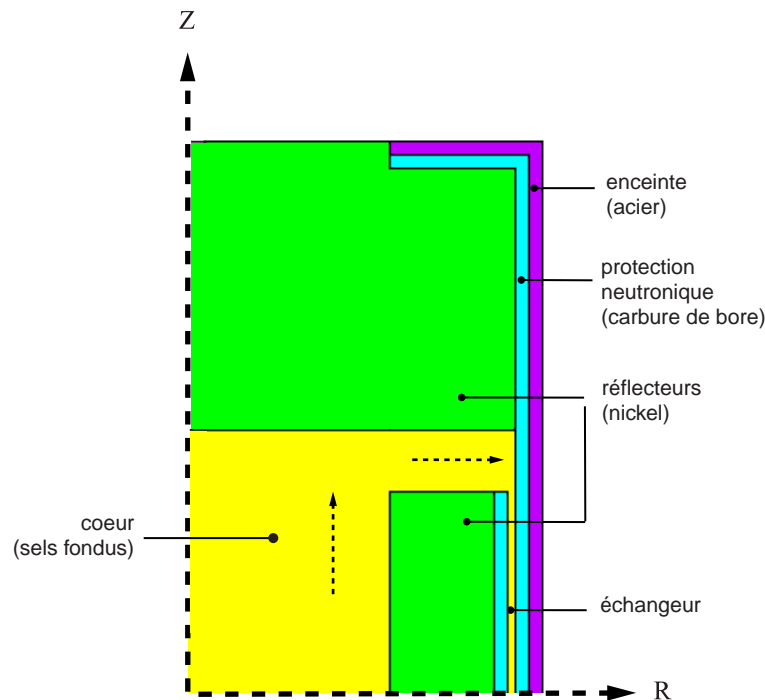


FIG. 3.1 – Coupe au quart verticale du RSF (U/Pu)Cl<sub>3</sub>.

La structure retenue pour le réacteur est extrêmement simple, comme l'illustre sa coupe verticale (figure 3.1). Le cœur est constitué d'un cylindre de sel combustible de 1.5 m de rayon (cellule MCNP "cœur"), entouré d'un réflecteur en nickel de 80 cm d'épaisseur. Le circuit de sel se poursuit vers les échangeurs de chaleurs situés au-delà du réflecteur radial, qu'on modélise par une couronne cylindrique de sel. L'ensemble du sel situé dans les échangeurs (3.6 m<sup>3</sup>) et dans la partie circulant horizontalement au-dessus du réflecteur radial (10.3 m<sup>3</sup>) est regroupé dans une seule et même cellule MCNP, désignée sous le terme "échangeurs" et de volume total 13.9 m<sup>3</sup>. Cette partie du sel combustible est considérée hors-flux, et sa proportion est fixée au tiers du volume total de sel. Le découpage du circuit de sel combustible pour MCNP se limite donc à deux cellules; la cellule "cœur" et la cellule "échangeurs". Une hauteur de 2.0 m de nickel au-dessus (et en dessous) du circuit de sel fait office de réflecteur axial. La puissance totale est fixée à 2500 MWth, valeur conservée pour tous les systèmes étudiés par la suite, afin de conserver les mêmes ordres de grandeur et faciliter les comparaisons. Le volume total de sel combustible est

de 40 m<sup>3</sup> environ, ce qui assure à l’usine de retraitement en ligne associée un dimensionnement comparable à celui prévu par le projet MSBR.

La hauteur du cylindre modélisant la liaison entre le cœur et les échangeurs est déterminée par conservation du débit de sel entre sa sortie verticale du cœur et son entrée horizontale dans les échangeurs. En supposant la vitesse d’écoulement moyenne du sel constante, cette condition revient à évaluer la surface de sortie du cœur à la surface d’entrée dans les échangeurs. De la hauteur de sel au-dessus du réflecteur radial ainsi calculée, on déduit l’épaisseur de la couronne cylindrique simulant les échangeurs. Cette dernière est protégée des neutrons par une épaisseur de 10 cm de B<sub>4</sub>C. La même épaisseur de B<sub>4</sub>C est placée juste après afin de protéger l’enceinte extérieure en acier. Elle permettra, en analysant les résultats des calculs MCNP, d’évaluer les fuites de neutrons et de vérifier qu’elles sont bien négligeables.

rayon et demi-hauteur du cœur (m)	1.5
hauteur de sel au-dessus du réflecteur (cm)	47
épaisseur cylindrique des “échangeurs” (cm)	6.0
volume total du circuit primaire de sel (m <sup>3</sup> )	41.7
volume de sel en cœur (m <sup>3</sup> )	27.8
volume de sel dans les “échangeurs” (m <sup>3</sup> )	13.9

TAB. 3.1 – *Caractéristiques géométriques du RSF (U/Pu)Cl<sub>3</sub> de 2500 MWth.*

Tous ces dimensionnements ont été grandement facilités par l’utilisation d’un programme d’interfaçage de MCNP, permettant de paramétrer automatiquement la description de la géométrie du système dans les fichiers d’entrée de MCNP. Les principales dimensions résultant de ces considérations sont données dans le tableau 3.1. La coupe de la figure 3.1 respecte les proportions de ces dimensions, conservées dans toute la suite.

## **b - Recherche d’un point de fonctionnement initial**

Le sel initial de référence choisi est NaCl-(U+Pu)Cl<sub>3</sub>, avec une proportion molaire de noyaux lourds de 36% (uranium et plutonium au démarrage). Nous avons vu au chapitre précédent qu’à cette proportion molaire de noyaux lourds, les sels NaCl-UCl<sub>3</sub> et NaCl-PuCl<sub>3</sub> présentent des eutectiques fondant respectivement à 520 et 453 °C. En procédant par dichotomie sur le calcul du coefficient de multiplication effectif  $k_{eff}$  par MCNP, on détermine que la teneur des actinides en plutonium nécessaire pour rendre le système critique au démarrage est de 15.0%. Le plutonium utilisé est issu d’un combustible REP UOX usé, après 5 ans de refroidissement [36]. Au démarrage de ce réacteur, l’inventaire d’uranium est de 82 t, et celui de plutonium de 14.5 t. La densité du sel ainsi obtenu est d’environ 3.8 g/cm<sup>3</sup> à 900 K [21]. En sels chlorures, les actinides sont majoritairement de valence 3. La concentration de chlore, choisi naturel, sera

donc régulièrement ajustée dans le sel combustible, de sorte que chaque actinide soit associé à 3 noyaux de chlore, et chaque produit de fission à 1.5 noyaux de chlore en moyenne.

Enfin, on vérifie a posteriori que le dimensionnement des réflecteurs en nickel est satisfaisant. A partir de la configuration de référence décrite précédemment, on constate que la réactivité varie très peu lorsqu'on fait varier l'épaisseur du réflecteur radial à volume total de sel constant. On calcule ainsi un  $k_{eff}$  de  $1.000 \pm 0.001$  pour une épaisseur de 20 cm,  $1.001 \pm 0.001$  pour 40 cm et  $1.002 \pm 0.001$  pour 60 et 80 cm. On considère donc infinie l'épaisseur de 80 cm, et on s'y limite afin de conserver une épaisseur de sel suffisante dans les échangeurs.

	cœur	échangeurs	total
flux ( $\text{n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ )	$1.81 \cdot 10^{15}$	$0.15 \cdot 10^{15}$	$1.26 \cdot 10^{15}$
volume ( $\text{m}^3$ )	27.8	13.9	41.7
$N^{238\text{U}}$ (mol)	$2.30 \cdot 10^5$	$1.15 \cdot 10^5$	$3.45 \cdot 10^5$
$\sigma_{capture}^{238\text{U}}$ (barn)	0.26	0.28	0.26
$\tau_{cap}^{238\text{U}}$ (mol/jour)	9.35	0.42	<b>9.77</b>
$N^{239\text{Pu}}$ (mol)	$2.16 \cdot 10^4$	$1.08 \cdot 10^4$	$3.24 \cdot 10^4$
$\sigma_{fission}^{239\text{Pu}}$ (barn)	1.75	2.21	1.76
$\sigma_{capture}^{239\text{Pu}}$ (barn)	0.43	0.62	0.44
$\tau_{abs}^{239\text{Pu}}$ (mol/jour)	7.36	0.40	<b>7.76</b>

TAB. 3.2 – Valeurs initiales des inventaires  $N$ , des sections efficaces moyennes  $\sigma$  et des taux de réaction  $\tau$  de  $^{238}\text{U}$  et du  $^{239}\text{Pu}$  dans le sel combustible  $\text{NaCl}-(\text{U}/\text{Pu})\text{Cl}_3$ , détaillées cellule par cellule pour le calcul du taux de régénération total du système.

Pour que ce réacteur puisse fonctionner en producteur d'énergie, il faut qu'il soit au moins régénérateur dès son démarrage, c'est-à-dire qu'il produise par capture sur  $^{238}\text{U}$  autant de  $^{239}\text{Pu}$  qu'il n'en consomme par fission et capture. On calcule donc son taux de régénération  $\tau$ , qui est le rapport du taux de production total de  $^{239}\text{Pu}$  sur son taux total de disparition. Le tableau 3.2 détaille les grandeurs nécessaires à ce calcul, et permet de vérifier qu'un taux de réaction total dans le circuit de sel combustible peut s'obtenir soit par la somme des taux de réaction dans chaque cellule, soit à partir de la section efficace moyenne globale et du flux moyen. Les sections efficaces moyennes globales, caractérisant l'ensemble du sel combustible, sont naturellement très proches des valeurs moyennes du cœur. On obtient un taux  $\tau_{cap}^{238\text{U}}$  de capture total de  $^{238}\text{U}$  de 9.77 mol/jour, et un taux  $\tau_{abs}^{239\text{Pu}}$  d'absorption du  $^{239}\text{Pu}$  de 7.76 mol/jour. Le taux de régénération total est simplement leur rapport et vaut environ 1.26, ce qui signifie qu'au démarrage, le système surgénère environ 30% du  $^{239}\text{Pu}$  qu'il consomme.

## c - Proposition d'un retraitement en ligne associé au réacteur

### • Opérations à effectuer

Un fois la géométrie décrite précisément, il faut y associer un retraitement en ligne, destiné d'abord à extraire les produits de fission. On a déjà vu qu'il était pour cela nécessaire d'extraire les actinides avant. Une autre fonction du retraitement en ligne est dans le cas présent d'approvisionner le sel en  $U_{nat}$ , consommé au taux approximatif d'une tonne par an.

Enfin, la gestion du plutonium contenu dans le sel combustible nécessite une opération supplémentaire si le réacteur n'est pas exactement régénérateur. Si le réacteur est sous-générateur, il faut, en plus de l'uranium, ajouter le plutonium manquant, afin de maintenir la réactivité constante. Dans le cas contraire, il est nécessaire d'extraire en ligne tout plutonium produit en excès. Le problème est que si le système est proche de la régénération, il peut passer d'un état à l'autre avant de se stabiliser une fois l'équilibre atteint. Il faut donc prévoir un dispositif d'extraction de plutonium, entrant en action lorsque le système devient surgénérateur. Une possibilité intéressante consisterait à extraire par électrodéposition (technique pyrochimique présentée au chapitre précédent) un dépôt métallique d'uranium enrichi en plutonium par rapport à la concentration dans le sel. L'opération revient ainsi à extraire l'excès de plutonium. Un procédé similaire est expérimenté aux Etats-Unis à l'Argonne National Laboratory [31].

### • Principe d'une séparation électrochimique U-Pu en ligne

Dans le contexte d'explication de nos méthodes de calcul dans ce chapitre, il ne nous paraît pas nécessaire de présenter ici un procédé pyrochimique validé et opérationnel. Il s'agit plutôt de proposer une solution envisageable, sachant que d'autres peuvent être étudiées (volatilisation, cristallisation, ...). Nous nous contenterons donc d'une description idéale de ce dispositif d'extraction de plutonium, représenté schématiquement sur la figure 3.2. On y retrouve les deux extractions réductrices successives habituelles (actinides puis lanthanides), par contact entre le sel combustible et du cadmium chargé en Na, jouant le rôle du métal solvant réducteur. La concentration  $C_1$  du Cd en Na au niveau de la première extraction est telle que les lanthanides n'y sont pas réduits. Le second contacteur sel-métal avec un alliage plus riche en Na (concentration  $C_2$ ) permet d'éliminer une partie des lanthanides par réduction également. Ces deux étapes tendent à augmenter la quantité de NaCl dans le sel combustible et impliquent donc un ajustement régulier de cette dernière.

Détaillons à présent le fonctionnement idéal du dispositif d'extraction de plutonium, qui n'a ici, rappelons-le, que valeur de principe. Le cadmium liquide (chargé en actinides à l'issue de l'extraction réductrice de ces derniers) est placé à l'anode (électrode indiquée par un signe "+") d'une cellule d'électrolyse. Une première cathode est plongée dans un bain de chlorures servant d'électrolyte (LiCl-KCl à 500 °C, ou éventuellement NaCl à plus haute température). Les éléments présents dans le cadmium liquide sont ainsi oxydés et passent dans le sel, puis certains

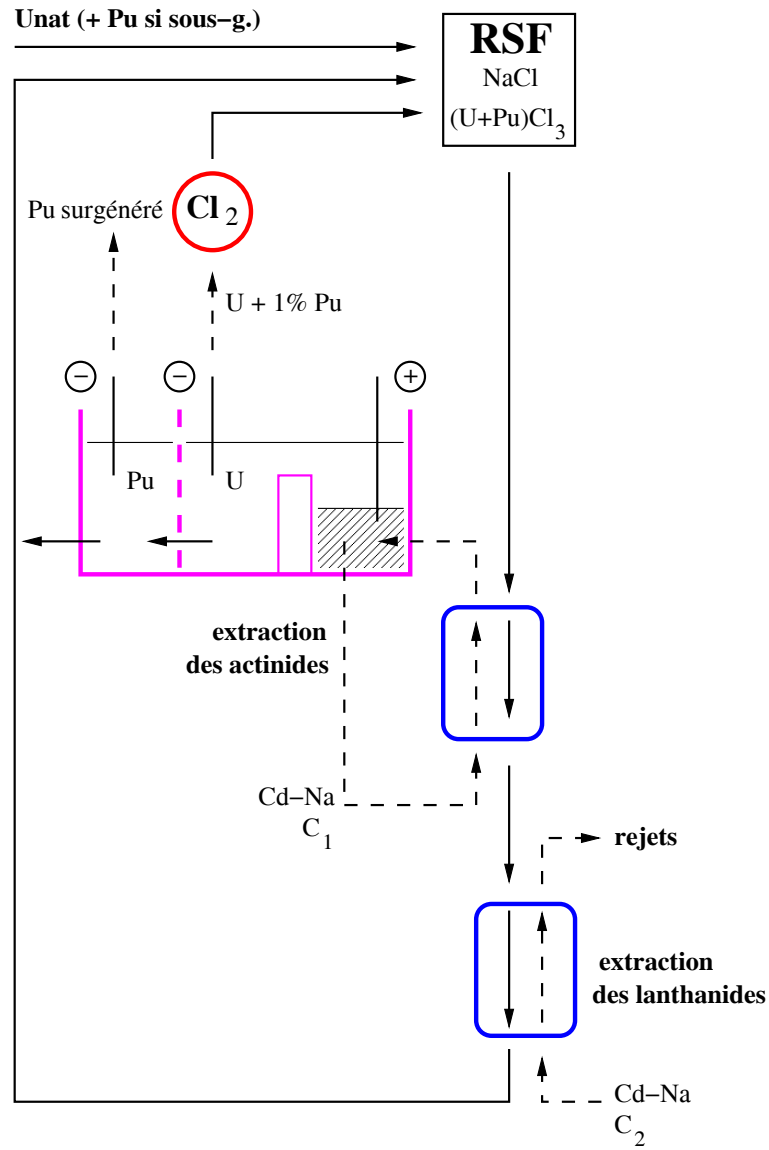


FIG. 3.2 – Schéma de principe du retraitement en ligne du RSF  $(U/Pu)Cl_3$ , équipé d'un dispositif d'extraction de plutonium en cas de surgénération de ce dernier.



sont réduits sur la cathode. La nature du métal ainsi déposé dépend de la tension imposée à la cathode qu'on règle de façon à extraire préférentiellement l'uranium, accompagné d'un peu de plutonium (proportion de l'ordre de 1%). Puis la cathode est extraite et débarrassée du dépôt métallique d'uranium qu'on réinjecte dans le sel après chloration. Une seconde cathode (représentée à gauche de la première sur le schéma) est alors plongée à son tour et permet d'extraire le plutonium, ou du moins en pratique un mélange uranium-plutonium enrichi en plutonium par rapport à la concentration du sel. En faisant circuler le sel dans la cellule d'électrolyse, il est envisageable de procéder à ces deux extractions successivement. L'extraction du plutonium en excès peut alors se faire de façon continue, et en régime stationnaire. En fin d'opération, le sel de la cellule contenant encore de l'uranium, du plutonium et des traces de lanthanides peut être recyclé et réinjecté dans le circuit de sel combustible, comme le suggère le schéma.

Une partie annexe de l'usine de retraitement, qui n'est pas représentée sur le schéma, est chargée de gérer la concentration du sel combustible en NaCl. Les deux étapes successives d'extraction réductrice des actinides puis des lanthanides s'accompagnent en effet d'un excès de NaCl dans le sel combustible, qu'il faut compenser. Il s'agit en fait de réduire électrochimiquement cet excès de NaCl pour reconstituer les alliages Cd-Na utilisés au niveau des deux extractions précédemment évoquées. Avant la réinjection des actinides, le sel combustible est pour cela placé dans une cellule de réduction électrochimique du NaCl. On forme alors à la cathode un alliage Cd-Na (récupéré pour les extracteurs), et à l'anode du chlore gazeux  $\text{Cl}_2$  qu'on utilise pour la chloration précédant la réinjection de l'uranium extrait.

## 3.2 Couplage de MCNP à un programme d'évolution

Nous venons de décrire précisément le réacteur destiné à illustrer les méthodes de simulation mises au point. Il s'agit à présent de montrer comment le code MCNP est utilisé pour calculer l'évolution des caractéristiques du système une fois démarré. Dans ce but, nous avons développé autour de MCNP des méthodes, dont l'objectif principal est de fournir, tout au long de l'évolution du système, des résultats à la précision imposée par l'utilisateur. L'ensemble des protocoles mis au point pour ce faire est appelé "REM" (Règles pour les calculs d'Evolution avec MCNP). Nous allons détailler le fonctionnement de REM selon trois grandes parties, en nous basant sur le schéma de la figure 3.3. Nous avons déjà vu que l'utilisation de MCNP nécessite la définition d'une géométrie précise, qui se fait par l'intermédiaire d'un fichier d'entrée, construit au niveau de la phase de "préparation". Pour pouvoir faire calculer les taux de réaction par MCNP et ensuite intégrer les équations d'évolution, il faut en outre disposer dès le départ des données nucléaires (réactions disponibles, sections efficaces, décroissances) et chimiques (taux d'extraction). C'est cette exploitation des bases de données que nous allons donc décrire dans un premier temps. Ensuite, nous décrirons plus en détail comment est réalisé le calcul de l'évolution à proprement

parler (étape “intégration” du schéma de la figure 3.3). Nous verrons que ce calcul se fait sur trois niveaux en temps, dont chacun remplit une fonction bien précise. Enfin, nous présenterons les résultats de base qui sont obtenus, et ceux qu’on peut en déduire.

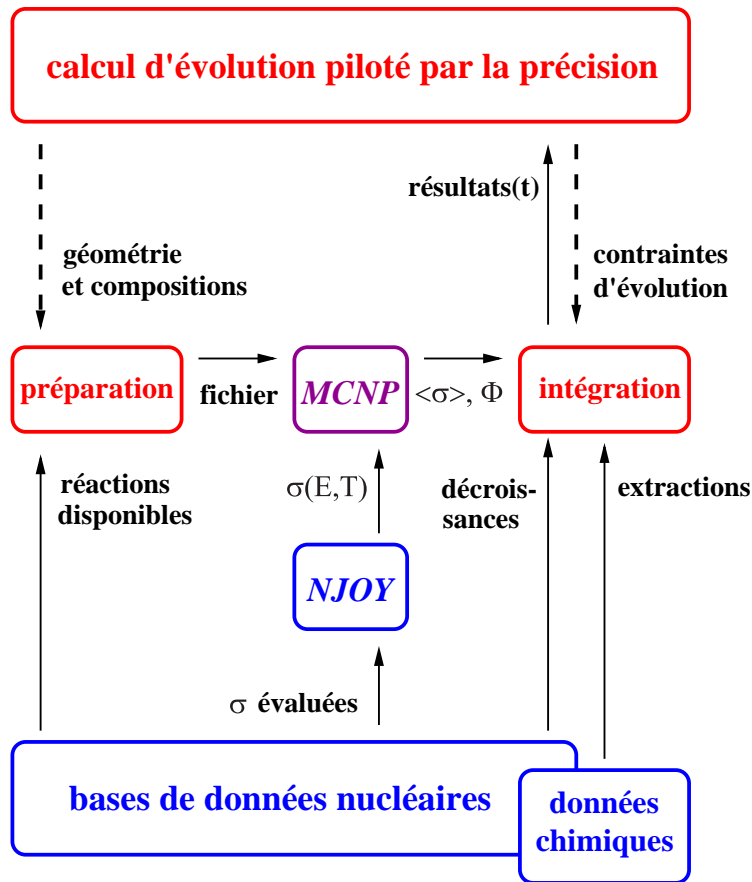


FIG. 3.3 – Organisation des outils d'évolution autour du code MCNP.

### 3.2.1 Exploitation optimale des données

#### a - Données nucléaires

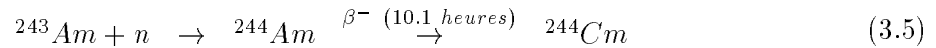
Deux types de données sont nécessaires, et disponibles dans les bases de données : celles définissant pour chaque noyau les transformations possibles, et celles utilisées par MCNP pour le calcul des flux et des sections efficaces moyennes.

- **Réactions et décroissances naturelles**

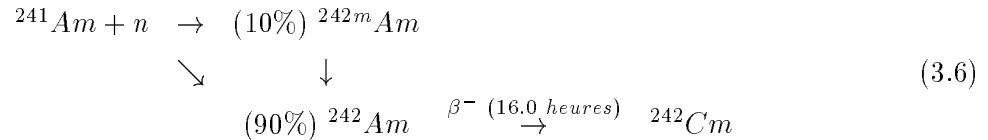
L'“arbre” d'évolution est déterminé une fois pour toutes au tout début d'un calcul d'évolution, pour chaque cellule ou groupe de cellules dont on souhaite suivre l'évolution (combustible, matériaux de structure). Il permet de définir la trame des transformations permettant de passer

d'un noyau à un autre, soit par réaction nucléaire, soit par désintégration. Cet arbre est construit de proche en proche, au cours de la lecture des données, et concerne tous les noyaux présents initialement ou produits plus tard dans le réacteur. En ce qui concerne les réactions nucléaires, on ne peut tenir compte dans l'arbre d'évolution que de celles dont les sections efficaces sont disponibles dans la base de données choisie. Pour ce faire, nous utilisons un module de REM permettant de lire les informations au format ENDF concernant tous les noyaux susceptibles d'apparaître en cours d'évolution et d'en extraire les réactions disponibles. Ce module est basé sur l'organisation du format ENDF tel qu'il est défini dans la référence [37].

Les données concernant les décroissances naturelles des noyaux intervenant dans un calcul d'évolution sont lues dans un fichier regroupant les modes de décroissance et les demi-vies associées de tous les noyaux de la charte des nucléides. Pour alléger l'arbre d'évolution et limiter la taille du système à intégrer, on procède à un court-circuit des décroissances trop rapides, en fixant un seuil sur la demi-vie des noyaux. Cela revient à considérer que la décroissance est instantanée, et donc que le noyau père n'existe pas : il a été "élagué" de l'arbre d'évolution. Dans toute la suite, ce seuil sur la demi-vie est fixé à 10 h. Le nombre total de noyaux présents dans l'arbre complet du sel combustible (U/Pu)Cl<sub>3</sub> avec le seuil retenu à 10 h, contre 1020 pour un seuil fixé à 1 h et 760 pour un seuil fixé à 100 h. La valeur de seuil retenue de 10 h permet par exemple de traiter de façon exacte la décroissance de l'<sup>244</sup>Am en <sup>244</sup>Cm :



Elle est également assez basse pour autoriser le calcul détaillé de la production de <sup>242</sup>Cm à partir de l'<sup>242</sup>Am et de son isomère :



Le schéma 3.6, conservé dans toute la suite, suppose que la production du <sup>242m</sup>Am par capture de l'<sup>241</sup>Am se fait avec un rapport de branchement de 10%. Cette valeur a été vérifiée par des mesures effectuées dans le domaine des énergies thermiques [38], et peut être appliquée également en première approximation en spectre rapide.

#### • Traitement des sections efficaces pour MCNP

Le schéma de la figure 3.3 montre que les sections efficaces au format ENDF ne sont pas directement lues par MCNP. Une conversion préalable est nécessaire, au format ACE (A Compact

ENDF). Afin de disposer de toutes les sections efficaces nécessaires, et ainsi de ne pas se limiter à celles fournies par défaut avec MCNP, nous avons développé un module utilisant le code NJOY [39]. Le code NJOY permet entre autres de convertir les fichiers ENDF au format ACE. Au cours de la construction de l'arbre d'évolution, notre module est appelé lorsqu'un noyau n'a pas de fichier correspondant lisible par MCNP, et appelle lui-même NJOY. Si le noyau en question n'est pas décrit dans la base choisie, les autres bases sont examinées, dans l'ordre de priorité précédemment défini. Il résulte de ce processus une base regroupant toutes les données nécessaires aux calculs MCNP à venir.

Le recours à NJOY nous permet de disposer de produits de fission explicites, sans devoir recourir aux pseudo-produits de fission fournis avec MCNP. Nous pourrions ainsi par la suite établir dans le détail quels sont les produits de fission les plus gênants. Par ailleurs, NJOY calcule pour chaque noyau l'élargissement des résonances par effet Doppler, en tenant compte de la température du combustible. A cet effet, les noyaux sont différenciés non seulement selon leur numéro atomique, leur nombre de masse et leur niveau isomérique, mais aussi selon la température du matériau où ils se trouvent dans le réacteur. Nous tenons également compte des effets de réseau cristallin intervenant aux énergies thermiques dans les modérateurs, comme le graphite. Dans le cas de matériaux de structure, il est enfin possible de calculer la section efficace de production d'énergie de déplacement, utile pour évaluer les dommages causés par les neutrons, en termes de dpa (déplacements par atome).

## **b - Données d'extraction pyrochimique**

La simulation rigoureuse d'un RSF à retraitement continu impose de tenir compte à chaque instant des différentes opérations d'extraction et de réinjection. Cela suppose de quantifier les performances requises des procédés utilisés, puis de les modéliser afin de modifier la composition du sel combustible en conséquence. En conservant l'exemple simple du RSF à sels chlorures et à cycle uranium, nous allons exposer les principes de la simulation du retraitement en ligne en général, et de l'extraction des produits de fission en particulier.

### **• Principe des décroissances fictives**

La première caractéristique du retraitement en ligne est le temps que met l'ensemble du sel combustible pour circuler dans l'usine de retraitement, qu'on appelle désormais durée totale de retraitement  $T$ . Considérons un élément  $e$  du sel à extraire, dont le sel contient  $N_e$  moles. La quantité  $dN_e$  de l'élément  $e$  extraite pendant le laps de temps  $dt$  est proportionnelle à la quantité de cet élément soumise à l'extraction, c'est-à-dire à  $N_e \times \frac{dt}{T}$ . L'extraction se faisant avec un rendement de  $\varepsilon_e$ , seule une proportion  $\varepsilon_e$  de la quantité de l'élément  $e$  qui est passée par le retraitement est effectivement extraite, ce qui s'écrit :

$$dN_e = N_e \frac{dt}{T} \varepsilon_e \quad (3.7)$$

La formule 3.7 montre que l'extraction de l'élément  $e$  se comporte comme une désintégration radioactive de constante de temps  $\lambda_e = \frac{\varepsilon_e}{T}$ . Toute extraction va être ainsi modélisée dans la suite, le problème étant de définir soigneusement les valeurs  $\varepsilon_e$ , qu'on appelle désormais les efficacités d'extraction. Notons que l'ensemble des décroissances fictives permettant de tenir compte des extractions est intégré à l'arbre des décroissances naturelles précédemment évoqué, et intervient sur l'élagage de ce dernier si nécessaire.

### • Extraction des produits de fission

On rappelle que l'extraction réductrice des produits de fission nécessite une extraction préalable des actinides, destinée à limiter les rejets de ces derniers aux déchets. L'efficacité d'extraction  $\varepsilon_e$  d'un produit de fission dépend d'abord du coefficient de partage de son élément  $e$  dans le système sel/métal utilisé. Mais elle dépend aussi des performances cinétiques du procédé d'extraction, qui varient par exemple en fonction la taille des contacteurs. L'efficacité  $\varepsilon_e$  est donc une valeur pratique, macroscopique, qui caractérise globalement la proportion effectivement extraite de l'élément  $e$ . Il est par conséquent difficile d'évaluer des efficacités d'extraction sans avoir une idée précise des performances attendues de l'usine de retraitement, ce qui explique que les seules valeurs disponibles soient celles données par le projet MSBR. Ces valeurs ont été reprises lors des études du concept par EDF dans les années 1980, et détaillées élément par élément [40]. Précisons que ces données ne sont pas le résultat de mesures précises, mais bien plutôt la traduction de souhaits quant aux performances hypothétiques du procédé d'extraction des lanthanides. Nous allons les détailler, et montrer qu'elles peuvent s'appliquer en première approximation à tous les réacteurs à sels fondus, qu'ils soient à sels fluorures ou chlorures.

classes	familles	éléments	$\varepsilon_e$ (%)	$1/\lambda_e$ (jours)
<b>1</b>	terres rares et halogènes	Nd, Pm, Sm, Eu Br, I	<b>20</b>	50
<b>2</b>	métaux "semi-nobles"	Zr In, Sn, Sb	<b>5</b>	200
<b>3</b>	éléments alcalins	Sr, Cs, Ba	<b>1</b>	1000

TAB. 3.3 – *Classes d'efficacité d'extraction des produits de fission solubles, représentatives des performances recherchées pour le retraitement du projet MSBR.*

Il est commode de regrouper les valeurs souhaitées pour les produits de fission solubles en trois classes d'efficacités, présentées dans le tableau 3.3. Y figurent également pour une durée

de retraitement  $T$  de 10 jours les constantes de temps caractéristiques  $1/\lambda_e$  associées. La classe 1, d'efficacité 20%, est avant tout celle des terres rares, qui sont les produits de fission qu'on souhaite extraire en priorité à cause de leur forte section efficace de capture. Les classes 2 et 3 ont des efficacités moindres (5 et 1%), et peuvent être considérées comme des résidus résultant de l'extraction préférentielle des terres rares.

Une quatrième catégorie de produits de fission existe, pour laquelle une extraction se fait à une vitesse indépendante des procédés pyrochimiques prévus. Cette catégorie est constituée des éléments s'échappant très rapidement du sel, qui sont de deux types; soit gazeux (xénon), soit se présentant sous la forme de petites particules métalliques (technétium). Contrairement au cas des produits de fission solubles, l'extraction de ces éléments ne repose sur aucune hypothèse qui n'ait pas été vérifiée expérimentalement. Ainsi, l'expérience du MSRE montre qu'ils sont emportés hors du sel par le bullage d'hélium en un temps caractéristique inférieur à la minute [15]. Ces éléments sont regroupés dans la classe 0, caractérisée non pas par une efficacité, mais par une constante de temps d'extraction  $\lambda_e$  telle que  $\frac{1}{\lambda_e} = 30$  s.

19 K <b>3</b>	20 Ca <b>3</b>	21 Sc <b>1</b>	22 Ti <b>1</b>	23 V <b>1</b>	24 Cr <b>2</b>	25 Mn <b>2</b>	26 Fe <b>2</b>	27 Co <b>2</b>	28 Ni <b>2</b>	29 Cu <b>2</b>	30 Zn <b>2</b>	31 Ga <b>2</b>	32 Ge <b>2</b>	33 As <b>0</b>	34 Se <b>0</b>	35 Br <b>1</b>	36 Kr <b>0</b>
37 Rb <b>3</b>	38 Sr <b>3</b>	39 Y <b>1</b>	40 Zr <b>2</b>	41 Nb <b>0</b>	42 Mo <b>0</b>	43 Tc <b>0</b>	44 Ru <b>0</b>	45 Rh <b>0</b>	46 Pd <b>0</b>	47 Ag <b>0</b>	48 Cd <b>2</b>	49 In <b>2</b>	50 Sn <b>2</b>	51 Sb <b>2</b>	52 Te <b>0</b>	53 I <b>1</b>	54 Xe <b>0</b>
55 Cs <b>3</b>	56 Ba <b>3</b>	57 - La - <b>1</b>	72 Hf <b>2</b>	73 Ta <b>2</b>	74 W <b>2</b>	75 Re <b>2</b>	76 Os <b>2</b>	77 Ir <b>2</b>	78 Pt <b>2</b>	79 Au <b>2</b>	80 Hg <b>2</b>	81 Tl <b>2</b>	82 Pb <b>2</b>	83 Bi <b>2</b>	84 Po <b>0</b>	85 At <b>1</b>	86 Rn <b>0</b>

TAB. 3.4 – Extrait de la classification périodique des éléments illustrant la répartition des classes d'efficacité (0, 1, 2 et 3) souhaitées et supposées des produits de fission [40].

Le tableau 3.4 représente l'intégralité des périodes 4, 5 et 6 de la classification périodique des éléments chimiques. Les lanthanides sont les éléments de numéro atomique compris entre 57 (lanthane) et 71 (lutécium), et sont tous regroupés dans la troisième case de la période 6 (dernière ligne du tableau 3.4). Pour chacun de ces éléments extraits en qualité de produit de fission, on indique au-dessus du symbole chimique le numéro atomique, et en dessous le numéro de la classe d'efficacité à laquelle il appartient. On retrouve dans ce détail les grandes familles indiquées précédemment. La classe 0 regroupe ainsi les gaz rares (dernière colonne) et les métaux nobles situés entre le niobium et l'argent. Outre les éléments de la troisième colonne, parmi lesquels figurent les lanthanides, la classe 1 inclut les halogènes (avant-dernière colonne). La classe 3 ne concerne que les alcalins et alcalino-terreux (deux premières colonnes).

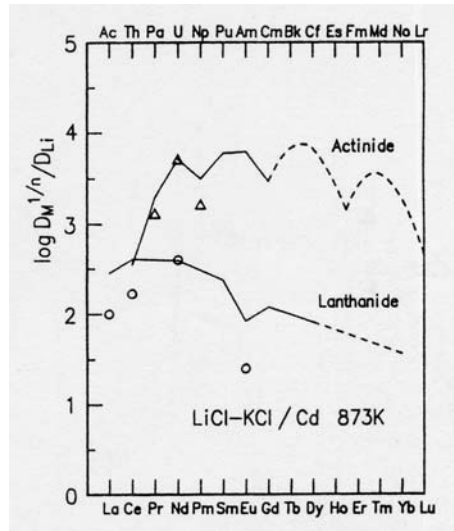


FIG. 3.4 – Coefficients de partage d’actinides (triangles) et de lanthanides (ronds) mesurés dans le système d’extraction réductrice  $\text{LiCl-KCl/Cd}$  à 873 K [41]. Les courbes regroupent les coefficients mesurés dans le système  $\text{LiF-BeF}_2/\text{Bi}$  à la même température.

Ces classes caractérisent globalement l’extraction des produits de fission du MSBR, basée sur l’extraction réductrice entre un sel de type  $\text{FLiBe}$  et un métal liquide réducteur qui est le bismuth. Ces valeurs sont en fait généralisables en première approximation à d’autres systèmes, à commencer par le contact entre un sel de chlorures et du cadmium, que nous avons choisi de prendre en exemple dans ce chapitre. La figure 3.4 donne les coefficients de partage  $D_M$  des lanthanides (abscisse inférieure) et des actinides (abscisse supérieure) dans le système d’extraction  $\text{LiCl-KCl/Cd}$  à environ 900 K, et les compare aux valeurs obtenues dans le système  $\text{LiF-BeF}_2/\text{Bi}$ . Plus précisément, les valeurs indiquées sont celles de la grandeur  $\log(D_M^{1/n}/D_{Li})$ , avec  $D_{Li}$  coefficient de partage du lithium et  $n$  valence de l’élément  $M$  extrait. D’après la formule 2.3 du chapitre précédent, cette grandeur est égale à  $\frac{\log K}{n}$ ,  $K$  étant la constante de la réaction d’extraction et  $\log K$  représentant l’ordonnée à l’origine des droites de partage (valeur  $\log D_M$  du coefficient de partage obtenue pour  $\log D_{Li} = 0$ ). Pour chaque couple d’éléments comparés, la figure 3.4 nous fournit donc l’écart constant entre leurs droites de partage, au facteur près du rapport de leurs valences qu’on néglige dans les raisonnements à suivre. En première approximation, l’influence de la composition du sel sur les coefficients de partage d’un système d’extraction réductrice peut être négligée devant celle du métal solvant réducteur choisi [42]. Les données de la figure 3.4 sont donc caractéristiques du système chlorures/Cd d’une part, et du système fluorures/Bi d’autre part, et seront analysées comme telles dans ce qui suit.

On constate d’abord que les deux systèmes présentent sensiblement le même écart entre les coefficients de partage à l’origine ( $\log K$ ) des actinides et ceux des lanthanides, entre 10 et

100 fois plus faibles. Cela confirme dans les deux cas la nécessité de procéder à une extraction préalable des actinides. On remarque également que les coefficients de partage des lanthanides en chlorures/Cd sont proches de ceux dans le retraitement du MSBR, et présentent la même dépendance avec le numéro atomique. En particulier, le néodyme qui est avec le samarium un gros consommateur de neutrons, a le même coefficient dans les deux systèmes. Ceci permet de conserver pour le retraitement d'un RSF à sels chlorures une efficacité d'extraction des terres rares de 20%. La répartition des autres éléments au sein des classes d'efficacité inférieure est supposée inchangée. L'incidence de cette dernière approximation est limitée dans la mesure où le spectre de notre RSF à sels chlorures est rapide, ce qui limite l'empoisonnement lié aux produits de fission. Nous vérifierons ainsi que seuls les lanthanides jouent un rôle significatif dans le bilan neutronique. Enfin, les éléments insolubles (classe 0), soit gazeux soit métalliques, restent inchangés et sont toujours entraînés par un bullage d'hélium, comme dans un RSF à sels fluorures. Les efficacités d'extraction du tableau 3.4 seront donc conservées dans toutes les études à suivre, qui pourront néanmoins se distinguer par des durées de retraitement  $T$  différentes.

#### • Rejets en actinides

La perte d'actinides au moment de l'étape d'extraction des produits de fission se simule de la même façon. On a estimé au chapitre précédent qu'à chaque passage du volume total de sel dans l'usine de retraitement (durée de retraitement  $T = 10$  jours), la proportion de pertes en actinides devait se limiter à  $10^{-5}$  pour être comparable aux pertes d'un retraitement performant de combustible solide. Cette proportion de  $10^{-5}$  n'est rien d'autre qu'une efficacité d'"extraction", qu'on attribue à tous les actinides présents dans le sel.

#### • Gestion de la surgénération de plutonium

Pour parer à l'éventualité de la surgénération dans ce système, nous avons proposé un dispositif idéal permettant d'extraire du sel combustible le plutonium excédentaire (figure 3.2). Il s'agit naturellement de tenir compte de l'influence de ce dispositif sur la composition du sel en cours d'évolution, ne sachant pas à l'avance quand il sera utilisé. Pour ce faire, nous attribuons aux isotopes du plutonium une décroissance fictive avec une efficacité d'extraction de 1%, ce qui simule une extraction continue de plutonium. Pour maintenir la réactivité constante, nous réinjectons une partie de ce plutonium extrait en réglant le débit de cette réinjection par rapport à l'évolution de  $k_{eff}$ . Si le système est surgénérateur, la quantité de plutonium réinjectée dans le sel est plus faible que la quantité extraite, et on peut comptabiliser le plutonium surgénéré par différence. A l'inverse, si le système est sous-générateur, on réinjecte plus de plutonium qu'on n'en extrait, c'est-à-dire qu'on consomme du plutonium extérieur au système.



### 3.2.2 Structure temporelle de l'intégration

L'évolution de l'inventaire  $N_i$ , c'est-à-dire de la quantité totale contenue dans le sel combustible, du noyau  $i$  soumis au flux  $\phi$  s'obtient par la résolution de cette équation :

$$\frac{dN_i(t)}{dt} = - N_i(t)\sigma_i^{abs}\phi + \sum_j N_j(t)\sigma_{j\rightarrow i}^{cap}\phi - \lambda_i N_i(t) + \sum_j \lambda_{j\rightarrow i} N_j(t) \quad (3.8)$$

avec

- $N_i(t)$  le nombre de noyaux  $i$  à l'instant  $t$
- $\sigma_i^{abs}$  la section efficace moyenne d'absorption du noyau  $i$
- $\sigma_{j\rightarrow i}^{cap}$  la section efficace moyenne de la réaction sur le noyau  $j$  produisant le noyau  $i$
- $\lambda_i$  la constante de décroissance totale du noyau  $i$
- $\lambda_{j\rightarrow i}$  la constante de décroissance partielle du noyau  $j$  vers le noyau  $i$

L'équation 3.8 peut s'écrire pour chaque noyau de l'arbre d'évolution, qui en compte plusieurs centaines en tout, produits de fission compris. L'ensemble de ces équations constitue un système d'équations couplées, dont la résolution numérique fournit la composition du sel combustible à chaque instant. REM soumet ce calcul à trois types de contraintes, qui permettent de valider de proche en proche la composition obtenue en cours d'évolution. Ces trois types de contraintes correspondent à trois niveaux superposés de pas de calcul, détaillés de façon progressive sur la figure 3.5.

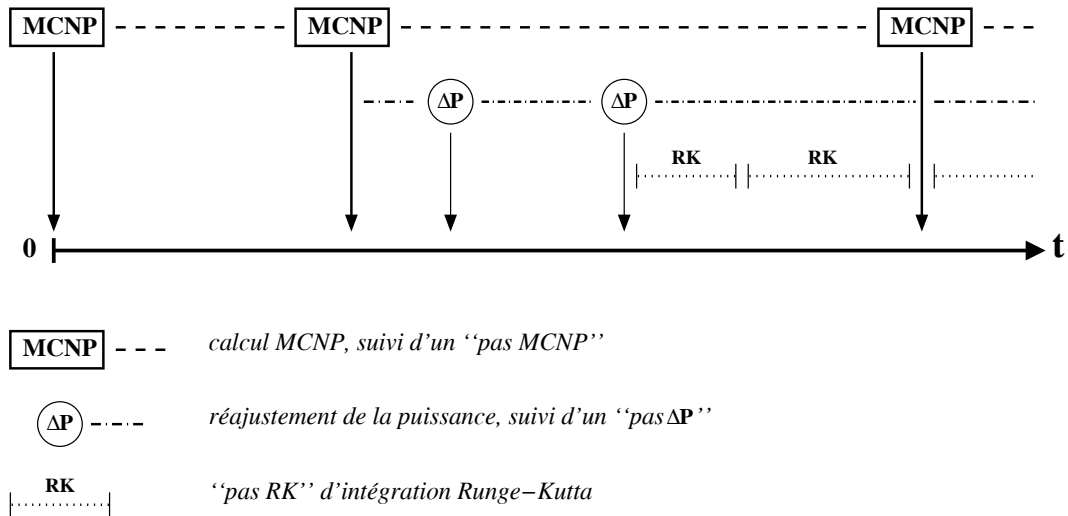


FIG. 3.5 – Détail progressif des trois niveaux du calcul d'évolution dans REM.

La première contrainte est imposée par l'évolution des sections efficaces moyennes, due à la modification du spectre en cours d'évolution. Les calculs MCNP sont donc réalisés de manière à contrôler et prendre en compte cette variation, en essayant chaque fois que c'est possible d'augmenter l'intervalle précédant un nouveau calcul MCNP destiné à déterminer les nouvelles valeurs des sections efficaces moyennes ("pas MCNP"). Au cours d'un pas MCNP, il faut en outre maintenir constants certains paramètres physiques du réacteur simulé, comme la puissance totale ou encore la réactivité. On opère donc chaque fois que c'est nécessaire des réajustements de la puissance, dont nous verrons qu'ils consistent à renormaliser le flux. A l'occasion de ces réajustements, on ajuste également la réactivité du système en ajustant par exemple son inventaire en matière fissile. Entre deux réajustements de la puissance ("pas  $\Delta P$ "), il reste enfin à intégrer numériquement les équations d'évolution. On a recours pour cela à une méthode d'intégration par pas variable de type Runge-Kutta ("pas RK"), qu'on allonge dans la mesure où la précision sur les résultats imposée par l'utilisateur le permet.

### a - Variation des sections efficaces moyennes

Les calculs MCNP doivent être réalisés d'autant plus fréquemment que les sections efficaces moyennes évoluent rapidement. A l'inverse, lorsque le système approche de l'équilibre et que les sections efficaces moyennes se stabilisent, il est possible d'augmenter les pas MCNP. Nous avons mis au point dans REM une méthode permettant de vérifier que la longueur du pas MCNP réalisé est satisfaisante compte tenu de la précision exigée, et de déterminer une taille optimale pour le pas MCNP suivant. Cette méthode est appliquée à toutes les sections efficaces intervenant dans le calcul d'évolution.

Avant de présenter un exemple précis dans le cas du RSF (U/Pu)Cl<sub>3</sub>, expliquons le principe général de la méthode. Considérons l'instant  $t_i$  correspondant à la fin du dernier pas MCNP en cours, qui vient d'être validé. La longueur du pas MCNP suivant est fixée à  $\Delta t$ , et une première évolution est réalisée de  $t_i$  à  $t_{i+1} = t_i + \Delta t$ . Pour ce calcul, les sections efficaces sont prises constantes, et égales aux valeurs validées pour l'instant  $t_i$ . Une première solution  $\vec{N}_1(t_{i+1})$  est alors obtenue pour la composition isotopique du sel à l'instant  $t_{i+1}$ . Un premier calcul MCNP est effectué avec cette composition à  $t = t_{i+1}$ , et fournit une première estimation  $\vec{\sigma}_1(t_{i+1})$  de l'ensemble des sections efficaces à l'instant  $t_{i+1}$ . Les valeurs de chaque section efficace à  $t = t_i$  et  $t = t_{i+1}$  sont interpolées, en imposant la continuité des dérivées en ces points, pour fournir une loi dépendant du temps sur le pas MCNP en cours. Une seconde évolution utilisant ces nouvelles sections efficaces dépendant du temps est réalisée à nouveau entre  $t_i$  à  $t_{i+1}$ , et fournit une nouvelle composition solution  $\vec{N}_2(t_{i+1})$ . Par un test de  $\chi^2$  tenant compte d'une "précision MCNP" fournie par l'utilisateur, les deux compositions solutions  $\vec{N}_1(t_{i+1})$  et  $\vec{N}_2(t_{i+1})$  sont comparées. Si la précision est satisfaisante, la solution  $\vec{N}_2(t_{i+1})$  et le pas MCNP  $[t_i, t_{i+1}]$  sont validés, et REM passe au calcul du pas MCNP suivant en augmentant sa longueur par rapport à

celle du pas précédent. Dans le cas contraire, un second calcul MCNP est effectué à  $t = t_{i+1}$  avec la composition  $\vec{N}_2(t_{i+1})$ , et fournit un second jeu  $\vec{\sigma}_2(t_{i+1})$  de sections efficaces. Une troisième évolution tenant compte de ces nouvelles sections efficaces à  $t = t_{i+1}$  est alors réalisée entre  $t = t_i$  et  $t = t_{i+1}$ , et fournit une troisième solution  $\vec{N}_3(t_{i+1})$ . Si le test de  $\chi^2$  entre  $\vec{N}_2(t_{i+1})$  et  $\vec{N}_3(t_{i+1})$  est satisfaisant, REM passe au pas MCNP suivant. Sinon, la longueur du pas MCNP  $[t_i, t_{i+1}]$  est réduite, et son calcul est entièrement repris selon le même processus.

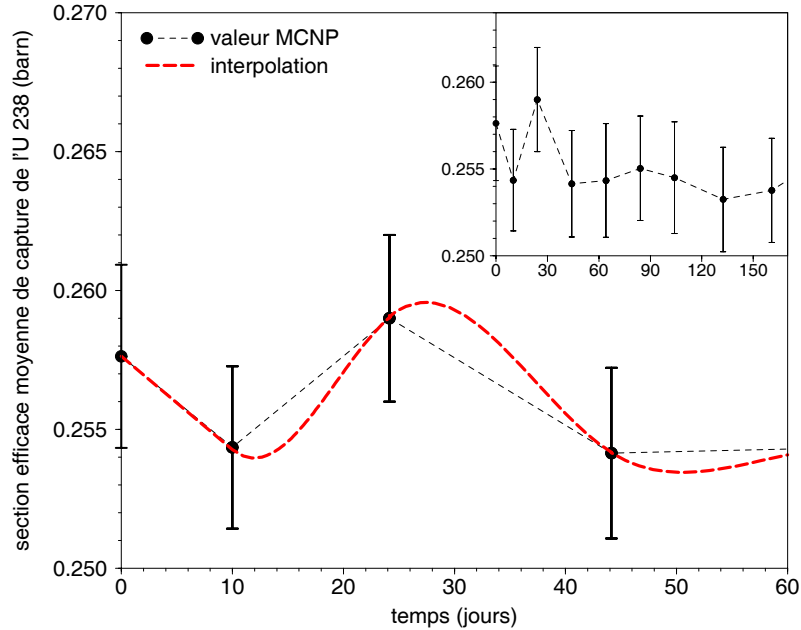


FIG. 3.6 – Prise en compte de l'évolution de la section efficace moyenne globale de capture de  $^{238}\text{U}$ . La figure principale ne représente en entier que les trois premiers pas MCNP. L'encadré représente la même section efficace sur les six premiers mois du calcul d'évolution.

La figure 3.6 montre le résultat de cette méthode appliquée à la section efficace moyenne de capture de  $^{238}\text{U}$ , au démarrage du RSF  $(\text{U}/\text{Pu})\text{Cl}_3$ . La longueur des premiers pas MCNP est progressivement augmentée, d'un facteur choisi égal à  $\sqrt{2}$  à chaque fois. L'interpolation des sections efficaces moyennes utilisées dans le calcul d'évolution permet de tenir compte, dans la limite de la précision fixée des calculs MCNP, d'effets à court terme, par exemple dus à des modifications de retraitement. Cette possibilité n'existe pas dans des codes d'évolution plus simples, pour lesquelles les sections efficaces moyennes restent constantes sur chaque pas MCNP. C'est par exemple le cas du code d'évolution Monteburns [43], développé à Los Alamos pour MCNP, mais qui ne répondait pas suffisamment à nos exigences de précision.

Le début d'un pas MCNP est l'occasion de procéder au réajustement de l'alimentation en noyaux fertiles, soit ici en  $^{238}\text{U}$  pour l'essentiel, afin de maintenir la quantité totale de noyaux lourds (et donc la composition du sel) constante. A partir de la valeur de la section efficace

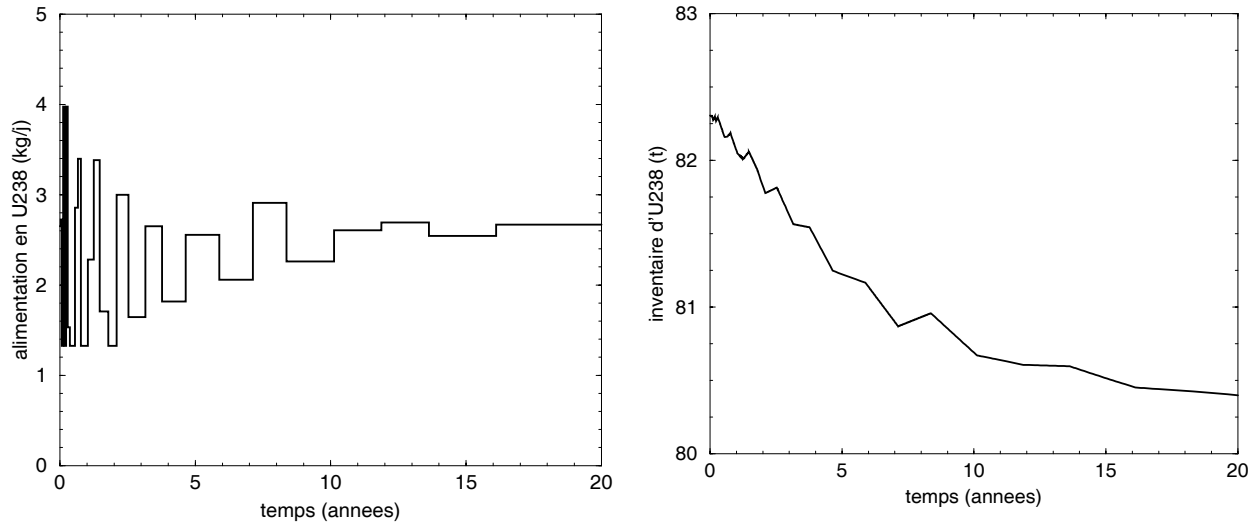


FIG. 3.7 – Evolution de l'alimentation et de l'inventaire d' $^{238}\text{U}$  sous la contrainte d'une proportion constante de noyaux lourds dans le sel.

moyenne de capture de l' $^{238}\text{U}$  au début du pas MCNP courant, on évalue le taux de consommation d' $^{238}\text{U}$  au cours de ce pas, et donc le débit nécessaire à l'approvisionnement du système en  $^{238}\text{U}$ . La figure 3.7 montre la stabilisation de ce débit (graphe de gauche) en une vingtaine d'années, ce qui permet également d'illustrer l'allongement des pas MCNP au cours de la mise à l'équilibre du système simulé. Le graphe de droite montre l'évolution de l'inventaire d' $^{238}\text{U}$ , "saccadée" du fait d'une variation par paliers de l'alimentation en  $^{238}\text{U}$ .

## b - Contraintes physiques d'évolution

Au cours d'un "pas  $\Delta P$ " (figure 3.5), la puissance totale et la réactivité du système restent sensiblement constantes. Nous allons montrer ici comment on procède pour respecter ces deux contraintes imposées par le fonctionnement du réacteur.

### • Evaluation et réajustement de la puissance totale

Disposer à tout instant des sections efficaces moyennes permet d'évaluer en continu la puissance totale  $P$ . On se base pour cela sur tous les taux de fission disponibles et sur le bilan moyen total en énergie d'une fission, qu'on prend égal à 200 MeV.

$$P = \varphi \sum_c \sum_i N_i^c Q_f (\sigma_{f,i} \phi)^c \quad (3.9)$$

avec

–  $\varphi$  le nombre total de neutrons source par seconde

- $N_i^c$  le nombre de noyaux  $i$  dans la cellule  $c$
- $Q_f$  le bilan total moyen en énergie d'une fission (200 MeV)
- $(\sigma_{f,i} \phi)^c$  le nombre de fissions sur  $i$  dans  $c$  par neutron source

Le coefficient  $\varphi$ , qui évolue avec la composition du combustible, est un paramètre important pour ce qui va suivre. Il représente le coefficient de normalisation nécessaire entre le flux  $\phi$  donné par MCNP pour chaque cellule, exprimé par neutron source, et le flux physique (en  $\text{n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ) relié à la puissance et dont nous avons besoin dans les équations d'évolution. Pour mieux illustrer comment intervient ce coefficient de normalisation  $\varphi$  dans le système des équations d'intégration de chaque cellule, on exprime ce dernier de façon matricielle:

$$\frac{d\vec{N}(t)}{dt} = R(t) \varphi \vec{N}(t) + D \vec{N}(t) + \vec{C}(t) \quad (3.10)$$

avec

- $R_{ii} = -\sigma_i^{abs} \phi$ : disparition du noyau  $i$  par absorption d'un neutron
- $R_{ji} = \sigma_{j \rightarrow i} \phi$ : création du noyau  $i$  par réaction sur  $j$
- $D_{ii} = -\lambda_i$ : disparition du noyau  $i$  par décroissance
- $D_{ji} = \lambda_{j \rightarrow i}$ : création du noyau  $i$  par décroissance de  $j$
- $\vec{C}(t)$ : vecteur d'alimentation (apport extérieur de noyaux)

En intégrant ce système sur un pas  $\Delta t$ , la composition du sel va changer de  $\Delta \vec{N}$ , et la puissance de  $\Delta P$ . Pour que le calcul soit effectivement mené à puissance constante, on procède donc par réajustements successifs de  $\varphi$ , de sorte que la variation relative de puissance à  $\varphi$  constant soit toujours inférieure à une valeur maximale imposée par l'utilisateur. Dans toutes nos études, nous imposerons une variation relative  $\frac{\Delta P}{P}$  inférieure à  $10^{-3}$ . Si à l'issue du pas d'intégration fait à  $\varphi$  constant la variation relative de puissance dépasse cette valeur, on reprend le calcul sur un pas  $\Delta t$  plus court. Dans le cas contraire, on calcule la nouvelle valeur de  $\varphi$  (au nouvel instant  $t+\Delta t$  atteint) à partir de la formule 3.9.

### • Pilotage continu de la réactivité

Pour tenir compte dans nos calculs de l'extraction du plutonium surgénéré, nous rappelons qu'une extraction continue du plutonium est simulée (décroissance fictive d'efficacité 1%), et compensée par une réinjection que l'on ajuste. Le critère pour cet ajustement est le maintien d'une réactivité constante, avec  $k_{eff} = 1$  dans notre exemple. On se base pour cela sur une estimation en ligne du coefficient de multiplication effectif  $k_{eff}$  du réacteur, et d'un algorithme

d'ajustement du débit de réinjection de plutonium tenant compte de l'évolution passée du  $k_{eff}$ . Cette méthode est généralisable à tous les types de retraitement, et sera également appliquée aux études ultérieures en cycle thorium, le plutonium étant remplacé par l' $^{233}\text{U}$ .

Notre estimateur de  $k_{eff}$  a la même définition que celui utilisé par MCNP [34]. Cet estimateur est évalué à partir des sections efficaces moyennes interpolées, et nous permet d'avoir accès à la valeur de  $k_{eff}$  à tout instant, indépendamment des calculs MCNP qui se raréfient lorsque le système s'approche de l'équilibre. Il dépend de trois termes, calculés à chaque réajustement de la puissance, c'est-à-dire à chaque réactualisation du coefficient de normalisation du flux  $\varphi$ : MCNP évalue plusieurs fois ces termes en cours de calcul (un calcul par cycle), et moyenne à la fin les valeurs de  $k_{eff}$  obtenues pour en déduire une valeur finale du  $k_{eff}$ . Notre estimation se fait directement à partir des sections efficaces moyennes fournies par MCNP en fin de calcul, et fournit donc des valeurs  $k_{eff}$  différentes des valeurs MCNP. Nous avons naturellement vérifié que notre estimateur était en accord avec celui de MCNP, et que les valeurs obtenues étaient compatibles compte tenu des incertitudes.

$$k_{eff} = \frac{\textit{créations}}{\textit{absorptions} + \textit{fuites}} \quad (3.11)$$

Le terme *créations* représente le nombre de neutrons de fission créés par seconde.

$$\textit{créations} = \varphi \sum_c \sum_i N_i^c (\sigma_{f,i} \phi)^c \nu_{f,i}^c \quad (3.12)$$

avec

- $N_i^c$  le nombre total de noyaux  $i$  dans la cellule  $c$
- $(\sigma_{f,i} \phi)^c$  le nombre de fissions sur  $i$  dans la cellule  $c$ , par noyau  $i$  et par neutron source
- $\nu_{f,i}^c$  le nombre moyen de neutrons émis par fission du noyau  $i$  dans la cellule  $c$

Le terme *absorptions* représente le nombre net de neutrons par seconde disparaissant à l'issue d'une réaction d'absorption, fission comprise. Seules les réactions à bilan neutronique nul (diffusions) n'interviennent pas.

$$\textit{absorptions} = \varphi \sum_c \sum_i N_i^c [(\sigma_{f,i} \phi)^c + \sum_{r \neq f} (1 - \nu_{r,i}) (\sigma_{r,i} \phi)^c] \quad (3.13)$$

avec

- $\nu_{r,i}$  le nombre moyen de neutrons émis par toute réaction  $r$  autre que la fission sur  $i$
- $(\sigma_{r,i} \phi)^c$  le nombre de réactions  $r$  sur  $i$  dans la cellule  $c$ , par noyau  $i$  et par neutron source

Dans la formule 3.13, les neutrons produits par certaines réactions sont décomptés du nombre total de neutrons absorbés. Ainsi, par exemple, la réaction  $(n,2n)$  est caractérisée par  $\nu_{(n,2n)} = 2$ , et apporte ainsi une contribution totale négative de  $-\varphi \sum_c \sum_i N_i^c (\sigma_{(n,2n),i} \phi)^c$  neutrons par seconde au terme “absorptions”. La capture  $(n, \gamma)$  est traitée de la même façon avec  $\nu_{(n,\gamma)} = 0$ , et consomme effectivement  $\varphi \sum_c \sum_i N_i^c (\sigma_{(n,\gamma),i} \phi)^c$  neutrons par seconde.

Le dernier terme à évaluer en continu est celui des fuites, c’est-à-dire le nombre de neutrons s’échappant par seconde de l’ensemble des cellules  $c$  (sel, graphite, ...) pour lesquelles MCNP nous fournit les taux de réaction, et dont on peut par conséquent évaluer les contributions aux deux termes précédents. Du fait des modifications de flux et de spectre en cours d’évolution, le terme de fuites peut connaître des fluctuations importantes s’il concerne trop de cellules non suivies par l’évolution, ce qui risque de nuire à la précision de notre estimation du  $k_{eff}$ . Pour cette raison, on choisit de suivre l’évolution des protections de  $B_4C$ , en plus de celle des cellules du combustible et du graphite. On vérifie alors que le termes de fuites, c’est-à-dire des neutrons atteignant l’enceinte d’acier, est réduit à zéro.

La formule 3.11 est donc utilisée à chaque réajustement de la puissance pour évaluer  $k_{eff}(t)$ , que l’on souhaite maintenir à 1 dans notre exemple. En effet, pour fournir des résultats caractéristiques du système, il est indispensable que le calcul d’évolution se fasse dans des conditions réalistes, c’est-à-dire à puissance et réactivité constantes. A chaque réajustement de la puissance à l’instant  $t$ , la dérivée temporelle  $p_k = \frac{dk}{dt}$  est calculée. On exprime  $p_k$  comme une fonction de deux variables indépendantes; le temps  $t$  et le débit de l’alimentation  $a$  en matière fissile (réinjection du plutonium dans notre exemple):

$$dp_k = \left( \frac{\partial p_k}{\partial t} \right)_a dt + \left( \frac{\partial p_k}{\partial a} \right)_t da \quad (3.14)$$

Pour pouvoir évaluer les deux dérivées partielles, on ne change  $a$  qu’un réajustement de puissance sur deux. Sur un pas pour lequel  $a$  n’a pas été modifié, on attribue à  $\left( \frac{\partial p_k}{\partial t} \right)_a$  la valeur mesurée  $\frac{\Delta p_k}{\Delta t}$  de la dérivée seconde de  $k_{eff}$ . Sur le pas précédent, pour lequel  $a$  avait été modifié, on a déterminé de même  $\left( \frac{\partial p_k}{\partial a} \right)_t$ . On dispose ainsi, à chaque instant  $t$ , de  $k_{eff}(t)$  et de la valeur de ses deux dérivées partielles. On connaît en outre la longueur  $\Delta t$  du pas suivant, ce qui permet de déterminer selon la formule 3.14 la variation  $\Delta a$  à opérer sur l’alimentation pour ramener  $k_{eff}$  à 1. On arrive de cette manière à gérer les variations de réactivité et à stabiliser  $k_{eff}$  à quelques pcm près. Cette précision ne concerne que la variation relative de  $k_{eff}$ , dans la mesure où la valeur du  $k_{eff}$  n’est connue qu’à 200 pcm près compte tenu de la précision limitée de chaque calcul MCNP (250 000 neutrons source).

La figure 3.8 illustre, pour notre exemple de RSF à sels chlorures, l’application de cette méthode d’ajustement de la réactivité en cours d’évolution. On compense l’extraction fictive de plutonium, au taux constant d’environ 15 kg/jour, par une réinjection dont le débit est ajusté selon l’algorithme présenté. Chaque pas pour lequel ce débit est constant représente deux pas

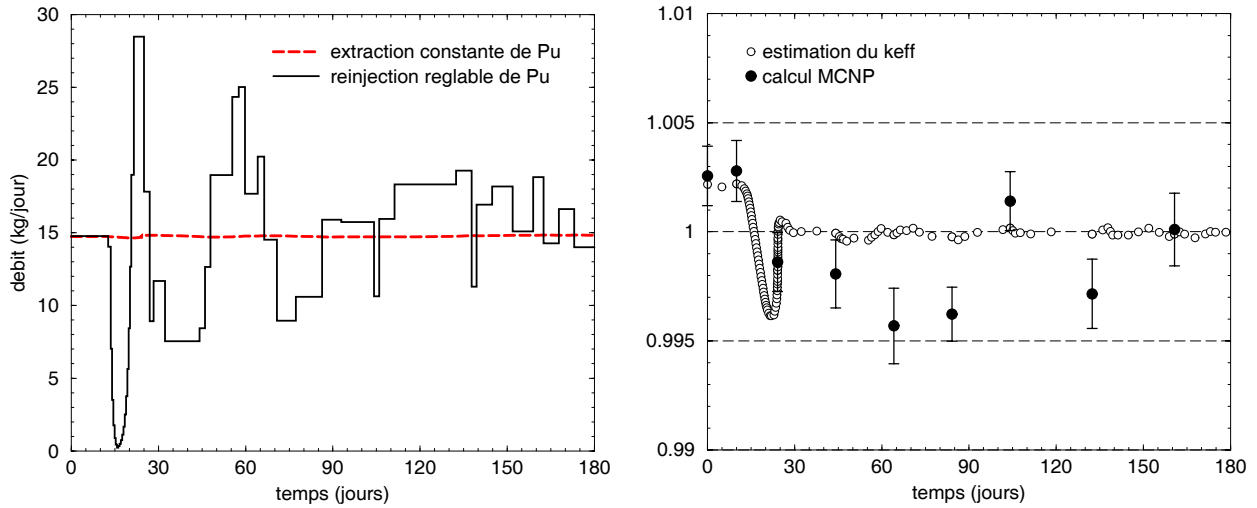


FIG. 3.8 – Corrections du débit de réinjection du plutonium, et stabilisation de la réactivité au cours des six premiers mois d'évolution du RSF (U/Pu)Cl<sub>3</sub>.

de réajustement de la puissance. Pour compenser un léger excès de réactivité au démarrage, la réinjection de plutonium est pratiquement suspendue 15 jours plus tard. Cela provoque une baisse de réactivité et entraîne finalement une augmentation du débit, qui finit par se stabiliser au bout de quelques mois. Cette méthode n'est pas optimale mais s'avère satisfaisante car elle parvient à stabiliser rapidement la réactivité du réacteur simulé, et à la maintenir constante sur plusieurs dizaines d'années jusqu'à l'équilibre.

### c - Pas variables d'intégration

Nous sommes parvenus à présent au dernier niveau du calcul de l'évolution par REM; celui des "pas RK" (figure 3.5). Le système linéaire des équations d'évolution y est résolu par une méthode de type Runge-Kutta d'ordre 4. Cette méthode est en effet bien adaptée à la longueur des pas, qui varie de quelques heures au démarrage du système à quelques années à l'approche de son équilibre. Les pas RK sont en outre variables, c'est-à-dire agrandis chaque fois que c'est possible. A partir d'une "précision RK" imposée par l'utilisateur, REM procède pour cela à un test de  $\chi^2$  entre la solution obtenue par intégration directe du pas courant et celle issue des deux intégrations successives des pas moitiés.



### 3.3 Exemples de résultats obtenus pour le RSF (U/Pu)Cl<sub>3</sub>

#### 3.3.1 Mises à l'équilibre

Dans le cas de référence, le plutonium utilisé initialement pour démarrer est issu d'un combustible REP UOX usé, et laissé refroidir 5 ans. Afin d'évaluer la sensibilité du système au type de plutonium utilisé, nous avons calculé l'évolution du système de référence démarré avec du plutonium du même type mais laissé refroidir 50 ans. Du fait de la demi-vie de 14 ans environ du <sup>241</sup>Pu, ce type de plutonium n'a pas la même composition isotopique.

	plutonium au démarrage		plutonium à l'équilibre
	T <sub>ref</sub> = 5 ans	T <sub>ref</sub> = 50 ans	
<sup>238</sup> Pu	3.1	2.4	1.7
<sup>239</sup> Pu	52.5	59.2	60.3
<sup>240</sup> Pu	24.5	28.1	31.3
<sup>241</sup> Pu	12.2	1.6	3.6
<sup>242</sup> Pu	7.7	8.7	3.1

TAB. 3.5 – Compositions isotopiques (% molaire) du plutonium au démarrage (pour deux temps de refroidissement T<sub>ref</sub> du combustible REP UOX usé) et à l'équilibre du RSF (U/Pu)Cl<sub>3</sub>.

La première différence observée est que l'inventaire initial nécessaire pour démarrer est plus élevé avec du plutonium refroidi 50 ans (16.1 t) plutôt que 5 ans (14.5 t). La variation de l'inventaire de plutonium jusqu'à l'équilibre, où il atteint dans les deux cas la valeur de 15.8 t, est ainsi plus faible pour le démarrage au plutonium refroidi 50 ans. Cela s'explique par une composition isotopique du plutonium plus proche de celle à l'équilibre (tableau 3.5).

La figure 3.9 illustre la stabilisation des inventaires de plutonium à 15.8 t et d'actinides mineurs à 0.8 t en une centaine d'années dans les deux cas. En dépit d'un inventaire de plutonium légèrement plus important au cours du régime transitoire, l'inventaire d'actinides mineurs dans le cas d'un démarrage au plutonium refroidi 50 ans est un peu plus faible que dans l'autre cas. Cela s'explique par la composition isotopique du plutonium utilisé au démarrage, plus riche en <sup>240</sup>Pu qui produit par capture du <sup>241</sup>Pu fissile. Le taux de captures parasites sur le plutonium, et donc de production d'américium et de curium, est donc plus faible au cours du transitoire démarré par ce type de plutonium.

#### 3.3.2 Description neutronique de l'état d'équilibre

Attardons nous à présent sur la description de l'équilibre du RSF (U/Pu)Cl<sub>3</sub>, atteint en une centaine d'années de fonctionnement à la puissance constante de 2500 MWth. Cette durée de mise à l'équilibre est longue, et ne peut être assurée par le même réacteur. Néanmoins, il est

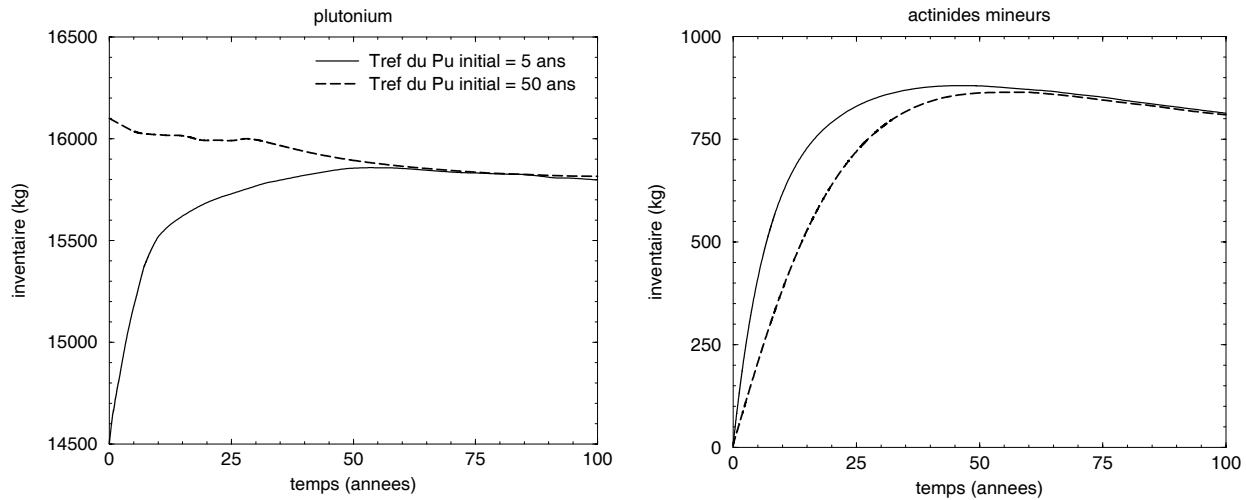


FIG. 3.9 – Influence du type de plutonium utilisé au démarrage du RSF (U/Pu)Cl<sub>3</sub> sur la mise à l'équilibre des inventaires de plutonium et d'actinides mineurs.

intéressant de calculer l'évolution du combustible jusqu'à son état d'équilibre, qui constitue un point de description et de comparaison privilégié. Cet état d'équilibre est ici indépendant du plutonium utilisé pour le démarrage, progressivement remplacé par le plutonium produit au sein du réacteur. Il s'agit ici d'exposer quelques résultats extraits par REM du dernier calcul MCNP de l'évolution arrivée à l'équilibre complet du système.

Intéressons nous pour commencer aux valeurs des sections efficaces moyennes des composantes légères du sel et des produits de fission à cet instant. Le tableau 3.6 montre que le <sup>35</sup>Cl est le noyau léger du sel le plus défavorable à l'économie de neutrons. Cela est aggravé par le fait que le chlore, utilisé dans toutes nos études à l'état naturel, présente une proportion molaire de <sup>35</sup>Cl de 75.8%. Compte tenu de cette proportion, un enrichissement efficace en <sup>37</sup>Cl est difficilement envisageable. Les produits de fission ont la section efficace moyenne (de capture) la plus élevée. Cette dernière reste toutefois faible aux valeurs obtenues en spectre thermique, allant de quelques barns à quelques dizaines de barns.

Le tableau 3.7 fournit le détail des sections efficaces moyennes et des inventaires des actinides présents à l'équilibre dans le sel combustible. Les valeurs des sections efficaces moyennes sont caractéristiques d'un spectre rapide, et ont peu évolué par rapport au démarrage. L'inventaire d'<sup>238</sup>U, initialement de 82.4 t est descendu à 80.3 t, afin de compenser l'augmentation de l'inventaire de transuraniens de 2.1 t, qui passe ainsi de 14.5 t à 16.6 t (dont 15.8 t de plutonium), et de maintenir la concentration de noyaux lourds dans le sel constante.

$(mbarn)$	$\sigma^{(n,\gamma)}$	$\sigma^{(n,\alpha)}$	$\sigma^{(n,p)}$
$^{23}\text{Na}$	1.09	0.05	0.12
$^{35}\text{Cl}$	3.32	4.86	14.7
$^{37}\text{Cl}$	0.96	0.07	0.03
PF	84.9	0.01	0.00

TAB. 3.6 – Sections efficaces moyennes des réactions  $(n, \gamma)$ ,  $(n, \alpha)$  et  $(n, p)$  sur les composantes légères du sel ( $\text{Na}$  et  $\text{Cl}$ ) et les produits de fission à l'équilibre du RSF ( $\text{U}/\text{Pu}$ ) $\text{Cl}_3$ .

noyau	$\sigma^{(n,\gamma)}$ (barn)	$\sigma^{fission}$ (barn)	inventaire (kg)	noyau	$\sigma^{(n,\gamma)}$ (barn)	$\sigma^{fission}$ (barn)	inventaire (kg)
$^{232}\text{Th}$	0.35	0.01	0.0002	$^{241}\text{Am}$	1.54	0.28	370
$^{231}\text{Pa}$	2.8	0.26	0.0008	$^{242}\text{Am}$	0.06	0.42	0.055
$^{233}\text{Pa}$	0.95	0.062	$3 \cdot 10^{-6}$	$^{242m}\text{Am}$	0.35	3.78	13.4
$^{232}\text{U}$	0.62	2.19	0.001	$^{243}\text{Am}$	1.35	0.22	130
$^{233}\text{U}$	0.26	2.64	0.003	$^{242}\text{Cm}$	0.29	0.16	11.0
$^{234}\text{U}$	0.56	0.34	58	$^{243}\text{Cm}$	0.22	2.53	0.96
$^{235}\text{U}$	0.50	1.81	91	$^{244}\text{Cm}$	0.79	0.43	82
$^{236}\text{U}$	0.41	0.10	110	$^{245}\text{Cm}$	0.29	2.29	25
$^{238}\text{U}$	0.26	0.04	80400	$^{246}\text{Cm}$	0.21	0.28	16
$^{237}\text{Np}$	1.43	0.33	86	$^{247}\text{Cm}$	0.29	1.94	1.5
$^{239}\text{Np}$	1.75	0.48	7.8	$^{248}\text{Cm}$	0.24	0.31	0.8
$^{238}\text{Pu}$	0.67	1.12	270	$^{249}\text{Bk}$	1.21	0.17	0.009
$^{239}\text{Pu}$	0.43	1.75	9530	$^{249}\text{Cf}$	0.61	2.52	0.056
$^{240}\text{Pu}$	0.47	0.39	4960	$^{250}\text{Cf}$	0.39	1.12	0.016
$^{241}\text{Pu}$	0.40	2.39	580	$^{251}\text{Cf}$	0.30	2.28	0.002
$^{242}\text{Pu}$	0.41	0.27	490	$^{252}\text{Cf}$	0.27	0.68	0.0001

TAB. 3.7 – Sections efficaces moyennes (en barn) de capture et de fission, et inventaires (kg) des actinides à l'équilibre du RSF ( $\text{U}/\text{Pu}$ ) $\text{Cl}_3$ .

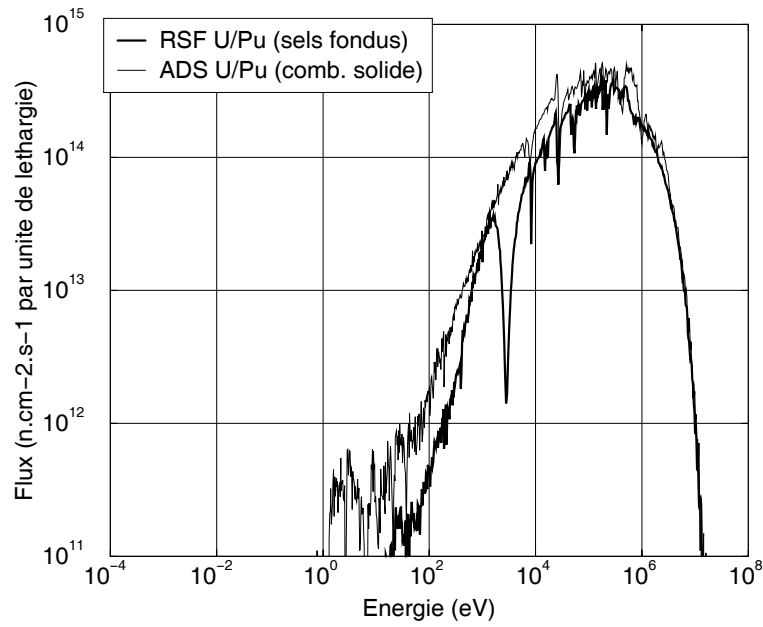


FIG. 3.10 – Spectre moyen dans le sel combustible du RSF (U/Pu)Cl<sub>3</sub> à l'équilibre, comparé au spectre moyen dans le cœur d'un réacteur rapide à combustible solide [13].

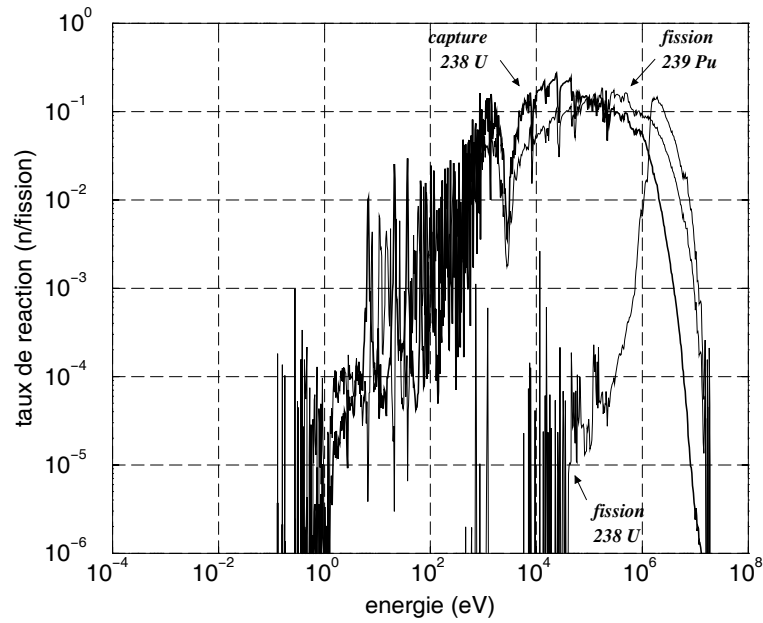


FIG. 3.11 – Taux de réaction de l'<sup>238</sup>U et du <sup>239</sup>Pu à l'équilibre du RSF (U/Pu)Cl<sub>3</sub>, exprimés par fission et par unité de lethargie.

La figure 3.10 compare le spectre calculé à l'équilibre sur l'ensemble du circuit de sel au spectre obtenu dans le cœur d'un réacteur à combustible solide refroidi au plomb, basé également sur le cycle U/Pu [13]. Ces deux spectres sont exprimés par unité de léthargie, et normalisés à la valeur du flux moyen, soit  $1.3 \cdot 10^{15} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$  pour le RSF et  $1.9 \cdot 10^{15} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$  pour le réacteur à combustible solide. Il ressort de cette comparaison que les deux spectres sont comparables, avec un maximum situé environ à 200 keV. On note l'effet bien visible sur le spectre du RSF de la résonance à 4 keV de la réaction (n,p) sur le  $^{35}\text{Cl}$ . Cette résonance contribue à une capture parasite importante des neutrons en cours de ralentissement, et explique que le spectre du RSF soit légèrement plus dur que celui du réacteur à combustible solide.

On dispose également, en fonction de l'énergie des neutrons, des taux de réaction calculés par MCNP. La figure 3.11 donne en fonction de l'énergie les taux des réactions intervenant dans la régénération du  $^{239}\text{Pu}$  à partir de l' $^{238}\text{U}$ . On remarque à cette occasion qu'une partie significative de certaines réactions (capture de l' $^{238}\text{U}$  et fission de noyaux fissiles comme le  $^{239}\text{Pu}$ ) se fait entre  $10^2$  et  $10^4$  eV, c'est-à-dire dans une gamme d'énergie où le flux est relativement faible par rapport à son maximum. Cela est dû à la remontée des sections efficaces de ces réactions aux basses énergies, qui compense la décroissance du flux. Par contre, la fission des noyaux non fissiles comme l' $^{238}\text{U}$  ne se produit notablement qu'au-delà du MeV.

A partir des inventaires  $N$ , des sections efficaces moyennes  $\sigma$  et des flux moyens  $\phi$ , REM fournit les taux de réaction  $N\sigma\phi$  intégrés en énergie sur tout le spectre, dans le circuit de sel combustible, mais aussi dans toutes les autres cellules constituant la géométrie du réacteur. Ces taux sont calculés pour toutes les réactions disponibles dans les bases de données, et permettent de décrire précisément à tout instant comment sont créés et utilisés les neutrons dans l'ensemble du réacteur. Pour ce faire, ces taux sont normalisés à une fission et exprimés en nombre de neutrons par fission ("n/fission" désormais). Ils sont arrondis à 0.001 n/fission près, et rassemblés dans un tableau distinguant les réactions créant des neutrons de celles les consommant. Le tableau 3.8 est le bilan neutronique à l'équilibre du RSF (U/Pu)Cl<sub>3</sub> décrit jusqu'à présent.

On remarque d'abord que le terme de fuites, c'est-à-dire le nombre de neutrons par fission s'échappant des cellules non suivies par l'évolution, est nul. Les rares neutrons susceptibles de s'échapper sont en effet absorbés dans les protections de B<sub>4</sub>C. Cela facilite le calcul du coefficient de multiplication effectif  $k_{eff}$  du réacteur (formule 3.11), dont on vérifie qu'il vaut bien 1.000 à l'équilibre d'après l'estimateur défini précédemment. On constate par ailleurs l'importance des captures parasites dans le chlore, dont le taux est d'environ 0.320 n/fission. En comparaison, le taux de capture des produits de fission est bien plus faible, du fait d'une extraction rapide et de sections efficaces moyennes faibles en spectre rapide.

On déduit enfin de ce bilan le taux de régénération du  $^{239}\text{Pu}$  par capture de l' $^{238}\text{U}$ . Ce taux est égal au rapport du taux de capture de l' $^{238}\text{U}$  (0.856 n/fission) sur le taux d'absorption

Réaction	Production	Consommation	
<i>fission</i>	2.927	1.000	<sup>238</sup> U 0.135
			autres U 0.008
			<sup>237</sup> Np 0.001
			<b><sup>239</sup>Pu 0.691</b>
			autres Pu 0.154
			Am 0.007
			Cm 0.004
<i>(n, 2n)</i>	0.008	0.004	<sup>238</sup> U 0.004
<i>(n, γ)</i>	-	1.251	<sup>23</sup> Na 0.008
			<sup>35</sup> Cl 0.046
			<sup>37</sup> Cl 0.005
			PF 0.001
			<b><sup>238</sup>U 0.856</b>
			autres U 0.005
			<sup>237</sup> Np 0.005
			<b><sup>239</sup>Pu 0.170</b>
			autres Pu 0.121
			Am 0.031
Cm 0.003			
<i>(n, α)</i>	-	0.068	<sup>35</sup> Cl 0.068
<i>(n, p)</i>	-	0.206	<sup>35</sup> Cl 0.205
			<sup>23</sup> Na 0.001
<i>(n, γ)</i> nickel	-	0.377	réflecteur radial 0.261
			réflecteurs axiaux 0.116
<i>(n, p)</i> nickel	-	0.011	réflecteur radial 0.008
			réflecteurs axiaux 0.003
<i>(n, α)</i> B <sub>4</sub> C ( <sup>10</sup> B)	-	0.018	échangeur 0.007
			enceinte 0.011
<i>fuite</i>	-	0.000	-
<i>total</i>	2.935	2.935	-

Tab. 3.8 – Bilan neutronique détaillé de l'équilibre du RSF (U/Pu)Cl<sub>3</sub>.

du  $^{239}\text{Pu}$  ( $0.691 + 0.170 = 0.861$  n/fission). La valeur obtenue (0.994) indique que le système est quasiment régénérateur à l'équilibre, et ne nécessite qu'un faible apport extérieur de  $^{239}\text{Pu}$ , inférieur à 5 kg/an. Notons que l' $^{238}\text{U}$  participe aux fissions à hauteur de 13.5%.

### 3.3.3 Autres observables disponibles

#### a - Dommages dans les matériaux

Avant de détailler surtout les caractéristiques du sel combustible, nous proposons d'illustrer le calcul des dommages dans les matériaux de structure par l'exemple du nickel du réflecteur radial du réacteur étudié ici. Ces dommages sont dus au déplacement des atomes constituant le matériau, qui se fragilise. REM suivant l'évolution de toutes les cellules qui constituent le réacteur simulé, avec des précisions éventuellement plus faibles pour les matériaux de structure, nous pouvons évaluer le taux de ces dommages causés par les neutrons.

Lors de leur diffusion dans le nickel, les neutrons produisent des noyaux de recul, qui perdent chacun par diffusion élastique une énergie moyenne  $E_0$ , appelée énergie de dommage. Cette énergie va créer  $N_d$  déplacements d'atomes dans le matériau, ce nombre dépendant de la façon dont est distribuée l'énergie  $E_0$  au cours de la diffusion élastique du noyau de recul. Pour créer un déplacement, il faut en effet fournir au moins une énergie seuil  $E_d$ , dépendante du matériau ( $E_d$  vaut 25 eV pour le plomb, 31 eV pour le graphite et 40 eV dans le nickel [39]). Si à chaque collision, une énergie exactement égale à  $E_d$  était transférée, on aurait  $N_d = \frac{E_0}{E_d}$ . Un potentiel d'interaction réaliste donne, avec un coefficient  $\beta$  de 0.8 environ [44]:

$$N_d = \frac{\beta}{2} \frac{E_0}{E_d} \quad (3.15)$$

Pour calculer le taux moyen  $\tau_d$  de déplacements par atome, il faut calculer la section efficace moyenne  $\sigma_e$  associée à la production de l'énergie  $E_0$ . Connaissant par ailleurs le flux moyen  $\phi$  dans le matériau considéré, on obtient d'après la formule 3.15:

$$\tau_d = \frac{\beta}{2} \frac{E_0 \sigma_e \phi}{E_d} \quad (3.16)$$

L'utilisation combinée de NJOY et de MCNP permet en fait d'obtenir directement le produit  $E_0 \sigma_e$  de la formule 3.16, et d'en déduire le taux de déplacements par atome. La méthode, illustrée dans la référence [45] par l'exemple du nickel, consiste d'abord à faire calculer par NJOY la variation avec l'énergie  $E$  des neutrons de la "section efficace d'énergie de dommage"  $\tilde{\sigma}_e(E)$  (exprimée en barn.MeV) définie comme suit :

$$\tilde{\sigma}_e(E) = \sum_r \int \sigma_r(E, E_0) E_0 dE_0 \quad (3.17)$$

Dans la formule 3.17,  $\sigma_r(E, E_0)$  est la section efficace de la réaction  $r$  du neutron d'énergie  $E$  sur le noyau cible du matériau, produisant une énergie de dommage  $E_0$ . Les réactions  $r$  sont dominées dans les matériaux de structure par la diffusion élastique, mais d'autres peuvent intervenir, comme la capture  $(n, \gamma)$  ou la réaction  $(n, p)$  dans notre exemple. A partir de cette section efficace d'énergie de dommage  $\tilde{\sigma}_e(E)$  préparée par NJOY, MCNP calcule sa valeur moyenne  $\tilde{\sigma}_e$ , qui est par définition égale au produit  $E_0 \sigma_e$  de la formule 3.16. Le taux de déplacements par atome  $\tau_d$  est ainsi évalué dans le nickel du réflecteur radial du RSF (U/Pu)Cl<sub>3</sub> à 0.8 dpa/an. Ce taux est faible en comparaison de la valeur de 50 dpa/an constatée dans le gainage du combustible solide d'un RNR classique [44]. Dans ce cas, la limite acceptable est de l'ordre de 100 dpa, ce qui fixe la durée de vie de ce gainage à 2 ans.

## b - Radiotoxicités induites

Un critère intéressant, déjà évoqué, pour comparer la nocivité des déchets produits par différentes filières, est la radiotoxicité, exprimée en Sievert (Sv). Nous choisissons dans toute la suite de nous baser sur la radiotoxicité par ingestion, qui quantifie le risque potentiel auquel s'exposerait un individu ayant ingéré le stock étudié de noyaux. Du fait des décroissances naturelles des noyaux présents initialement dans ce stock, sa radiotoxicité  $R(t)$  évolue au cours du temps suivant l'ingestion. Son calcul tient compte de nombreux paramètres intervenant dans les dommages causés à un organisme humain, parmi lesquels le type et l'énergie des rayonnements émis par chaque noyau  $i$  :

$$R(t) = \sum_i r_i \lambda_i N_i(t) \quad (3.18)$$

avec

- $r_i$  facteur de dose du noyau  $i$ , exprimé en Sv/Bq
- $\lambda_i$  constante de décroissance totale du noyau  $i$
- $N_i(t)$  nombre de noyaux  $i$  à l'instant  $t$

Les facteurs de dose ont été donnés au chapitre 1, et sont ceux de la publication 76 de la CIPR [12]. Pour calculer  $R(t)$ , il faut donc résoudre le système d'évolution du stock considéré. Compte tenu des échelles de temps de l'ordre du million d'années qui nous intéressent, cette résolution est faite par diagonalisation de la matrice d'évolution, à l'aide du programme DECAY fourni par J.P. Schapira et développé à l'Institut de Physique Nucléaire d'Orsay.

Ce programme permet de suivre l'évolution de  $R(t)$ , en détaillant à chaque instant  $t$  les contributions individuelles non pas des noyaux présents à ce temps  $t$ , comme l'exprime la formule 3.18, mais des noyaux présents initialement. Ces noyaux "pères" sont en effet à l'origine de tous les noyaux présents dans le stock à tout instant  $t$ , et leurs contributions à  $R(t)$  nous intéressent



tout particulièrement, dans la mesure où elles sont étroitement liées au fonctionnement des filières comparées. Dans la suite, nous utiliserons donc toujours ces contributions “par père” à la radiotoxicité totale.

### c - Coefficients de température

L'étude d'un tel système producteur d'énergie montre qu'un RSF à sels chlorures peut être régénérateur en cycle uranium et spectre rapide. Avec le dimensionnement retenu ici, pour la puissance totale de 2500 MWth, l'inventaire de plutonium s'avère élevé, ce qui est défavorable au critère de minimisation des rejets au retraitement, exigible d'un réacteur innovant. Voyons ce qu'il en est du critère de sûreté. Nous nous limitons à l'évaluation des coefficients de contre-réaction, également appelés coefficients de température, qui quantifient la variation de réactivité due à une augmentation de température. En pratique, une augmentation de température dans un RSF se fait progressivement, d'abord dans le sel du cœur, puis dans les matériaux de structure proches, comme le réflecteur radial en nickel dans notre exemple. Dans la suite, ces réchauffements progressifs et successifs seront toujours supposés instantanés, afin d'évaluer des valeurs limites de coefficients de température pouvant être comparées d'un système à l'autre.

On distingue en général deux contributions principales à la variation globale de réactivité dans un réacteur à sels fondus; celle du sel d'une part (coefficient “sel”), et celle du matériau modérateur utilisé dans le cœur d'autre part (coefficient “nickel” dans notre exemple). Le coefficient de température du sel résulte lui-même de deux effets; l'effet Doppler et l'effet de densité. Le coefficient de température associé à l'effet Doppler est toujours négatif, l'élargissement des résonances de capture ayant tendance à réduire la réactivité lorsque la température augmente. L'effet de densité est lié à la dilatation du sel, et son coefficient de température dépend, tant en signe qu'en valeur absolue, de la modification de spectre induite. Le tableau 3.9 présente les valeurs obtenues au démarrage et à l'équilibre du RSF (U/Pu)Cl<sub>3</sub> de référence.

description du système	coef. de dilatation (g.cm <sup>-3</sup> .K <sup>-1</sup> )	coefficients de température (pcm/K)				
		Doppler	densité	sel	nickel	total
NaCl uranium référence t = 0	-2.2 10 <sup>-3</sup>	-0.8	-14.5	<b>-15.1</b>	0.0	<b>-15.1</b>
NaCl uranium référence équilibre	-2.2 10 <sup>-3</sup>	-0.6	-14.0	<b>-14.6</b>	0.0	<b>-14.6</b>

TAB. 3.9 – Coefficients de température du RSF (U/Pu)Cl<sub>3</sub>.

Le coefficient de température “Doppler” est évalué en simulant une augmentation de température instantanée de 300 K du sel uniquement, toutes choses restant égales par ailleurs. On attribue pour cela aux noyaux présents dans le sel de nouveaux fichiers de sections efficaces, préparés au préalable par NJOY à la température de 1200 K. Le coefficient correspondant est obtenu à  $\pm 0.1$  pcm/K près en divisant la variation de réactivité calculée par MCNP par l’augmentation de température de 300 K. On remarque que le coefficient “Doppler” est faible en valeur absolue, comparé aux valeurs caractéristiques d’un REP, de -3 à -2 pcm/K, et d’un RNR classique, de -2 à -1 pcm/K. [46]. Dans un combustible à support uranium, c’est l’ $^{238}\text{U}$  qui contribue surtout à l’effet Doppler, avec un fort effet négatif de sa résonance de capture à 6.7 eV. Dans un spectre rapide comme dans notre exemple, la taux de capture de l’ $^{238}\text{U}$  n’est significatif qu’au-dessus de 100 eV, ce qui minimise son effet négatif sur la réactivité. A cela s’ajoute un léger effet positif lié à la fission du  $^{239}\text{Pu}$ .

Le coefficient “densité” est obtenu par simple modification de la valeur de la densité du sel dans le fichier MCNP. D’après le coefficient de dilatation du sel [47], la densité passe de  $3.8 \text{ g/cm}^3$  à 900 K, à environ  $3.1 \text{ g/cm}^3$  à 1200 K. La variation de réactivité qui en résulte est très négative, et s’explique par la sortie d’une partie de la matière fissile du combustible hors du cœur. Le coefficient “sel”, calculé en tenant compte simultanément des deux effets précédents, est par conséquent largement négatif. Le nickel n’est utilisé qu’en périphérie du cœur, et une augmentation de sa température n’a pas d’effet visible à la précision choisie. Le coefficient total de température est donc égal à la seule contribution du sel.

### 3.4 *Le point sur les outils de simulation développés*

Nous venons de présenter les principes du logiciel REM, développé pour la simulation de réacteurs à sels fondus. Ce logiciel est basé sur le couplage du code de transport Monte Carlo MCNP à des protocoles d’évolution aux fonctions multiples, assurant une gestion optimale des données et un contrôle rigoureux de la précision.

L’exemple du RSF (U/Pu)Cl<sub>3</sub> nous a permis d’illustrer les méthodes mises au point pour la simulation du retraitement en ligne, et le contrôle de la puissance et de la réactivité. Nous avons étudié ce réacteur depuis son démarrage jusqu’à son équilibre, afin de donner un aperçu des résultats accessibles. L’accent a été mis sur la description neutronique détaillée de l’état d’équilibre, qui sera utilisé par la suite comme point de comparaison privilégié.

Nous pouvons à présent aborder l’étude du cycle thorium en réacteur à sels fondus, à modérateur graphite, et à retraitement en ligne rapide, dont l’archétype est le projet MSBR. Nous allons pour cela réévaluer dans un premier temps les caractéristiques de ce type de réacteur, en exploitant au mieux les possibilités offertes par nos outils de simulation.

## Chapitre 4

# Réévaluation d'un projet de RSF surgénérateur en cycle thorium

Le but de ce chapitre est de justifier le choix d'un système de référence simple, directement inspiré du MSBR, pour l'étude du cycle thorium en RSF à modérateur graphite. Une fois ce système justifié en termes de faisabilité pratique et de performances neutroniques, nous le caractériserons à l'équilibre selon les critères de sobriété, de propreté et de sûreté précédemment évoqués. Dans le chapitre suivant, ce système jouera le rôle de témoin dans l'évaluation des différentes options offertes par ce concept.

### 4.1 Dimensionnements préalables

Nous avons expliqué dans quelles mesures l'utilisation de MCNP impose une définition précise de la géométrie dans nos simulations. Dans cette partie, il s'agit de définir les principales caractéristiques initiales du système, tant sur le plan de la géométrie que sur celui du retraitement en ligne associé. A partir de cette description, nous pourrions déterminer, entre autres, la concentration du sel en noyaux lourds et la taille des canaux optimales.

#### 4.1.1 Neutronique

##### a - Choix des matériaux

- **Caractéristiques du graphite**

Un paramètre important qu'il convient de fixer dès le départ est la densité du graphite utilisé comme modérateur. On appelle "graphite idéal" le cristal pur de densité  $2.3 \text{ g/cm}^3$ . A l'état naturel, le graphite s'éloigne plus ou moins de cette perfection cristalline à cause de la présence d'impuretés et de défauts au sein d'une structure en fait polycristalline. Le graphite naturel a donc une densité un peu plus faible que le graphite idéal.

Le graphite naturel n'est généralement pas utilisé tel quel en réacteur car sa stabilité dimensionnelle n'est pas suffisante pour cela. Il est nécessaire de procéder à diverses transformations avant d'obtenir un graphite dit "nucléaire" dont les principales propriétés physiques, parmi lesquelles le volume, évolueront le moins possible tout au long de son irradiation. Les traitements consistent principalement en l'extraction des impuretés néfastes à l'économie de neutrons, puis à la reconstitution du graphite sous forme polygranulaire. Cette dernière opération favorise l'isotropie du matériau, ce qui tend à limiter les variations volumiques sous irradiation. Une contrainte supplémentaire pour l'utilisation du graphite en RSF est une compacité suffisante pour y éviter la diffusion des sels fondus (proportion volumique de pores de diamètre supérieur à  $1\ \mu\text{m}$  inférieure à 1%). On peut pour cela procéder à des imprégnations de résines suivies de cuissons, ou encore à l'introduction de carbone dans les porosités par décomposition d'hydrocarbures gazeux. Les méthodes de préparation du graphite nucléaire sont donc multiples et fournissent une gamme de matériaux dont les densités s'échelonnent de  $1.6$  à  $2.2\ \text{g/cm}^3$ . Un bon compromis entre le coût du traitement et l'efficacité du modérateur obtenu serait un graphite nucléaire de densité intermédiaire  $1.9\ \text{g/cm}^3$  [48].

Dans toute la suite pour nos simulations, on considère toutefois que le graphite utilisé est idéal, c'est à dire de densité  $2.3\ \text{g/cm}^3$ . Cette hypothèse est simplificatrice, dans la mesure où elle nous permettra d'interpréter sans approximation la modération des neutrons dans le graphite comme leur diffusion dans un réseau cristallin parfait. Par ailleurs, cette valeur de  $2.3\ \text{g/cm}^3$  a déjà été utilisée dans la plupart des études par simulation de réacteurs à sels fondus utilisant du graphite comme modérateur. Conserver cette hypothèse nous facilitera les comparaisons, le graphite utilisé ayant le même pouvoir modérateur que dans les études précédentes. Nous vérifierons plus loin que l'utilisation d'un graphite moins dense ne modifie principalement que le dimensionnement du réacteur, et non ses performances globales.

Notons que la simulation exacte de la diffusion des neutrons nécessite de tenir compte de la structure cristalline du graphite pour les énergies inférieures à quelques eV. Dans ce cas, l'énergie transférée par diffusion d'un neutron est en effet proche de l'énergie cinétique des atomes de carbone dans leur réseau de graphite. On ne peut donc plus, comme pour les neutrons de haute énergie, supposer que les atomes cibles sont initialement immobiles et reculent librement après le choc, dans la mesure où leur mouvement et leur liaison au réseau entier affectent la section efficace ainsi que les distributions en énergie et en angle des neutrons diffusés.

Tous ces effets fortement dépendant de la température ne se résument pas à de simples formules analytiques mais peuvent toutefois être calculés par MCNP à condition qu'on lui fournisse un fichier de données supplémentaires, le "thermal data file" du graphite, à la température souhaitée. Ce fichier est disponible dans la base ENDF/B-VI pour différentes températures, dont  $800$  et  $1000\ \text{K}$ , mais n'est pas fourni pour  $900\ \text{K}$ , qui est la température moyenne retenue pour

le graphite du cœur. Pour le graphite, nous utiliserons donc dans la suite le “thermal data file” à 800 K associé aux données habituelles calculées à 900 K.

### • Choix d’un sel combustible

Un choix primordial pour la suite de nos études est celui du sel combustible circulant dans la matrice de graphite. Dans l’optique d’une réévaluation du projet MSBR, nous nous basons sur le sel prévu par les études de l’ORNL, à savoir le  $\text{LiF-BeF}_2\text{-(Th+U)F}_4$ . La composition de référence que nous choisissons consiste en un sel de type “4 LiF -  $\text{BeF}_2$ ”, dans lequel on fixe la proportion molaire de fluorures de noyaux lourds à 12.5%, soit une composition caractéristique de 70.0% LiF - 17.5%  $\text{BeF}_2$  - 12.5%  $\text{(Th+U)F}_4$  désormais appelée FLiBe. Cette composition résulte des études de l’époque, soumises à trois types de contraintes (neutroniques, physiques et chimiques) qui limitent beaucoup le nombre de candidats intéressants. Le sel combustible doit en effet à la fois absorber peu de neutrons, être un bon caloporteur et se prêter facilement au retraitement en ligne (cette dernière propriété ayant déjà été abordée au chapitre précédent). Avant de détailler chacune de ces contraintes, précisons que la disponibilité des ressources naturelles nécessaires au sel choisi a été vérifiée à l’époque par l’ORNL, et jugée satisfaisante.

La première contrainte, neutronique, écarte a priori les composantes fortes consommatrices de neutrons, au profit des composantes les plus légères (tableau 4.1). Toutefois, le lithium naturel contient une proportion molaire importante de  $^6\text{Li}$  (7.6%). La forte section efficace de la réaction (n,t) sur le  $^6\text{Li}$  (940 barn à 0.025 eV) oblige à enrichir le lithium utilisé en  $^7\text{Li}$ , à hauteur de 99.995% (enrichissement initial conservé par la suite). La technique traditionnelle de diffusion gazeuse peut être employée. Signalons que d’autres procédés de séparation isotopique existent, comme les techniques d’échanges d’ions sur résine mis au point en France par le CEA.

isotope	$^6_3\text{Li}$	$^7_3\text{Li}$	$^9_4\text{Be}$	$^{19}_9\text{F}$	$^{23}_{11}\text{Na}$	$^{nat}_{12}\text{Mg}$	$^{nat}_{19}\text{K}$	$^{nat}_{20}\text{Ca}$
fluorure	LiF	LiF	$\text{BeF}_2$	-	NaF	$\text{MgF}_2$	KF	$\text{CaF}_2$
$\sigma_{(n,\gamma)}^{isotope}$	39	45	8.6	9.5	530	63	2100	430

TAB. 4.1 – Sections efficaces de capture (mbarn) à 0.025 eV des composantes légères envisageables pour un sel combustible à base de fluorures.

Les concentrations respectives de LiF et  $\text{BeF}_2$  dans le sel sont ajustées pour accepter une concentration suffisante de thorium tout en conservant des propriétés physiques compatibles avec sa fonction de caloporteur liquide. Le sel combustible doit en effet posséder de bonnes caractéristiques thermiques et hydrauliques pour être utilisé comme fluide de transfert de chaleur. Le fluorure de lithium est caractérisé par une bonne fluidité, mais sa température de fusion est élevée (848 °C) par rapport à la température moyenne d’utilisation du sel (650 °C). Le fluorure de béryllium est, au contraire, très visqueux, avec un bas point de fusion (555 °C). En prenant comme base de départ une concentration de noyaux lourds (thorium et uranium) de 12.5%, esti-

mée suffisante pour la surgénération. Pour obtenir un sel fondant à environ 500 °C, il reste à fixer la concentration de  $\text{BeF}_2$  entre 15 et 25%, aussi basse que possible pour limiter la viscosité. Un rapport  $\text{LiF}/\text{BeF}_2$  de 4 est satisfaisant de ce point de vue, et justifie la composition de référence 70.0%  $\text{LiF}$  - 17.5%  $\text{BeF}_2$  - 12.5%  $(\text{Th}+\text{U})\text{F}_4$ , pour laquelle on reprend les caractéristiques du sel proposé par le projet MSBR.

## b - Définition du système de référence

### • Dimensionnement initial

La figure 4.1 donne une idée de l'architecture de principe du réacteur. Ce dessin provient des études EDF d'analyse critique du projet MSBR et représente le concept dit intégré, c'est à dire confinant les échangeurs de chaleur dans l'enceinte du réacteur. Ceci permet de renforcer la sûreté du système, et de minimiser le volume total de sel nécessaire. Les 4 échangeurs, ou "modules autonomes de transfert thermique", sont répartis autour du cœur cylindrique et en sont protégés neutroniquement par une épaisseur de  $\text{B}_4\text{C}$ .

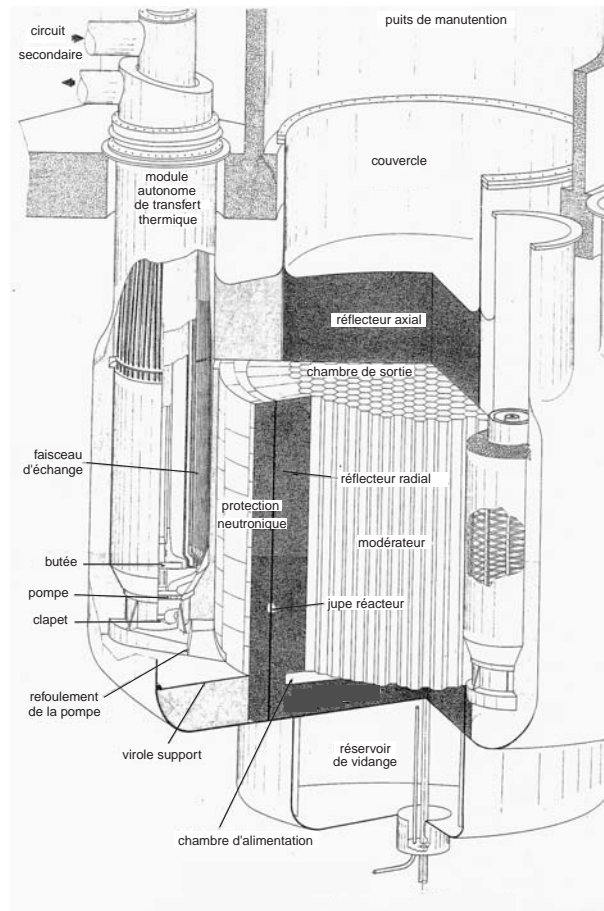


FIG. 4.1 – Vue détaillée du cœur dans une version dite intégrée du projet MSBR [40].

On remarque également sur ce schéma la structure du cœur, composé d'un assemblage d'hexagones de graphite percés chacun d'un canal pour le passage du sel. Le cœur ainsi constitué est entouré radialement d'une épaisseur de graphite (réflecteur radial), et est placé entre deux réflecteurs axiaux, également en graphite. Au-dessus du réflecteur axial supérieur est aménagé un puits de manutention, avec en son centre une grappe de barres de contrôle (non représentée). Sous le réflecteur axial inférieur se trouve un réservoir de vidange sous-critique, destiné à recueillir l'ensemble du sel combustible en cas d'accident.

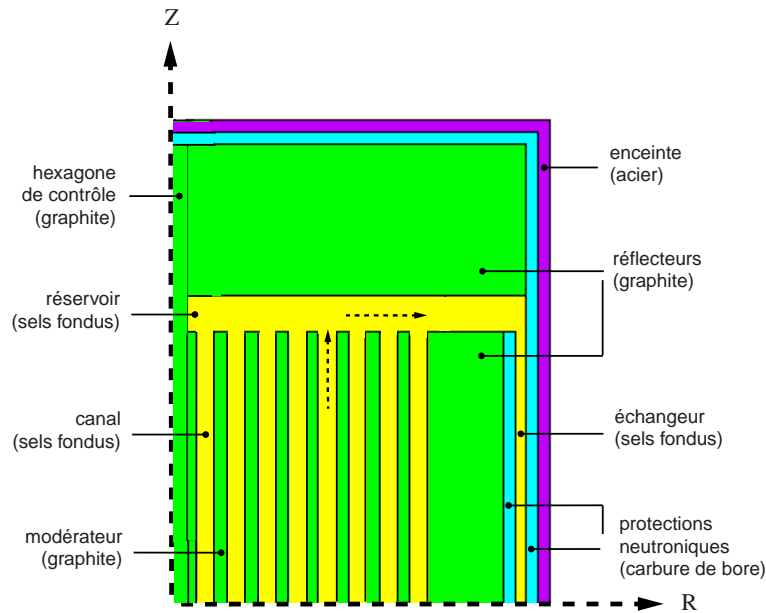


FIG. 4.2 – Coupe au quart verticale de la géométrie générale utilisée dans les simulations, dans le cas du dimensionnement pris comme référence.

A partir de ce schéma détaillé, nous avons modélisé pour nos calculs MCNP une géométrie type dont toutes les dimensions sont ajustables. L'organisation de la structure retenue pour nos simulations est présentée en coupe sur la figure 4.2, le système étant symétrique par rapport à l'axe vertical et par rapport au plan médian. Les rapports des dimensions sur cette figure sont ceux conservés pour le système de référence. Le circuit de sel est partagé en trois cellules MCNP; une pour les canaux, une autre pour les réservoirs intermédiaires (épaisseurs cylindriques de sel au-dessus et en dessous des canaux) et enfin une troisième pour le reste du circuit, modélisant les conduits d'arrivée et de réinjection des échangeurs ainsi que les échangeurs à proprement parler. Ces derniers sont modélisés par une couronne cylindrique continue autour des protections neutroniques en carbure de bore, comme dans le RSF à sels chlorures décrit au chapitre précédent. On vérifie qu'une épaisseur de 10 cm de  $B_4C$  est suffisante pour atténuer d'un facteur 100 environ le flux dans les échangeurs par rapport au flux en cœur. L'épaisseur du

réflecteur radial est fixée à 50 cm, et celle des réflecteurs axiaux à 1.3 m chacun. On vérifiera a posteriori, une fois le dimensionnement entièrement achevé, que ces épaisseurs maximisent bien la réactivité du système, toutes choses restant égales par ailleurs.

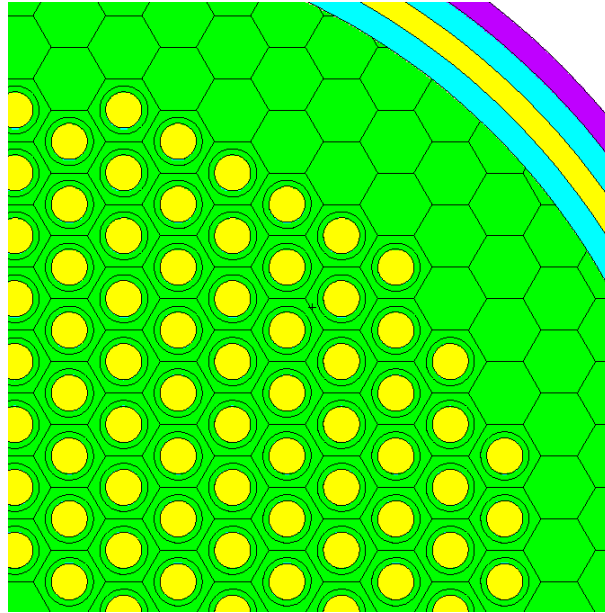


FIG. 4.3 – Coupe horizontale du cœur de référence (diamètre des canaux de 15 cm).

On adopte pour la répartition des canaux dans le cœur la forme la plus symétrique possible, comme le montre la coupe horizontale 4.3. Par rapport au cas élémentaire du cœur à canal central unique du chapitre précédent, l'utilisation d'un modérateur graphite introduit un paramètre supplémentaire, qui est la proportion volumique de sel dans le graphite. A partir des diverses descriptions du concept MSBR (suivant qu'il soit à 2 zones de modulation ou à une seule), on évalue à 30% la proportion volumique moyenne de sel optimale pour la surgénération. En fixant le côté d'un hexagone de graphite à 15 cm (soit une distance entre 2 côtés parallèles de 26.0 cm), on obtient une proportion volumique de sel en cœur de 30.2% avec un diamètre de canal de 15 cm. Autour de chaque canal, on distingue un tube de graphite épais de 2.5 cm, appelé désormais "manche". Cette différenciation géométrique fictive nous permettra notamment d'évaluer l'influence de la proximité d'un canal sur le taux de dommages causés par les neutrons dans le graphite du cœur. Avec l'épaisseur choisie, le graphite des manches regroupe le tiers du graphite du cœur, les deux autres tiers restants constituant le corps des hexagones.

Une fois ce dimensionnement de référence défini, le programme de construction automatique de fichier MCNP nous permet de le finaliser en imposant quelques contraintes. Il en suffit de deux pour déterminer les deux dimensions encore inconnues à ce stade, qui sont la hauteur de sel dans les réservoirs et l'épaisseur de sel dans la couronne cylindrique des échangeurs. La première de ces contraintes est d'imposer la proportion volumique de sel hors-flux (sel de la



cellule modélisant les échangeurs) à un tiers du volume total. La seconde consiste à imposer la conservation du débit entre la sortie verticale du sel des canaux et l'entrée horizontale dans les échangeurs, au niveau du rayon du cœur. Contrairement au cas du concept à canal unique de sel décrit au chapitre précédent, on suppose ici que le nombre important de petits canaux tend à homogénéiser rapidement la vitesse d'écoulement du sel dans les réservoirs. La conservation du débit est ainsi réalisée dès la sortie du cœur, au niveau du rayon intérieur du réflecteur radial. En plus des deux dernières contraintes évoquées, on souhaite que le volume total de sel combustible soit proche de celui du projet MSBR, c'est à dire compris entre 45 et 50 m<sup>3</sup>. Pour simplifier, on impose que le diamètre du cœur soit égal à sa hauteur, qui est aussi celle des canaux. Avec une hauteur de 4.6 m, on obtient un volume total de sel de 46.2 m<sup>3</sup>, une hauteur de sel dans chaque réservoir d'environ 30 cm, et une épaisseur de sel dans les échangeurs d'environ 10 cm.

### • Réflecteurs et ajustement du $k_{eff}$ initial

Une fois la géométrie de référence entièrement définie, il s'agit de vérifier que les réflecteurs sont bien dimensionnés. Pour ce faire, on annule l'épaisseur des réflecteurs axiaux et du réflecteur radial, et on fixe la proportion molaire d'<sup>233</sup>U dans le thorium à 1.6%. Le système a alors un coefficient de multiplication effectif  $k_{eff}$  de  $0.952 \pm 0.002$ . On augmente ensuite l'épaisseur du réflecteur radial par pas de 10 cm, en recalculant  $k_{eff}$  à chaque fois. L'ensemble des résultats est ajusté par une fonction exponentielle dont les coefficients sont obtenus par minimisation de  $\chi^2$  (graphe de gauche de la figure 4.4). Cela permet de vérifier qu'à partir de l'épaisseur retenue de 50 cm, la variation de la réactivité par demi-pas d'épaisseur (5 cm) est de l'ordre de l'incertitude sur les valeurs calculées de  $k_{eff}$  (200 pcm).

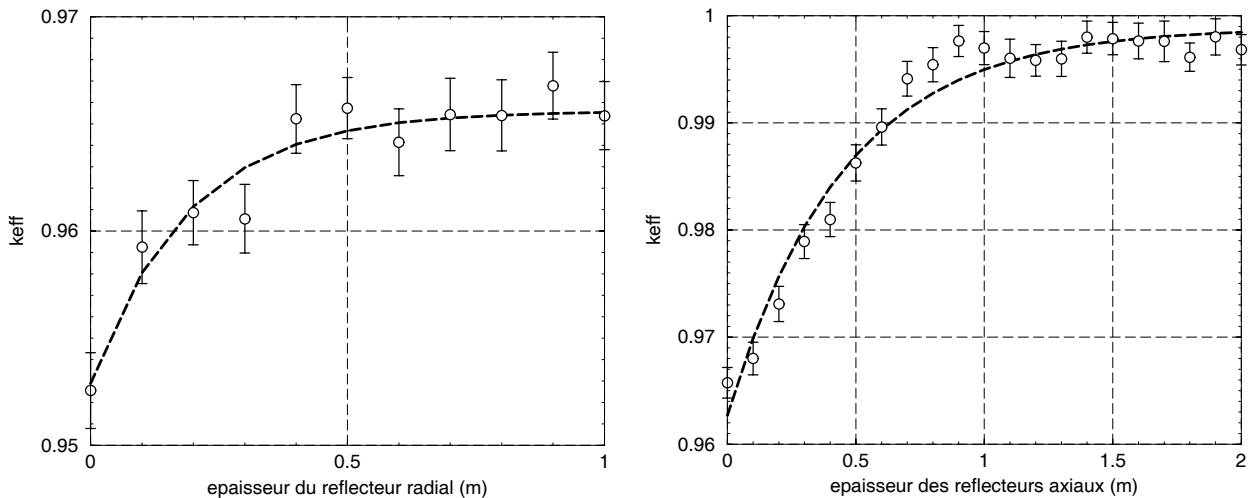


FIG. 4.4 – Dimensionnement pour le système <sup>232</sup>Th/<sup>233</sup>U de référence du réflecteur radial seul puis des réflecteurs axiaux avec un réflecteur radial épais de 50 cm.

En conservant cette valeur pour le réflecteur radial, on procède ensuite à une augmentation progressive de l'épaisseur des réflecteurs axiaux (graphe de droite de la figure 4.4), et on vérifie de même que la valeur de référence de 1.3 m est satisfaisante. Une fois ces deux dimensions validées, on ajuste le  $k_{eff}$  initial à 1 en augmentant la proportion molaire d' $^{233}\text{U}$  dans les noyaux lourds jusqu'à la valeur de 1.64% ( $k_{eff} = 1.005 \pm 0.002$ ).

• **Point de fonctionnement initial et condition de régénération**

Tous les dimensionnements précédents s'inspirent du projet MSBR. Avant de simuler le fonctionnement de ce système comme producteur d'énergie, il convient de vérifier que les propriétés neutroniques y sont favorables au démarrage. Il s'agit plus précisément d'au moins régénérer la matière fissile consommée, ce qui permet d'assurer une réactivité stable au système. Comme nous l'avons fait pour le système du chapitre précédent, nous pouvons vérifier que cette condition de régénération est remplie en évaluant le taux de régénération  $\tau$  initial. On rappelle que ce dernier rapporte le taux total de production d' $^{233}\text{U}$  à son taux total d'absorption.

	canaux	réservoirs	échangeurs	total
volume (m <sup>3</sup> )	20.5	10.3	15.4	46.2
flux (n.cm <sup>-2</sup> .s <sup>-1</sup> )	7.24 10 <sup>14</sup>	0.75 10 <sup>14</sup>	0.05 10 <sup>14</sup>	3.40 10 <sup>14</sup>
$N^{232}\text{Th}$ (mol)	1.28 10 <sup>5</sup>	6.4 10 <sup>4</sup>	9.6 10 <sup>4</sup>	2.88 10 <sup>5</sup>
$\sigma_{capture}^{232}\text{Th}$ (barn)	1.62	1.25	1.23	1.60
$\tau_{cap}^{232}\text{Th}$ (mol/jour)	12.97	0.52	0.05	<b>13.54</b>
$N^{233}\text{U}$ (mol)	2.13 10 <sup>3</sup>	1.07 10 <sup>3</sup>	1.60 10 <sup>3</sup>	4.80 10 <sup>3</sup>
$\sigma_{fission}^{233}\text{U}$ (barn)	80.9	35.9	43.6	78.4
$\sigma_{capture}^{233}\text{U}$ (barn)	9.9	4.8	5.2	9.58
$\tau_{abs}^{233}\text{U}$ (mol/jour)	12.10	0.28	0.03	<b>12.41</b>

TAB. 4.2 – Valeurs initiales des inventaires  $N$  et sections efficaces moyennes  $\sigma$  du  $^{232}\text{Th}$  et de  $^{233}\text{U}$  dans le sel combustible  $\text{LiF-BeF}_2\text{-(Th/U)F}_4$ , détaillées cellule par cellule pour le calcul du taux de régénération total du système.

Le tableau 4.2 fournit cellule par cellule le détail des inventaires, sections efficaces moyennes et flux, ainsi que les mêmes valeurs calculées pour l'ensemble du circuit de sel combustible. On constate que le flux moyen dans les canaux est d'un ordre de grandeur supérieur au flux dans les réservoirs, lui-même 15 fois plus élevé que dans les échangeurs. Les sections efficaces moyennes globales sont de ce fait très proches des sections efficaces moyennes dans les canaux de sel. Le taux de régénération est obtenu en divisant le taux  $\tau_{cap}^{232}\text{Th}$  de capture total du  $^{232}\text{Th}$  (13.54 mol/jour) par le taux  $\tau_{abs}^{233}\text{U}$  d'absorption total de  $^{233}\text{U}$  (12.41 mol/jour). Le taux obtenu vaut environ 1.09, ce qui indique que le système est bien régénérateur au démarrage, et même surgénérateur. Le dimensionnement en l'état est donc satisfaisant de ce point de vue.

- **Vérification sommaire de la thermohydraulique du cœur**

Contrairement au cas des réacteurs à combustible solide, il n'existe pas de limite forte sur la densité volumique de puissance dans le combustible. Les sels fondus peuvent en effet supporter des valeurs supérieures au kW/cm<sup>3</sup>. La contrainte thermique se situe en fait au niveau de la vitesse de circulation du sel dans le cœur, qui doit être suffisante pour évacuer la chaleur produite, mais pas trop importante pour conserver une taille raisonnable aux pompes, et limiter la corrosion qui augmente avec la vitesse du sel. Nous n'aborderons ici que très sommairement la partie thermohydraulique du concept afin de vérifier qu'avec le dimensionnement retenu la vitesse du sel dans les canaux est satisfaisante. La répartition de la puissance dans les canaux n'est pas homogène; elle dépend de la position radiale et verticale considérée. Le projet MSBR prévoit de régler la vitesse de circulation du sel dans chaque canal en adaptant son diamètre d'entrée, afin de tenir compte de la variation radiale de la puissance volumique. La vitesse maximale du sel, dans les canaux les plus centraux, est alors évaluée à 2.4 m/s, tandis que la vitesse minimale en périphérie est de 0.6 m/s [17]. Nous souhaitons évaluer les vitesses moyennes d'écoulement dans les canaux de notre système de référence, et pouvons nous contenter de calculer la dépendance radiale de la densité volumique de puissance. Les valeurs moyennes obtenues pour un rayon donné caractérisent ainsi l'ensemble des canaux situés à cette distance du centre du cœur (figure 4.5). On évalue à 1.7 environ le facteur de forme du cœur, qui est le rapport de la puissance volumique maximale sur la puissance volumique moyenne.

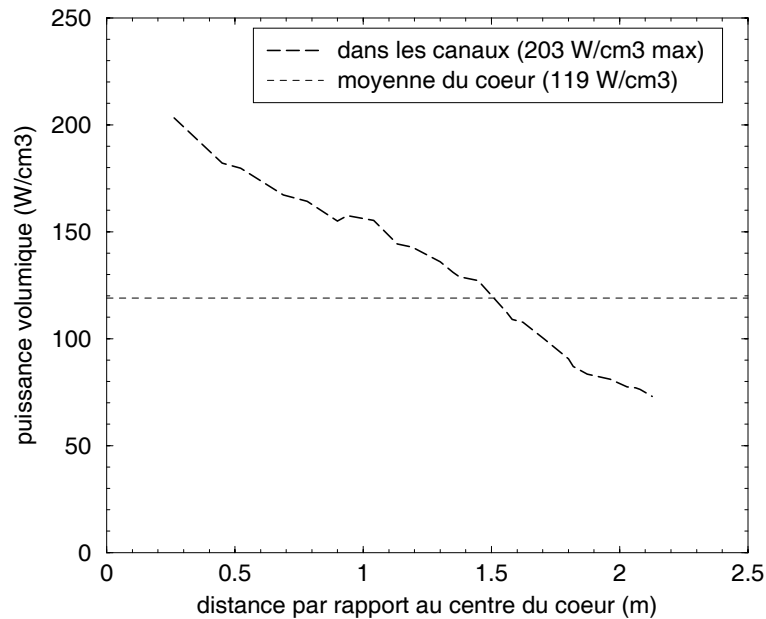


FIG. 4.5 – Répartition radiale au démarrage de la puissance volumique dans le sel en cœur.

A partir de cette répartition radiale  $\rho(r)$  de la puissance dans les canaux, il est possible d'obtenir la répartition radiale  $v(r)$  de la vitesse de circulation verticale du sel. Pour cela, on

s'intéresse au bilan thermique d'un volume élémentaire  $\delta V$  de sel, lorsqu'il remonte toute la hauteur  $h$  (4.6 m) d'un canal situé à un rayon  $r$  du centre du cœur. Au cours de ce trajet, le sel contenu dans ce volume reçoit une quantité d'énergie  $\delta Q$ , et voit sa température augmenter de  $\Delta T$  (100 K environ), ce qui s'écrit en utilisant la chaleur spécifique volumique  $C_p$  du sel:

$$\delta Q = C_p \delta V \Delta T \quad (4.1)$$

Pour remonter l'ensemble du canal de hauteur  $h$  à la vitesse moyenne  $v(r)$ , notre volume élémentaire met un temps  $\frac{h}{v(r)}$ . La quantité d'énergie reçue au cours de ce laps de temps du fait d'une puissance volumique moyenne  $\rho(r)$  peut donc s'écrire également:

$$\delta Q = \rho(r) \delta V \frac{h}{v(r)} \quad (4.2)$$

On déduit des expressions 4.1 et 4.2 la vitesse en fonction du rayon:

$$v(r) = \rho(r) \frac{h}{C_p \Delta T} \quad (4.3)$$

La formule 4.3 appliquée à un canal central, où la densité volumique de puissance est maximale et vaut environ  $200 \text{ W/cm}^3$ , fournit une vitesse maximale de 2.0 m/s. La vitesse minimale, dans un canal périphérique (densité volumique de puissance minimale, d'environ  $70 \text{ W/cm}^3$ ), est de même estimée à 0.7 m/s. Ces deux valeurs extrêmes sont comprises dans l'intervalle calculé par le projet MSBR (2.4 m/s - 0.6 m/s), et sont donc satisfaisantes du point de vue du dimensionnement des pompes nécessaires pour faire circuler le sel.

### c - Encadrement des choix de référence

Le système est à présent bien défini dans son état initial, au moment du démarrage. Faute de n'avoir pas encore étudié pour l'instant l'évolution du combustible, nous ne pouvons cependant pas nous limiter à ce choix. Dans cette optique, nous relevons deux paramètres importants qu'il convient d'encadrer avant de les fixer définitivement pour des études plus détaillées :

- la proportion molaire de noyaux lourds dans le sel
- la proportion volumique de sel dans le cœur

Pour vérifier que les valeurs de référence adoptées pour ces paramètres sont optimales, nous allons les encadrer en les faisant varier de  $\pm 20\%$ , l'autre paramètre étant maintenu à sa valeur de référence. Pour chacun des deux paramètres retenus, nous pourrions ainsi étudier leur influence en cours de fonctionnement, avant de nous attarder sur le système de référence à l'équilibre. Il est d'abord nécessaire de redimensionner le système au démarrage dans chaque cas.

• **Proportion molaire de noyaux lourds dans le sel**

On conserve ici pour la proportion volumique de sel en cœur la valeur de référence (diamètre des canaux de 15 cm). La géométrie est également inchangée, avec le même volume total de sel (46.2 m<sup>3</sup>). Rappelons que la proportion de noyaux lourds dans le sel est dans le cas de référence de 12.5%. Cette valeur est encadrée à  $\pm 20\%$ , entre 10 et 15%. La densité du sel est recalculée dans les deux cas selon la méthode exposée au chapitre précédent.

% de (NL)F <sub>4</sub> en sel	10.0	12.5	15.0
densité du sel (g/cm <sup>3</sup> )	3.1	3.3	3.5
$k_{eff}$ ( $\pm 0.002$ )	1.004	1.005	1.003
flux (n.cm <sup>-2</sup> .s <sup>-1</sup> )	3.64 10 <sup>14</sup>	3.40 10 <sup>14</sup>	3.23 10 <sup>14</sup>
$N^{232Th}$ (mol)	2.42 10 <sup>5</sup>	2.88 10 <sup>5</sup>	3.31 10 <sup>5</sup>
$\sigma_{capture}^{232Th}$ (barn)	1.74	1.60	1.47
$\tau_{cap}^{232Th}$ (mol/jour)	13.24	13.54	13.58
$N^{233U}$ (mol)	4.09 10 <sup>3</sup>	4.80 10 <sup>3</sup>	5.62 10 <sup>3</sup>
% d' <sup>233</sup> U dans les NL	1.66	1.64	1.67
$\sigma_{fission}^{233U}$ (barn)	86.8	78.4	71.1
$\sigma_{capture}^{233U}$ (barn)	10.4	9.58	8.82
$\tau_{abs}^{233U}$ (mol/jour)	12.50	12.41	12.54
taux de régénération	1.06	1.09	1.08

TAB. 4.3 – *Caractéristiques initiales du sel combustible LiF-BeF<sub>2</sub>-(Th/U)F<sub>4</sub>, pour la proportion de référence de noyaux lourds en sel (12.5%) et deux autres proportions différant de  $\pm 20\%$  (diamètre des canaux de 15 cm).*

Le tableau 4.3 compare les principales caractéristiques initiales des sels ne différant que par leur proportion de noyaux lourds. Du fait essentiellement de la diminution de la section efficace moyenne de fission de l'<sup>233</sup>U, l'inventaire initial de ce dernier augmente avec la proportion de noyaux lourds (respectivement 0.95, 1.12 et 1.31 t d'<sup>233</sup>U dans 56, 67 et 77 t de <sup>232</sup>Th). On remarque que la proportion molaire d'<sup>233</sup>U dans les noyaux lourds est minimale pour le cas de référence. En divisant le taux de capture du <sup>232</sup>Th par le taux d'absorption de l'<sup>233</sup>U, on obtient le taux de régénération initial. De ce point de vue, le cas de référence est le meilleur au démarrage. Le cas à 15% de noyaux lourds en est très proche, au prix toutefois d'un inventaire d'<sup>233</sup>U plus élevé, qui se traduira en cours de fonctionnement par une production accrue de transuraniens. Le sel de référence est donc conservé comme tel, mais les mises à l'équilibre obtenues avec les trois sels proposés seront comparées avant de valider définitivement le choix d'une proportion molaire de 12.5% de noyaux lourds.

• **Proportion volumique de sel en cœur**

Dans cette partie, la proportion de noyaux lourds dans le sel, modifiée précédemment, est fixée à sa valeur de référence (12.5%). Il s'agit de faire varier de  $\pm 20\%$  le diamètre des canaux, fixé à 15 cm dans le cas de référence. La taille des hexagones constituant le cœur est conservée, le côté d'un hexagone étant toujours fixé à 15 cm. La proportion volumique de sel en cœur se calcule alors simplement comme le rapport du volume de sel dans un hexagone du cœur sur le volume total de ce dernier. Cette proportion est de 30.2% pour un diamètre de 15 cm, de 19.4% pour un diamètre de 12 cm (- 20%), et de 43.5% pour un diamètre de 18 cm (+ 20%).

Modifier les volumes relatifs de sel et de graphite dans le cœur va affecter le processus de modération des neutrons, qui se fait essentiellement dans le graphite. Pour s'en convaincre avant d'étudier les conséquences neutroniques de la variation de la proportion volumique de sel en cœur, détaillons le processus de modération au démarrage du système de référence. Nous nous plaçons à des énergies inférieures au seuil de diffusion inélastique du  $^{12}\text{C}$ , qui se situe à environ 5 MeV, afin de limiter notre raisonnement à la seule diffusion élastique. Il est pour cela nécessaire de rappeler certaines notions concernant la modération par cette réaction. On définit la perte moyenne d'énergie cinétique par choc, notée  $\overline{\Delta E}$ , par :

$$\overline{\Delta E} = \frac{E_0}{2}(1 - a) \quad (4.4)$$

avec :

- $E_0$  l'énergie cinétique initiale du neutron
- $a = \left(\frac{A-1}{A+1}\right)^2$  le paramètre de collision, A étant le nombre de masse du noyau de recul

Dans le cas du graphite, la perte d'énergie cinétique moyenne par choc est alors de  $\overline{\Delta E} \approx \frac{E_0}{7}$ , ce qui en fait un modérateur relativement efficace. A titre de comparaison,  $\overline{\Delta E}$  vaut  $\frac{E_0}{2}$  dans le cas de l'hydrogène, et  $\frac{E_0}{105}$  dans le cas du plomb. A partir d'une énergie de référence  $E_0$ , il est commode de définir un autre repère d'énergie, qu'on appelle la léthargie  $u$  :

$$u = \ln \frac{E_0}{E} \quad (4.5)$$

Le gain de léthargie  $\Delta u$  pour passer de l'énergie  $E_1$  à  $E_2$  se définit comme suit :

$$\Delta u = \ln \frac{E_1}{E_2} \quad (4.6)$$

On montre alors que le gain moyen  $\overline{\Delta u}$  de léthargie par choc, noté  $\xi$ , ne dépend que du paramètre de collision  $a$  [49] :

$$\xi = 1 + \frac{a}{1-a} \ln a \quad (4.7)$$

Le paramètre  $\xi$  présente l'avantage de quantifier l'efficacité d'une diffusion en terme de perte d'énergie, et ce indépendamment de l'énergie initiale du neutron diffusé. Outre son efficacité, il est nécessaire de connaître la fréquence d'une diffusion, qu'on exprime par le taux de réaction  $\tau_s$  normalisé par le nombre total de diffusions dans le cœur par seconde. Le paramètre  $\tau_s \cdot \xi$  permet ainsi de caractériser globalement la contribution de chaque noyau diffuseur à la modération des neutrons dans le cœur. Outre les noyaux de  $^{12}\text{C}$  du graphite, les noyaux diffuseurs suivants interviennent dans le sel :  $^7\text{Li}$ ,  $^9\text{Be}$ ,  $^{19}\text{F}$ , et  $^{232}\text{Th}$  dans une moindre mesure. Le tableau 4.4 donne pour chaque noyau diffuseur, au démarrage du cœur de référence, le facteur de ralentissement  $a$ , la section efficace moyenne de diffusion élastique  $\sigma_s$ , et le paramètre  $\tau_s \cdot \xi$ .

	sel des canaux				graphite
	$^7\text{Li}$	$^9\text{Be}$	$^{19}\text{F}$	$^{232}\text{Th}$	$^{12}\text{C}$
$a$	0.563	0.640	0.810	0.983	0.716
$\xi$	0.260	0.207	0.102	0.009	0.158
$\sigma_s$ (barn)	1.16	5.55	3.71	11.9	4.54
$\tau_s$ (%)	1.7	2.0	11.6	3.0	81.7
$\tau_s \cdot \xi$	0.004	0.004	0.012	0.001	0.129

TAB. 4.4 – Paramètres caractérisant le ralentissement des neutrons dans le cœur de référence.

La somme des  $\tau_s \cdot \xi$  fournit le gain moyen de léthargie global du cœur, qui vaut 0.150. Cette valeur globale est proche de celle du  $^{12}\text{C}$ , qui participe à la modération des neutrons à hauteur de  $\frac{0.129}{0.150} = 86\%$ . On note que la contribution du  $^{232}\text{Th}$  est inférieure à 1%, celle de l' $^{233}\text{U}$  étant quant à elle inférieure à 0.1%. A l'issue de cette étude, il est donc clair que le graphite est le modérateur principal du cœur. Néanmoins, dans le cas de référence, la contribution des noyaux légers du sel est loin d'être négligeable, et sera modifiée par le changement de la proportion sel/graphite. Avant d'observer les effets neutroniques d'une telle modification, il convient d'évaluer une dernière grandeur intéressante caractéristique de la diffusion, qui est le libre parcours moyen de diffusion  $\lambda_s$ , inverse de la section efficace macroscopique. Dans le graphite du cœur, la section efficace moyenne de diffusion  $\sigma_s$  est de 4.54 barn et la densité atomique de  $1.15 \cdot 10^{23}$  at/cm<sup>3</sup> pour une densité de 2.3 g/cm<sup>3</sup>, ce qui donne  $\lambda_s = 1.92$  cm. Dans le graphite du réflecteur radial,  $\sigma_s$  est plus élevée (4.81 barn), ce qui ramène le libre parcours moyen à 1.81 cm. Dans le sel des canaux, la section efficace moyenne totale de diffusion est de 3.53 barn, pour une densité de  $7.79 \cdot 10^{22}$  at/cm<sup>3</sup>, soit un libre parcours moyen de 3.64 cm.

Il s'agit à présent de redimensionner le système pour les deux proportions volumiques de sel encadrant la valeur de référence, en respectant les mêmes contraintes. Le tableau 4.5 résume les caractéristiques principales des trois systèmes comparés, résultant du processus de dimensionnement sous contraintes. Dans les trois cas, la puissance totale et les épaisseurs des réflecteurs

% volumique de sel en cœur	19.4	30.2	43.5
diamètre des canaux (cm)	12	15	18
rayon et demi-hauteur du cœur (m)	2.7	2.3	2.1
nombre de canaux	348	252	198
hauteur des “réservoirs” (cm)	23	31	39
épaisseur cylindrique des “échangeurs” (cm)	8.7	9.6	10.3
volume total de sel combustible (m <sup>3</sup> )	47.7	46.2	48.0
volume de sel dans les canaux du cœur (m <sup>3</sup> )	21.3	20.5	21.2
volume de sel dans les “réservoirs” (m <sup>3</sup> )	10.5	10.3	10.8
volume de sel dans les “échangeurs” (m <sup>3</sup> )	15.9	15.4	16.0

TAB. 4.5 – *Caractéristiques géométriques initiales du système de 2500 MWth pour les trois proportions volumiques de sel en cœur retenues.*

et des protections neutroniques sont inchangées. A partir de ces géométries, nous allons simuler la mise à l'équilibre de ces systèmes. Avant de comparer leurs performances sur cette période, attardons nous sur leurs caractéristiques à  $t = 0$ , résumées dans le tableau 4.6.

On remarque d'abord que l'augmentation de la proportion volumique du sel combustible dans le cœur durcit le spectre, ce qui se traduit par une diminution des sections efficaces moyennes de capture et de fission. Ce durcissement s'explique par un effacement relatif du modérateur graphite devant le sel, moins efficace. Les sections efficaces moyennes de diffusion restent pratiquement inchangées par rapport aux valeurs de référence du tableau 4.4 (variations relatives inférieures à 1%), ce qui signifie que les taux de diffusion du sel et du graphite sont modifiés dans le même rapport que leurs proportions molaires en cœur. Ceci est la seule cause de modification des contributions des noyaux diffuseurs du cœur à la modulation, le rapport des flux dans le sel et dans le graphite restant inchangé. Le taux de diffusion  $\tau_s$  sur le graphite du cœur, qui est d'environ 82% dans le cas de référence, n'est ainsi que de 73% dans le cas des canaux de 18 cm de diamètre, et à l'inverse de 91% avec les canaux de 12 cm de diamètre.

Intéressons nous à présent aux inventaires de thorium et d'uranium. L'inventaire total diffère légèrement d'un cas à l'autre du simple fait des petites différences dans le volume total de sel. A cause du durcissement du spectre, la proportion initiale d'<sup>233</sup>U nécessaire augmente avec la proportion volumique de sel en cœur. Pour une proportion volumique de sel de 19.4%, l'inventaire initial d'<sup>233</sup>U diminue de 1.12 t à 1.04 t. Cette diminution est faible si on la compare à l'augmentation de 1.12 t à 1.41 t d'<sup>233</sup>U pour le cœur constitué à 43.5% de sel. Ceci laisse présager une production accrue de transuraniens par capture parasite, et par suite une diminution plus rapide du taux de régénération. L'évolution de la régénération sera donc suivie au cours de la mise à l'équilibre dans les trois cas, avant de valider pour la suite le choix de référence.



% vol. de sel en cœur	19.4	30.2	43.5
diamètre des canaux (cm)	12	15	18
$k_{eff}$ ( $\pm 0.002$ )	1.005	1.005	1.002
flux (n.cm <sup>-2</sup> .s <sup>-1</sup> )	2.73 10 <sup>14</sup>	3.40 10 <sup>14</sup>	3.98 10 <sup>14</sup>
$N^{232Th}$ (mol)	2.97 10 <sup>5</sup>	2.88 10 <sup>5</sup>	2.98 10 <sup>5</sup>
$\sigma_{capture}^{232Th}$ (barn)	1.85	1.60	1.39
$\tau_{cap}^{232Th}$ (mol/jour)	12.96	13.54	14.24
$N^{233U}$ (mol)	4.46 10 <sup>3</sup>	4.80 10 <sup>3</sup>	6.04 10 <sup>3</sup>
% d' <sup>233</sup> U dans les NL	1.48	1.64	1.99
$\sigma_{fission}^{233U}$ (barn)	105	78.4	53.3
$\sigma_{capture}^{233U}$ (barn)	12.1	9.58	7.03
$\tau_{abs}^{233U}$ (mol/jour)	12.32	12.41	12.53
taux de régénération	1.05	1.09	1.14

TAB. 4.6 – *Caractéristiques initiales du sel combustible de référence 70.0% LiF - 17.5% BeF<sub>2</sub> - 12.5% (Th/U)F<sub>4</sub>, pour la proportion volumique de sel en cœur de référence (30.2%) et deux autres proportions l'encadrant (19.4% et 43.5%).*

## 4.1.2 Retraitement

Nous venons de préciser les dimensionnements du cœur et du sel combustible retenus pour l'étude de la mise à l'équilibre du système. Avant de pouvoir simuler le fonctionnement du réacteur, il reste toutefois à décrire le retraitement en ligne appliqué. Il s'agit ici de rappeler quelles sont les principales étapes du retraitement du MSBR qu'on choisit de reprendre et de modéliser, en utilisant les techniques introduites au chapitre précédent.

### a - Description des options du MSBR retenues

#### • Opérations du cycle du combustible

Du point de vue de la simulation de l'évolution de la composition du combustible et des principales caractéristiques physiques du réacteur, seules quelques étapes interviennent significativement. La figure 4.6 résume le retraitement en ligne à ses trois principales opérations, qui sont dans l'ordre la fluoration, l'extraction des actinides et enfin l'extraction des lanthanides. Chacune de ces étapes rend possible la suivante. La fluoration permet d'abord d'extraire l'uranium du sel, sous forme d'UF<sub>6</sub>. L'uranium hexafluoré est accompagné de l'iode et du neptunium. Ces éléments sont ensuite réduits et immédiatement réinjectés en cœur.

Le sel débarrassé à plus de 99% de son uranium est alors soumis à une première extraction réductrice destinée à en extraire les actinides encore présents, c'est à dire le protactinium (produit à partir du thorium) et les transuraniens (produits à partir de l'uranium). Ces éléments passent

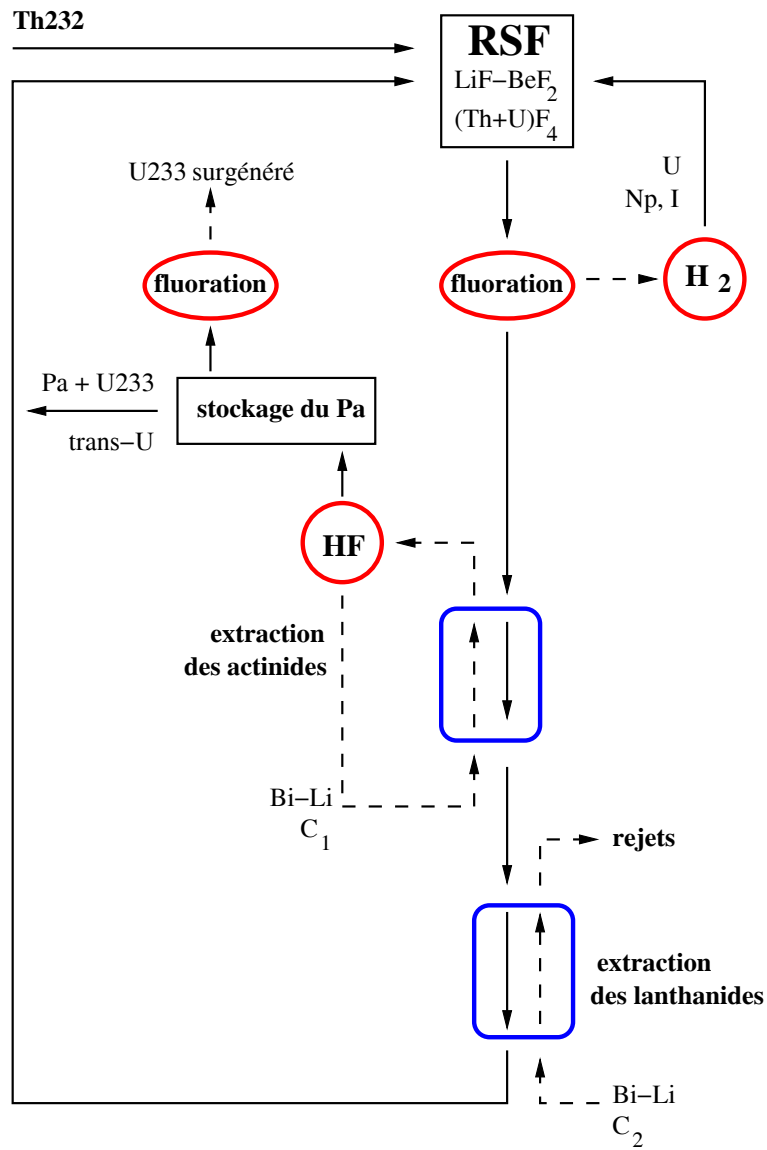


FIG. 4.6 – Schéma de principe du retraitement en ligne du MSBR réévalué.

du sel combustible à l'alliage métallique Bi-Li, puis sont réinjectés dans un sel fluorure pour un stockage de quelques mois. La concentration  $C_1$  en Li de l'alliage métallique réducteur Bi-Li est donc choisie pour extraire préférentiellement les actinides. D'après les coefficients de partage du sel combustible (figure 2.8), une valeur caractéristique pour le coefficient de partage  $D_{Li}$  du lithium entre les deux phases est  $\log D_{Li} \simeq 10^{-3}$ . Au terme d'un laps de temps suffisamment long devant la demi-vie du  $^{233}\text{Pa}$  (27 jours), l'essentiel du  $^{233}\text{Pa}$  a décru en  $^{233}\text{U}$ . L'ensemble composé alors de l' $^{233}\text{U}$  formé, de  $^{231}\text{Pa}$  et de transuraniens est réinjecté dans le sel combustible. Si le système est surgénérateur, il se forme dans ce réservoir de stockage un excès d' $^{233}\text{U}$ , qui est prélevé par fluoration avant la réinjection. L'ajustement régulier du débit de cette réinjection permet de gérer l'évolution à long-terme de la réactivité, et de maintenir le système critique sans avoir recours à l'utilisation de poisons consommables.

La dernière étape est la plus importante du retraitement en ligne, et justifie les étapes précédentes. Il s'agit de l'extraction d'une partie des produits de fission du sel, et plus particulièrement des lanthanides. La concentration  $C_2$  en Li du métal réducteur est choisie de sorte que les terres rares passent préférentiellement dans le métal. D'après les coefficients de partage du sel LiF-BeF<sub>2</sub>-(Th/U)F<sub>4</sub> de référence, une valeur  $\log D_{Li} \simeq 10^{-2}$  convient.

#### • Opérations de maintenance du sel

Aux trois étapes précédentes, il faut ajouter des opérations de réajustement de la composition du sel. La seule représentée sur le schéma 4.6 est l'ajout continu de thorium, pour compenser sa consommation et maintenir la concentration de noyaux lourds du sel constante. Le circuit semi-fermé de sel saturé en thorium afin de permettre l'extraction des terres rares sans perte de thorium n'est pas non plus représenté, car n'intervient pas dans la simulation de l'évolution du sel combustible. Il reste à mentionner la gestion du lithium formé en excès dans le sel du fait des deux étapes d'extraction réductrice. Comme dans le cas du RSF à sel NaCl, l'excès de LiF dans le sel est compensé en placant, avant la réinjection des actinides, le sel combustible dans une cellule de réduction électrochimique du LiF. On récupère ainsi à la cathode de cette cellule un alliage Bi-Li, utilisable pour les extractions réductrices, et à l'anode du fluor gazeux F<sub>2</sub> qu'on peut utiliser pour la fluoration de l'uranium.

### b - Modélisation des principales étapes

#### • Gestion du $^{233}\text{Pa}$ et de l' $^{233}\text{U}$

Du point de vue du calcul d'évolution, les étapes du retraitement dont il faut tenir compte dans la simulation sont limitées, comme c'était d'ailleurs le cas pour le RSF à sels chlorures du chapitre précédent. Ainsi, la fluoration qui se traduit par la réinjection immédiate des éléments extraits ne nécessite aucun traitement particulier.

De même, l'étape d'extraction des actinides et leur stockage temporaire n'est prise en compte que très simplement, du seul point de vue du  $^{233}\text{Pa}$  et de l' $^{233}\text{U}$ . En pratique, sauf pour le  $^{233}\text{Pa}$  de demi-vie courte, les durées de vie caractéristiques en cœur des actinides extraits avec le protactinium sont en effet comprises entre quelques années et quelques dizaines années, et le séjour de quelques mois effectué hors-flux est négligeable. On n'extrait donc dans nos simulations que le  $^{233}\text{Pa}$ , et on laisse les autres actinides dans le circuit de sel, puisque tout se passe comme tel du point de vue de leurs durées de vie effectives. En particulier, comme tous les actinides autres que le  $^{233}\text{Pa}$ , le  $^{231}\text{Pa}$  n'est jamais extrait du sel dans nos simulations. Cela permet de définir une limite supérieure pour la concentration des actinides présents dans le sel, et de s'y placer à tout instant dans nos calculs. Dans le retraitement de référence, l'extraction effective du seul  $^{233}\text{Pa}$  est simulée par une décroissance fictive d'efficacité  $\varepsilon_{Pa} = 100\%$ , associée à la durée totale du retraitement  $T = 10$  jours. L' $^{233}\text{U}$  produit par désintégration de ce  $^{233}\text{Pa}$  est comptabilisé et accumulé en cours d'évolution.

De ce stock, on prélève et réinjecte par seconde la quantité d' $^{233}\text{U}$  nécessaire pour maintenir  $k_{eff}$  égal à 1. Ce débit est rectifié à chaque réajustement de la puissance totale en fonction des dernières dérivées secondes partielles du  $k_{eff}$  par rapport au temps et au débit lui-même. Cela revient à ne garder hors-flux que la partie surgénérée d' $^{233}\text{U}$ , que l'on comptabilise ainsi facilement, et qu'on désigne sous le terme de production nette cumulée d' $^{233}\text{U}$  (éventuellement négative à un moment donné si le système a été globalement sous-générateur jusque-là). L'ajustement du débit d' $^{233}\text{U}$  réinjecté se fait par le même algorithme d'évaluation de la variation de  $k_{eff}$  que celui présenté et utilisé pour le RSF du chapitre précédent. Il est intéressant ici de remarquer que l'expérience MSRE bénéficiait en pratique d'un système analogue de contrôle de la réactivité, piloté par ordinateur [15]. En fonction de paramètres comme la position de la barre de contrôle ou la température du sel, cet ordinateur évaluait toutes les 5 minutes la déviation de la réactivité  $\Delta\rho$  par rapport à la valeur attendue. En moyenne, la déviation  $\Delta\rho$  s'est avérée inférieure à 20 pcm, ce qui démontre la fiabilité de ce système de contrôle.

### • Extraction des produits de fission

L'extraction des produits de fission se fait exactement comme pour le RSF à sels chlorures du chapitre précédent. Les éléments sont regroupés dans les mêmes quatre classes (tableau 3.4), dont trois sont caractérisées par des valeurs requises d'efficacité (20, 5 et 1%), et la dernière pour les éléments insolubles évacués par le bullage d'hélium avec une constante de temps vérifiée être inférieure à la minute. On rappelle que ce retraitement privilégie l'extraction des terres rares, présentant les sections efficaces de capture les plus importantes.

Le taux de pertes d'actinides est pris égal à  $10^{-5}$ , ce qui donne pour  $T = 10$  jours un taux de pertes comparable à celui d'un combustible solide retraité tous les 5 ans, et autorise ainsi la comparaison significative des radiotoxicités générées correspondantes. L'efficacité de

référence de la fluoration de l'uranium est prise égale à 99%, soit un taux de pertes global d'uranium, rejeté avec les produits de fission, de  $10^{-5} \times 10^{-2} = 10^{-7}$ . Remarquons que le retraitement de référence de la figure 4.6 suppose que les pertes en actinides se font uniquement au niveau de l'extraction des produits de fission. Cependant, il est tout à fait envisageable de procéder à une séparation actinides/lanthanides différée des éléments présents dans la phase métallique de l'extracteur. Au cas où l'extraction réductrice des lanthanides s'accompagnerait de trop d'actinides, cette deuxième séparation permettrait d'assurer un taux de pertes effectif total en actinides de  $10^{-5}$  malgré tout. Un procédé envisageable pour cela serait l'électrodéposition des actinides encore présents dans l'alliage Bi-Li avec les produits de fission destinés aux déchets. Ces derniers resteraient, avec des traces d'actinides, dans le sel servant d'électrolyte à la cellule d'électrodéposition. Les actinides déposés à la cathode peuvent être recyclés et réinjectés après fluoration dans le sel combustible.

#### • Ajouts divers

L'ajout de thorium dans le sel se fait comme pour l'uranium naturel dans le système précédent. On rappelle que le débit n'est recalculé qu'au début de chaque pas MCNP, en fonction notamment du taux de capture total du  $^{232}\text{Th}$ . Cela permet de maintenir constante la proportion de noyaux lourds dans le sel. De même, les consommations de lithium, fluor et béryllium par réaction nucléaire sont compensées par le biais d'alimentations continues, de sorte que le sel combustible garde sa composition d'origine (4 LiF pour 1 BeF<sub>2</sub>). En sels fluorures, la valence 4 est majoritaire parmi les actinides. Pour simplifier la gestion du fluor dans la simulation, on impose donc que chaque actinide soit associé dans le sel à 4 noyaux de fluor. On impose également que chaque produit de fission soluble soit associé à 2 noyaux de fluor.

## 4.2 Mises à l'équilibre

Nous venons de définir le point de départ du fonctionnement de référence, ainsi que les limites du cadre de cette étude concernant d'une part la concentration de noyaux lourds dans le sel, d'autre part la proportion de sel en cœur. A partir de ces points de départ et en appliquant les protocoles d'évolution retenus, nous avons simulé le fonctionnement de ces réacteurs en producteur d'énergie, à puissance et réactivité constantes. L'évolution de tous les paramètres physiques ont pu ainsi être suivis depuis le démarrage jusqu'à la mise à l'équilibre complète du système. Le but est ici de décrire le régime transitoire dans le cas de référence et de le comparer aux cas limites choisis. Cette description va se concentrer essentiellement sur l'évolution de la composition du sel combustible, mais également sur quelques caractéristiques du réacteur qui en résultent, comme l'économie de neutrons. La sensibilité de ces résultats à certaines incertitudes sur les données nucléaires est évaluée en annexe B.

### 4.2.1 Produits de fission

Le premier point que nous souhaitons contrôler, c'est le comportement des produits de fission. Il s'agit en effet de vérifier que le retraitement en ligne associé au réacteur est satisfaisant du point de vue de la limitation de l'empoisonnement neutronique dû aux produits de fission.

#### a - Cas de référence

La quantité de produits de fission dans le sel se stabilise rapidement, en quelques années. Le graphe supérieur de la figure 4.7 montre que l'inventaire rejoint la valeur d'équilibre de 210 kg en un peu plus de 5 ans. Peu de temps après le démarrage, les produits de fission n'ont encore aucune influence sensible sur le spectre, et leur section efficace moyenne de capture est élevée (environ 25 barn). En quelques mois, leur accumulation provoque un durcissement du spectre, du fait d'une capture préférentielle des neutrons de basse énergie. Cela explique la diminution importante de leur section efficace moyenne de capture sur cette période (graphe inférieur de la figure 4.7), qui se stabilise à 3.19 barn.

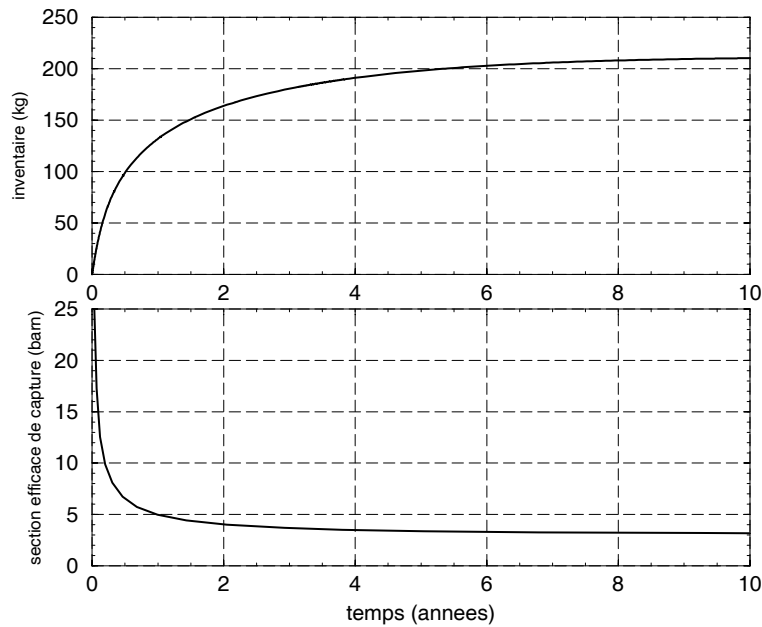


FIG. 4.7 – Mise à l'équilibre des produits de fission dans le sel combustible de référence.

La grandeur d'intérêt pour savoir dans quelle mesure les produits de fission nuisent à l'économie de neutrons du réacteur est leur taux de capture, qu'on exprime en neutrons par fission. La figure 4.8 représente l'évolution de ce taux de capture, résultant des évolutions de l'inventaire, de la section efficace moyenne et du flux total, qui passe en 10 ans d'environ  $3.4 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$  au démarrage à sa valeur d'équilibre de  $3.2 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ . Ce taux se stabilise en moins d'un an à une consommation de 0.015 neutron par fission.

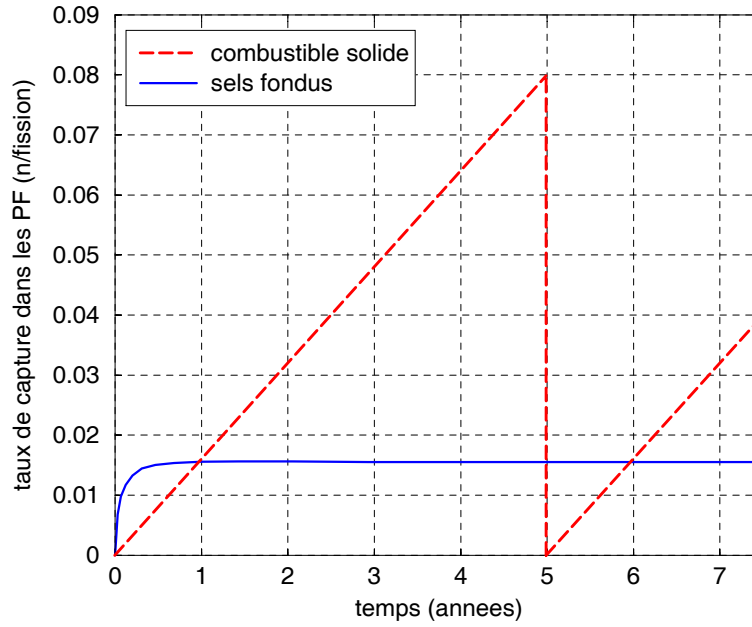
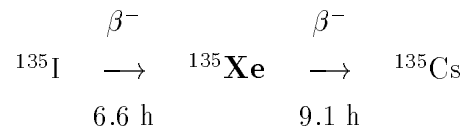


FIG. 4.8 – Comparaison de l’empoisonnement des produits de fission dans le système de référence au cas d’un réacteur à combustible solide et spectre rapide [13].

Pour donner un point de comparaison significatif, on le compare au taux de capture des produits de fission dans un réacteur à combustible solide. On choisit un réacteur sous-critique à spectre rapide, modéré au plomb, et également démarré en  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  [13]. Dans ce système, le cœur est retraité tous les 5 ans. La puissance totale  $P$  est fixée à 515 MWth, soit  $1.6 \cdot 10^{19}$  fissions par seconde, à raison de 200 MeV par fission en moyenne. La section efficace moyenne de capture  $\gamma$  est faible et constante (0.15 barn), mais le flux moyen plus élevé que dans le RSF à modérateur graphite ( $1.7 \cdot 10^{15} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ). En négligeant la disparition des produits de fission par capture devant leur production par fission, on suppose qu’ils s’accumulent linéairement jusqu’à atteindre l’inventaire de 8400 moles environ au bout de 5 ans. L’inventaire moyen de produits de fission par cycle de 5 ans est alors de 4200 moles, ce qui donne un taux moyen de capture d’environ  $6.4 \cdot 10^{17}$  par seconde, effectivement négligeable devant le taux de production par fission de  $3.2 \cdot 10^{19}$  par seconde. De cette approximation linéaire de l’inventaire des produits de fission, on déduit l’évolution de leur taux de capture (figure 4.8).

On vérifie que la valeur moyenne de ce taux par cycle de 5 ans est de 0.04 neutron/fission, soit plus du double de la valeur d’équilibre du RSF. Le premier objectif du retraitement en ligne est donc rempli, et ramène même le coût neutronique des produits de fission à un niveau inférieur à celui du réacteur à spectre rapide choisi pour la comparaison.

Avant d'étudier l'influence de la modification des choix de référence sur l'empoisonnement par les produits de fission, il convient de vérifier que les produits de fission gazeux entraînés hors du cœur en moins d'une minute par le bullage d'hélium sont bien négligeables. Pour cela, nous allons considérer le cas du  $^{135}\text{Xe}$ , produit par décroissance  $\beta^-$  de l' $^{135}\text{I}$  :



Le  $^{135}\text{Xe}$  est surtout gênant en spectre thermique, lorsqu'il s'accumule en cœur, du fait d'une très forte section efficace de capture ( $2.7 \cdot 10^6$  barn à 0.025 eV). En cas d'arrêt, il n'est plus consommé et s'accumule rapidement, rendant délicat un redémarrage dans les heures suivant l'arrêt sans réserve de réactivité suffisante. Ici, le  $^{135}\text{Xe}$  ne pose pas de tels problèmes car il est extrait en moins d'une minute. Afin de suivre sa mise à l'équilibre rapide, on abaisse le seuil sur la demi-vie de 10 h à 10 secondes. Sur les 3 premiers jours suivant le démarrage, son inventaire se stabilise à  $2.4 \cdot 10^{-4}$  moles. En dépit d'une section efficace moyenne de capture importante, passant de  $2.8 \cdot 10^5$  barn au démarrage à  $2.2 \cdot 10^5$  barn après 50 ans de fonctionnement, on vérifie que le taux de capture du  $^{135}\text{Xe}$  est bien négligeable. Le  $^{135}\text{Xe}$  est extrait à raison de 0.28 mol/jour, et son stock hors-flux se stabilise en quelques jours à 0.36 moles.

## b - Encadrement des choix de référence

La mise à l'équilibre des produits de fission dépend surtout de la vitesse de leur extraction, rapide dans le retraitement de référence retenu. Pour s'en convaincre, nous allons à présent examiner l'influence de la modification des deux paramètres encadrés, à savoir la composition du sel et sa proportion volumique dans le cœur.

### • Influence de la composition du sel

Une modification suffisante de la proportion de noyaux lourds dans le sel, maintenue constante tout au long de la mise à l'équilibre complète du système, peut modifier le spectre dans le sel. Cela se traduit pour les produits de fission par une modification de leur taux de capture, dont il convient de vérifier l'importance. La figure 4.9 compare la mise à l'équilibre du taux de capture des produits de fission pour les trois compositions de sel combustible retenues jusqu'ici. On remarque à cette occasion qu'après le premier transitoire, le taux de capture diminue légèrement dans les trois cas pendant une vingtaine d'années, avant que le flux total ne se stabilise. Une variation de  $\pm 20\%$  sur la proportion des noyaux lourds dans le sel n'a qu'un effet minime sur le taux de capture des produits de fission. Le durcissement du spectre ne se ressent en effet que très faiblement sur leur section efficace moyenne (3.27 barn pour 10% de noyaux lourds, et



3.12 barn pour 15%), l'extraction rapide des terres rares réduisant suffisamment la concentration des produits de fission solubles pour rendre l'effet de spectre anecdotique.

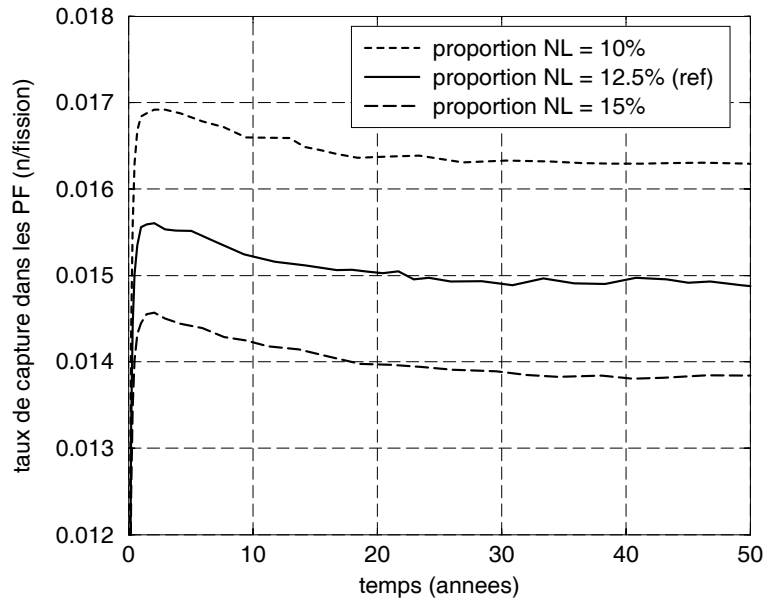


FIG. 4.9 – Comparaison de l'évolution de l'empoisonnement des produits de fission dans le RSF de référence à ceux obtenus pour des sels à 10 et 15% de concentration molaire en noyaux lourds (géométrie de référence).

#### • Influence de la proportion de sel en cœur

Il a été établi que dans le réacteur étudié, le graphite est le principal responsable de la modération des neutrons. Pour cette raison, une modification des proportions relatives du sel et du graphite dans le cœur a plus d'impact sur le spectre qu'une simple modification de la proportion des noyaux lourds dans le sel. Ainsi, la section efficace moyenne des produits de fission se stabilise à 4.02 barn pour 19.4% de sel en cœur (canaux de 12 cm de diamètre), et à 2.43 barn pour 43.5% de sel en cœur (canaux de 18 cm de diamètre). Les neutrons sont en effet mieux modérés que dans le cœur de référence dans le premier cas, et moins bien dans le second. Dans les trois cas, la masse totale des produits de fission présents dans le sel est de  $210 \pm 1$  kg.

Malgré ces différences plus marquées que dans l'étude précédente, les taux de capture restent aussi proches (figure 4.10). Ceci s'explique par le fait que lorsque la proportion volumique de sel en cœur augmente, la diminution de la section efficace moyenne de capture des produits de fission s'accompagne entre autres de la diminution de la section efficace moyenne de fission de l' $^{233}\text{U}$ . L' $^{233}\text{U}$  restant le principal noyau fissile et la puissance totale étant fixée à l'identique dans les trois cas, le flux total augmente avec la proportion volumique de sel (tableau 4.7).

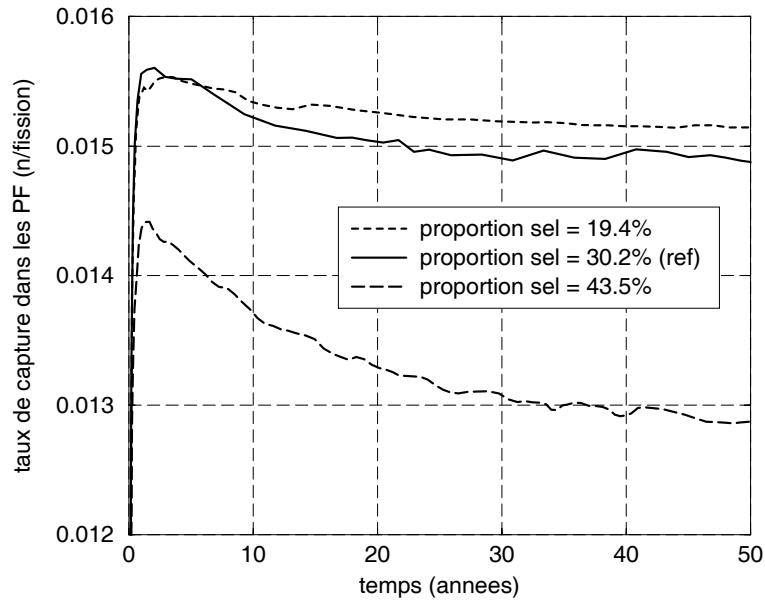


FIG. 4.10 – Comparaison de l'évolution de l'empoisonnement des produits de fission dans le RSF de référence à ceux obtenus pour des proportions volumiques de sel en cœur de 19.4% et 43.5% (diamètres des canaux de 12 et 18 cm respectivement).

% vol. de sel en cœur	19.4	30.2	43.5
$N^{233U}$ (mol)	$4.69 \cdot 10^3$	$5.36 \cdot 10^3$	$7.84 \cdot 10^3$
$\sigma_{fission}^{233U}$ (barn)	96.1	67.0	39.8
flux ( $n.cm^{-2}.s^{-1}$ )	$2.56 \cdot 10^{14}$	$3.17 \cdot 10^{14}$	$3.62 \cdot 10^{14}$
$\sigma_{capture}^{PF}$ (barn)	4.02	3.19	2.43

TAB. 4.7 – Flux total et sections efficaces moyennes à  $t = 50$  ans, pour la proportion volumique de référence de sel en cœur (30.2%) et deux autres proportions l'encadrant (19.4% et 43.5%).

## 4.2.2 Actinides

Pour les actinides, la mise à l'équilibre est plus longue. Contrairement aux produits de fission pour lesquels on a vu qu'elle était essentiellement déterminée par une extraction rapide, elle résulte pour les actinides qui restent dans le sel d'un lent équilibre par captures neutroniques successives. Nous allons présenter cette mise à l'équilibre dans le cas de référence et les autres cas extrêmes retenus, en insistant sur la vitesse et l'importance de chaque transitoire.

### a - Cas de référence

#### • Inventaires

L'inventaire total de noyaux lourds (numéro atomique à partir de 90) est maintenu constant par l'ajustement de l'alimentation du système en thorium. Le tableau 4.8 montre que dans le cas de référence, cet inventaire est de 68 t environ, et qu'à l'équilibre un peu moins de 1.2 t de thorium ont été remplacées dans ce stock par de l'uranium et des transuraniens. Du point de vue de ce critère, l'équilibre est pratiquement atteint après 50 ans de fonctionnement, la puissance totale étant toujours en permanence de 2500 MWth. Les transuraniens, produits par capture sur l'uranium, sont plus longs à se stabiliser. L'équilibre est définitivement atteint après 100 ans de fonctionnement, et est toujours décrit par la suite à cet instant.

(tonnes)	t = 0	t = 50 ans	t = 100 ans
thorium	66.73	65.57	65.56
uranium	1.12	2.16	2.16
trans-U	-	0.12	0.13

TAB. 4.8 – Evolution de la répartition en masse des actinides (tonnes) entre thorium, uranium et transuraniens, à inventaire de noyaux lourds constants, dans le cas de référence.

Le graphe de gauche de la figure 4.11 montre la stabilisation des isotopes du protactinium et de l'uranium directement issus du  $^{232}\text{Th}$ . Le  $^{233}\text{Pa}$  provient d'une capture sur le  $^{232}\text{Th}$ , suivie d'une désintégration  $\beta^-$ . Il se forme très rapidement une fois le système démarré, passant de 0 à son inventaire maximal de 24.7 kg en une cinquantaine de jours. Ce transitoire n'est pas visible sur l'échelle choisie ici, mais sera détaillé plus loin, à l'occasion d'une discussion sur la durée totale  $T$  du retraitement. A partir de sa valeur maximale, l'inventaire du  $^{233}\text{Pa}$  décroît lentement jusqu'à se stabiliser à 21.3 kg. Par réaction (n,2n), le  $^{232}\text{Th}$  produit également du  $^{231}\text{Th}$  qui décroît en  $^{231}\text{Pa}$ , avec une demi-vie de 25.5 h. L' $^{232}\text{U}$ , dont l'accumulation est également représentée, est formé par capture du  $^{231}\text{Pa}$ .

Le graphe de droite de la figure 4.11 montre comment se constitue le vecteur isotopique de l'uranium à l'équilibre, par captures successives à partir de l' $^{233}\text{U}$ . Les petites fluctuations visibles de l'inventaire d' $^{233}\text{U}$  sont dues aux réajustements fréquents du débit de réinjection de l' $^{233}\text{U}$ ,

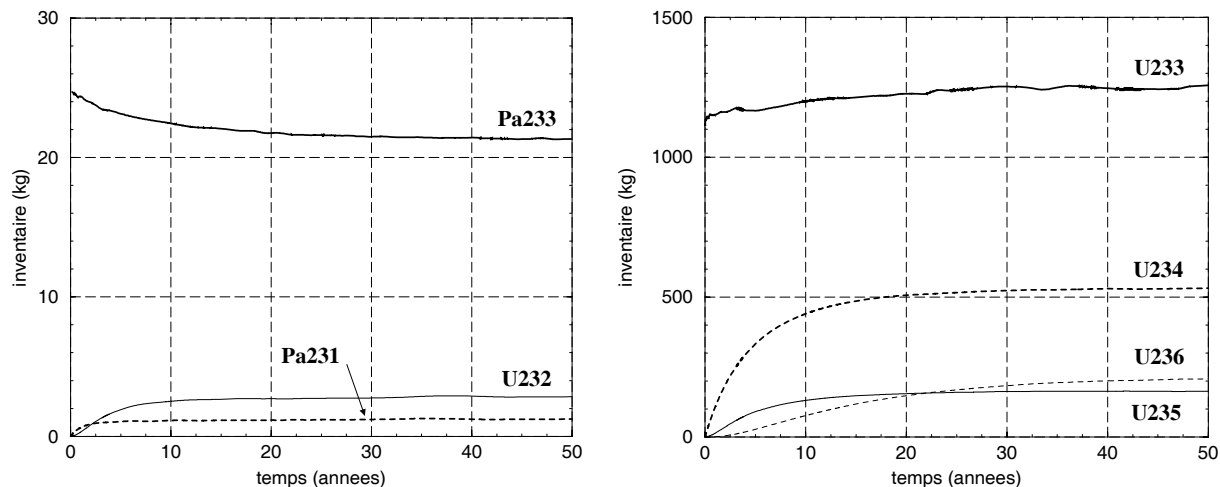


FIG. 4.11 – Mise à l'équilibre de l'inventaire des isotopes du protactinium et de l'uranium dans le système de référence.

destinés à maintenir le système critique. Du fait de la prédominance des fissions dans l' $^{233}\text{U}$  et du procédé de pilotage en ligne de la réactivité, l'inventaire de l' $^{233}\text{U}$  évolue peu, augmentant très légèrement pour compenser l'apparition de poisons neutroniques. Cela s'explique également par l'apparition de l' $^{235}\text{U}$ , qui assure environ 10% des fissions à l'équilibre.

La figure 4.12 illustre la mise à l'équilibre des transuraniens, élément par élément. On constate logiquement que la durée du régime transitoire d'un élément est d'autant plus longue que son numéro atomique est élevé. Le plutonium est majoritairement composé de  $^{238}\text{Pu}$ , qu'on représente pour cette raison sur le même graphe. La figure 4.13 détaille les noyaux parmi les transuraniens dont l'inventaire à l'équilibre est supérieur à 1 kg, autres que le  $^{238}\text{Pu}$ . L' $^{243}\text{Am}$  est le seul isotope de l'américium en quantité notable dans le sel. La mise à l'équilibre tardive du  $^{246}\text{Cm}$  montre que 100 ans est une valeur minimale pour le temps de mise à l'équilibre total du système.

#### • Fissions et neutrons retardés

La masse totale de noyaux lourds étant constante, la modération des neutrons n'est pratiquement pas modifiée de ce point de vue. Le léger durcissement du spectre qu'on observe est dû à l'apparition de transuraniens dotés de résonances de capture importantes, comme par exemple celle du  $^{240}\text{Pu}$ , à 1 eV. Cet effet est visible par exemple sur l'évolution des sections efficaces moyennes de capture et de fission des principaux noyaux fissiles (figure 4.14). Seuls l' $^{233}\text{U}$  et l' $^{235}\text{U}$  participent de façon notable aux fissions, les autres noyaux fissiles ( $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$  et  $^{245}\text{Cm}$  essentiellement) totalisant moins de 3% des fissions à l'équilibre. Cela a une influence sur un paramètre de sûreté important; la proportion des neutrons retardés, qui rend possible le pilotage d'un réacteur critique. La proportion de neutrons retardés de l' $^{235}\text{U}$  est de 640 pcm, contre

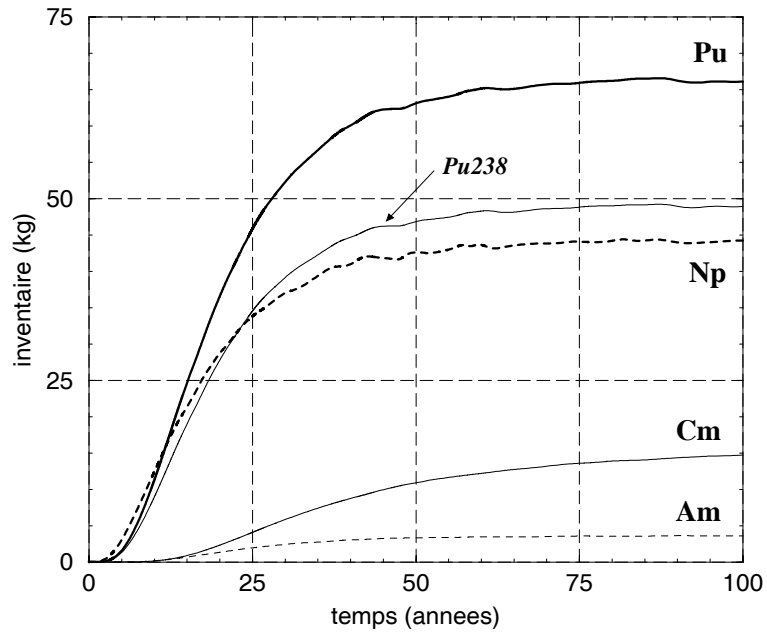


FIG. 4.12 – Mise à l'équilibre de l'inventaire des transuraniens dans le système de référence.

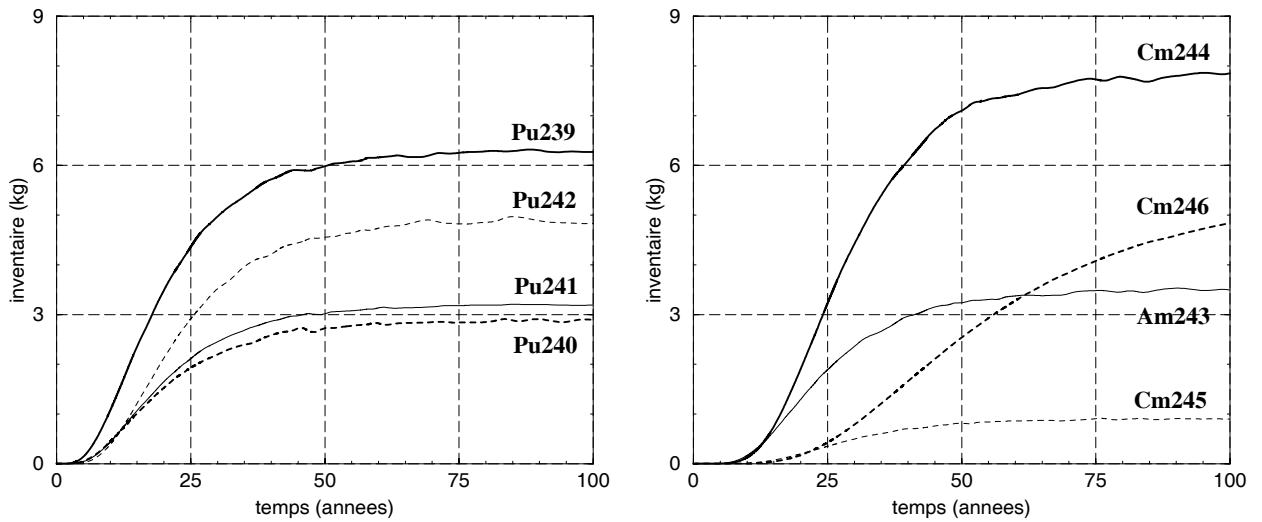


FIG. 4.13 – Mise à l'équilibre de l'inventaire des isotopes du plutonium, de l'américium et du curium dans le système de référence.

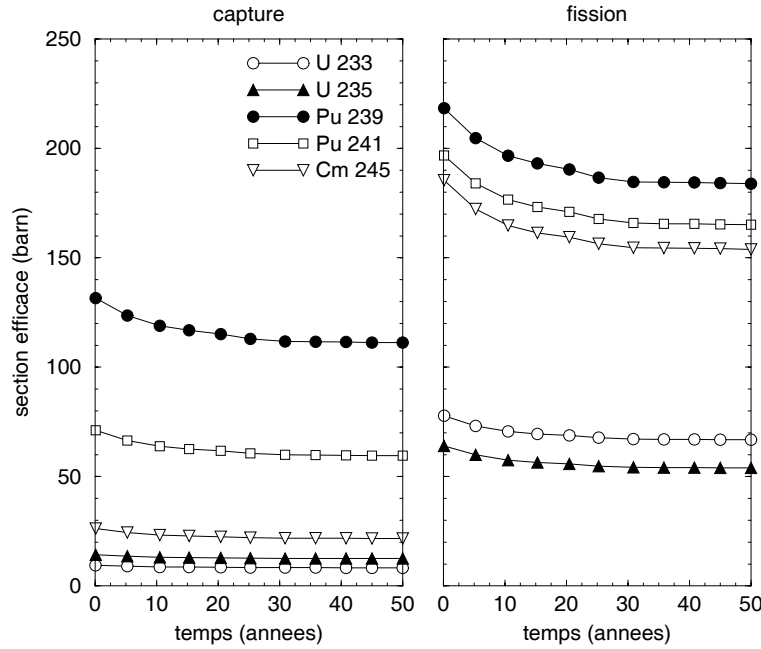


FIG. 4.14 – Evolution des sections efficaces moyennes (capture et fission) des noyaux fissiles sur les cinquante premières années de fonctionnement du système de référence.

seulement 260 pour l' $^{233}\text{U}$ . La proportion totale de neutrons retardés  $\beta_{tot}$  du sel combustible est calculée à chaque instant comme la somme des proportions individuelles des noyaux fissiles présents, pondérée par leur contribution au taux de fission total.

Cette valeur ne tient pas compte des neutrons retardés émis lorsque leur précurseur se trouve dans la partie hors-flux du circuit de sel, c'est à dire surtout dans les échangeurs. Ces neutrons ne présentent aucun intérêt pour le pilotage et sont perdus, il faut donc les décompter de la proportion totale de neutrons retardés pour obtenir la proportion effective  $\beta_{eff}$ , qui est la grandeur d'intérêt pour le pilotage du réacteur. Pour cela, il suffit de multiplier  $\beta_{tot}$  par la probabilité  $p_c$  moyenne qu'ont les précurseurs de décroître en cœur. Cette probabilité dépend de la proportion de sel hors-flux et des temps caractéristiques de circulation du sel, comparés aux demi-vies de décroissance des différents précurseurs. Nous n'aborderons pas le problème de l'évaluation de  $p_c$ , et nous baserons sur les études cinétiques réalisées pour le concept AMSTER [26]. Il résulte de ces études qu'une bonne approximation de  $p_c$  est donnée par la proportion de sel sous flux, soit  $\frac{2}{3}$  dans notre cas. L'évolution du  $\beta_{eff}$  ainsi calculé est représentée sur la figure 4.15, qui montre que la contribution limitée de l' $^{235}\text{U}$  aux fissions ne permet pas d'augmenter significativement la valeur de ce paramètre de sûreté, qui se stabilise à 200 pcm environ. Cette valeur est faible, comparée par exemple au cas d'un réacteur à neutrons rapides et cycle uranium (350 pcm), à cause de la faible proportion de neutrons retardés de l' $^{233}\text{U}$ , aggravée par les pertes dans les

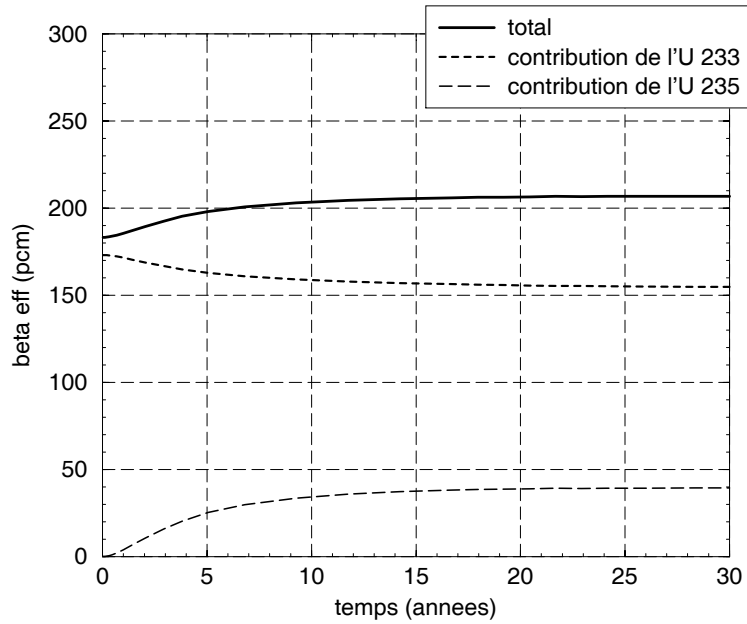


FIG. 4.15 – Mise à l'équilibre de la proportion effective  $\beta_{eff}$  de neutrons retardés dans le RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  de référence.

échangeurs. Cependant, le retraitement en ligne du sel autorise une gestion continue de la réactivité, ce qui constitue en termes de sûreté un net avantage sur les réacteurs à combustible solide. Nous verrons au chapitre suivant que cette particularité du concept de réacteur à sels fondus permet de relativiser la faiblesse du paramètre  $\beta_{eff}$ .

## b - Encadrement des choix de référence

Les modifications des paramètres étudiés n'affectent pratiquement pas les noyaux issus du thorium, dont l'inventaire et les taux de réaction ne sont que très peu modifiés. Dans tous les cas, il s'accumule dans le sel environ 1 kg de  $^{231}\text{Pa}$ , 3 kg de  $^{232}\text{U}$  et 21 kg de  $^{233}\text{Pa}$ . Les noyaux formés à partir de l' $^{233}\text{U}$  sont par contre beaucoup plus sensibles aux modifications opérées, et c'est d'eux dont il s'agit ici.

### • Influence de la composition du sel

Dans le cas d'une variation de la proportion de noyaux lourds dans le sel, les inventaires sont à peu près modifiés dans le même rapport ( $\pm 20\%$ ). Ceci est dû au fait que cette variation n'entraîne pas de modification significative du spectre et donc des taux de formation des isotopes de l'uranium autres que l' $^{233}\text{U}$  et des transuraniens. Dans les trois cas, la modération des neutrons se fait de la même façon, avec une contribution prédominante inchangée du graphite.

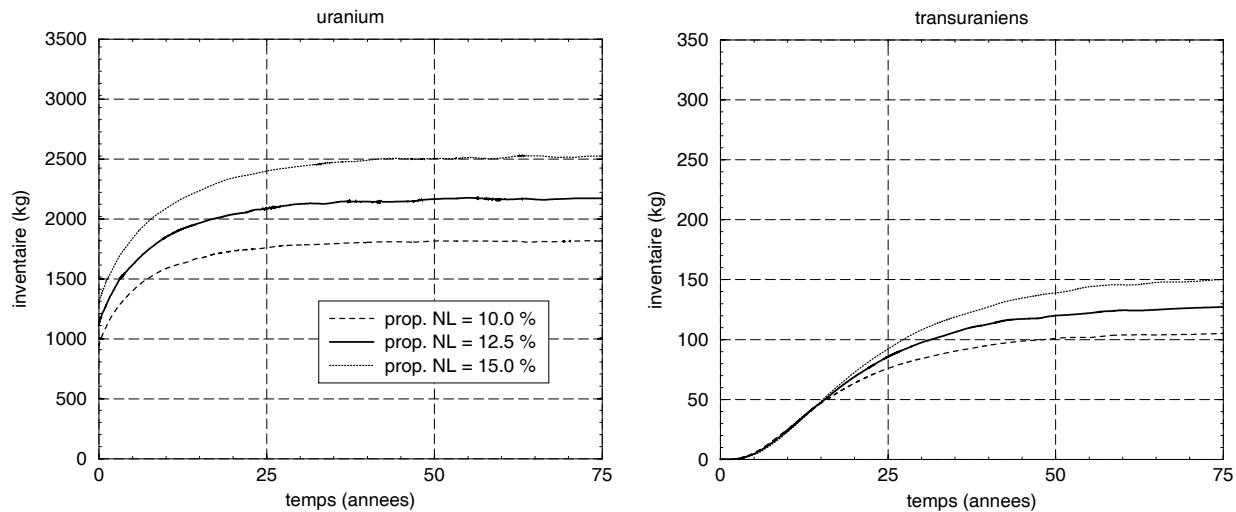


FIG. 4.16 – Mise à l'équilibre des inventaires d'uranium et de transuraniens pour différentes proportions de noyaux lourds dans le sel du système de référence.

La figure 4.16 montre que l'encadrement des inventaires d'uranium et de transuraniens se fait bien dans les mêmes proportions que la modification de concentration du sel en noyaux lourds. L'inventaire d'uranium à l'équilibre pour une proportion de noyaux lourds modifiée de  $\pm 20\%$  par rapport au cas de référence est ainsi proche de la valeur de référence (2.16 t) modifiée respectivement de  $\pm 20\%$  (1.82 t pour 10% de noyaux lourds dans le sel, et 2.53 t pour 15%). De même, les inventaires de transuraniens correspondants sont de 100 kg et 150 kg environ, encadrant de  $\pm 20\%$  l'inventaire de référence (130 kg).

#### • Influence de la proportion de sel en cœur

Lorsque l'on modifie la proportion de sel dans le cœur, les modifications du transitoire des actinides sont moins directes, car liées à un changement de spectre. La figure 4.17 montre que la sous-modération des neutrons, résultant de l'augmentation de la proportion de sel en cœur, contribue à une augmentation nette des inventaires d'uranium et de transuraniens par rapport au cas de référence. La thermalisation du spectre induite dans l'autre cas extrême (proportion de sel de 19.4%) n'est par contre pas suffisante pour provoquer une diminution importante des inventaires à l'équilibre. Dans les deux cas, on remarque en outre un changement dans la nature des transuraniens, lié à la modification des sections efficaces moyennes qui conditionnent les proportions des différents éléments présents à l'équilibre. Lorsque la proportion volumique de sel en cœur augmente, on constate que la proportion molaire du plutonium dans les transuraniens augmente, et ce aux dépens de tous les autres éléments (figure 4.18).



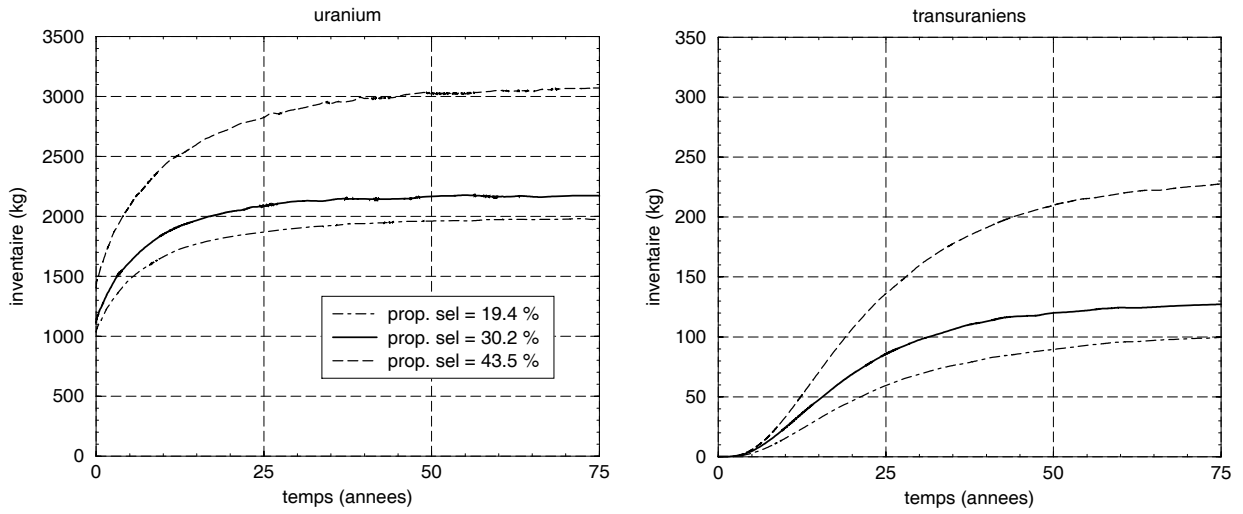


FIG. 4.17 – Mise à l'équilibre des inventaires d'uranium et de transuraniens pour différentes proportions de sel en cœur dans le système de référence.

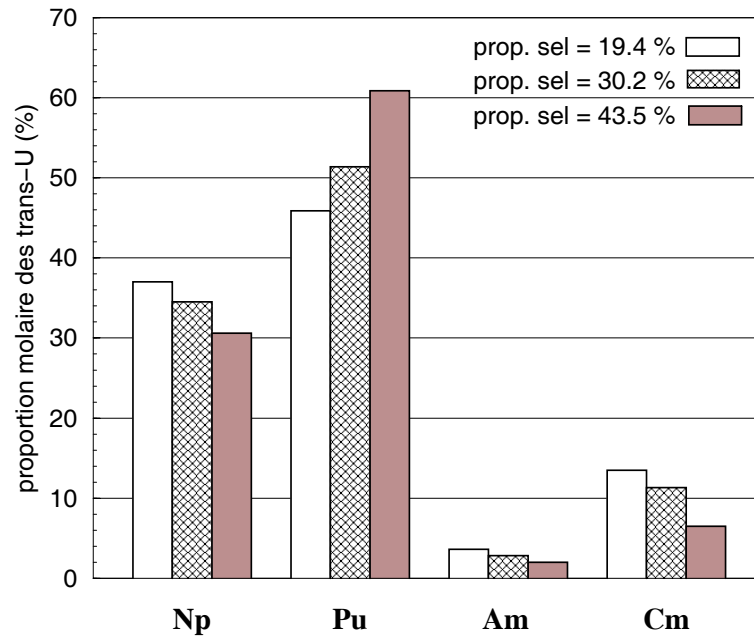
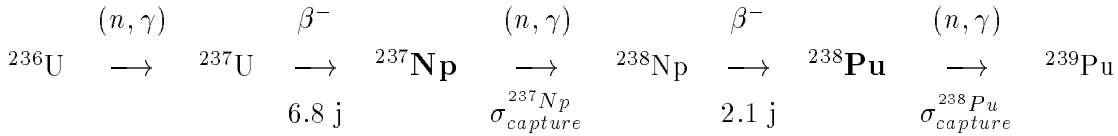


FIG. 4.18 – Composition molaire par élément (%) des transuraniens à l'équilibre des systèmes se distinguant par leur proportion volumique de sel en cœur.

On rappelle que dans tous les cas, le plutonium est composé majoritairement de  $^{238}\text{Pu}$ . Cet excès de plutonium en proportion est dû d'une part à une capture plus importante du  $^{237}\text{Np}$  produisant le  $^{238}\text{Pu}$ , et d'autre part à une capture plus faible du  $^{238}\text{Pu}$ , qui constitue le seul point de passage vers l'américium et le curium :



% vol. de sel en cœur	19.4	30.2	43.5
$\sigma_{\text{capture}}^{238\text{Pu}}$ (barn)	60.8	37.1	18.2
$\sigma_{\text{capture}}^{237\text{Np}}$ (barn)	55.6	45.4	32.1
$\sigma_{\text{capture}}^{238\text{Pu}} / \sigma_{\text{capture}}^{237\text{Np}}$	1.09	0.82	0.57

TAB. 4.9 – Sections efficaces moyennes de capture du  $^{238}\text{Pu}$  et du  $^{237}\text{Np}$  à l'équilibre en fonction de la proportion volumique de sel en cœur.

Le tableau 4.9 permet de quantifier cet effet d'accumulation de plutonium, en comparant l'évolution des sections efficaces de capture du  $^{238}\text{Pu}$  et du  $^{237}\text{Np}$ . Il s'agit ici de rapporter le taux de capture du  $^{238}\text{Pu}$  à sa production par la capture du  $^{237}\text{Np}$ . Le rapport  $\sigma_{\text{capture}}^{238\text{Pu}} / \sigma_{\text{capture}}^{237\text{Np}}$  est ainsi d'autant plus grand que le "passage" du neptunium vers l'américium se fait facilement, autrement dit que le plutonium s'accumule peu. On vérifie bien que ce rapport augmente avec la proportion volumique de sel en cœur.

### 4.2.3 Surgénération

L'accumulation des produits de fission et des actinides plus lourds que l'uranium modifie progressivement l'économie de neutrons. On a vu que le nombre de neutrons disponibles pour la surgénération est limité. Maximal au démarrage, il diminue au cours de la mise à l'équilibre. Nous allons décrire comment cela se traduit en termes de surgénération d' $^{233}\text{U}$ .

#### a - Cas de référence

On appelle "production nette cumulée" d' $^{233}\text{U}$  la quantité d' $^{233}\text{U}$  extraite et effectivement accumulée hors-flux en cours de fonctionnement (figure 4.19). Au cours du régime transitoire, cette production ne se fait pas à vitesse constante; elle est maximale au démarrage puis diminue progressivement avant de se stabiliser. Le taux de production, qui est la pente de la courbe représentée, diminue légèrement au cours des 50 premières années, puis augmente linéairement lorsque la surgénération atteint son taux d'équilibre.

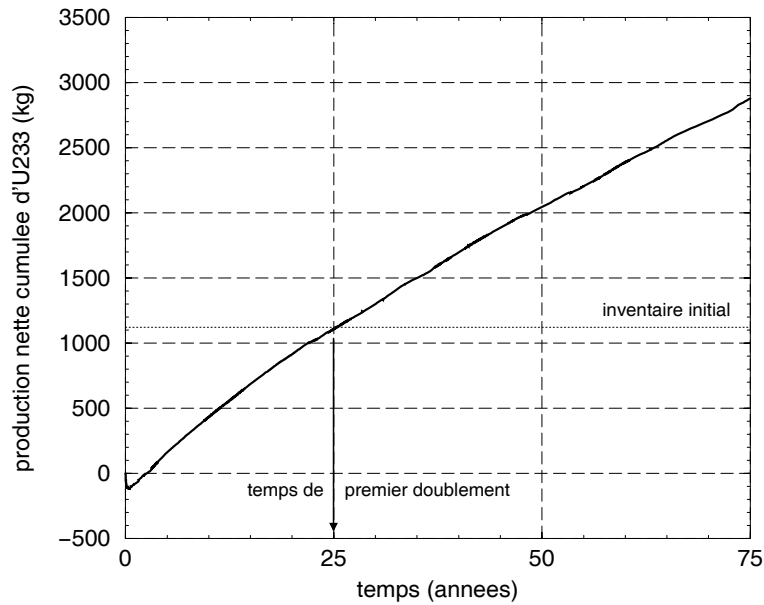


FIG. 4.19 – Production nette d' $^{233}\text{U}$ , accumulée en dehors du circuit de sel combustible au fur et à mesure du fonctionnement de référence.

On remarque qu'au cours des toutes premières années suivant le démarrage, la production nette cumulée est négative. Pour maintenir réactivité et puissance constantes malgré l'apparition rapide des produits de fission et du protactinium, il est en effet nécessaire d'accroître d'environ 50 kg l'inventaire d' $^{233}\text{U}$  au cours de trois premières années. Il en résulte que sur cette période le système est consommateur net d' $^{233}\text{U}$ . Le déficit maximal est atteint au bout de quelques mois et ne dépasse pas 100 kg, puis la production nette augmente et devient positive un peu moins de 3 ans après le démarrage. Le stock d' $^{233}\text{U}$  surgénéré peut permettre, lorsqu'il a atteint la valeur d'un inventaire initial d' $^{233}\text{U}$  (1.12 t dans le cas de référence), de démarrer un nouveau système identique. Le temps nécessaire pour surgénérer et stocker une telle quantité est appelé temps de doublement. Comme le taux de production d' $^{233}\text{U}$ , cette grandeur évolue et est maximale au démarrage, puis diminue avant de se stabiliser à sa valeur d'équilibre. Nous choisissons ici de nous intéresser au "temps de premier doublement", qui est le temps nécessaire à partir du démarrage pour surgénérer le premier inventaire initial d' $^{233}\text{U}$ . D'après la figure 4.19, ce temps de premier doublement est de 25 ans dans le cas de référence.

La production nette cumulée d' $^{233}\text{U}$  caractérise globalement la possibilité de déploiement de ce système. Il est commode de disposer également d'une grandeur instantanée qui rapporte la production totale d' $^{233}\text{U}$  par capture du thorium à sa consommation totale (capture et fission de l' $^{233}\text{U}$ ) : le taux de régénération  $\tau$ , défini pour l'ensemble du sel combustible par :

$$\tau = \frac{\text{taux de capture du } ^{232}\text{Th} - \text{taux de capture du } ^{233}\text{Pa}}{\text{taux de fission de l}'^{233}\text{U} + \text{taux de capture de l}'^{233}\text{U}} \quad (4.8)$$

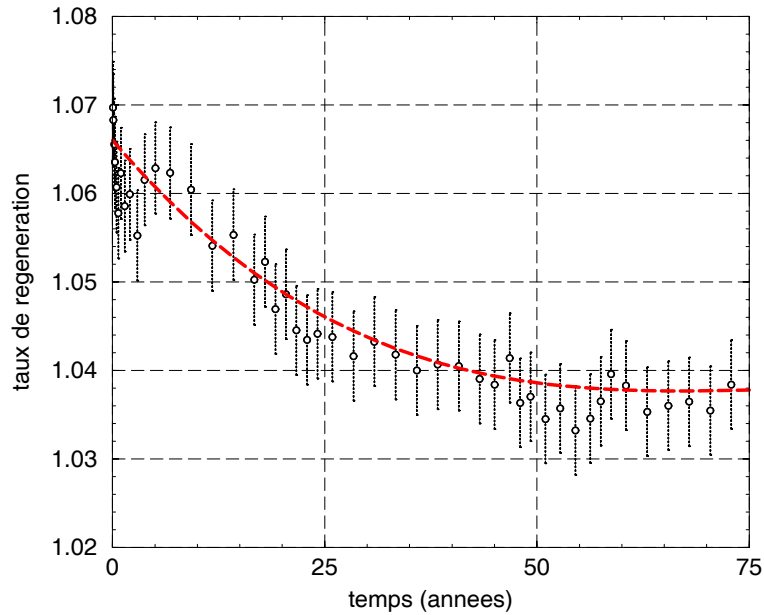


FIG. 4.20 – Mise à l'équilibre du taux de régénération du système de référence.

La figure 4.20 regroupe les valeurs de  $\tau$  obtenues à l'occasion de chaque calcul MCNP au cours du calcul de l'évolution du sel combustible. Ces valeurs sont interpolées afin de mettre en évidence la stabilisation de ce taux après environ 50 ans de fonctionnement. La valeur d'équilibre obtenue, qu'on analysera plus en détail dans la suite, est de 1.038. A l'occasion du dimensionnement du système de référence, un taux de régénération initial de 1.09 environ avait été calculé. Au cours du premier mois suivant le démarrage, le taux de capture du  $^{233}\text{Pa}$  atteint sa valeur maximale et le taux de régénération passe de 1.09 à 1.07, valeur initiale à l'échelle de la figure 4.20.

## b - Encadrement des choix de référence

Avant de décrire en détail son état d'équilibre, vérifions que le système de référence est proche de l'optimum de surgénération. La figure 4.21 encadre la production nette d' $^{233}\text{U}$  de référence par les productions extrêmes obtenues en faisant varier la proportion de noyaux lourds dans le sel et la proportion volumique de sel en cœur. Parmi les différents cas étudiés jusqu'à présent, le stock maximal d' $^{233}\text{U}$  surgénéré est obtenu avec la proportion de noyaux lourds de 15% associée au cœur de référence, tandis que le stock minimal est celui constitué par le système avec la proportion volumique de sel en cœur de 43.5% associée au sel de référence. A partir de l'inventaire initial d' $^{233}\text{U}$  dans chacun de ces deux cas, on obtient pour le premier un temps de premier doublement de 23 ans, légèrement inférieur au cas de référence, et pour le second un temps de premier doublement de 79 ans (tableau 4.10).

L'augmentation de la proportion de noyaux lourds dans le sel n'est toutefois pas si bénéfique qu'il y paraît au seul examen du stock d' $^{233}\text{U}$  produit, du fait d'un inventaire initial légèrement

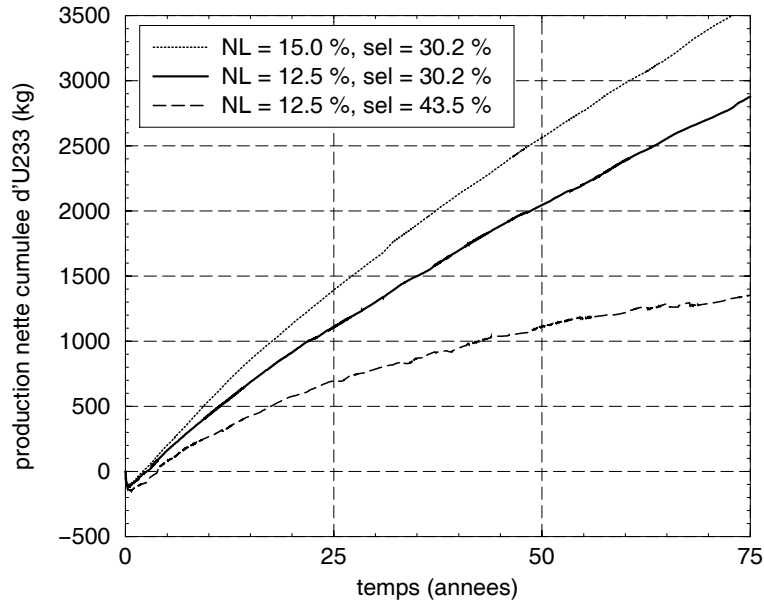


FIG. 4.21 – *Productions nettes extrêmes d'<sup>233</sup>U, encadrant la production du système de référence (proportion molaire de noyaux lourds de 12.5%, et proportion volumique de sel de 30.2%).*

proportion de (NL)F <sub>4</sub> en sel (%)	12.5	<b>10.0</b>	<b>15.0</b>	12.5	12.5
proportion vol. de sel en cœur (%)	30.2	30.2	30.2	<b>19.4</b>	<b>43.5</b>
inventaire initial d' <sup>233</sup> U (tonnes)	1.12	0.95	1.31	1.04	1.41
temps de premier doublement (ans)	25	30	23	28	79

TAB. 4.10 – *Temps de premier doublement caractérisant la surgénération d'<sup>233</sup>U des régimes transitoires obtenus pour différentes compositions et proportions du sel en cœur.*

supérieur. En outre, une trop grande proportion volumique de sel dans le cœur nuit fortement à la surgénération, de par le durcissement du spectre qui en résulte. Les choix de référence, inspirés du projet MSBR, peuvent donc être considérés comme optimaux du point de vue de la surgénération, et sont conservés par la suite.

### 4.3 Caractérisation de l'équilibre de référence

L'étude précédente de la mise à l'équilibre nous a permis de valider un système de référence, surgénérateur en cycle thorium. Nous pouvons à présent décrire l'équilibre atteint par ce système après une centaine d'années de fonctionnement à la puissance constante de 2500 MWth.

#### 4.3.1 Description neutronique de l'état d'équilibre

Comme nous l'avions fait pour le système décrit au chapitre précédent, nous décrivons ici les principales grandeurs neutroniques caractérisant l'équilibre. Le tableau 4.11 fournit les sections efficaces moyennes, calculées à l'équilibre, des noyaux les plus légers présents dans le sel. On remarque l'importance de la section efficace de la réaction  ${}^6\text{Li}(n,\alpha)$ , productrice de tritium, mais dont l'effet est limité par la faible concentration de  ${}^6\text{Li}$  dans le sel.

$(mbarn)$	$\sigma^{(n,\gamma)}$	$\sigma^{(n,\alpha)}$	$\sigma^{(n,p)}$
${}^6\text{Li}$	3.75	91600	0.00
${}^7\text{Li}$	4.42	-	-
${}^9\text{Be}$	0.89	4.54	0.00
${}^{19}\text{F}$	1.34	1.42	0.12
PF	3190	0.01	0.00

TAB. 4.11 – Sections efficaces moyennes (mbarn) des réactions  $(n,\gamma)$ ,  $(n,\alpha)$  et  $(n,p)$  sur les composantes légères du sel et les produits de fission à l'équilibre du RSF  ${}^{232}\text{Th}/{}^{233}\text{U}$  de référence.

Le tableau 4.12 détaille les sections efficaces moyennes et les inventaires des actinides à l'équilibre. L'inventaire des noyaux lourds est largement dominé par le  ${}^{232}\text{Th}$  (65.6 t), en comparaison duquel l'inventaire de l'uranium (2.2 t) et des transuraniens (0.1 t) est très faible. Les valeurs des sections efficaces moyennes sont caractéristiques d'un spectre à forte composante thermique. Il est intéressant de comparer les valeurs relatives au  ${}^{232}\text{Th}$  et à  ${}^{233}\text{U}$  à celles d'un réacteur rapide, également basé sur le cycle  ${}^{232}\text{Th}/{}^{233}\text{U}$ . On se base pour cela sur l'étude détaillée d'un système sous-critique refroidi au plomb [13]. Les données utilisées caractérisent le démarrage de ce réacteur rapide, dont les paramètres physiques évoluent peu en cours de fonctionnement. Une telle comparaison permet de mieux apprécier les avantages du spectre thermique en cycle thorium [50], que nous allons détailler dans ce qui suit. Ces avantages découlent pour la plupart

noyau	$\sigma^{(n,\gamma)}$ (barn)	$\sigma^{fission}$ (barn)	inventaire (kg)	noyau	$\sigma^{(n,\gamma)}$ (barn)	$\sigma^{fission}$ (barn)	inventaire (kg)
$^{232}\text{Th}$	1.50	0.0095	65560	$^{241}\text{Am}$	179	1.29	0.085
$^{231}\text{Pa}$	80.3	0.18	1.2	$^{242}\text{Am}$	21.4	192	0.0004
$^{233}\text{Pa}$	26.3	0.061	21.3	$^{242m}\text{Am}$	177	870	0.0015
$^{232}\text{U}$	14.8	19.4	2.8	$^{243}\text{Am}$	55.6	0.25	3.5
$^{233}\text{U}$	8.32	67.0	1250	$^{242}\text{Cm}$	5.2	0.39	0.07
$^{234}\text{U}$	20.5	0.27	530	$^{243}\text{Cm}$	12.4	118	0.0028
$^{235}\text{U}$	12.6	54.1	160	$^{244}\text{Cm}$	20.2	0.69	7.9
$^{236}\text{U}$	9.4	0.21	210	$^{245}\text{Cm}$	21.8	154	0.9
$^{238}\text{U}$	8.9	0.04	2.8	$^{246}\text{Cm}$	3.3	0.35	5.1
$^{237}\text{Np}$	45.4	0.24	44	$^{247}\text{Cm}$	21.1	31.8	0.3
$^{239}\text{Np}$	21.6	0.28	0.0026	$^{248}\text{Cm}$	9.0	0.55	0.8
$^{238}\text{Pu}$	37.1	2.27	49	$^{249}\text{Bk}$	580	3.4	0.01
$^{239}\text{Pu}$	112	184	6.3	$^{249}\text{Cf}$	55.4	210	0.003
$^{240}\text{Pu}$	256	0.34	2.9	$^{250}\text{Cf}$	540	0.50	0.01
$^{241}\text{Pu}$	59.8	166	3.2	$^{251}\text{Cf}$	280	610	0.008
$^{242}\text{Pu}$	39.7	0.21	4.9	$^{252}\text{Cf}$	3.2	6.5	0.06

TAB. 4.12 – Sections efficaces moyennes (barn) de capture et de fission, et inventaires (kg) des actinides à l'équilibre du RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  de référence.

d'une première différence fondamentale concernant la concentration  $\frac{N_{233U}}{N_{232Th}}$  d' $^{233}U$  dans le  $^{232}Th$  nécessaire à la régénération, donnée par :

$$\frac{N_{233U}}{N_{232Th}} = \frac{\sigma_{capture}^{232Th}}{\sigma_{fission}^{233U} + \sigma_{capture}^{233U}} \quad (4.9)$$

Le tableau 4.13 donne le détail du calcul de  $\frac{N_{233U}}{N_{232Th}}$  à l'équilibre. Précisons que ce rapport n'est qu'indicatif, dans la mesure où la formule 4.9 n'est strictement exacte qu'au démarrage. Le résultat reste toutefois valable à l'équilibre à  $\pm 0.1\%$  près, et montre que la concentration d' $^{233}U$  dans le combustible est environ 5 fois plus faible dans le RSF à modérateur graphite.

combustible	comb. solide	sels fondus
modérateur	plomb	graphite
type de spectre	rapide	thermique
$\sigma_{capture}^{232Th}$ (barn)	0.3	1.5
$\sigma_{fission}^{233U}$ (barn)	2.7	67.0
$\sigma_{capture}^{233U}$ (barn)	0.3	8.3
$\frac{N_{233U}}{N_{232Th}}$ (% mol.)	10.0	2.0

TAB. 4.13 – Calcul indicatif de  $\frac{N_{233U}}{N_{232Th}}$  par la condition de régénération appliquée au démarrage d'un réacteur à combustible solide et spectre rapide [13], et à l'équilibre du RSF de référence.

La figure 4.22 compare les spectres calculés dans les combustibles des deux systèmes comparés. Alors que le spectre rapide présente un maximum marqué à environ 200 keV, le spectre du RSF est relativement plat, "épithermique", avec deux maxima situés à environ 0.1 eV et 100 keV. On remarque sur ce spectre les effets d'autoprotection des premières résonances de capture de l' $^{236}U$  à 5 eV, du  $^{232}Th$  à 20 eV, et également du  $^{19}F$  (à 30, 50 et 100 keV).

Du fait de la remontée des sections efficaces aux basses énergies, les taux de réaction sont plus élevés pour les énergies inférieures à l'eV. La figure 4.23 montre toutefois pour quelques réactions importantes (capture du  $^{232}Th$ , fission de l' $^{233}U$  et fission de l' $^{235}U$ ) que l'écart des taux de réaction reste limité à un ordre de grandeur sur toute la gamme du spectre. A partir des taux de réaction moyens calculés dans le circuit de sel combustible et les autres cellules du réacteur, on établit le bilan neutronique détaillé de l'équilibre (tableau 4.14).

On vérifie qu'à l'équilibre notre estimateur du  $k_{eff}$  est bien égal à 1.000. Le taux de régénération est de 1.038, soit une production nette d'environ 36 kg d' $^{233}U$  par an. On remarque que les captures parasites dans le graphite et le  $B_4C$  consomment environ 5 fois plus de neutrons que les captures dans les produits de fission, dont l'extraction s'avère efficace. La figure 4.24 donne le détail des taux de capture dans les produits de fission. Les taux de capture des produits de fission dans le cas de référence, tenant compte des efficacités d'extraction relatives aux



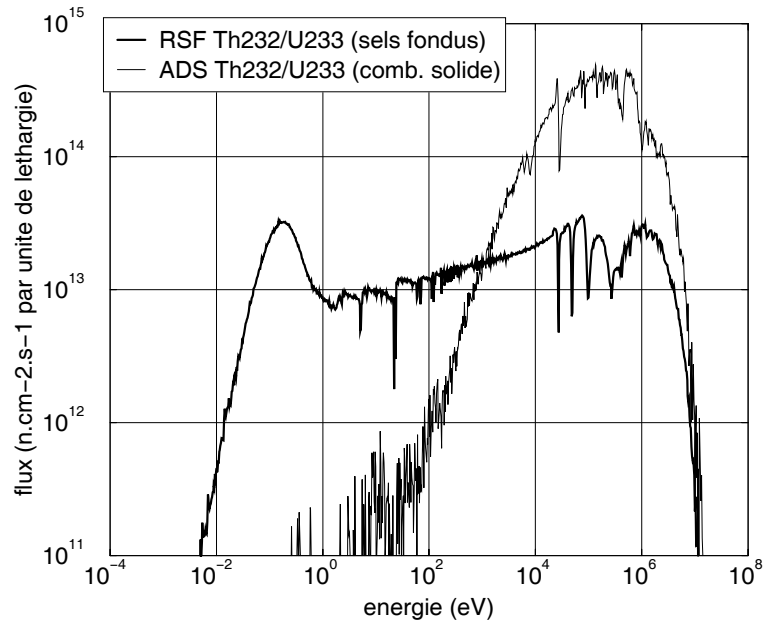


FIG. 4.22 – Spectre moyen sur l'ensemble du circuit de sel combustible à l'équilibre de référence comparé au spectre moyen dans le cœur d'un réacteur rapide à combustible solide [13].

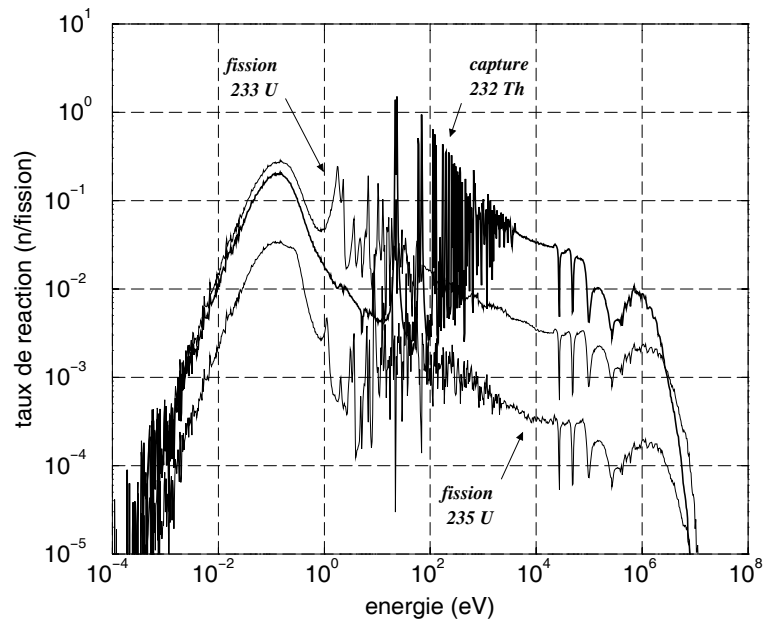


FIG. 4.23 – Taux de réaction du <sup>232</sup>Th, de l'<sup>233</sup>U et de l'<sup>235</sup>U à l'équilibre de référence, exprimés par fission et par unité de lethargie.

Réaction	Production	Consommation	
<i>fission</i>	2.499	1.000	<sup>232</sup> Th 0.007
			<sup>233</sup> U <b>0.878</b>
			autres U 0.094
			Pu 0.019
			Cm 0.002
<i>(n, 2n)</i>	0.026	0.013	<sup>9</sup> Be 0.012
			<sup>232</sup> Th 0.001
<i>(n, γ)</i>	-	1.412	<sup>7</sup> Li 0.018
			<sup>9</sup> Be 0.001
			<sup>19</sup> F 0.012
			PF 0.015
			<sup>232</sup> Th <b>1.030</b>
			<sup>231</sup> Pa 0.001
			<sup>233</sup> Pa <b>0.006</b>
			<sup>233</sup> U <b>0.109</b>
			autres U 0.158
			<sup>237</sup> Np 0.021
			Pu 0.037
Am 0.002			
Cm 0.002			
<i>(n, α)</i>	-	0.021	<sup>6</sup> Li 0.004
			<sup>9</sup> Be 0.004
			<sup>19</sup> F 0.013
<i>(n, p)</i>	-	0.001	<sup>19</sup> F 0.001
<i>(n, γ)</i> graphite	-	0.049	coeur 0.029
			réflecteurs 0.020
<i>(n, α)</i> B <sub>4</sub> C ( <sup>10</sup> B)	-	0.029	échangeur 0.028
			enceinte 0.001
<i>fuite</i>	-	0.000	-
<i>total</i>	2.525	2.525	-

TAB. 4.14 – Bilan neutronique détaillé de l'équilibre du RSF <sup>232</sup>Th/<sup>233</sup>U de référence.

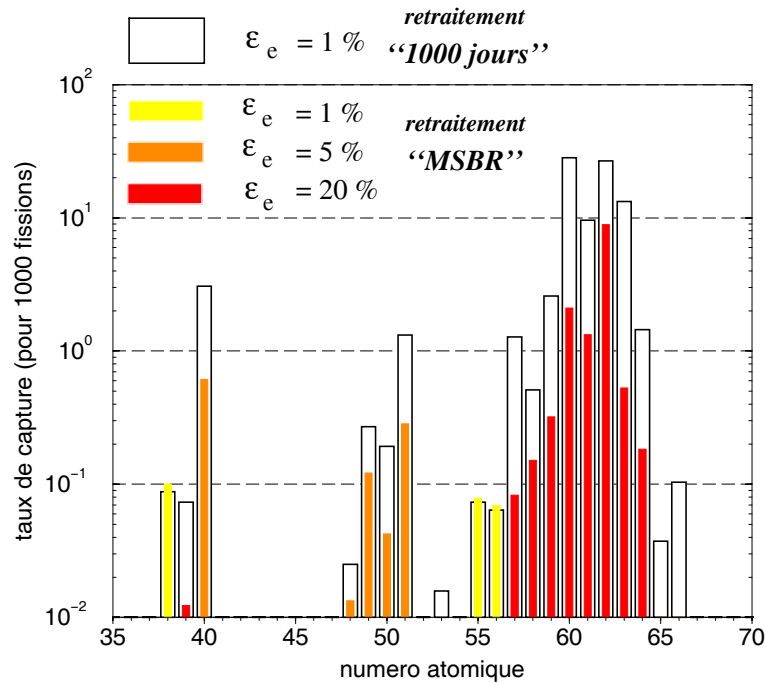


FIG. 4.24 – Détail des taux de capture dans les produits de fission pour deux retraitements ayant la même durée totale  $T = 10$  jours, mais des efficacités d'extraction  $\varepsilon_e$  différentes.

différentes classes de produits de fission solubles établies au chapitre précédent, sont comparés à ceux obtenus à partir d'un retraitement fictif de même durée totale  $T$ , mais pour lequel toutes les efficacités valent 1%, soit un temps caractéristique d'extraction de 1000 jours. Dans le cas de ce retraitement "1000 jours" extrayant lentement tous les produits de fission à la même vitesse, les captures se font essentiellement sur les terres rares, et en particulier sur le néodyme  ${}_{60}\text{Nd}$  et le samarium  ${}_{62}\text{Sm}$ , qui regroupent les deux tiers des captures dans les produits de fission. Avec le retraitement de référence, le taux global de capture des produits de fission est 6 fois moindre, et toujours dominé par les terres rares. Le samarium et le néodyme totalisent alors près des trois quarts des captures dans les produits de fission (respectivement 59% et 14%).

Le schéma de la figure 4.25 permet de regrouper lisiblement les principales caractéristiques de l'équilibre que nous venons de décrire, pour les noyaux allant du  ${}^{232}\text{Th}$  au  ${}^{238}\text{Pu}$ , point de passage obligé vers les transuraniens plus lourds. Cette représentation présente l'avantage de donner les taux de toutes les transformations ou opérations intervenant de façon notable à l'équilibre, à  $\pm 1$  neutron près pour 1000 fissions, à savoir les réactions (capture et fission), les décroissances naturelles ( $\beta^-$ ), et les opérations d'extraction (signe "-") et de réinjection (signe "+") du retraitement en ligne. Pour chaque noyau est également indiquée, lorsqu'elle est supérieure à 0.1%, sa proportion molaire parmi les transthoriciens du sel combustible. Cette représentation montre que pour 1000 fissions à l'équilibre, 815 noyaux de  ${}^{233}\text{Pa}$  sont extraits, et

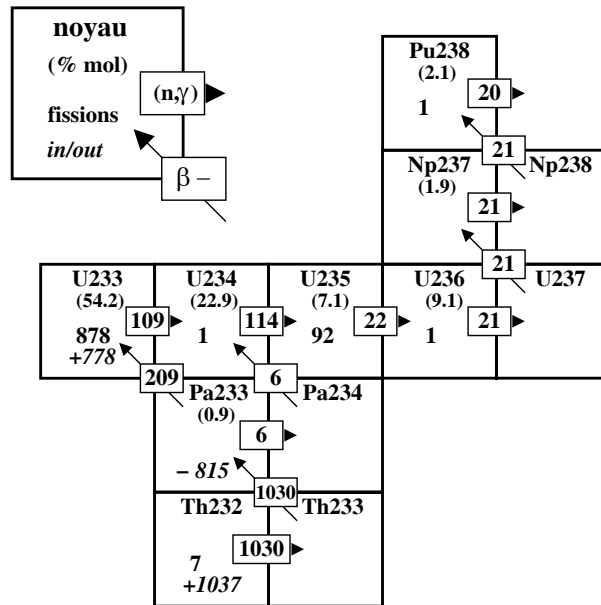


FIG. 4.25 – Représentation dans le plan  $(N,Z)$  des taux de réaction, de décroissance et de retraitement normalisés pour 1000 fissions, caractérisant l'équilibre  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  de référence.

laissés décroître hors-flux. Dans le même temps, 778 noyaux d' $^{233}\text{U}$  issus de ces désintégrations sont réinjectés pour maintenir la réactivité constante. On voit donc ici que pour 1000 fissions,  $815 - 778 = 37$  noyaux d' $^{233}\text{U}$  sont surgénérés, ce qui est une autre façon de quantifier la surgénération, dont nous avons déjà évalué le taux à  $1.038 \pm 0.001$  à partir du bilan neutronique. On constate qu'environ 80% des désintégrations du  $^{233}\text{Pa}$  se font hors-flux, au rythme de 815 pour 1000 fissions, soit une activité de  $6.4 \cdot 10^{19}$  Bq compte tenu de la puissance totale de 2500 MWth. A raison d'un gamma de 570 keV émis à chaque désintégration d'un  $^{233}\text{Pa}$ , on évalue ainsi la puissance associée dans le réservoir de stockage provisoire du protactinium à environ 5.8 MW. Il est donc nécessaire de prévoir un dispositif efficace d'évacuation de cette chaleur, dont une partie peut être extraite au moment de la fluoration de l' $^{233}\text{U}$  surgénéré.

### 4.3.2 Production de déchets

#### a - Radiotoxicités liées au cycle thorium

- Impact à long-terme des rejets d'actinides

Le principal risque à long-terme présenté par l'utilisation du thorium pour la production d'énergie est lié à la radiotoxicité des actinides perdus au retraitement, ou présents dans le réacteur en fin de vie. Une première manière d'évaluer les radiotoxicités induites par les actinides des pertes et de l'inventaire du RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  à spectre épithermique est de les comparer globalement à celles d'autres systèmes basés sur d'autres combustibles.

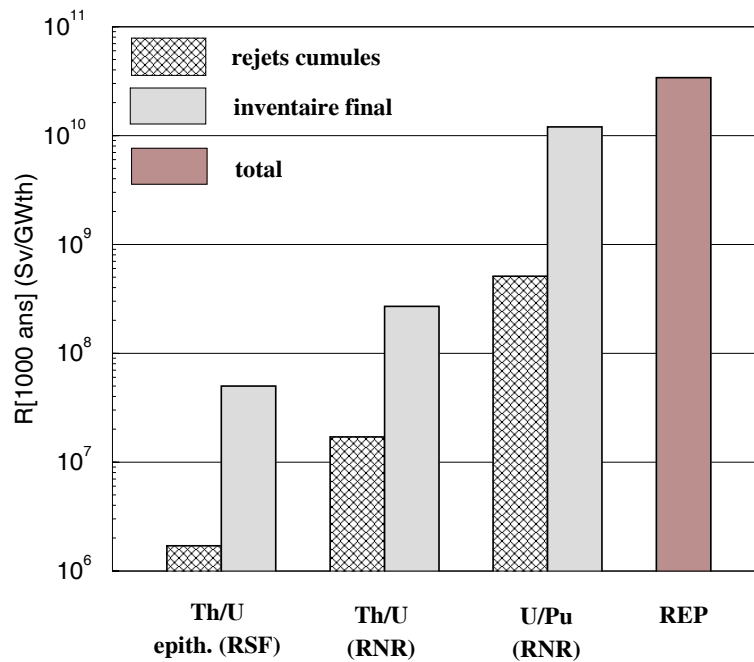


FIG. 4.26 – Radiotoxicité des rejets et des inventaires d’actinides du RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  de référence, comparé à différents cycles du combustible [13], après 200 ans de production d’énergie et 1000 ans de décroissance.

La figure 4.26 donne les radiotoxicités à 1000 ans des rejets et de l’inventaire final, exprimées en Sv/GWth, résultant de la production d’énergie pendant les 200 années suivant le démarrage du RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ , ainsi que de trois autres types de réacteurs, d’après [13]. Les taux de pertes au retraitement de tous les systèmes mentionnés sont comparables. Dans ces conditions, les pertes du RSF sont après 1000 ans de décroissance environ 10000 fois moins radiotoxiques que l’ensemble des déchets générés par un REP actuel, 300 fois moins radiotoxiques que les rejets d’un réacteur U/Pu à spectre rapide, et enfin encore 10 fois moins radiotoxiques que les rejets d’un réacteur rapide à support thorium. Les facteurs sur la radiotoxicité de l’inventaire final sont un peu moindres (inventaire final du RSF environ 200 fois moins radiotoxique que celui du RNR U/Pu, et 5 fois moins que celui du RNR Th/U).

La figure 4.27 compare les mêmes systèmes, en donnant l’évolution de la radiotoxicité de leurs rejets à l’équilibre, normalisée par GWth.an produit. La radiotoxicité des rejets du RNR à support thorium dépasse après environ  $10^5$  ans de refroidissement celle du RNR à support uranium. Au contraire, celle du RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  reste strictement décroissante. Pour expliquer cette différence, on représente sur la figure 4.28 les contributions à la radiotoxicité totale des rejets du RNR à support thorium, comparée à celle du RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  de référence.

Aux cours des premières années suivant le retraitement, les radiotoxicités totales des rejets des deux systèmes sont comparables. La première différence apparaît environ 1000 ans après

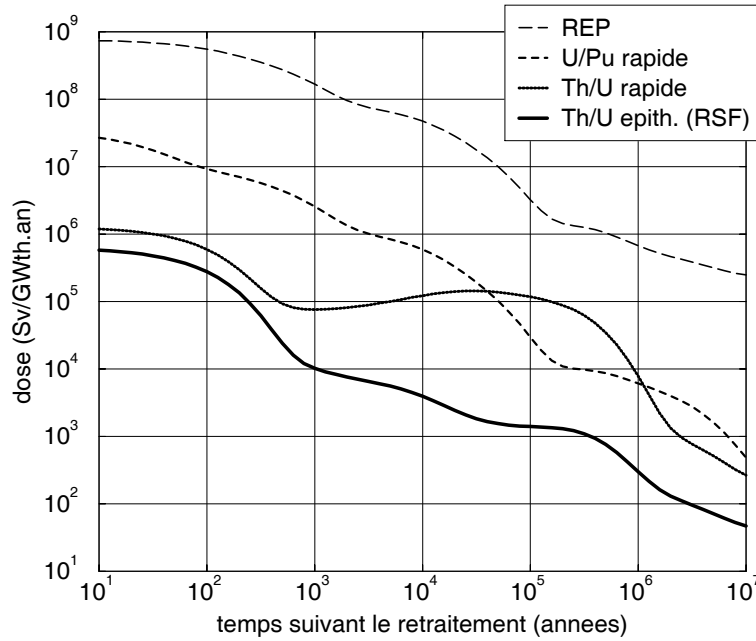


FIG. 4.27 – Radiotoxicité des rejets d'actinides à l'équilibre du RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  de référence, comparé à différents cycles du combustible [13].

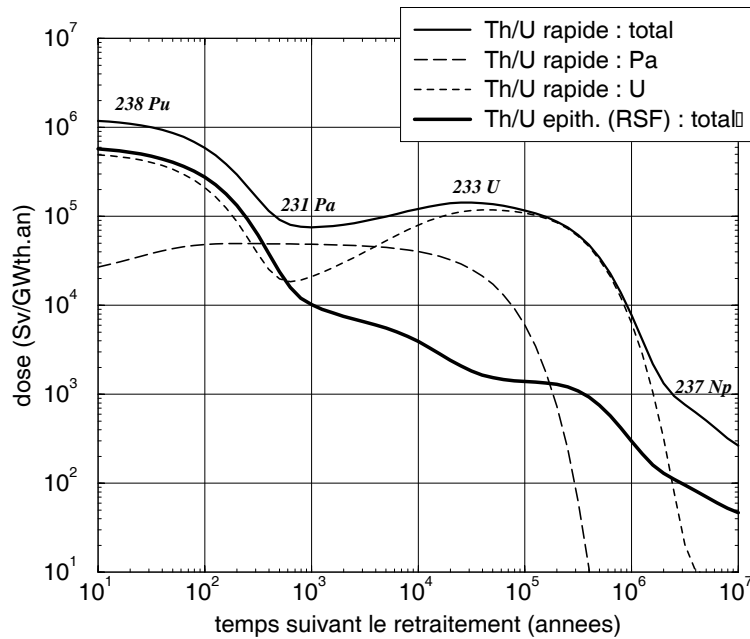


FIG. 4.28 – Radiotoxicités des rejets d'actinides à l'équilibre du RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  et d'un réacteur rapide  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  [13]. Pour ce dernier, on donne en outre les contributions du Pa et de l'U, ainsi que les contributions dominantes au cours du temps.

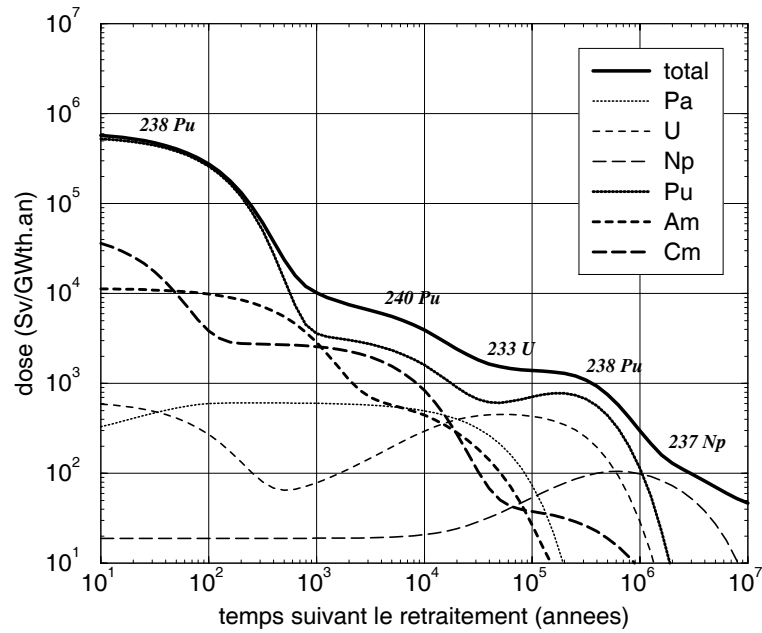


FIG. 4.29 – Détail de la radiotoxicité des actinides rejetés à l'équilibre du RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  de référence. Les principaux noyaux intervenant sont mentionnés.

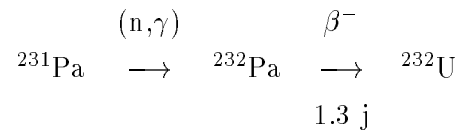
le retraitement, et concerne la contribution du  $^{231}\text{Pa}$ , plus faible dans le cas du RSF du fait notamment d'une production réduite de  $^{231}\text{Pa}$  par réaction  $(n,2n)$  sur le  $^{232}\text{Th}$  (0.001 n/fission dans le RSF contre 0.004 n/fission dans le réacteur rapide). De  $10^3$  à  $10^5$  ans après le retraitement, la radiotoxicité totale des rejets du réacteur rapide remonte. Cette remontée, caractéristique de la filière thorium en réacteur à combustible solide, correspond à une croissance de l'activité du  $^{229}\text{Th}$ , descendant du noyau père  $^{233}\text{U}$ . Elle n'existe plus avec le RSF de référence, dont le retraitement en ligne atténue d'un facteur 100 les rejets d'uranium au niveau de l'étape préliminaire de fluoration.

La figure 4.29 donne finalement le détail des contributions élément par élément des actinides à la radiotoxicité des rejets à l'équilibre du RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  de référence. Les contributions dominantes sont les mêmes que celles du réacteur rapide au cours des premières années suivant le retraitement ( $^{238}\text{Pu}$ ), ainsi qu'au delà de  $10^6$  ans ( $^{237}\text{Np}$ ). Le  $^{233}\text{U}$  domine toujours également à  $10^5$  ans, mais se fait remplacer peu après par le  $^{238}\text{Pu}$ .

- **Impact à court-terme de la décroissance de  $^{232}\text{U}$**

On vient de voir que le cycle thorium, tout particulièrement en spectre épithermique, présente de nets avantages par rapport au cycle uranium en termes de production d'actinides à vie longue et de radiotoxicité. Toutefois, la mise en œuvre du cycle thorium s'accompagne d'un risque potentiel plus important pour le personnel chargé de la manipulation du combustible que dans le cas du cycle uranium. Le responsable en est le  $^{208}\text{Tl}$ , situé au bout de la chaîne de décroissance

de l' $^{232}\text{U}$ , qui émet lors de sa désintégration  $\beta^-$  un gamma de 2.6 MeV avec une demi-vie de 3.1 min. Intéressons nous à la production d' $^{232}\text{U}$  à l'équilibre du RSF étudié ici. Dans ce cas, l' $^{232}\text{U}$  est exclusivement produit par la capture du  $^{231}\text{Pa}$  :

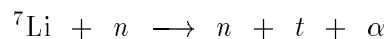
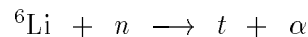


Comme l'indique le bilan neutronique de l'équilibre (tableau 4.14), cette production se fait au taux d'environ 0.001 noyau d' $^{232}\text{U}$  par fission, pour un inventaire d' $^{232}\text{U}$  de 2.8 kg. Avec un réacteur  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  à combustible solide et spectre rapide, tel celui déjà utilisé pour comparaison [13], l' $^{232}\text{U}$  est également produit par la réaction (n,2n) sur l' $^{233}\text{U}$  et son inventaire est, à puissance installée égale, environ 6 fois plus important que dans le RSF. Du fait de taux de réaction plus faibles sur les noyaux de la chaîne de décroissance de l' $^{232}\text{U}$ , l'inventaire de  $^{208}\text{Tl}$  est 10 fois plus important que dans le RSF.

Par rapport à un réacteur à spectre rapide, le RSF à modérateur graphite réduit donc considérablement le risque à court-terme caractéristique du cycle thorium, lié à la décroissance de l' $^{232}\text{U}$ . Notons en outre que ce risque est surtout présent lors des phases de fabrication et de recyclage du combustible, inévitable avec un combustible solide classique. Le retraitement en ligne utilisé ici limite encore ce risque, le sel combustible étant confiné dans son circuit et ne nécessitant aucune opération directe de maintenance.

## b - Tritium

Le tritium est un émetteur  $\beta^-$  de 12.3 ans de demi-vie, avec une énergie maximale émise relativement faible (18.6 keV). En examinant les évaluations du MSBR [51], on note que seul le lithium intervient significativement dans la production de tritium. Les contributions de la fission ternaire et de la réaction (n,t) sur le  $^{19}\text{F}$  représentent moins de 2% du taux de production total de tritium. Les deux seules réactions notables sont  ${}^6\text{Li}(n,t)$  et  ${}^7\text{Li}(n,nt)$  :



Dans [51], la production de tritium est évaluée à 46 g/an par  ${}^6\text{Li}(n,t)$ , et à 44 g/an par  ${}^7\text{Li}(n,nt)$ , soit une production totale de 90 g/an. Dans l'optique de réévaluation du concept de ce chapitre, nous nous proposons de recalculer cette production à partir des bases de données actuelles. Intéressons nous dans un premier temps à la contribution du  ${}^6\text{Li}$ , dont la quantité en cœur évolue rapidement au cours des premières années suivant le démarrage. La figure 4.30 nous montre en effet qu'en 5 ans, l'inventaire de  ${}^6\text{Li}$  est divisé par 5 puis se stabilise, car régénéré en



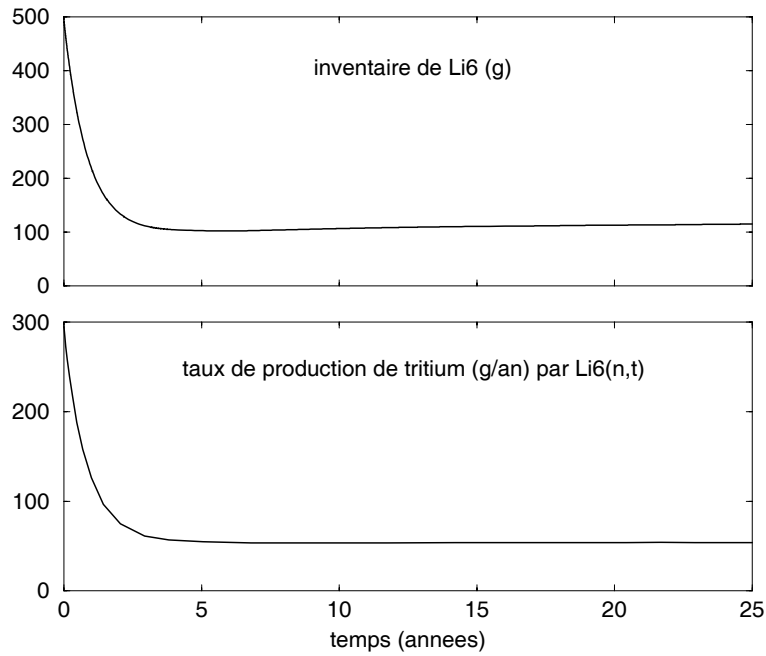


FIG. 4.30 – Evolution de l’inventaire de  ${}^6\text{Li}$  et du taux de production de tritium associé.

partie par la réaction  ${}^9\text{Be}(n, \alpha)$ . Le taux de production de tritium résultant de cette évolution est présenté dans la partie inférieure de la figure, et se stabilise rapidement à 54 g/an.

	${}^6\text{Li}(n, t)$			${}^7\text{Li}(n, nt)$		
	$N$ (mol)	$\sigma$ (barn)	taux (g/an)	$N$ (mol)	$\sigma$ (mbarn)	taux (g/an)
t = 0	81.9	111	292	$1.64 \cdot 10^6$	1.77	93.4
t = 5 ans	17.1	103	55.0	$1.64 \cdot 10^6$	1.83	93.7
équilibre	19.6	91.7	54.4	$1.64 \cdot 10^6$	1.94	96.3

TAB. 4.15 – Inventaires  $N$ , sections efficaces  $\sigma$  et contributions à la production de tritium du  ${}^6\text{Li}$  et du  ${}^7\text{Li}$  pour le système de référence, du démarrage à l’équilibre.

Le  ${}^7\text{Li}$  représente plus de 99.995% du lithium et conserve donc un inventaire constant. L’ensemble de nos résultats est résumé par le tableau 4.15. Le taux de production total passe ainsi d’environ 390 g/an au démarrage à une valeur d’équilibre de 150 g/an, et ce au cours des 5 premières années de fonctionnement. On remarque que la valeur obtenue pour la production par  ${}^6\text{Li}(n, t)$  est proche de la valeur estimée par le projet MSBR, on trouve pour  ${}^7\text{Li}(n, nt)$  une valeur double. Cela peut s’expliquer par une modification des données nucléaires du  ${}^7\text{Li}$ , pour lequel nous utilisons le fichier de la base JENDL 3.2 évalué en 1984, soit plus de 10 ans après les études de l’ORNL. Le tritium produit est extrait du sel en moins d’une minute par le bullage d’hélium, et est stocké dans un réservoir. Il est accompagné par l’hydrogène produit lors des

réactions (n,p) dans le sel au taux de  $4 \text{ g.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$ , et en est chimiquement indissociable. La quantité de tritium à stocker à l'équilibre est obtenue en divisant le taux de production du tritium ( $50 \text{ mol/an}$ ) par sa constante de temps de décroissance ( $5.6 \cdot 10^{-2} \text{ an}^{-1}$ ), soit environ 890 moles qui s'accumulent en une cinquantaine d'années. Il faut donc stocker au bout de 50 ans 890 moles de tritium auxquelles s'ajoutent 200 moles d'hydrogène. Dans les conditions normales de température et de pression, ce stock occupe un volume d'une vingtaine de  $\text{m}^3$ .

A l'équilibre, la production instantanée de tritium par le MSBR correspond à une activité d'environ  $54000 \text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$ . Dans un REP, du tritium est également produit, par réaction sur le bore et le deutérium contenus dans l'eau du circuit primaire (rejets liquides). La production de tritium y est de l'ordre de  $1000 \text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$  [51], soit environ 50 fois moins que dans le MSBR. Une solution pour réduire cet écart serait de diminuer la proportion de lithium dans le sel, dont on a vu qu'il intervenait seul dans la production de tritium. Cette dernière reste toutefois plus faible dans le MSBR que dans un réacteur de type CANDU, dont on estime la production de tritium par capture sur le deutérium de l'eau lourde modératrice à  $100\,000 \text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$  [51]. Toutes ces productions industrielles de tritium sont relativement élevées, comparées à la production naturelle de  $72000 \text{ TBq/an}$  résultant de l'interaction des rayons cosmiques avec l'azote et l'oxygène de l'air. Il convient toutefois de relativiser la difficulté de la gestion du tritium, qui se résout du fait d'une demi-vie courte par un stockage restant hermétique pendant quelques dizaines d'années.

## c - Dégradation du graphite

### • Evaluation de la durée de vie du graphite en cœur

La principale préoccupation du projet MSBR à propos du graphite était sa stabilité dimensionnelle. Une variation relative du volume maximale de 5% peut tout au plus être acceptée, fixant la marge dans laquelle doit se maintenir le rapport des volumes sel/graphite. La figure 4.31 représente les variations de quelques propriétés du graphite utilisé dans les réacteurs RBMK à environ 600 K (volume  $V$ , module d'élasticité  $E$ , résistance thermique  $k$ , résistance électrique  $\rho$ ) en fonction de la fluence des neutrons d'énergie suffisante pour la création de dommages ( $E > 50 \text{ keV}$ ). Cette modification des propriétés physiques du graphite ainsi que sa dilatation ( $1.3 \cdot 10^{-6} \text{ g.cm}^{-3}.\text{K}^{-1}$ ) ne sont pas pris en compte par la suite dans les calculs d'évolution. Si on s'intéresse à l'évolution de  $\frac{\Delta V}{V}$ , on constate que dans un premier temps le graphite se contracte, par fermeture progressive des microporosités. Au delà de  $10^{22} \text{ n/cm}^2$ , le graphite se dilate et repasse par son volume initial lorsque la fluence atteint la valeur  $F_{crit}$  de  $2.0 \cdot 10^{22} \text{ n/cm}^2$ . Cette valeur définie à 600 K est environ 10 fois plus faible à 1000 K [52]. Elle est associée à une durée d'irradiation qu'on définit comme étant la "durée de vie" du graphite en cœur. Les études de l'ORNL se basant sur une fluence critique de  $3.0 \cdot 10^{22} \text{ n/cm}^2$  pour  $E > 50 \text{ keV}$  estiment ainsi la durée de vie du graphite en cœur à 4 ans [17].

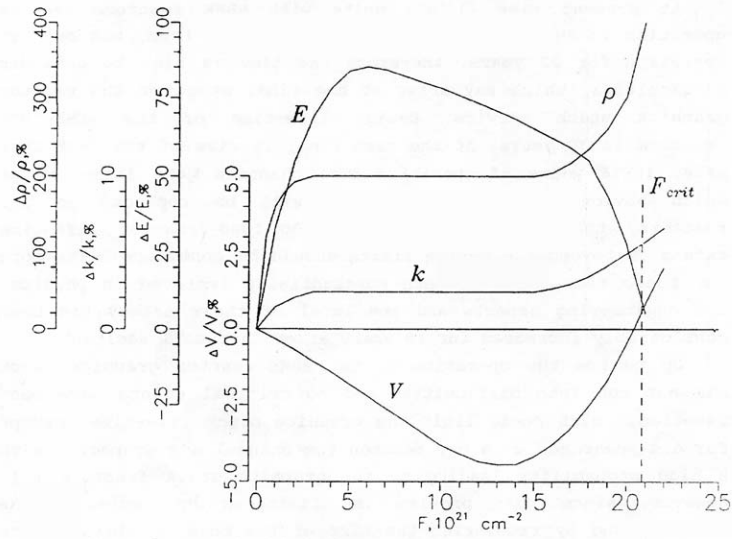


FIG. 4.31 – Evolution des propriétés physiques du graphite sous irradiation et détermination d'une valeur critique  $F_{crit}$  de la fluence [52].

Pour évaluer la durée de vie du graphite dans les conditions d'irradiation du cœur que nous simulons, nous ne pouvons nous baser que sur ces fluences critiques concernant des graphites de type nucléaire. Nous allons par conséquent évaluer des durées de vie maximales pour le graphite idéal de densité maximale utilisé dans nos simulations. A l'équilibre de notre système de référence, le flux moyen est de  $7.0 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$  (parmi lesquels 21% ont une énergie supérieure à 50 keV) dans les manches du cœur, et de  $7.2 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$  (la proportion précédente se réduit à 16%) dans la structure hexagonale autour des manches.

On calcule ainsi dans ce cas que la durée de vie moyenne du graphite dans les manches est de 6 ans pour  $F_{crit} = 3.0 \cdot 10^{22} \text{ n/cm}^2$  et 4 ans pour  $F_{crit} = 2.0 \cdot 10^{22} \text{ n/cm}^2$ . La durée de vie moyenne du graphite dans la structure hexagonale est à peine plus élevée; 8 ans pour  $F_{crit} = 3.0 \cdot 10^{22} \text{ n/cm}^2$  et 5 ans pour  $F_{crit} = 2.0 \cdot 10^{22} \text{ n/cm}^2$ . Le libre parcours moyen des neutrons dans le graphite du cœur (1.9 cm) est en effet proche de l'épaisseur de 2.5 cm des manches, et le graphite des hexagones n'est donc que faiblement protégé. A titre de comparaison, le flux moyen dans le réflecteur radial est de  $1.4 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$  avec une proportion de neutrons d'énergie supérieure à 50 keV de 2.7%. La durée de vie théorique du graphite utilisé s'élève ainsi à 250 ans pour  $F_{crit} = 3.0 \cdot 10^{22} \text{ n/cm}^2$ , ce qui signifie que les contraintes de stabilité dimensionnelle pour ce matériau peuvent être oubliées à cet endroit du réacteur.

L'endommagement relativement rapide et uniforme du graphite du cœur nécessite son extraction et son remplacement. C'est un inconvénient majeur du spectre épithermique par rapport aux systèmes mieux modérés comme par exemple l'incinérateur proposé par C.Bowman dont le spectre est réellement thermique. La durée de vie du graphite est dans ce cas évaluée à 10 ans

dans les manches et jugée illimitée dans les hexagones qui subissent moins de 1% des dommages [22]. Un procédé possible de recyclage du modérateur graphite en fin de vie est proposé pour le concept AMSTER [26]. Bien que les résultats de cette étude ne soient pas réjouissants, il convient de ne pas sous-estimer les apports possibles de la physique des matériaux à ce problème. Le graphite dense à faible porosité peut présenter une meilleure résistance aux dommages neutroniques que les graphites nucléaires actuels servant de référence. En outre, on peut envisager une disposition du graphite en cœur plus commode pour son retraitement, sous forme de barreaux plongeant dans une cuve par exemple.

• **Evaluation du taux de production de  $^{14}\text{C}$**

Le  $^{14}\text{C}$  est un émetteur  $\beta^-$  de 5730 ans de demi-vie, avec une énergie maximale émise de 156 keV. Compte tenu des quantités importantes de  $^{12}\text{C}$  et  $^{13}\text{C}$  présents dans le graphite au démarrage, il est nécessaire d'évaluer son taux de production. A  $t = 0$ , la proportion molaire  $c_{13}(0)$  de  $^{13}\text{C}$  dans le graphite est de 1.11%. Au même instant, la section efficace moyenne  $\sigma_{12}$  de capture du  $^{12}\text{C}$  est de 0.7 mbarn dans le cœur, et de 1.5 mbarn dans le réflecteur radial. Le spectre en énergie des neutrons dans le graphite ne change pratiquement pas, et on vérifie que les sections efficaces moyennes de capture du  $^{12}\text{C}$  restent constantes en cours d'évolution. On suppose logiquement dans ce qui suit qu'il en est de même pour celles du  $^{13}\text{C}$  et du  $^{14}\text{C}$ . La production de  $^{14}\text{C}$  se fait donc exclusivement par capture sur le  $^{13}\text{C}$ , dont il s'agit à présent d'évaluer les sections efficaces dans le cœur et dans le réflecteur. Le  $^{13}\text{C}$  n'est en effet pas disponible dans les bases de données utilisées. D'après [53], on connaît toutefois la valeur de la section efficace de capture à 0.025 eV du  $^{12}\text{C}$  (3.5 mbarn) et du  $^{13}\text{C}$  (1.4 mbarn). On évalue ainsi la section efficace moyenne  $\sigma_{13}$  de capture du  $^{13}\text{C}$  dans le cœur à  $1.4 \times \frac{0.7}{3.5} \simeq 0.3$  mbarn, et dans le réflecteur à  $1.4 \times \frac{1.5}{3.5} \simeq 0.6$  mbarn. Toujours d'après [53], la section efficace de capture du  $^{14}\text{C}$  est inférieure au  $\mu\text{barn}$  à 0.025 eV, et sera donc négligée dans la suite.

En faisant l'hypothèse que la désintégration du  $^{14}\text{C}$  reste négligeable sur la première centaine d'années, on peut écrire:

$$\begin{cases} \frac{dc_{12}(t)}{dt} = -c_{12}(t) \lambda_{12} \\ \frac{dc_{13}(t)}{dt} = c_{12}(t) \lambda_{12} - c_{13}(t) \lambda_{13} \\ \frac{dc_{14}(t)}{dt} = c_{13}(t) \lambda_{13} \end{cases}$$

avec :

- $c_{12}$ ,  $c_{13}$  et  $c_{14}$  les proportions molaires des trois isotopes du carbone dans le graphite
- $\lambda_{12} = \sigma_{12} \phi$  et  $\lambda_{13} = \sigma_{13} \phi$  les taux de capture par noyau de  $^{12}\text{C}$  et de  $^{13}\text{C}$
- $\phi$  le flux à  $t = 0$  ( $7.6 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$  dans le cœur,  $1.4 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$  dans le réflecteur)

La résolution de ce système fournit l'expression de  $c_{13}(t)$ , à intégrer pour obtenir  $c_{14}(t)$ :

$$c_{13}(t) = c_{13}(0)e^{-\lambda_{13}t} + c_{12}(0)\frac{\lambda_{12}}{\lambda_{12} - \lambda_{13}}(e^{-\lambda_{13}t} - e^{-\lambda_{12}t}) \quad (4.10)$$

La figure 4.32 montre l'augmentation des proportions molaires du  $^{13}\text{C}$  et du  $^{14}\text{C}$  dans le graphite du cœur et du réflecteur. On vérifie que le taux de désintégration du  $^{14}\text{C}$  est négligeable sur la période étudiée de 100 ans, pendant laquelle on ne suppose aucun recyclage du graphite. Dans le cas contraire, on aurait recours à un stock double de graphite dont une moitié serait retraitée pendant que l'autre serait utilisée dans le réacteur. Dans ce cas, les concentrations de  $^{14}\text{C}$  obtenues seraient réduites de moitié, mais la quantité totale produite serait la même.

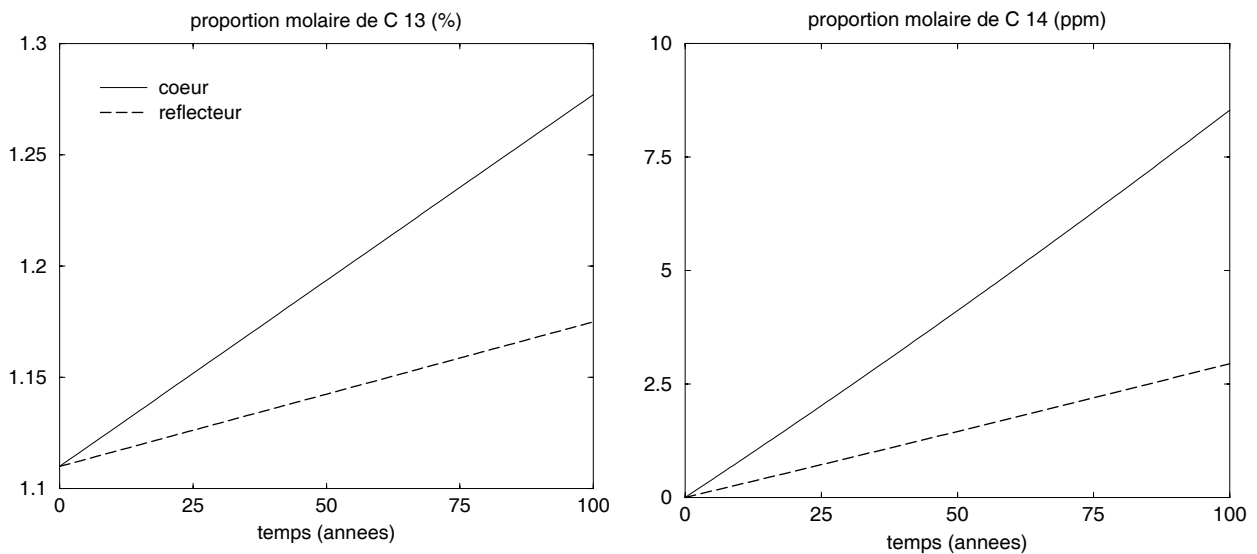


FIG. 4.32 – Evolution estimée des proportions molaires de  $^{13}\text{C}$  et de  $^{14}\text{C}$  dans le graphite du cœur et du réflecteur.

Après 100 ans de fonctionnement, la proportion molaire de  $^{13}\text{C}$  est de 1.28% dans le cœur et de 1.17% dans le réflecteur. Le  $^{14}\text{C}$  n'est alors présent qu'à l'état de traces (8.5 ppm dans le cœur et 2.9 ppm dans le réflecteur). Les activités correspondantes sont  $1.7 \cdot 10^6$  Bq/g et  $0.6 \cdot 10^6$  Bq/g, à comparer à 0.23 Bq/g, activité du  $^{14}\text{C}$  présent dans le graphite naturel. Compte tenu du volume total de graphite utilisé dans le cœur ( $47.3 \text{ m}^3$ ) et le réflecteur ( $36.9 \text{ m}^3$ ), on évalue l'activité moyenne du  $^{14}\text{C}$  à  $2.3 \text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$ . A titre de comparaison, un REP produit également du  $^{14}\text{C}$  par la réaction  $^{17}\text{O}(n, \alpha)$ , à raison de  $0.8 \text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$  [54]. En 1996, les rejets annuels de  $^{14}\text{C}$  de l'usine de la Hague étaient ainsi estimés à 40 TBq. A l'inverse, un réacteur graphite-gaz de type Magnox produit une activité de  $^{14}\text{C}$  de  $5.1 \text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$ , soit plus du double que le RSF. Un autre ordre de grandeur intéressant est le taux de production naturelle par interaction des rayons cosmiques dans l'atmosphère d'environ 1000 TBq/an. Le facteur de

dose du  $^{14}\text{C}$  étant de  $5.8 \cdot 10^{-10}$  Sv/Bq, on évalue la radiotoxicité qu'il génère dans le cas d'un RSF à environ  $500 \text{ Sv.GWth}^{-1}.\text{an}^{-1}$  1000 ans après le retraitement, soit environ 20 fois moins que les actinides rejetés.

### 4.3.3 Coefficients de température

Le but est ici de présenter les coefficients de température obtenus pour le système de référence au démarrage et à l'équilibre. Comme pour le RSF à sels chlorures du chapitre précédent, ces coefficients sont calculés en supposant les modifications associées instantanées. Les coefficients obtenus sont des indicateurs intéressants à comparer, définissant des limites dans la mesure où, en réalité, un réchauffement du sel se fait en quelques secondes et un réchauffement du graphite en quelques minutes voire quelques heures.

#### a - Méthodes de calcul

Le principe de calcul des coefficients de température, basé sur la différence entre le  $k_{eff}$  obtenu pour la géométrie modifiée et le  $k_{eff}$  de référence, a déjà été présenté au chapitre précédent sur l'exemple du réacteur U/Pu. Toutefois, l'utilisation du graphite comme modérateur impose une méthode de calcul spécifique, du fait de l'influence de la température sur la diffusion des neutrons thermiques. Dans tous nos calculs d'évolution, nous utilisons en effet le fichier spécial pour la diffusion des neutrons thermiques dans le graphite à 800 K fourni par la base ENDF/B-VI, faute d'avoir pu l'obtenir à 900 K. Les coefficients liés au réchauffement du sel ("Doppler" et "sel") étant calculés entre 900 et 1200 K, il est nécessaire de calculer l'influence du réchauffement du graphite sur la réactivité sur le même intervalle de température. Pour ce faire, nous avons effectué pour chaque étude deux calculs de référence du  $k_{eff}$ ; l'un utilisant le fichier de données de diffusion des neutrons thermiques dans le graphite à 800 K, l'autre à 1000 K. Pour le calcul du coefficient "graphite" et "total", nous utilisons alors comme valeur de référence du  $k_{eff}$  à 900 K la moyenne des deux valeurs ainsi obtenues. Entre-temps, nous avons appris à calculer le "thermal data file" du graphite à toutes les températures à l'aide de NJOY et d'un exemple d'utilisation de son module LEAPR [55]. Nous avons alors vérifié sur l'exemple du cas de référence à l'équilibre que les coefficients obtenus par les deux méthodes (moyenne de 800 et 1000 K ou fichier calculé pour 900 K) sont les mêmes à 0.1 pcm/K près, qui est la précision que l'on se fixe comme au chapitre précédent pour limiter les temps de calcul.

Les autres coefficients ne faisant pas intervenir de variation de température du graphite sont eux calculés par rapport au  $k_{eff}$  utilisant le "thermal data file" du graphite à 800K. Nous avons vérifié sur le même exemple du cas de référence à l'équilibre qu'avec le "thermal data file" du graphite à 1000K, les mêmes valeurs sont obtenues à 0.1 pcm/K près.

description du système	coef. de dilatation (g.cm <sup>-3</sup> .K <sup>-1</sup> )	coefficients de température (pcm/K)				
		Doppler	densité	sel	graphite	total
MSBR	-6.7 10 <sup>-4</sup>	-4.1	+0.8	<b>-3.3</b>	+2.4	<b>-0.9</b>
AMSTER	-9.5 10 <sup>-4</sup>	-2.4	+2.0	<b>-0.5</b>	+1.2	<b>+1.6</b>
FLiBe thorium référence t = 0	-6.7 10 <sup>-4</sup>	-3.5	+2.0	<b>-1.5</b>	+2.2	<b>+0.8</b>
FLiBe thorium référence équilibre	-6.7 10 <sup>-4</sup>	-3.3	+2.6	<b>-1.0</b>	+1.6	<b>+0.7</b>

TAB. 4.16 – Coefficients de température du RSF (Th/U)F<sub>4</sub> de référence, comparés à ceux des études MSBR et AMSTER.

Le tableau 4.16 présente les valeurs obtenues pour le cas du système de référence au démarrage et à l'équilibre. Ces coefficients sont comparés à ceux évalués par les études des projets MSBR et AMSTER (version <sup>232</sup>Th/<sup>233</sup>U à deux zones). La principale anomalie, qui ne peut être liée aux seules différences dans les données utilisées, concerne le coefficient total annoncé dans le projet MSBR, le seul à être nettement négatif (-0.9 pcm/K). Le coefficient élémentaire responsable de cette valeur est clairement, par comparaison aux autres valeurs du tableau, celui de "densité" (+0.8 au lieu de +2.0 pcm/K pour notre étude et pour l'étude AMSTER). Nous proposerons dans l'analyse de ce coefficient une explication de cet écart.

## b - Etudes des principales contributions

Il s'agit ici d'analyser les trois coefficients de température élémentaires (Doppler, densité et graphite) obtenus pour l'exemple simple du système de référence au démarrage. Les sections efficaces de fission et de capture du <sup>232</sup>Th et de l'<sup>233</sup>U obtenues dans ces trois cas sont comparées aux valeurs de référence dans le tableau 4.17. Ces valeurs moyennes des sections efficaces vont nous aider dans l'analyse des effets élémentaires de la température sur la réactivité.

(barn)	référence	Doppler	densité	graphite
fission <sup>232</sup> Th	0.0088	0.0089	0.0087	0.0086
fission <sup>233</sup> U	78.4	78.0	80.4	76.7
capture <sup>232</sup> Th	1.60	1.58	1.61	1.54
capture <sup>233</sup> U	9.58	9.50	9.75	9.36

TAB. 4.17 – Sections efficaces moyennes (barn) obtenues pour chaque calcul de contribution à la variation de la réactivité et comparées au cas de référence, à t = 0.

• **Doppler**

Le réchauffement du sel, sans modification de la densité, entraîne une diminution de la réactivité par élargissement Doppler des résonances de capture du  $^{232}\text{Th}$ , présent en grande quantité dans le sel. Ce sont les premières résonances, apparaissant à partir d'une vingtaine d'eV (figure 4.33), qui vont jouer le plus grand rôle dans la diminution de la réactivité. La partie supérieure du graphe de la figure 4.34 représente la section efficace de capture du  $^{232}\text{Th}$  autour de 22 eV, c'est à dire au niveau de sa première grande résonance, telle qu'elle est définie dans la base de données ENDF/B-VI. L'effet d'autoprotection de cette résonance est particulièrement visible sur le spectre moyen dans le sel combustible (figure 4.22). On vérifie que la section efficace est plus étalée à 1200 K, la valeur intégrée totale restant constante.

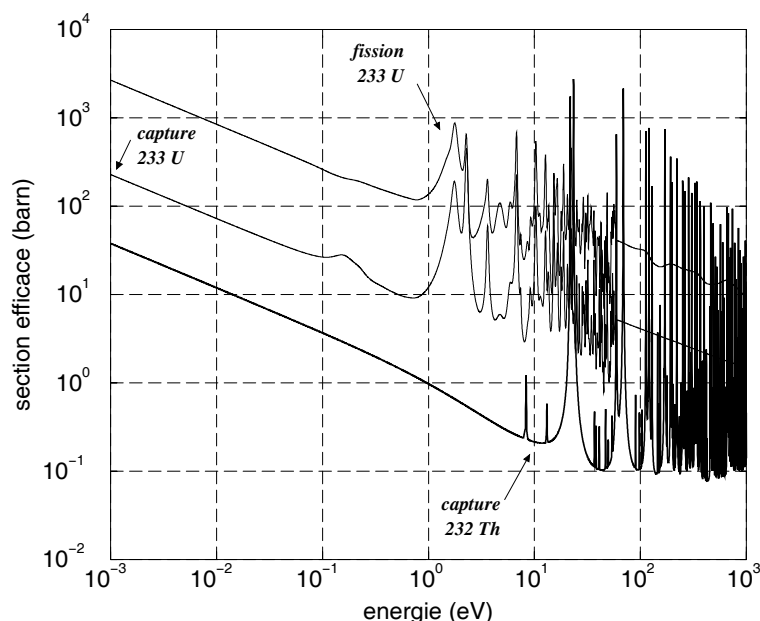


FIG. 4.33 – Sections efficaces du  $^{232}\text{Th}$  et de  $^{233}\text{U}$  entre  $10^{-3}$  et  $10^3$  eV.

Cet élargissement augmente la probabilité de capture dans la “trappe” que constitue la résonance ainsi élargie pour les neutrons en cours de ralentissement. La partie inférieure du graphe de la figure 4.34 représente les flux obtenus dans le système de référence à  $t = 0$  pour  $T = 900$  et 1200 K. Leur comparaison montre bien que l'étalement de la section efficace atténue l'autoprotection au centre de la résonance, tandis que le flux diminue sur les bords. L'effet négatif qui en résulte est de -3.5 pcm/K au démarrage (tableau 4.16). A titre de comparaison, l'effet Doppler apporté par  $^{238}\text{U}$  (première résonance à 6.7 eV) est compris entre -3 et -2 pcm/K en spectre thermique et entre -2 et -1 pcm/K en spectre rapide [46].



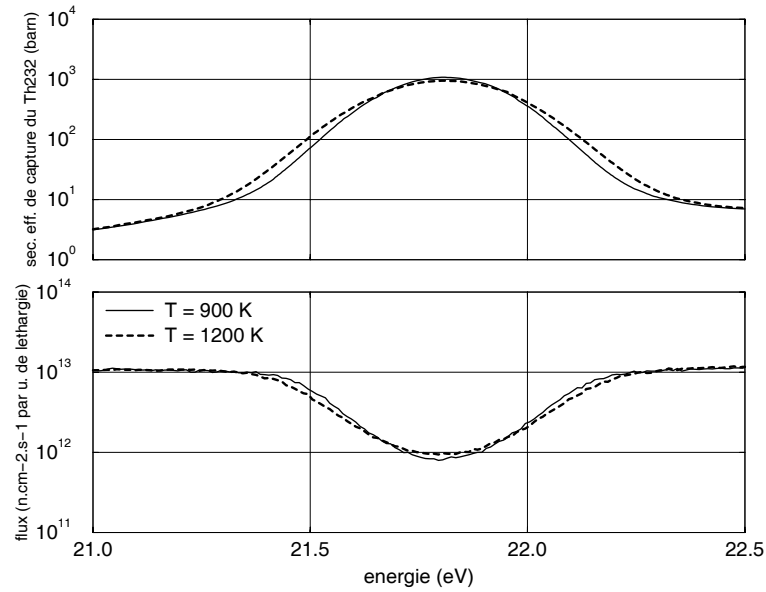


FIG. 4.34 – Section efficace de capture du  $^{232}\text{Th}$  et flux au démarrage du système de référence autour de 20 eV, pour deux températures du sel combustible sans modification de la densité.

#### • Densité

L'augmentation de température, supposée instantanée, de 900 à 1200 K fait ici passer la densité du sel de 3.3 à 3.1 g/cm<sup>3</sup>, et la concentration atomique de  $7.8 \cdot 10^{22}$  à  $7.3 \cdot 10^{22}$  at/cm<sup>3</sup>, tandis que la section efficace moyenne de diffusion des neutrons dans le sel du cœur reste sensiblement constante (3.53 barn). Le libre parcours moyen des neutrons dans le sel du cœur passe ainsi de 3.6 cm pour 900 K à 3.9 cm pour 1200 K, le libre parcours moyen dans le graphite du cœur restant égal à 1.9 cm. Ceci a pour effet de donner plus de poids à la modération des neutrons dans le graphite et donc d'adoucir le spectre. La modification des sections efficaces du tableau 4.17 illustre cette "thermalisation" du spectre qui rend sur-critique la masse d' $^{233}\text{U}$  en cœur, juste critique à 900 K. A l'équilibre du système  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  considéré, le coefficient de température lié à cet effet de densité est plus grand (2.6 au lieu de 2.0 pcm/K à  $t = 0$ ) du fait d'un inventaire fissile plus important.

La valeur plus faible du coefficient "densité" fournie par le projet MSBR (tableau 4.16) peut s'expliquer par le traitement en homogène de la diffusion des neutrons dans le cœur, utilisant des matériaux fictifs tenant compte des différentes proportions de sel en cœur [40]. Ce faisant, les codes de l'époque minimisaient l'effet de la diminution de la densité du sel sur la réactivité qui est essentiellement spatial, résultant comme nous l'avons vu de la compétition entre diffusion dans le sel et diffusion dans le graphite.

## • Graphite

Lorsqu'un gaz parfait monoatomique est mis dans une enceinte à température  $T$ , il tend vers un état d'équilibre caractérisé par une répartition dite maxwellienne d'énergie [49]. Dans cette distribution, l'énergie moyenne vaut  $\frac{3}{2}kT$ , où  $k$  est la constante de Boltzman. Des neutrons de basse énergie qui diffusent dans du graphite suivent relativement bien cette loi, leur spectre maxwellien se décalant vers les énergies plus élevées lorsque la température augmente (partie supérieure du graphe de la figure 4.35).

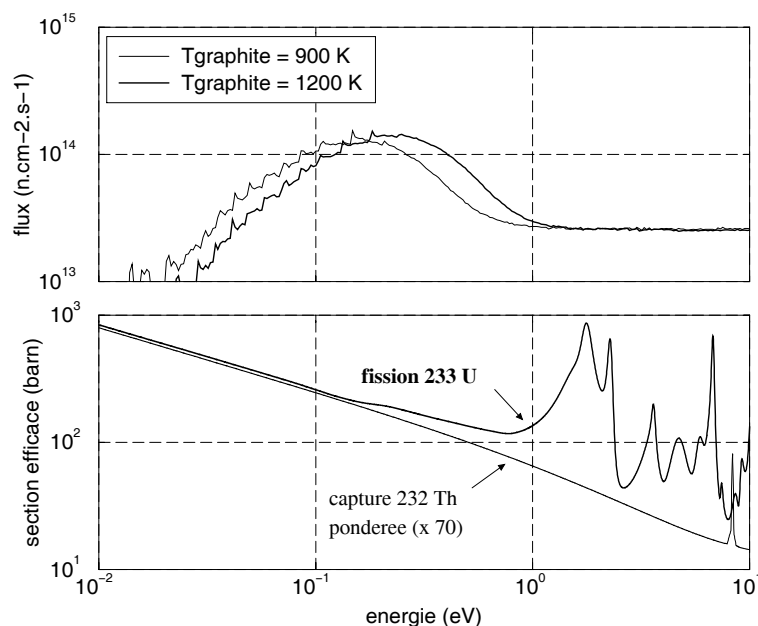


FIG. 4.35 – Spectres moyens dans le graphite du cœur pour  $T = 900$  et  $1200 \text{ K}$ , et sections efficaces dominantes (fission de  $^{233}\text{U}$  et capture du  $^{232}\text{Th}$ ) entre  $10^{-2}$  et  $10^1 \text{ eV}$ .

En règle générale, le réchauffement du modérateur graphite induit une augmentation de la réactivité avec du plutonium, et une diminution avec de l'uranium enrichi [46]. Dans notre cas du cycle thorium régénérateur en spectre thermique, ce sont les sections efficaces des réactions dominantes, à savoir la fission de  $^{233}\text{U}$  et la capture du  $^{232}\text{Th}$ , qui déterminent la variation de réactivité. La condition de régénération explique que la section efficace de capture du  $^{232}\text{Th}$ , pondérée par le rapport valant environ 70 de l'inventaire de  $^{232}\text{Th}$  sur celui de  $^{233}\text{U}$ , soit proche de la section efficace de fission de  $^{233}\text{U}$  (partie inférieure du graphe de la figure 4.35). Avec la base ENDF/B-VI utilisée, comme avec la base JENDL 3.2, on constate qu'à partir de 0.1 eV et jusqu'à sa première résonance située à environ 1 eV, la section efficace de fission de  $^{233}\text{U}$  voit sa pente ralentir, tandis que celle de la section efficace de capture du  $^{232}\text{Th}$  reste inchangée. En décalant la partie thermique du spectre vers cette région, le réchauffement du graphite favorise ainsi la fission de  $^{233}\text{U}$  par rapport à la capture du  $^{232}\text{Th}$ , ce qui provoque une augmentation de réactivité qu'on évalue à 2.2 pcm/K pour l'état initial.

## 4.4 *Le point sur notre réévaluation du projet MSBR*

Ce chapitre constitue une première approche du concept de RSF à modérateur graphite et support thorium. Nous nous sommes inspirés du projet MSBR pour définir un système de référence, d'une puissance de 2500 MWth, qui nous a permis de comprendre les points essentiels du fonctionnement de ce type de réacteur. Le sel combustible retenu a pour composition molaire 70.0% LiF - 17.5 BeF<sub>2</sub> - 12.5 (Th+U)F<sub>4</sub>, et représente environ 30% du volume du cœur. Le retraitement en ligne est basé sur les étapes successives de fluoration-réinjection de l'uranium, d'extraction-réinjection des actinides (avec décroissance hors flux du <sup>233</sup>Pa en <sup>233</sup>U), et d'extraction ultime des produits de fission les plus neutrophages (terres rares). Nous avons étudié la mise à l'équilibre de ce système démarré en <sup>232</sup>Th/<sup>233</sup>U, en vérifiant les valeurs choisies pour la composition du sel et sa proportion volumique en cœur.

Le modérateur graphite permet d'obtenir dans le sel combustible un spectre de type épithermique, qui contribue aux faibles inventaires caractérisant l'équilibre (2.2 t d'uranium dont 1.2 t d'<sup>233</sup>U, et 130 kg de transuraniens). Par une extraction rapide des produits de fission et du <sup>233</sup>Pa, le retraitement en ligne minimise l'inventaire de ces derniers (respectivement 210 kg et 21 kg à l'équilibre), et rend possible la surgénération. Le taux de régénération se stabilise à 1.038, soit une production annuelle de 36 kg d'<sup>233</sup>U et un temps de doublement de 31 ans. Nous avons par ailleurs retrouvé les avantages du cycle thorium en termes de radiotoxicités induites par les actinides. Après 1000 ans de décroissance, à production d'énergie et taux de pertes au retraitement égales, les rejets cumulés en actinides sont environ 10 000 fois moins radiotoxiques que ceux d'un REP. Ce facteur est ramené à 300 par rapport à un réacteur rapide à support uranium, et à 10 par rapport à un réacteur rapide à support thorium.

Notre étude complète de l'équilibre a mis en évidence quelques points durs. La production de tritium est ainsi environ 50 fois plus élevée que celle d'un REP, même si elle reste 2 fois moindre que celle d'un CANDU. Le graphite du cœur subit des dommages neutroniques importants, et doit être recyclé tous les 5 ans environ. Enfin, le coefficient de température total est légèrement positif, du fait de l'effet défavorable du réchauffement du graphite sur la réactivité, ce qui prive le système d'une sûreté véritablement intrinsèque. Le système de référence caractérisé dans ce chapitre s'est donc révélé très intéressant du point de vue de son cycle du combustible, mais réclame certaines adaptations afin de répondre pleinement à tous les critères d'une production durable d'énergie nucléaire. Les études menées par EDF dans le cadre du projet AMSTER vont dans ce sens, en envisageant notamment la simplification du retraitement en ligne. Dans ce qui suit, nous allons tester différentes options sur le cœur et le retraitement en ligne, susceptibles de rendre ce type de réacteur plus sobre, plus propre, et plus sûr.



## Chapitre 5

# Exploration des potentialités de la filière (Th/U)F<sub>4</sub>

A partir du concept témoin décrit dans le chapitre précédent, nous souhaitons contraindre à présent les limites du concept prometteur de réacteur à sels fondus et à retraitement continu en cycle thorium. Pour ce faire, nous allons étudier l'effet de différents procédés relevant soit de la physique du cœur, soit du retraitement en ligne. Les apports de ces procédés seront évalués à l'aune des trois critères exigibles d'une production durable d'énergie nucléaire, à savoir la sobriété, la propreté et enfin la sûreté.

### 5.1 Marges de manœuvre sur l'économie de neutrons

L'objectif est ici de tester ce que peuvent apporter des modifications de la neutronique ou du retraitement en ligne du système aux performances surgénératrices du réacteur. L'effet de chaque modification est étudié séparément sur le système de référence.

#### 5.1.1 Etude d'effets neutroniques favorables à la surgénération

Les premières modifications abordées concernent les principales caractéristiques du cœur. Par comparaison aux options du système de référence, nous étudions ici l'influence de la taille des canaux, de la composition du sel et de la puissance totale sur la surgénération.

##### a - Modification de la taille des canaux

- **Intérêt d'une zone fertile périphérique**

Dans tout ce travail, il n'est question que d'un circuit unique de sel combustible. La possibilité de faire circuler dans le même cœur deux circuits distincts de sel, bénéficiant chacun d'un retraitement approprié, est écartée car jugée trop complexe. Avec un circuit unique de sel, il

reste néanmoins possible d'aménager dans le cœur des zones, se distinguant par le diamètre des canaux et donc la proportion volumique de sel. Pour simplifier l'étude, on se limite à deux zones : l'une sous-modérée et l'autre sur-modérée par rapport à la zone unique du système de référence (canal de 15 cm de diamètre soit une proportion volumique de sel de 30.2%). On choisit pour la zone sous-modérée (qu'on qualifiera désormais de fertile, car favorisant les captures dans le domaine épithermique, autrement dit dans le thorium) un canal de 18 cm de diamètre, et pour la zone sur-modérée un canal de 12 cm de diamètre, soit des proportions volumiques de sel de respectivement 43.5% et 19.4%, valeurs encadrant bien les 30.2% de référence. Ceci étant défini, deux possibilités se présentent; placer la zone fertile au centre du cœur ou en périphérie. On s'attend a priori à ce que cette dernière configuration soit la plus favorable à la surgénération dans la mesure où elle doit permettre une meilleure utilisation par le thorium des neutrons épithermiques du graphite avant leur fuite. On décide néanmoins d'étudier les deux possibilités à dimensionnement et volume de sel comparables. Cette contrainte fixe pour chaque système la répartition du nombre total de canaux dans chaque zone (figure 5.1). Pour le système à zone fertile périphérique, les 252 canaux se répartissent en 138 petits canaux au centre et 114 gros canaux à l'extérieur, ce qui donne le même volume total que le système de référence à zone unique ( $46.2 \text{ m}^3$ ). Pour l'autre système, 108 gros canaux sont au centre et 144 petits à l'extérieur (volume total de sel de  $45.3 \text{ m}^3$ ). Le volume de sel en cœur dans chaque zone constitue une cellule distincte d'évolution pour REM, pour laquelle on calcule flux et sections efficaces moyennes.

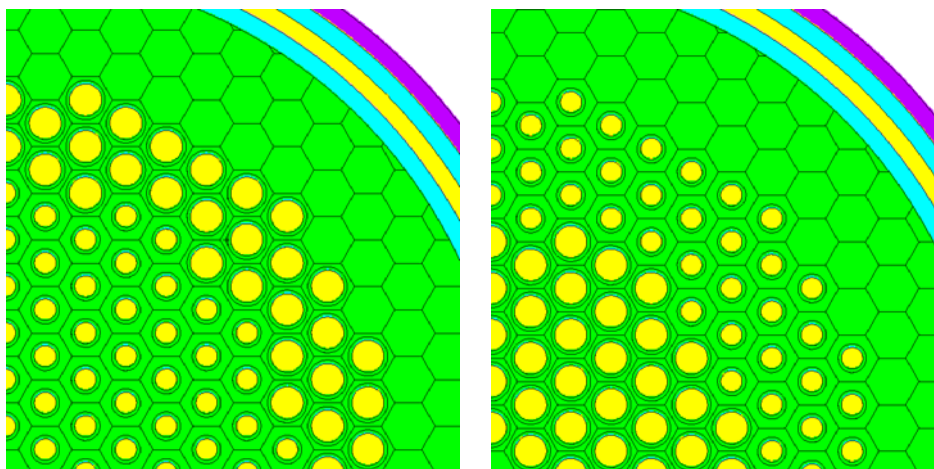


FIG. 5.1 – Cœur à zone fertile périphérique (à gauche) et cœur à zone fertile centrale.

Le tableau 5.1 montre qu'il existe, au démarrage, une nette différence pour le système à zone fertile périphérique entre les sections efficaces moyennes des deux zones du cœur. A titre de comparaison, nous avons indiqué les valeurs calculées dans les mêmes zones pour le système de référence, la taille des canaux étant dans ce cas la même dans les deux zones.

	zone unique (référence)		zone fertile périphérique		zone fertile centrale	
	centre	périphérie	centre	périphérie	centre	périphérie
fission $^{232}\text{Th}$	0.0088	0.0090	0.0091	0.0084	0.0085	0.0096
fission $^{233}\text{U}$	79.9	82.6	104	69.6	62.1	99.7
capture $^{232}\text{Th}$	1.60	1.62	1.84	1.52	1.47	1.79
capture $^{233}\text{U}$	9.8	10.0	12.0	8.7	8.0	11.5

TAB. 5.1 – Sections efficaces moyennes (barn) en cœur obtenues à  $t = 0$  pour les configurations à zone fertile périphérique et centrale, comparées au cas de référence.

réaction	noyau/zone	zone unique (référence)	zone fertile périphérique	zone fertile centrale
<i>fission</i>	$^{232}\text{Th}$	0.007	=	=
	$^{233}\text{U}$	<b>0.878</b>	0.884	0.881
	autres U	0.094	0.091	0.093
	trans-U	0.021	0.018	0.019
$(n, 2n)$	Be + Th	0.013	=	=
$(n, \gamma)$	Li + Be + F	0.031	0.036	=
	PF	0.015	=	=
	$^{232}\text{Th}$	<b>1.030</b>	1.044	0.981
	$^{231}\text{Pa}$	0.001	=	=
	$^{233}\text{Pa}$	<b>0.006</b>	0.005	0.005
	$^{233}\text{U}$	<b>0.109</b>	0.105	0.108
	autres U	0.158	0.149	0.154
trans-U	0.062	0.057	0.060	
$(n, \alpha)$	Li + Be + F	0.021	=	=
$(n, p)$	$^{19}\text{F}$	0.001	=	=
$(n, \gamma)$	cœur	0.029	=	0.040
graphite	réflecteurs	0.020	=	0.040
$(n, \alpha)$	échangeur	0.028	=	0.053
$\text{B}_4\text{C}$ ( $^{10}\text{B}$ )	enceinte	0.001	=	0.002
<i>fuite</i>	-	0.000	=	=
<i>total</i>	-	2.525	=	=

TAB. 5.2 – Consommations de neutrons ( $n/\text{fission}$ ) à l'équilibre du RSF  $(\text{Th}/\text{U})F_4$ , pour trois configurations de cœur (“=” signifie que la valeur est inchangée par rapport au cas de référence).

Le calcul complet de l'évolution des deux systèmes possibles à deux zones nous permet de comparer la description neutronique de leur équilibre à celle du système de référence, qui fait office d'intermédiaire. Par rapport à l'équilibre de référence (tableau 4.14), les termes totaux de création et de capture de neutrons restent inchangés. Seules sont modifiées les répartitions des fissions, des captures et des autres réactions parasites, ce que fournit le tableau 5.2.

Le bilan complet du cas à zone fertile périphérique nous montre que les captures sur l'uranium et les transuraniens sont réduites et que les autres absorptions parasites (graphite et B<sub>4</sub>C) restent inchangées, améliorant la surgénération par rapport au cas de référence. A l'inverse, placer les plus petits canaux en périphérie provoque une augmentation des fuites hors du cœur et donc des absorptions parasites, ce qui rend le système sous-générateur. Pour bien analyser ces modifications de la régénération de l'<sup>233</sup>U, la figure 5.2 détaille pour chaque système les taux de fission et de capture zone par zone; centre (zone "a") et périphérie (zone "b") du cœur, reste du circuit (zone "c"). Les proportions molaires des noyaux sur l'ensemble des transthoriens sont détaillées de la même façon, tandis que les taux de désintégration et d'extraction ne sont donnés que pour l'ensemble du sel.

A partir de ces données, on évalue le taux de régénération "fictif"  $\tau_r$  de chaque zone, assorti de la proportion  $a_{u3}$  des absorptions dans l'<sup>233</sup>U (tableau 5.3). Le taux de régénération effectif de chaque système peut ainsi se calculer comme une combinaison linéaire des taux de régénération par zone. Ce détail permet de mieux comprendre notamment l'apport de la zone fertile périphérique, qui se distingue par un taux de régénération suffisamment élevé pour l'emporter sur la diminution de sa contribution à l'absorption de l'<sup>233</sup>U. Cela revient à une meilleure répartition des tâches entre la zone centrale chargée surtout de produire la puissance et la zone périphérique mieux adaptée à la production d'<sup>233</sup>U.

description du système	zone centrale <i>a</i>		zone périph. <i>b</i>		reste circuit <i>c</i>		$\tau_r$ circuit complet
	$a_{u3}$ (%)	$\tau_r$	$a_{u3}$ (%)	$\tau_r$	$a_{u3}$ (%)	$\tau_r$	
zone unique (référence)	66.2	<b>1.026</b>	32.6	1.006	1.2	2.500	<b>1.038</b>
zone fertile périphérique	75.5	0.980	22.4	<b>1.267</b>	2.1	1.286	<b>1.051</b>
zone fertile centrale	34.0	1.170	63.3	0.851	2.7	1.852	<b>0.987</b>

TAB. 5.3 – Proportion  $a_{u3}$  des absorptions de l'<sup>233</sup>U et taux de régénération  $\tau_r$  zone par zone, pour les trois configurations de cœur étudiées.

Aménager des zones de modérations différentes modifie également le profil radial du flux et ce faisant la répartition de la puissance dans le cœur. La figure 5.3 montre que la configuration à zone fertile périphérique fait doubler la puissance volumique centrale, et donc le facteur de forme, par rapport au cas de référence. Les taux d'endommagement du graphite des manches, exprimés en dpa, présentent des profils similaires à ceux des puissances volumiques correspondantes, même



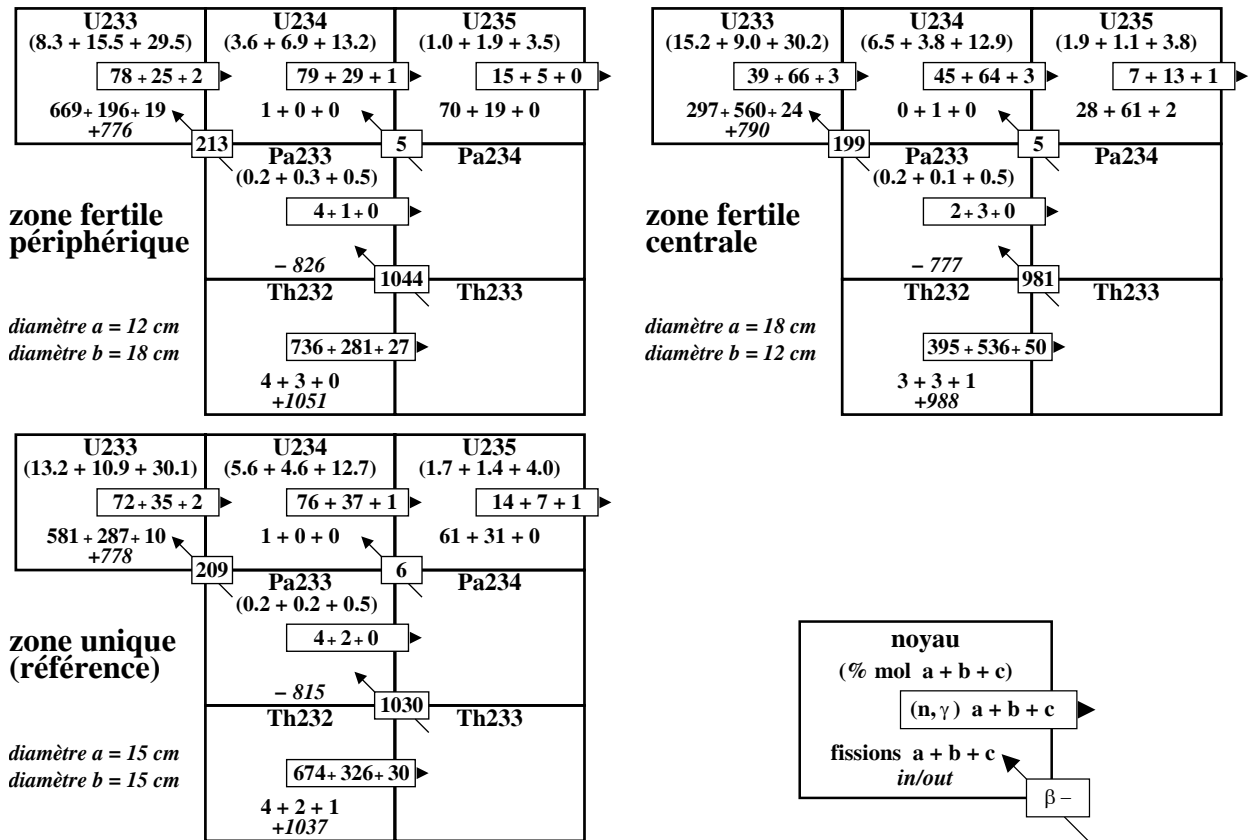


FIG. 5.2 – Représentation (N,Z) de la régénération de  $l^{233}\text{U}$  à l'équilibre du RSF de référence, du RSF à zone fertile périphérique et du RSF à zone fertile centrale. La zone a est la zone centrale du cœur, la zone b la zone périphérique et la zone c le reste du sel combustible.

si les écarts sont atténués car seuls les neutrons d'énergie supérieure à quelques dizaines de keV interviennent. On constate cependant que dans la configuration à zone fertile périphérique, l'endommagement du graphite au centre du cœur est supérieur de 50% à celui dans le cas de référence, ce qui réduit d'autant la durée de vie de ce graphite.

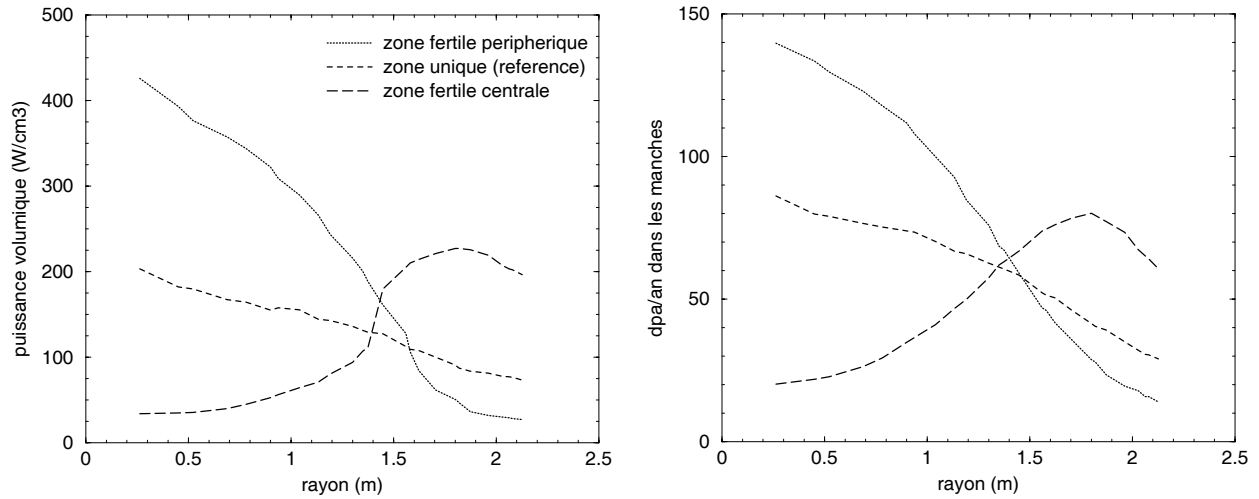


FIG. 5.3 – Répartition radiale de la puissance volumique et du taux de dommages dans le graphite selon la configuration du cœur.

description du système	coefficients de température (pcm.°C <sup>-1</sup> )				
	Doppler	densité	sel	graphite	total
FLiBe thorium référence équilibre	-3.3	+2.6	-1.0	+1.6	+0.7
FLiBe thorium zone fertile périphérique équilibre	-2.3	+1.5	-1.0	+1.7	+0.6
FLiBe thorium zone fertile centrale équilibre	-3.0	+1.4	-1.6	+0.6	-1.1

TAB. 5.4 – Coefficients de température des configurations à deux zones étudiées, à l'équilibre.

Le tableau 5.4 compare les coefficients de température à l'équilibre des deux configurations aux valeurs de référence. Les coefficients "sel" et "total" restent inchangés pour le système à zone fertile périphérique, la diminution du coefficient de densité étant compensée par l'affaiblissement de l'effet Doppler. Le système à zone fertile centrale présente au contraire l'avantage intéressant

d'un coefficient total largement négatif. Cette configuration augmente le rôle du sel en cœur en plaçant au centre les gros canaux, ce qui explique à la fois le renforcement de l'effet Doppler et la diminution de la contribution du graphite.

- **Autoprotection spatiale du sel dans les canaux**

Dans le cas de référence, le rayon du canal central unique de 7.5 cm représente plus du double du libre parcours moyen dans le sel (3.6 cm). Il est alors légitime de se demander dans quelle mesure le sel au centre des canaux est protégé du flux, et comment cela se traduit sur l'inventaire fissile nécessaire pour démarrer. Une étude du RSF à spectre thermique proposé par C. Bowman pour l'incinération du plutonium nous donne un exemple d'influence notable de l'autoprotection spatiale du sel dans les canaux sur la neutronique du cœur. Le remplacement de chaque canal central par 7 canaux plus petits, à volume total de sel constant, se traduit dans ce cas par une augmentation de la réactivité de 2000 pcm environ, à inventaire fissile fixé [23]. On décide d'appliquer cette méthode d'évaluation de l'autoprotection du sel au système de référence, le rayon de chaque petit canal valant  $\frac{7.5}{\sqrt{7}}$  soit environ 2.8 cm (figure 5.4). Les sept canaux sont maintenus à l'intérieur de la manche de référence, afin de conserver à cette configuration la même compacité et donc ne pas augmenter les fuites.

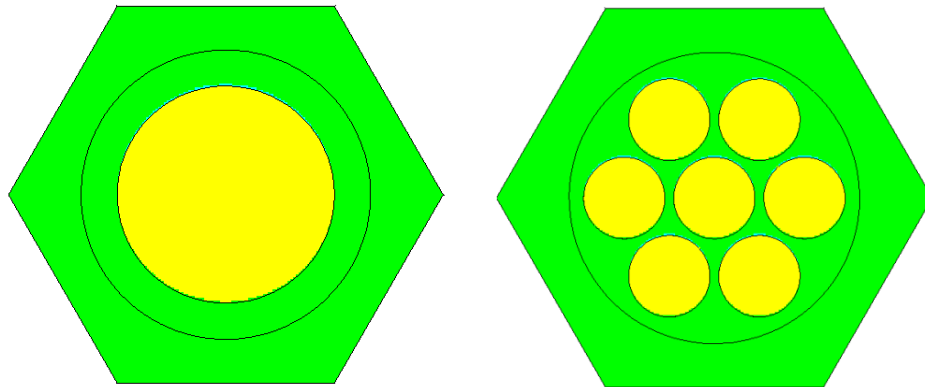


FIG. 5.4 – Eclatement du canal unique du cœur de référence en 7 canaux, à volume total constant.

Au démarrage du système de référence dont les hexagones du cœur ont tous été remplacés par des hexagones à sept canaux, on constate à concentration identique en  $^{233}\text{U}$  une chute de la réactivité de 2000 pcm ( $k_{eff} = 0.985 \pm 0.002$ ). Pour rétablir la criticité, l'inventaire initial d' $^{233}\text{U}$  de 1.12 t doit être augmenté de 70 kg. Nous allons dans la suite montrer que cette différence avec le cas du RSF à support inerte et spectre thermique de C. Bowman s'explique essentiellement par le caractère épithermique du spectre dans notre système de référence.

(barn)	référence	7 canaux
fission $^{232}\text{Th}$	0.0088	0.0084
fission $^{233}\text{U}$	80.9	83.6
capture $^{232}\text{Th}$	1.62	1.74
capture $^{233}\text{U}$	9.9	10.2

TAB. 5.5 – Sections efficaces moyennes (barn) dans le sel des canaux obtenues à  $t = 0$  pour la configuration à 7 canaux, comparées au cas de référence.

Les principales sections efficaces moyennes intervenant au démarrage du tableau 5.5 montrent que cette baisse de réactivité s'accompagne d'un adoucissement global du spectre dans le sel. Cet effet global ne peut pas expliquer la différence de réactivité observée entre les deux configurations, à concentration identique d' $^{233}\text{U}$ . Pour mieux analyser les modifications de spectre liées à la redistribution géométrique du sel en cœur, on représente le rapport des flux dans le graphite du cœur d'une part, et dans le sel des canaux d'autre part (figure 5.5).

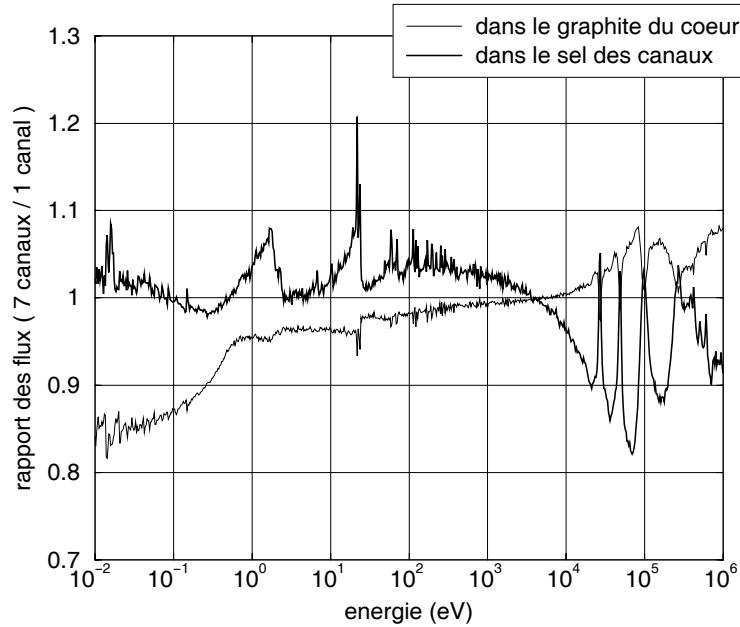


FIG. 5.5 – Rapports des flux au démarrage du système de référence entre la configuration à sept canaux et celle à canal unique par manche, dans le graphite du cœur et dans le sel des canaux.

Le cas du graphite, qui présente un franc durcissement de son spectre, est le plus facile à interpréter. Les neutrons de fission, produits à une énergie d'environ 2 MeV dans le sel, en sortent sans y être absorbés plus facilement dans le cas des petits canaux. Le transfert d'une partie de ces neutrons de haute énergie du sel vers le graphite adoucit le spectre dans le sel, comme le montre le rapport des flux dans les canaux pour les énergies supérieures au keV.

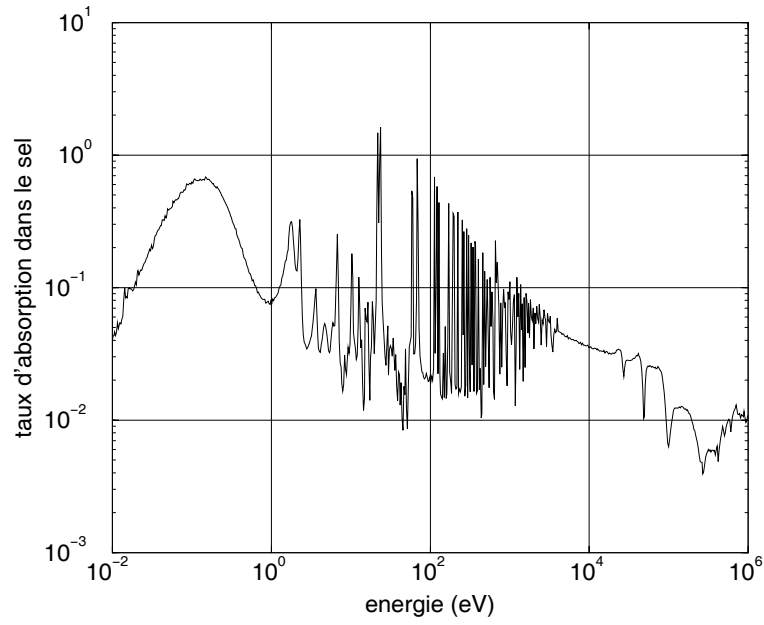


FIG. 5.6 – *Taux d'absorption (capture et fission) dans le sel des canaux du système de référence à  $t = 0$ , exprimé par fission et par unité de léthargie.*

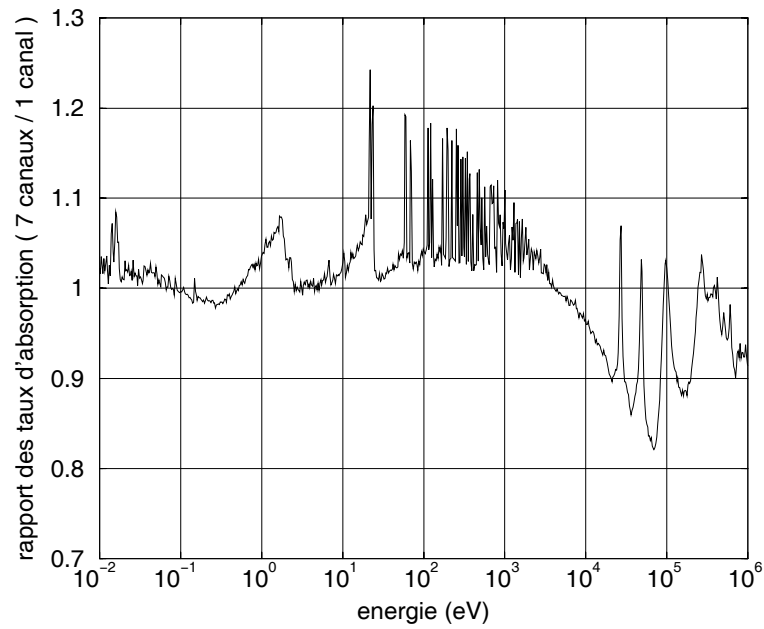


FIG. 5.7 – *Rapport des taux d'absorption dans le sel des canaux au démarrage entre la configuration à sept canaux et celle à canal unique par manche.*

Les neutrons rapides ayant quitté le sel ralentissent dans le graphite, puis retournent dans le sel où ils sont finalement absorbés. D'après la figure 5.5, le flux dans le sel des neutrons épithermiques d'énergies inférieures au keV est plus élevé dans la configuration à 7 canaux, du fait d'un retour plus important des neutrons ralentis dans le graphite. Pour les énergies inférieures à l'eV, le niveau de flux dans le sel reste inchangé, l'excédent de neutrons épithermiques ayant été absorbé avant leur thermalisation.

La figure 5.6 nous montre comment sont effectivement absorbés les neutrons dans le sel, en fonction de leur énergie. La région épithermique se caractérise par de nombreuses résonances, dominées par les premières résonances de capture du  $^{232}\text{Th}$  situées à une vingtaine d'eV. En calculant le rapport du taux d'absorption dans le sel dans la configuration à 7 canaux sur celui de référence (figure 5.7), on constate que, comme le flux, le taux d'absorption est plus important dans la région épithermique pour la configuration à 7 canaux. Ceci s'explique par le retour plus important de ces neutrons dans le sel, mais aussi par un effet d'autoprotection géométrique du centre des canaux réduit par rapport à la configuration à canal unique. La région épithermique étant dominée par la capture du  $^{232}\text{Th}$ , cette augmentation du taux d'absorption explique la baisse de réactivité calculée pour la configuration à 7 canaux.

## **b - Remplacement du $\text{BeF}_2$ par NaF**

Un moyen d'action direct sur les caractéristiques neutroniques est de modifier la composition du sel combustible, dans les limites autorisées par les contraintes physico-chimiques des sels candidats. Une première proposition intéressante est de remplacer le LiF, qu'il faut enrichir en  $^6\text{Li}$ , par du NaF qui est plus accessible (présent par exemple en quantité notable dans tous les dentifrices "au fluor"). Cette étude réalisée dans les années 80 par EDF a montré que le sodium capture beaucoup trop pour remplacer intégralement le lithium, imposant une augmentation de l'inventaire fissile de 10 à 50% pour un rapport NaF/ $\text{BeF}_2$  variant de 1 à 4 [40].

Une autre solution peut être alors de remplacer toujours par du NaF non plus le LiF mais le  $\text{BeF}_2$  du sel. On remplace ainsi le LiF- $\text{BeF}_2$ - $\text{ThF}_4$  par le LiF-NaF- $\text{ThF}_4$  dont le diagramme de phase présente deux eutectiques intéressants [56]. Le moins riche en NaF a pour composition molaire 54.5% LiF-13.5% NaF-32%  $\text{ThF}_4$  (température de fusion de 525 °C et densité évaluée à 3.3 g/cm<sup>3</sup> à 900 K). Du fait de sa faible concentration en sodium, c'est ce sel, appelé désormais "FLiNa", que l'on retient pour la suite. On vérifiera néanmoins que l'autre eutectique qui fond à 509 °C pour une densité évaluée à 3.2 g/cm<sup>3</sup> à 900 K (43.5% LiF-32.5% NaF-24%  $\text{ThF}_4$ ) est trop riche en sodium et n'autorise pas la surgénération.

### **• Performances avec le sel FLiNa (54.5% LiF - 13.5% NaF - 32% $\text{ThF}_4$ )**

On calcule la mise à l'équilibre du système de référence avec le sel FLiNa remplaçant le sel FLiBe du projet MSBR. Le dimensionnement de référence n'est pas modifié, dans la mesure

Réaction	Production	Consommation	
<i>fission</i>	2.500	1.000	<sup>232</sup> Th 0.011
			<sup>233</sup> U <b>0.872</b>
			autres U 0.096
			Pu 0.020
			Cm 0.001
<i>(n, 2n)</i>	0.004	0.002	<sup>232</sup> Th 0.002
<i>(n, γ)</i>	-	1.412	<sup>7</sup> Li 0.005
			<sup>19</sup> F 0.006
			<sup>23</sup> Na 0.015
			PF 0.013
			<sup>232</sup> Th <b>1.031</b>
			<sup>231</sup> Pa 0.002
			<sup>233</sup> Pa <b>0.005</b>
			<sup>233</sup> U <b>0.113</b>
			autres U 0.162
			<sup>237</sup> Np 0.022
			Pu 0.039
Am 0.002			
Cm 0.002			
<i>(n, α)</i>	-	0.010	<sup>19</sup> F 0.010
<i>(n, p)</i>	-	0.001	<sup>19</sup> F 0.001
<i>(n, γ)</i> graphite	-	0.042	coeur 0.022
			réflecteurs 0.020
<i>(n, α)</i> B <sub>4</sub> C ( <sup>10</sup> B)	-	0.032	échangeur 0.031
			enceinte 0.001
<i>fuite</i>	-	0.000	-
<i>total</i>	2.504	2.504	-

TAB. 5.6 – Bilan neutronique détaillé de l'équilibre du RSF <sup>232</sup>Th/<sup>233</sup>U à sel FLiNa.

où les propriétés physico-chimiques d'intérêt du FLiNa sont peu différentes de celles du FLiBe. La condition de criticité au démarrage impose un inventaire d' $^{233}\text{U}$  de 1.53 t, au lieu de 1.12 t pour la configuration de référence. Les principales différences qu'on peut observer sur le bilan neutronique détaillé de l'équilibre (tableau 5.6) par rapport au cas de référence ne sont liées qu'au remplacement du béryllium par le sodium. La production de neutrons par  $(n,2n)$  se limite donc au thorium tandis que le fluor monopolise les absorptions par  $(n,\alpha)$ . Au total, les composantes légères du sel absorbent moins dans le FLiNa que dans le FLiBe, le surplus d' $^{233}\text{U}$  en masse au démarrage étant simplement dû à la proportion plus importante de noyaux lourds dans ce sel (32% au lieu des 12.5% de référence). Le  $^{23}\text{Na}$  est toutefois le constituant léger du sel dont la section efficace moyenne de capture est la plus élevée avec 29 mbarn contre 2.2 mbarn pour le  $^7\text{Li}$  et 1.0 mbarn pour le  $^{19}\text{F}$ . Le taux de régénération à l'équilibre est légèrement supérieur au cas de référence (1.042 au lieu de 1.038). Mais du fait d'un inventaire initial supérieur, le temps de premier doublement ("Td") est légèrement plus important (29 ans, soit 4 ans de plus qu'avec le FLiBe). Le tableau 5.7 donne une vue d'ensemble de cette comparaison FLiNa/FLiBe.

observable	noyau(x)	FLiBe	FLiNa
taux de capture ( $n,\gamma$ ) + ( $n,\alpha$ ) (neutron/fission)	$^6\text{Li}$	0.004	-
	$^7\text{Li}$	0.018	0.005
	$^9\text{Be}$	0.005	-
	$^{19}\text{F}$	0.025	0.016
	$^{23}\text{Na}$	-	0.015
inventaire (t) à l'équilibre	$^{232}\text{Th}$	65	92
	$^{233}\text{U}$	<b>1.25</b>	<b>1.76</b>
	autres U	0.91	1.34
	trans-U	0.13	0.19
taux de régénération	-	1.038	1.042
premier Td (ans)	-	<b>25</b>	<b>29</b>
Td à l'équilibre (ans)	-	31	39

TAB. 5.7 – Quelques conséquences du remplacement du FLiBe par le FLiNa, à l'équilibre.

Afin d'apprécier, pour ce sel, la sensibilité de la surgénération à la proportion de noyaux lourds, nous avons recalculé l'évolution en faisant varier la proportion de noyaux lourds de  $\pm 20\%$  par rapport à sa valeur de 32% dans le FLiNa, en maintenant le rapport LiF/NaF égal à 4. Avec le sel plus concentré en noyaux lourds de 20% (49.5% LiF-12.5% NaF-38% ThF<sub>4</sub>, densité prise égale à 3.4 g/cm<sup>3</sup>), on obtient le même temps de premier doublement (29 ans). Le sel appauvri en noyaux lourds (59% LiF-15% NaF-26% ThF<sub>4</sub>, dont on estime la densité à 3.2 g/cm<sup>3</sup>) donne un temps de premier doublement plus long (35 ans).



Une autre variante envisageable est l'eutectique précédemment évoqué, beaucoup plus riche en sodium (43.5% LiF-32.5% NaF-24% ThF<sub>4</sub>). Un avantage de ce sel est que sa température de fusion est moins sensible aux variations de composition que le FLiNa étudié ci-dessus. Le calcul de son équilibre dans le système de référence montre que le taux de capture du <sup>23</sup>Na est multiplié par 3, passant de 0.015 à 0.047 neutron/fission. Les taux d'absorption du <sup>7</sup>Li et du <sup>19</sup>F restent inchangés, mais les captures supplémentaires dans le sodium suffisent à rendre le système tout juste régénérateur (taux de 0.996 à l'équilibre). Au cours de la mise à l'équilibre qui dure comme avec le FLiBe une cinquantaine d'années, la production cumulée d'<sup>233</sup>U reste nulle à quelques dizaines de kg près.

Le bilan n'est pas entièrement négatif car ce sel permet, par rapport au FLiNa, une économie de lithium (4.5 t nécessaires au lieu de 4.9 t). L'inventaire de thorium nécessaire est également plus faible qu'avec le FLiNa (80 t au lieu de 92 t), de même pour l'uranium (2.8 t au lieu de 3.1 t avec 1.60 t d'<sup>233</sup>U à l'équilibre contre 1.76 t avec le FLiNa) et les transuraniens (170 kg au lieu de 190 kg). On conserve néanmoins le FLiNa dans la suite, donnant ainsi la priorité aux performances surgénératrices.

#### • Production de tritium

Le remplacement du FLiBe par le FLiNa permet de réduire la production de tritium. Dans le cas du FLiBe, le <sup>9</sup>Be produit de l'<sup>6</sup>He par (n,α), qui se désintègre immédiatement en <sup>6</sup>Li (demi-vie de 0.8 s). Comme le montre le tableau 5.8, ce <sup>6</sup>Li contribue par (n,t) à une part notable de la production de tritium à l'équilibre. Avec le FLiNa, le <sup>6</sup>Li n'est plus régénéré à partir du <sup>9</sup>Be et se retrouve à l'état de traces à l'équilibre en dépit d'un réajustement continu de la concentration en LiF par ajout de lithium enrichi à 99.995% en <sup>7</sup>Li. Le lithium du sel passe ainsi d'une concentration en <sup>6</sup>Li de 0.005% au démarrage à une concentration inférieure à 0.0001% seulement cinq ans plus tard et à 10<sup>-7</sup> à l'équilibre (0.3 g). A titre de comparaison, la concentration d'équilibre du lithium en <sup>6</sup>Li avec le FLiBe est de 0.001% (120 g).

	<sup>6</sup> Li(n,t)			<sup>7</sup> Li(n,nt)		
	N (mol)	σ (barn)	taux (g/an)	N (mol)	σ (mbarn)	taux (g/an)
FLiBe	19.6	91.7	<b>54.4</b>	1.64 10 <sup>6</sup>	1.94	<b>96.3</b>
FLiNa	0.06	63.8	0.1	7.0 10 <sup>5</sup>	2.42	<b>51.3</b>

TAB. 5.8 – Inventaires  $N$ , sections efficaces  $\sigma$  et contributions à la production de tritium du <sup>6</sup>Li et du <sup>7</sup>Li à l'équilibre du système de référence pour les sels FLiBe et FLiNa.

L'autre réaction de production de tritium est <sup>7</sup>Li(n,nt). La plus faible concentration de LiF dans le FLiNa réduit de plus de moitié la quantité de <sup>7</sup>Li dans le sel ce qui permet de diviser par 2 le taux de production de tritium à l'équilibre par cette réaction. Au total, la production

de tritium par le FLiNa est réduite au tiers de celle du FLiBe (environ 150 g/an), et la quantité stockée en dehors du cœur à l'équilibre passe de 890 à 290 moles. Le taux de production moyen de tritium est alors de 3200 TBq/GWe.an, valeur 4 fois supérieure à la production annuelle d'un REP de 1 GWe [57]. On remarque qu'avec l'eutectique 43.5% LiF-32.5% NaF-24% ThF<sub>4</sub> précédemment évoqué la production est encore plus faible (43 g/an à l'équilibre).

• **Coefficients de température**

Le calcul des coefficients de température du système utilisant le FLiNa nous oblige à estimer la valeur du coefficient de dilatation de ce sel qui n'a jamais été mesurée jusqu'à présent. Nous avons vu que ce paramètre jouait un rôle important dans la valeur du coefficient "densité" qui conditionne lui-même la contribution globale du sel. Par rapport au FLiBe ( $-6.7 \cdot 10^{-4} \text{ g.cm}^{-3}.\text{K}^{-1}$ ), la concentration en éléments légers est plus faible, ce qui a tendance à diminuer en valeur absolue le coefficient de dilatation. La valeur maximale en valeur absolue du coefficient du FLiNa est donc évaluée à  $-5.0 \cdot 10^{-4} \text{ g.cm}^{-3}.\text{K}^{-1}$  [58]. Par ailleurs, le coefficient de dilatation de la version uranium du FLiNa (33% LiF-45% NaF-22% UF<sub>4</sub>) est connu et vaut  $-1.0 \cdot 10^{-4} \text{ g.cm}^{-3}.\text{K}^{-1}$  [26]. La liaison du fluor avec le thorium étant moins forte qu'avec l'uranium, on estime qu'en valeur absolue le coefficient du FLiNa au thorium ne peut être inférieur à celui du FLiNa à l'uranium (en outre l'un des plus faibles qui soit connu). En définitive, on encadre donc le coefficient de dilatation du FLiNa entre  $-5.0 \cdot 10^{-4}$  et  $-1.0 \cdot 10^{-4} \text{ g.cm}^{-3}.\text{°C}^{-1}$ .

description du système	coef. de dilatation ( $\text{g.cm}^{-3}.\text{°C}^{-1}$ )	coefficients de température ( $\text{pcm}.\text{°C}^{-1}$ )				
		Doppler	densité	sel	graphite	total
FLiBe thorium référence équilibre	$-6.7 \cdot 10^{-4}$	-3.3	+2.6	<b>-1.0</b>	+1.6	<b>+0.7</b>
FLiNa thorium référence t = 0	$-5.0 \cdot 10^{-4}$	-3.4	+1.6	<b>-2.0</b>	+2.1	<b>+0.4</b>
	$-1.0 \cdot 10^{-4}$		+0.4	<b>-3.2</b>		<b>-0.8</b>
FLiNa thorium référence équilibre	$-5.0 \cdot 10^{-4}$	-3.7	+1.9	<b>-1.7</b>	+1.5	<b>0.0</b>
	$-1.0 \cdot 10^{-4}$		+0.5	<b>-3.3</b>		<b>-1.9</b>

TAB. 5.9 – Coefficients de température du système avec le sel FLiNa à  $t = 0$  et à l'équilibre, comparés à ceux obtenus avec le sel FLiBe à l'équilibre.

La valeur exacte du coefficient de dilatation du FLiNa manque d'autant plus que l'effet de densité est le principal responsable de la différence avec les coefficients du FLiBe. Avec le FLiNa, les coefficients "sel" sont environ deux fois plus importants en valeur absolue. L'effet total sur la réactivité est ainsi proche de zéro au démarrage et devient négatif à l'équilibre.

## c - Réduction de la puissance totale

Le déploiement possible de réacteurs nucléaires dans les pays en voie de développement ouvre la voie à des systèmes aux dimensions et performances plus modestes : les “RPMP” (Réacteurs de Petite et Moyenne Puissance). Un avantage des réacteurs à sels fondus est que le surcoût lié à un sous-dimensionnement est moins prononcé que pour les autres types de réacteur, du fait notamment de l’absence de circuits sous pression. Une puissance souvent recommandée pour des petits réacteurs modulaires est 625 MWth [59]. Nous allons comparer ici au système de référence de 2500 MWth des réacteurs sous-dimensionnés à 1250 et 625 MWth.

### • Puissance volumique moyenne inchangée

Une première méthode consiste à conserver la même puissance volumique moyenne dans le sel en cœur de  $120 \text{ W/cm}^3$ . On réduit donc le volume total de sel dans la même proportion que la puissance ( $23.8 \text{ m}^3$  pour 1250 MWth et  $11.4 \text{ m}^3$  pour 625 MWth), la taille de l’usine de retraitement étant réduite d’autant. La proportion de sel hors flux ( $1/3$ ) est conservée, ainsi que la taille des réflecteurs. La hauteur du cœur est toujours prise égale à son diamètre et vaut 3.7 m pour la puissance moitié et 3.0 m pour la puissance quart.

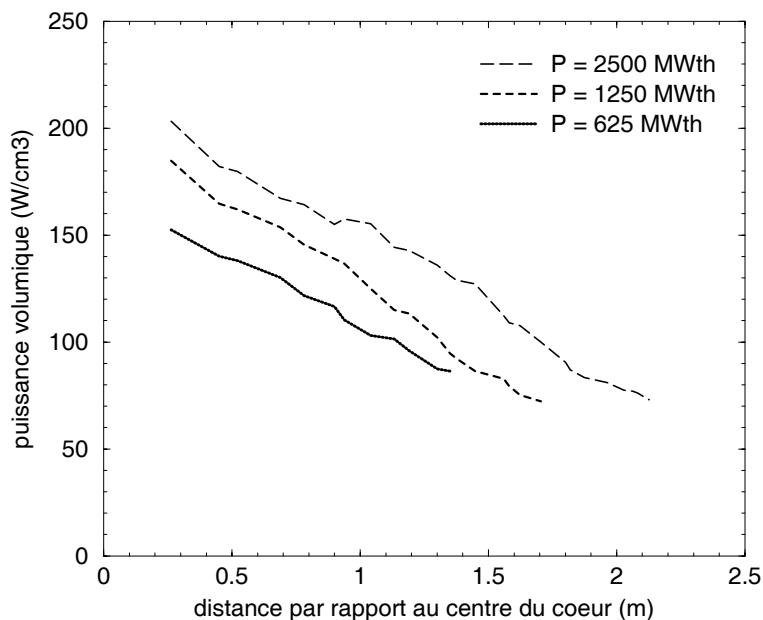


FIG. 5.8 – Répartition radiale à  $t = 0$  de la puissance volumique dans le sel des canaux du RSF  $(Th/U)F_4$ , pour les trois valeurs étudiées de la puissance totale  $P$ .

Le premier effet est observé au moment de déterminer la concentration initiale d’ $^{233}\text{U}$  pour ajuster le  $k_{eff}$  à 1. Elle passe de 1.64% pour le dimensionnement de référence à 1.70% pour la puissance moitié et 1.77% pour la puissance quart. On observe également une relative uni-

formisation de la puissance volumique en cœur, illustrée par la figure 5.8. Le facteur de forme (rapport des puissances volumiques maximale et moyenne dans les canaux) passe ainsi de 1.71 (203/119) à 1.64 (185/113) pour 1250 MWth et 1.35 (151/112) pour 625 MWth.

L'inventaire d' $^{233}\text{U}$  à l'équilibre exprimé en kg par unité de puissance est d'autant plus important que la puissance totale est faible (500 kg/GWth pour 2500 MWth contre 538 kg/GWth pour 1250 MWth et 542 kg/GWth pour 625 MWth). Ceci s'explique par une augmentation des pertes de neutrons, le rapport de la surface du cœur sur son volume étant d'autant plus important que le cœur est petit. Le tableau 5.10 montre que le sous-dimensionnement du système à une puissance totale plus faible s'accompagne d'une baisse des flux moyens en cœur au profit d'une augmentation des flux en périphérie. La valeur moyenne du flux diminue sensiblement dans le sel des canaux et dans le graphite du cœur, tandis qu'elle augmente dans le réflecteur radial et également dans la couche de carbure de bore entourant ce dernier.

( $n.cm^{-2}.s^{-1}$ )	2500 MWth	1250 MWth	625 MWth
canaux (sel)	$7.2 \cdot 10^{14}$	$6.8 \cdot 10^{14}$	$6.6 \cdot 10^{14}$
modérateur (graphite)	$7.6 \cdot 10^{14}$	$7.1 \cdot 10^{14}$	$6.9 \cdot 10^{14}$
réflecteur (graphite)	$1.36 \cdot 10^{14}$	$1.41 \cdot 10^{14}$	$1.47 \cdot 10^{14}$
protection ( $B_4C$ )	$3.6 \cdot 10^{10}$	$6.4 \cdot 10^{10}$	$1.2 \cdot 10^{11}$

TAB. 5.10 – Comparaison à  $t = 0$  des flux moyens ( $n.cm^{-2}.s^{-1}$ ) dans le sel en cœur, le graphite, et la protection neutronique latérale ( $B_4C$ ) pour trois valeurs de la puissance.

Le tableau 5.11 montre comment sont modifiés les taux de fission et de capture dans le sel, et les taux d'absorption dans le graphite et le  $B_4C$ . Les termes totaux de création de neutrons par fission et  $(n,2n)$  ainsi que ceux de capture et de réaction  $(n,p)$  restent inchangés. Par contre, on vérifie que les absorptions parasites augmentent dans le graphite et le carbure de bore lorsque la puissance totale diminue, le total de ces absorptions parasites étant doublé pour 625 MWth par rapport à 2500 MWth. Les neutrons supplémentaires perdus dans ces absorptions sont autant de captures en moins sur le  $^{232}\text{Th}$ . Le taux de régénération à l'équilibre passe ainsi de 1.038 pour 2500 MWth à 1.020 pour 1250 MWth et 0.987 pour 625 MWth. Les productions d' $^{233}\text{U}$  correspondantes, exprimées en  $kg.GWth^{-1}.an^{-1}$ , sont 14.3, 7.2 et -5.3 respectivement. Le système de plus faible puissance est donc légèrement sous-générateur (consommation de 5.3 kg d' $^{233}\text{U}$  par  $GWth.an$ ). Le sous-dimensionnement du cœur à puissance volumique inchangée est clairement nuisible à la surgénération, du fait d'une augmentation notable des pertes. Cela explique pourquoi seule l'incinération de l' $^{233}\text{U}$  sur matrice inerte a été abordée dans l'expérience MSRE, d'une puissance totale maximale de 8 MWth. Pour l'étude expérimentale de la surgénération en cycle thorium et spectre épithermique, une puissance de plusieurs centaines de MWth paraît donc indispensable. La puissance de 250 MWth proposée par le projet de démonstrateur

AMBIDEXTER [27] nous semble pour cette raison insuffisante. Un triplement de cette valeur élargirait considérablement le champ des études accessibles à ce genre d'installation.

réaction	noyau/zone	2500 MWth	1250 MWth	625 MWth
<i>fission</i>	$^{232}\text{Th}$	0.007	=	=
	$^{233}\text{U}$	<b>0.878</b>	=	=
	autres U	0.094	0.095	0.095
	trans-U	0.021	0.020	0.020
$(n, \gamma)$	Li + Be + F	0.031	0.030	0.028
	PF	0.015	0.014	0.014
	$^{232}\text{Th}$	<b>1.030</b>	1.012	0.979
	$^{231}\text{Pa}$	0.001	=	=
	$^{233}\text{Pa}$	<b>0.006</b>	0.005	0.005
	$^{233}\text{U}$	<b>0.109</b>	=	=
	autres U	0.158	=	0.157
	trans-U	0.062	=	0.061
$(n, \gamma)$	cœur	0.029	0.028	0.026
graphite	réflecteurs	0.020	0.028	0.045
$(n, \alpha)$	échangeur	0.028	0.041	0.057
$\text{B}_4\text{C}$ ( $^{10}\text{B}$ )	enceinte	0.001	0.002	0.008

TAB. 5.11 – *Consommations en n/fission à l'équilibre du RSF (Th/U)F<sub>4</sub> pour trois valeurs de la puissance (“=” signifie que la valeur est inchangée par rapport au cas de référence).*

#### • Puissance volumique moyenne réduite

Pour éviter les pertes liées à la diminution de la taille du cœur, une autre méthode consiste à conserver le dimensionnement de référence, la puissance volumique moyenne se trouvant de fait réduite du même facteur que la puissance totale. Il en résulte tout d'abord une réduction du même facteur du taux de dommages dans le graphite, ainsi que de la vitesse de circulation du sel dans les canaux. Ceci permet d'augmenter la durée de vie du graphite en cœur, qui passe de 5 ans pour 2500 MWth à une vingtaine d'années pour la puissance quart, et de limiter la corrosion et la taille des pompes nécessaires. On vérifie qu'au démarrage des systèmes de puissance 1250 et 625 MWth les flux dans le sel des canaux et dans le modérateur graphite sont divisés respectivement par 2 et 4 par rapport au cas de référence (tableau 5.10).

Les taux de régénération obtenus à l'équilibre sont respectivement 1.041 et 1.043, à comparer à 1.038 pour 2500 MWth. Cette légère amélioration est due à la division respectivement par 2 et 4 du taux de capture du  $^{233}\text{Pa}$ , dont la décroissance en  $^{233}\text{U}$  est favorisée du fait de la diminution

du flux. La principale différence avec les cas à puissance volumique inchangée réside dans le temps de mise à équilibre, doublé pour 1250 MWth et quadruplé pour 625 MWth. L'accumulation des transuraniens s'en trouve ainsi ralentie, ce qui est favorable à la surgénération au cours des premières années du régime transitoire, comme le montre la figure 5.9.

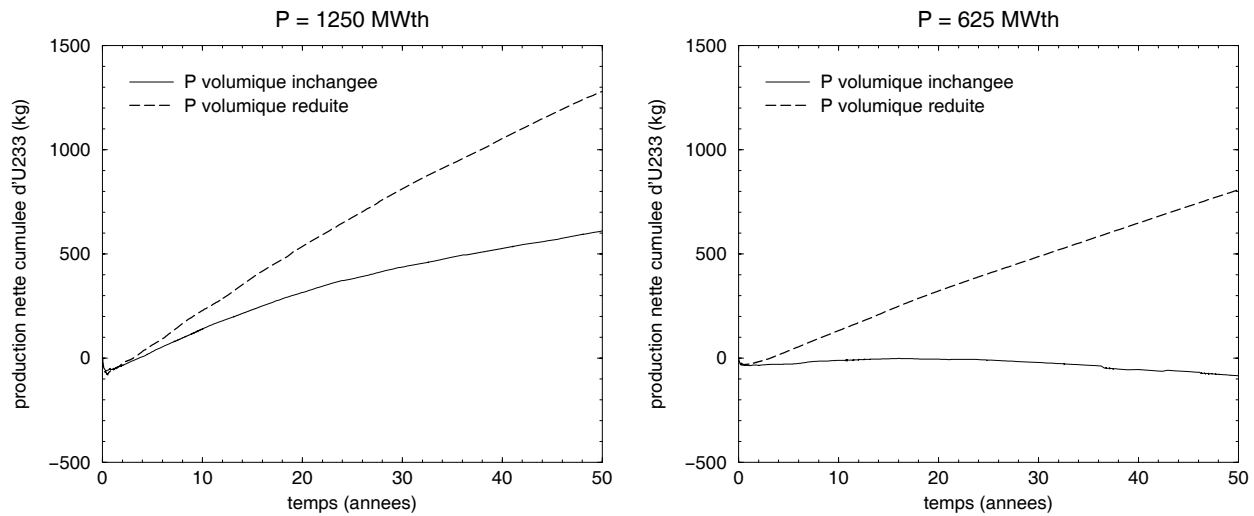


FIG. 5.9 – Influence de la réduction de la puissance volumique sur la production cumulée d' $^{233}\text{U}$ .

Remarquons cependant que les systèmes démarrent dans ce cas avec l'inventaire initial d' $^{233}\text{U}$  de référence, soit 1.12 t. Dans le cas du système de 1250 MWth à puissance volumique moyenne réduite, le temps de premier doublement est ainsi de 43 ans. Avec une puissance volumique moyenne inchangée, l'inventaire initial d' $^{233}\text{U}$  n'est que de 600 kg, soit un temps de premier doublement de 49 ans à peine plus long. La méthode de sous-dimensionnement dépend donc des priorités que l'on se fixe. Pour une bonne économie de neutrons, la réduction de la puissance volumique moyenne est préférable. Si par contre on souhaite améliorer le burn-up et limiter les inventaires, il faut privilégier la réduction de la taille du cœur.

### 5.1.2 Exploitation de la flexibilité du retraitement en ligne

Nous avons constaté dans le chapitre précédent qu'un retraitement rapide était une condition sine qua non à la surgénération en cycle thorium et spectre épithermique. Mais, s'il est effectué en ligne comme c'est le cas dans un RSF, ce retraitement rapide peut passer du statut de contrainte à celui de facteur intéressant de flexibilité. La pyrochimie des sels fluorures est en effet riche de nombreux procédés qui peuvent permettre d'agir par le simple jeu des extractions sur l'évolution du combustible en fonction des performances recherchées. Pour illustrer ce point, nous nous proposons de tester quelques options intéressantes offertes par le principe de retraitement en ligne, greffées au système de référence.

## a - Ajustement de la durée de retraitement $T$

Si la surgénération n'est pas prioritaire, l'extraction des produits de fission et du protactinium peut être ralentie en allongeant le temps de retraitement total  $T$ . Ceci ne peut être fait que dans certaines limites définies non seulement par les contraintes neutroniques que nous allons tenter ici de quantifier, mais aussi par la faisabilité technique du retraitement en ligne, qu'il soit continu ou semi-continu. Pour maintenir des débits suffisants dans les différentes composantes de l'usine de retraitement, la durée du retraitement  $T$  doit en effet ne pas être trop longue, à moins d'un retraitement discontinu dont les cycles ("batches") seraient de toute évidence trop espacés pour autoriser ne serait-ce que la régénération. Pour que l'usine conserve une taille raisonnable, il convient par ailleurs de limiter non pas la durée totale  $T$  du cycle de retraitement, mais sa durée effective pour chaque élément à extraire, autrement dit limiter les efficacités d'extraction. Le compromis qui se dégage de ces contraintes est donc la combinaison d'un temps total de retraitement plutôt court (quelques dizaines de jours tout au plus) et d'extractions peu efficaces, mais dont la répétition assure une économie de neutrons suffisante.

Ce type de retraitement se rapproche de celui proposé par l'ORNL pour le MSBR, s'en distinguant par une durée de retraitement éventuellement un peu plus longue. Pour déterminer cette durée de retraitement optimale, nous choisissons de ne faire varier pour le retraitement de référence (décroissance hors flux du  $^{233}\text{Pa}$ ) que la durée de retraitement  $T$  (10, 30 et 100 jours). Les efficacités d'extraction restent celles fixées depuis le début, à savoir en particulier 100% pour le protactinium et 20% pour les terres rares (tableau 3.3).

### • Effets globaux du ralentissement du retraitement

Lorsque le temps  $T$  s'allonge, les produits de fission et le protactinium s'accumulent un peu plus et privent le thorium d'une partie de ses captures. Ces modifications apparaissent très tôt comparativement au temps de mise à l'équilibre, c'est à dire dès les premières années suivant le démarrage en  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ . La figure 5.10 juxtapose les inventaires et taux de capture des produits de fission à ceux du  $^{233}\text{Pa}$ , sur les cinq premières années suivant le démarrage et pour les trois valeurs de  $T$  retenues. Une première comparaison rapide des échelles montre que les produits de fission sont par rapport au  $^{233}\text{Pa}$  approximativement 10 fois plus importants en masse mais ne capturent que 2 fois plus. On vérifie que les temps caractéristiques de stabilisation des produits de fission sont bien de l'ordre de  $\frac{1}{\lambda_{PF}}$ . La constante de temps  $\lambda_{PF}$  de la décroissance fictive simulant l'extraction continue des produits de fission peut être approximée par  $\frac{\varepsilon_{TR}}{T}$ , avec  $\varepsilon_{TR}$  efficacité d'extraction des terres rares (20%). Les temps caractéristiques  $\frac{1}{\lambda_{PF}}$  s'étalent ainsi de 50 jours pour  $T = 10$  jours, à 500 jours pour  $T = 100$  jours. De même pour le  $^{233}\text{Pa}$ ,  $\frac{1}{\lambda_{Pa}}$  est compris entre 10 et 100 jours suivant la valeur de  $T$ .

Ces temps courts de stabilisation sont différents des temps de mise à l'équilibre de quelques dizaines d'années, davantage liés à la neutronique globale du système. A l'équilibre, les produits

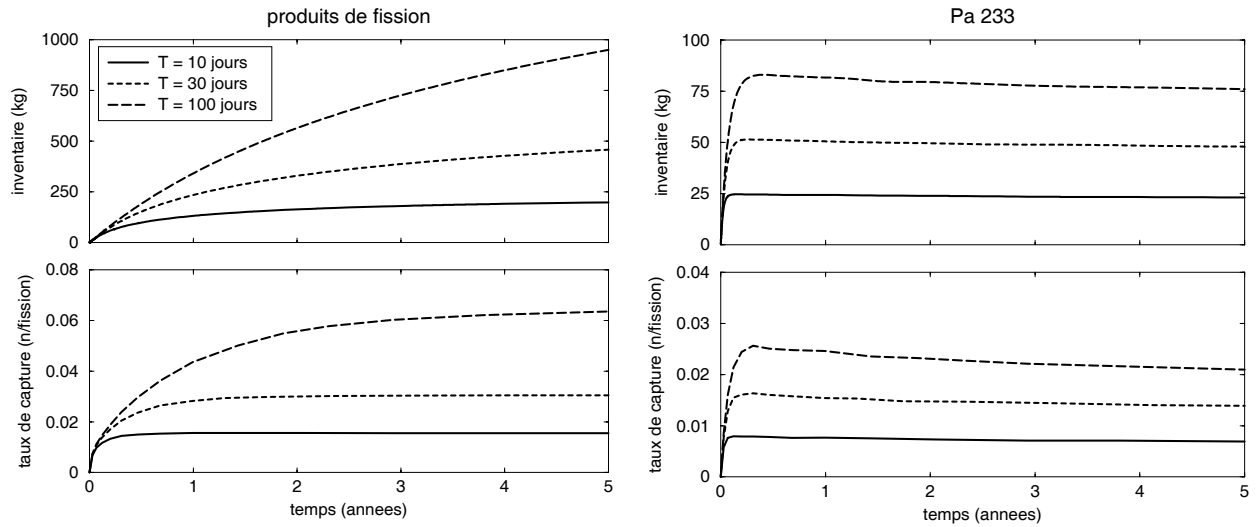


FIG. 5.10 – Evolution au démarrage de l’inventaire et du taux de capture des produits de fission et du  $^{233}\text{Pa}$  pour le même retraitement de référence avec trois durées  $T$  différentes.

de fission se stabilisent ainsi à 210, 610 et 1900 kg pour une durée de retraitement  $T$  de 10, 30 et 100 jours respectivement. Il est intéressant ici de constater que même pour  $T = 100$  jours, la masse des produits de fission dans le sel reste inférieure à la masse moyenne des produits de fission présents dans un cœur de même puissance, à combustible solide retraité tous les 5 ans (soit environ 2.5 t). Ceci constitue un bon critère pour fixer une limite maximale sur  $T$ , au-delà de laquelle le retraitement en ligne perd un peu de son sens, même s’il reste utile. Les inventaires à l’équilibre du  $^{233}\text{Pa}$  (21, 44 et 69 kg) résultent de la compétition entre la demi-vie de désintégration  $\beta^-$  de 27 jours et la durée effective d’extraction de 10, 30 ou 100 jours.

Le système de référence ( $T = 10$  jours) a été dimensionné pour être surgénérateur, avec un taux de régénération de 1.038 à l’équilibre. Ce taux est ramené à 1.009 pour  $T = 30$  jours et chute à 0.958 pour  $T = 100$  jours. Dans la suite, le cas  $T = 100$  jours est écarté et on se concentre sur l’influence de l’augmentation de  $T$  sur un système restant surgénérateur.

L’équilibre obtenu pour  $T = 30$  jours présente par rapport au bilan neutronique de référence les mêmes termes totaux de création (2.499 n/fission) et d’absorption de neutrons. Seules les contributions aux absorptions par fission et capture sont modifiées, et indiquées dans les colonnes “taux” du tableau 5.12. On constate que le taux de capture des produits de fission n’est, comme celui du  $^{233}\text{Pa}$ , que doublé alors que  $T$  est triplé. L’empoisonnement lié à l’excès de produits de fission et de protactinium lorsque  $T$  augmente nécessite un surplus d’ $^{233}\text{U}$ . L’inventaire d’ $^{233}\text{U}$  à l’équilibre est ainsi de 1.31 t pour  $T = 30$  jours (1.25 t pour 10 jours). A partir de la capture sur le  $^{233}\text{Pa}$  et l’ $^{233}\text{U}$  excédentaires, un supplément de 160 kg d’uranium et de 10 kg de transuraniens est formé par rapport à l’équilibre de référence.



réaction	noyau(x)	$T = 10$ jours		$T = 30$ jours	
		taux (n/f)	$\sigma$ (barn)	taux (n/f)	$\sigma$ (barn)
<i>fission</i>	$^{232}\text{Th}$	0.007	0.0095	=	0.0096
	$^{233}\text{U}$	<b>0.878</b>	67.0	<b>0.872</b>	64.6
	autres U	0.094	9.8	0.099	9.5
	trans-U	0.021	15.6	0.022	15.1
$(n, \gamma)$	Li + Be + F	0.031	0.0022	0.027	0.0021
	PF	0.015	3.19	0.029	2.18
	$^{232}\text{Th}$	<b>1.030</b>	1.50	<b>1.002</b>	1.48
	$^{231}\text{Pa}$	0.001	80.3	=	78.2
	$^{233}\text{Pa}$	<b>0.006</b>	26.3	<b>0.012</b>	25.7
	$^{233}\text{U}$	<b>0.109</b>	8.32	=	8.08
	autres U	0.158	16.5	0.166	15.9
	trans-U	0.062	47.4	0.066	45.8

TAB. 5.12 – Consommations de neutrons (n/fission) et sections efficaces moyennes  $\sigma$  (barn) des réactions de fission et de capture à l'équilibre pour  $T = 10$  et 30 jours.

L'examen des sections efficaces moyennes montre un léger durcissement du spectre lorsque  $T$  augmente, dû à une capture renforcée des produits de fission et du protactinium dans le domaine thermique. La section efficace moyenne de capture des produits de fission passe ainsi de 2.4 à 1.7 barn. Cet effet explique que le facteur sur le taux de capture des produits de fission soit limité à 2 alors que leur inventaire est multiplié par 3. On remarque alors que le taux de capture des produits de fission (0.029 n/fission) équivaut celui des composantes légères du sel (lithium, béryllium et fluor) qui a légèrement diminué (de 0.031 à 0.027 n/fission).

#### • Analyse élément par élément des contributions des produits de fission

Dans l'optique de préciser les priorités au sein des éléments à extraire, il s'agit ici de comparer le détail des captures obtenu pour  $T = 30$  jours à celui de référence, déjà commenté au chapitre précédent. Contrairement à la figure 4.24 qui montrait l'influence des efficacités sur la répartition des taux de capture, la figure 5.11 montre ici la seule influence du passage de  $T = 10$  jours à  $T = 30$  jours. Le profil général n'est pas modifié, les terres rares dominant toujours largement en dépit de leur extraction préférentielle. Le tiercé gagnant dans l'ordre est inchangé: samarium ( $_{62}\text{Sm}$ ), néodyme ( $_{60}\text{Nd}$ ) et prométhium ( $_{61}\text{Pm}$ ).

On constate toutefois que l'augmentation relative du taux de capture est fortement dépendante de l'élément considéré, ce qui s'explique par le durcissement du spectre déjà évoqué qui ne joue pas de la même manière d'un élément à l'autre. Pour quantifier cela, on calcule pour chaque élément le rapport du taux de capture pour  $T = 30$  jours sur celui pour  $T = 10$  jours, et

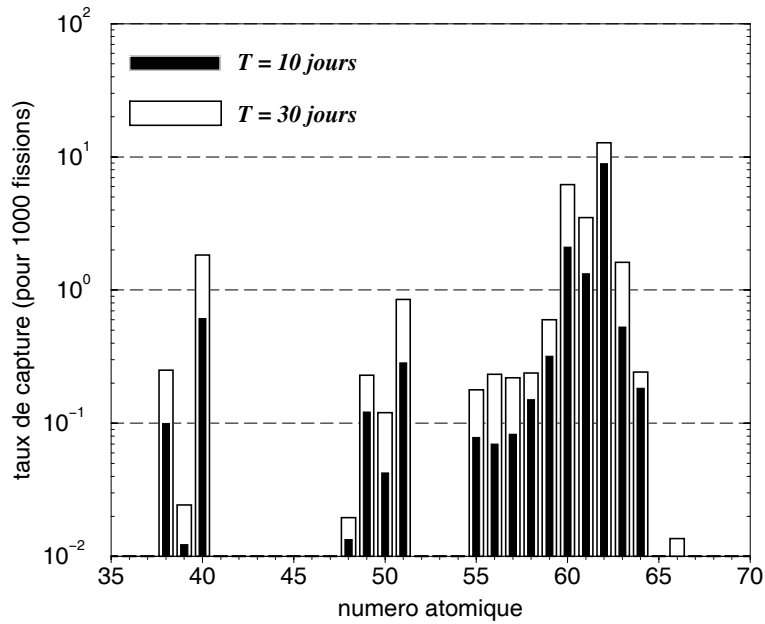


FIG. 5.11 – *Détail des taux de capture dans les produits de fission pour deux retraitements ne différant que par la valeur de leur durée de retraitement  $T$ .*

on le compare à la valeur moyennée sur l'ensemble des produits de fission ( $0.029/0.015 \simeq 1.9$ ). La valeur maximale de ce rapport (3.3) est obtenue pour le barium ( ${}_{56}\text{Ba}$ ), et la valeur minimale (1.3) pour le gadolinium ( ${}_{64}\text{Gd}$ ). On retrouve cette dispersion de part et d'autre de la valeur moyenne de 1.9 du rapport chez les deux éléments les plus absorbants. Le samarium capture en effet seulement 1.4 fois plus pour  $T = 30$  jours que pour  $T = 10$  jours, tandis que le taux de capture est 2.9 fois plus élevé pour le néodyme. Ainsi, lorsque  $T$  passe de 10 à 30 jours, la contribution du samarium diminue (de 59% à 44% des captures dans les produits de fission) au profit du néodyme (de 14% à 21%). Le  ${}^{149}\text{Sm}$ , isotope majoritairement absorbant du samarium, passe dans ce cas de 43% à 26% des captures dans les produits de fission. Son alter ego pour le néodyme est le  ${}^{143}\text{Nd}$ , dont la contribution augmente de 9% à 16%.

## b - Suppression du stockage temporaire du protactinium extrait

Le stockage temporaire du protactinium afin de le laisser décroître hors flux est un point important du retraitement du projet MSBR mais n'est pas pour autant obligatoire. Même si les quantités stockées restent faibles, ce procédé peut être jugé proliférant et il convient d'étudier dans quelle mesure on peut s'en passer. Il suffit par exemple de réinjecter le protactinium avec les autres actinides, prélevés du sel en même temps par extraction réductrice. A vitesse de retraitement et efficacités d'extraction identiques, l'économie de neutrons se dégrade du fait du taux de capture plus important du  ${}^{233}\text{Pa}$  et du surplus de transuraniens qui en résulte.

### • Modification de l'équilibre

Une simulation du système de référence est effectuée du démarrage à l'équilibre, avec pour seule différence la réinjection, dans les 10 jours du cycle de retraitement, du protactinium extrait avec les autres actinides. A l'équilibre, on constate d'abord que l'inventaire de  $^{233}\text{Pa}$  est multiplié par 5 environ (97 kg au lieu de 21). Cet excès de  $^{233}\text{Pa}$  nécessite tout au long de la mise à l'équilibre un apport supplémentaire d' $^{233}\text{U}$ , pour un inventaire à l'équilibre de 1.33 t. A partir du  $^{233}\text{Pa}$  et de l' $^{233}\text{U}$ , les inventaires se stabilisent à des niveaux légèrement supérieurs qu'avec le stockage temporaire du protactinium (figure 5.12).

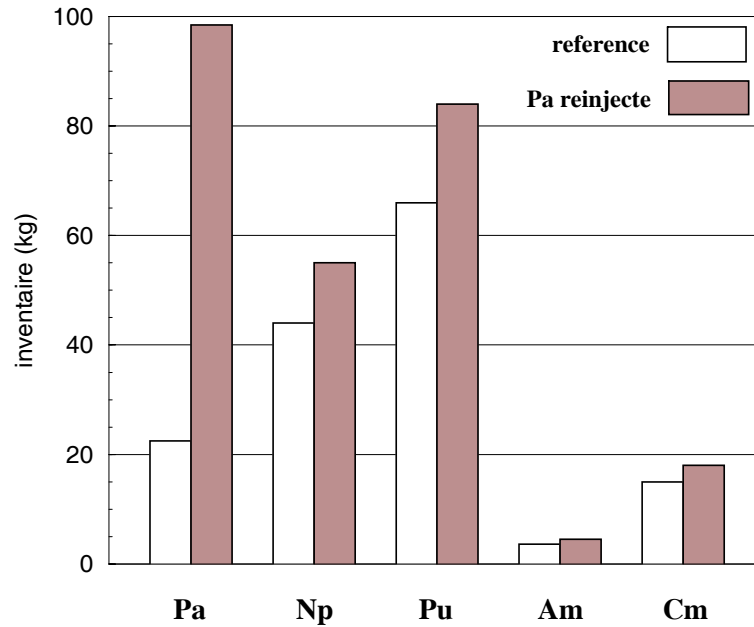


FIG. 5.12 – Comparaison des inventaires par élément à l'équilibre du système de référence et de sa variante avec réinjection du protactinium extrait.

On note ainsi 680 kg d' $^{234}\text{U}$  (au lieu de 530), 200 kg d' $^{235}\text{U}$  (au lieu de 160), 270 kg d' $^{236}\text{U}$  (au lieu de 210) et 160 kg de transuraniens (au lieu de 130). Pour avoir une idée plus précise des voies de formation privilégiées des transuraniens, il suffit d'examiner la modification apportée à la répartition des taux de capture à l'équilibre. Le taux de capture total est le même que dans le cas de référence (1.412 neutrons/fission) et seules sont modifiées en proportion les contributions aux réactions de fission et de capture, comme le montre le tableau 5.13.

Le taux de capture du  $^{233}\text{Pa}$  est multiplié par 4, mais la perte supplémentaire de neutrons dans les isotopes de l'uranium autres que l' $^{233}\text{U}$  est légèrement supérieure. Le taux de capture inchangé de l' $^{233}\text{U}$  montre bien que c'est le  $^{233}\text{Pa}$  qui est responsable du supplément de transuraniens, les captures supplémentaires du  $^{233}\text{Pa}$  se répercutant intégralement sur les captures de l' $^{234}\text{U}$ . La contribution à la production de transuraniens du  $^{233}\text{Pa}$  par rapport à l' $^{233}\text{U}$  passe ainsi de 5% (retraitement de référence) à 19%. Les sections efficaces moyennes du tableau 5.13

réaction	noyau(x)	référence		réinjection du Pa	
		taux (n/f)	$\sigma$ (barn)	taux (n/f)	$\sigma$ (barn)
<i>fission</i>	$^{232}\text{Th}$	0.007	0.0095	=	0.0097
	$^{233}\text{U}$	<b>0.878</b>	67.0	<b>0.861</b>	63.4
	autres U	0.094	9.8	0.109	9.3
	trans-U	0.021	15.6	0.023	14.7
$(n, \gamma)$	Li + Be + F	0.031	0.0022	0.028	0.0021
	PF	0.015	3.19	=	3.49
	$^{232}\text{Th}$	<b>1.030</b>	1.50	<b>0.982</b>	1.47
	$^{231}\text{Pa}$	0.001	80.3	=	76.8
	$^{233}\text{Pa}$	<b>0.006</b>	26.3	<b>0.025</b>	25.2
	$^{233}\text{U}$	<b>0.109</b>	8.32	<b>0.108</b>	7.93
	autres U	0.158	16.5	0.181	15.4
	trans-U	0.062	47.4	0.072	44.9

TAB. 5.13 – Consommations de neutrons ( $n/fission$ ) et sections efficaces moyennes  $\sigma$  (barn) des réactions de fission et de capture à l'équilibre du RSF  $(\text{Th}/\text{U})F_4$  sans décroissance hors flux du  $^{233}\text{Pa}$  extrait, comparées à celles du cas de référence.

illustrent le léger durcissement du spectre qui s'explique entre autres par une forte absorption du  $^{233}\text{Pa}$  dans le domaine thermique.

#### • Avantages pratiques de ce mode de fonctionnement

Du fait d'un taux de capture dans le thorium plus faible, le système est dans ce cas sous-générateur et nécessite un apport extérieur d' $^{233}\text{U}$  dont le débit varie au cours de la mise à l'équilibre. le taux de régénération à l'équilibre est de  $0.988 \pm 0.001$ , soit une consommation nette d'environ 11 kg d' $^{233}\text{U}$  par an (au lieu d'une production de 36 kg/an). Cette consommation est naturellement plus faible en cours de mise à l'équilibre, et ne cumule par exemple que 65 kg d' $^{233}\text{U}$  après 25 ans et 250 kg après 50 ans. Ce fonctionnement peut donc être considéré en pratique, s'il est démarré en  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ , comme régénérateur. Il permet en outre de simplifier l'usine de retraitement en la soulageant du dispositif de stockage temporaire du protactinium, ce qui est également un bon point en termes de non-prolifération.

#### • Evaluation de l'effet protactinium

Une difficulté que peut toutefois poser la libre accumulation du  $^{233}\text{Pa}$  en cœur est qu'en cas d'arrêt prolongé, ce  $^{233}\text{Pa}$  se désintègre en  $^{233}\text{U}$  et rend le redémarrage plus délicat à gérer en terme de réactivité. Pour évaluer cet "effet protactinium", on calcule la réactivité apportée par la décroissance de la moitié du  $^{233}\text{Pa}$ , associée donc à un arrêt de 27 jours. La réactivité

supplémentaire apportée est de 1600 pcm (soit 2.5 pcm/h), au lieu de 500 pcm dans le cas de référence. Avec la barre de contrôle centrale basse (le graphite de l'hexagone central est remplacé par du B<sub>4</sub>C), cette rampe de réactivité due au <sup>233</sup>Pa est ramenée à 1000 pcm en 27 jours. Cet effet de l'ordre du pcm/h reste donc suffisamment faible pour être facilement géré par un ajustement de la composition du sel à l'arrêt ou par le retraitement en ligne en cours de fonctionnement, comme nous le verrons plus loin dans ce chapitre.

### **c - Extraction continue du neptunium**

Il paraît intéressant à plusieurs titres d'extraire en ligne le neptunium au fur et à mesure de sa formation. Le neptunium est en effet le point de passage unique vers les transuraniens, et son extraction du sel peut permettre, si elle est suffisamment rapide, de limiter leur accumulation. Le gain serait double, portant à la fois sur l'économie de neutrons et la radiotoxicité des rejets et de l'inventaire final. Une telle extraction peut se faire au moment de la fluoration de l'uranium, qui s'accompagne également de celle du neptunium et de l'iode. Dans le retraitement de référence, ces trois éléments ne sont pas séparés, et sont réinjectés ensemble dans le circuit de sel. Il est toutefois possible à la suite de cette étape de fluoration de séparer le neptunium de l'uranium par absorption sélective sur fluorure solide, puis de le stocker en dehors du sel. Une méthode efficace à plus de 99% consisterait à absorber le NpF<sub>6</sub>, avec un peu d'UF<sub>6</sub>, sur du NaF à 200 °C à la sortie de la fluoration. En élevant la température de 200 à 400 °C, l'UF<sub>6</sub> est ensuite désorbé, laissant ainsi le NpF<sub>6</sub> seul sur NaF [60].

#### **• Effet progressif sur le régime transitoire**

Nous avons simulé ce que serait le retraitement dans le cas idéal d'une extraction du neptunium à 100% en 10 jours, seule modification au système de référence. La figure 5.13 montre que l'inventaire de neptunium se stabilise alors en quelques dizaines d'années à 0.5 kg. Le taux d'extraction du neptunium se stabilise à 19.7 kg/an, valeur faible en comparaison des 950 kg de produits de fission extraits chaque année. A l'équilibre, il n'y a plus que 1.7 kg de transuraniens dont 0.8 kg de Pu, 0.1 kg d'Am et 0.3 kg de Cm. Autant dire que les transuraniens ne sont plus présents qu'à l'état de traces en comparaison de l'équilibre de référence, comme l'illustre la figure 5.14. En ce qui concerne l'uranium, seuls l'<sup>233</sup>U (1.20 t au lieu de 1.25 t) et l'<sup>234</sup>U (510 kg au lieu de 530 kg) voient leur inventaire modifié.

#### **• Comparaison neutronique de l'équilibre au cas de référence**

La disparition artificielle des transuraniens du sel simplifie le bilan neutronique à l'équilibre (tableau 5.14), directement comparable au bilan de référence pour lequel le neptunium a été réinjecté tout au long de la mise à l'équilibre (tableau 4.14). A la précision de 0.001 neutron/fission près, on vérifie qu'effectivement aucun transuranien ne participe plus au bilan. Par rapport aux

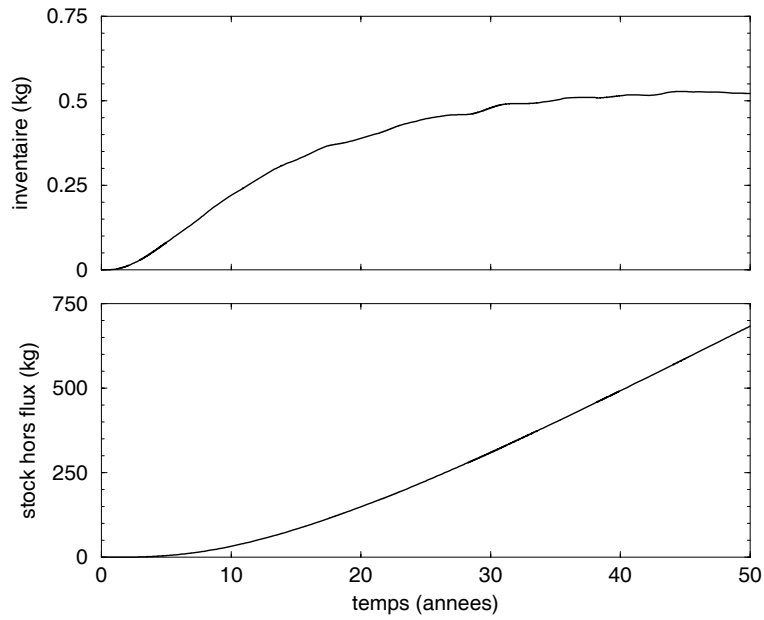


FIG. 5.13 – Inventaire et stock de neptunium en cas d'extraction continue de ce dernier.

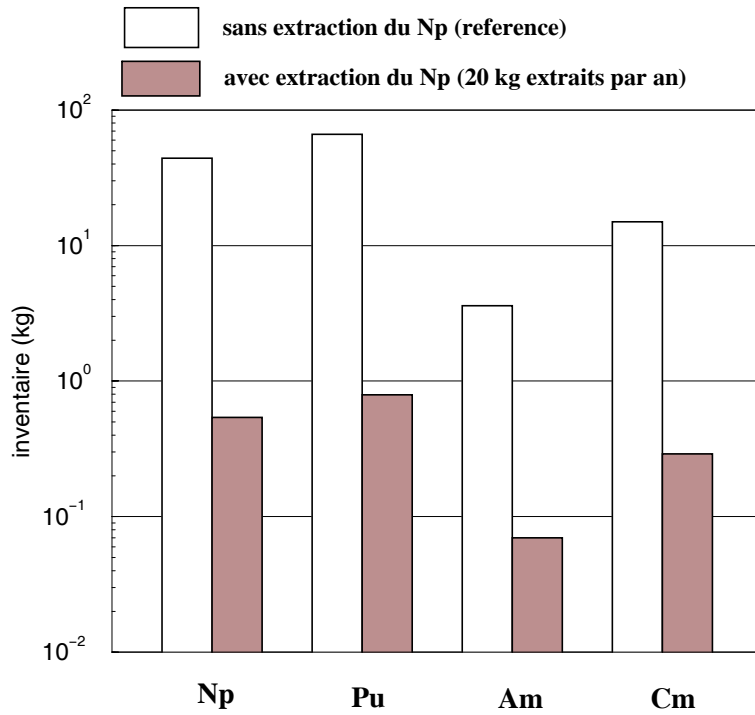


FIG. 5.14 – Influence de l'extraction continue du Np sur les transuraniens à l'équilibre.

études précédentes (allongement de  $T$  et réinjection immédiate du protactinium entre autres), le changement est plus radical et mène ainsi à des termes globaux de production par fission et de consommation par capture différents du bilan de référence.

Réaction	Production	Consommation	
<i>fission</i>	2.489	1.000	<sup>232</sup> Th 0.007 <sup>233</sup> U <b>0.897</b> autres U 0.096
$(n, 2n)$	0.026	0.013	Be + Th
$(n, \gamma)$	-	1.398	<sup>7</sup> Li 0.019 <sup>9</sup> Be 0.001 <sup>19</sup> F 0.013 PF 0.015 <b><sup>232</sup>Th 1.072</b> <sup>231</sup> Pa 0.001 <b><sup>233</sup>Pa 0.006</b> <b><sup>233</sup>U 0.111</b> autres U 0.160
$(n, \alpha)$	-	0.021	Li + Be + F
$(n, p)$	-	0.001	<sup>19</sup> F 0.001
$(n, \gamma)$ graphite	-	0.051	coeur 0.031 réflecteurs 0.020
$(n, \alpha)$ B <sub>4</sub> C ( <sup>10</sup> B)	-	0.031	échangeur 0.030 enceinte 0.001
<i>fuite</i>	-	0.000	-
<i>total</i>	2.515	2.515	-

TAB. 5.14 – Bilan neutronique à l'équilibre du RSF (Th/U)F<sub>4</sub> avec extraction continue du Np.

Les captures des transuraniens dans le cas de référence se reportent aux deux tiers sur le thorium, faisant passer le taux de régénération de 1.038 à 1.058 (production d'<sup>233</sup>U de 56 kg/an), soit un temps de doublement de 20 ans. Le schéma 5.15 illustre le rôle de court-circuit que joue l'extraction du <sup>237</sup>Np. Son taux d'extraction est égal à son taux de capture lorsqu'il est réinjecté, ce qui explique que la chaîne de l'uranium ne soit pratiquement pas modifiée.

#### • Conséquences sur les radiotoxicités induites

Le bilan radiotoxique n'est pas trivial, car l'opération se fait au prix d'un rejet non négligeable de <sup>237</sup>Np, dont la demi-vie est la plus longue de tous les transuraniens mais de facteur de dose

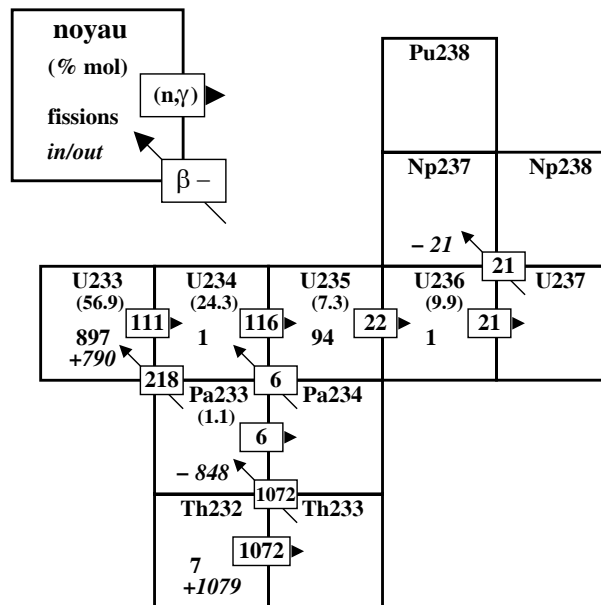


FIG. 5.15 – Représentation  $(N,Z)$  pour 1000 fissions de l'équilibre avec extraction du Np.

comparable. Nous avons calculé précisément l'impact sur la radiotoxicité des rejets à l'équilibre (figure 5.16). On constate une réduction sur les 1000 premières années par rapport aux rejets de référence, due à la disparition du  $^{238}\text{Pu}$ . Mais la multiplication du taux de rejet de neptunium par plus d'un facteur 1000 (de 16 g/an à 20 kg/an) se ressent à partir de 1000 ans, maintenant la radiotoxicité des rejets sensiblement constante jusqu'à plusieurs millions d'années suivant le retraitement. Pour établir une comparaison globale des radiotoxicités induites dans un contexte de production d'énergie à long terme, il faut également tenir compte de l'inventaire final, dont on calcule la radiotoxicité générée 1000 ans après son déchargement (figure 5.17).

Dans les deux cas, la radiotoxicité totale est dominée par la contribution de l'inventaire final, réduite de plus de moitié par rapport au cas de référence. Ce gain est certes appréciable pour la sûreté, mais n'est pas suffisant pour justifier la supériorité de ce mode de fonctionnement en termes de radiotoxicité induite. En outre, le stockage du neptunium, s'il ne semble pas poser de réel problème, reste à étudier plus en détail.

### 5.1.3 Exemples d'utilisation couplée des options étudiées

Nous venons de voir qu'à partir du système de référence, il est possible de modifier l'économie de neutrons selon les besoins, en jouant soit sur la neutronique du cœur, soit sur le retraitement en ligne. Afin de clore cette étude des différentes marges de manœuvre sur l'économie de neutrons offertes par le concept de RSF, nous présentons ici sommairement deux systèmes aux fonctions opposées, qui couplent chacun plusieurs des options que nous venons d'étudier séparément.



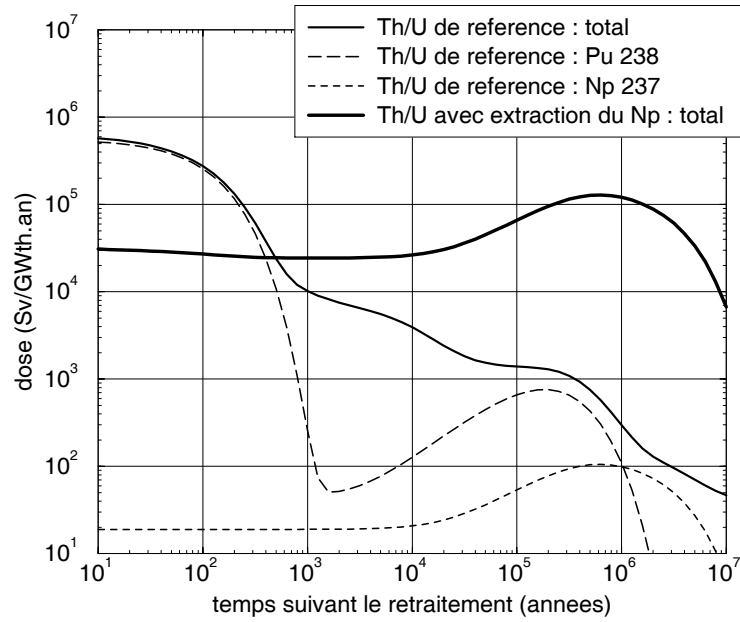


FIG. 5.16 – Radiotoxicité des rejets d'actinides à l'équilibre du cycle  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  de référence, comparé à celui avec extraction du Np.

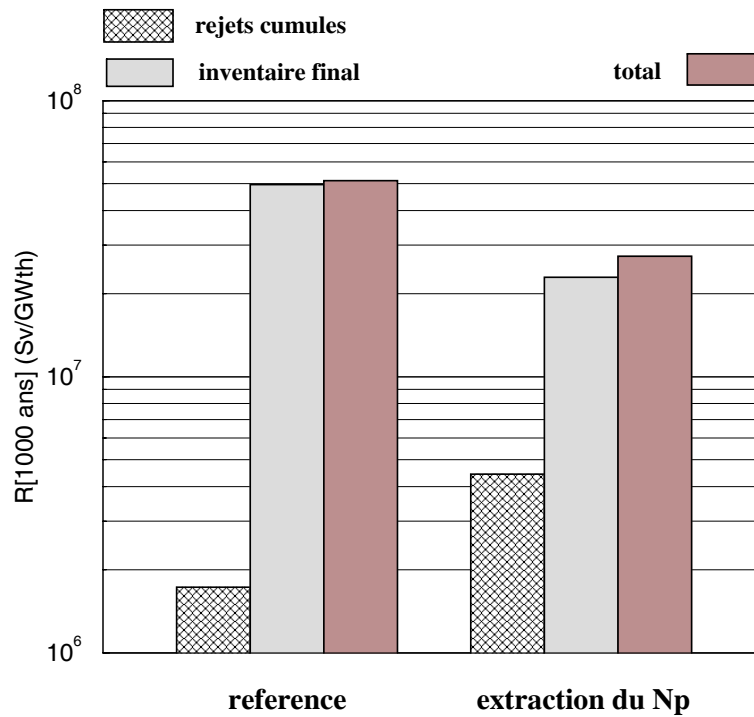


FIG. 5.17 – Radiotoxicités générées par 200 ans de production d'énergie, après 1000 ans de décroissance, pour le RSF (Th/U) $F_4$  de référence et celui avec extraction continue du Np.

## a - Système surgénérateur pour un déploiement rapide

Le premier de ces deux systèmes a pour but de maximiser le taux de régénération, en vue d'un déploiement rapide et direct des RSF thorium. Pour cela, nous partons du système à zone fertile périphérique, doté du retraitement de référence avec stockage provisoire du  $^{233}\text{Pa}$ , pour une durée totale de retraitement  $T$  de 10 jours. Nous ajoutons à ce retraitement l'extraction continue du neptunium, et simulons la mise à l'équilibre de ce système à partir du démarrage avec 1.06 t d' $^{233}\text{U}$ . L'inventaire d'uranium se stabilise à 1.9 t environ, valeur proche de celle du système à zone fertile périphérique. Au contraire, l'inventaire des transuraniens se stabilise à seulement 1.5 kg, soit 0.2 kg de moins que dans le système avec extraction continue de neptunium, et le taux d'extraction du neptunium se stabilise à 17.9 kg/an. Le tableau 5.15 détaille le calcul du taux de régénération à l'équilibre de ce système, et le compare aux deux systèmes à chacun desquels il emprunte une option.

	zone fertile périphérique	extraction du neptunium	couplage des deux options
taux de capture du $^{232}\text{Th}$	1.044	1.072	1.084
taux de capture du $^{233}\text{Pa}$	0.005	0.006	0.006
taux d'absorption de l' $^{233}\text{U}$	0.989	1.008	1.007
taux de régénération	1.051	1.058	1.071

TAB. 5.15 – Calcul du taux de régénération à l'équilibre du système couplant zone fertile périphérique et extraction continue du neptunium, à partir des taux de réaction du  $^{232}\text{Th}$ , du  $^{233}\text{Pa}$  et de l' $^{233}\text{U}$  exprimés en  $n/\text{fission}$ .

On rappelle que le taux de régénération s'obtient en divisant le taux de production total d' $^{233}\text{U}$ , égal au taux de capture du  $^{232}\text{Th}$  diminué du taux de capture du  $^{233}\text{Pa}$ , par le taux d'absorption de l' $^{233}\text{U}$ . On remarque que les écarts des taux de régénération à la valeur de référence (1.038), respectivement  $1.051 - 1.038 = 0.013$  pour la zone fertile périphérique, et  $1.058 - 1.038 = 0.020$  pour l'extraction du neptunium, s'ajoutent pour donner à  $\pm 0.001$  près l'écart du système complet par rapport à la valeur de référence ( $1.071 - 1.038 = 0.033 = 0.013 + 0.020$ ). Cela s'explique par la prédominance de la réaction de capture du  $^{232}\text{Th}$  dans le bilan neutronique, qui profite majoritairement des neutrons supplémentaires libérés.

On retrouve cette additivité des options pour les productions annuelles d' $^{233}\text{U}$ , données dans le tableau 5.16. En effet, la production d' $^{233}\text{U}$  du système de référence à l'équilibre est de 36 kg/an, soit des écarts de  $48 - 36 = 12$  kg/an (zone fertile périphérique),  $56 - 36 = 20$  kg/an (extraction du neptunium), et  $68 - 36 = 32$  kg/an (couplage), soit la somme des écarts à  $\pm 1$  kg/an près. Par rapport au temps de doublement à l'équilibre de référence (31 ans), le temps de doublement du système optimisé est ainsi presque réduit de moitié.

	zone fertile périphérique	extraction du neptunium	couplage des deux options
inventaire initial d' $^{233}\text{U}$ (t)	1.09	1.12	1.09
production d' $^{233}\text{U}$ (kg/an)	48	56	68
temps de doublement (ans)	23	20	16

TAB. 5.16 – Calcul du temps de doublement à l'équilibre du système couplant zone fertile périphérique et extraction continue du neptunium, à partir de la production annuelle d' $^{233}\text{U}$ .

### b - Système régénérateur pour une minimisation des rejets

A l'inverse du précédent système permettant de minimiser le temps de doublement, on peut préférer un réacteur régénérateur, simplifié, déléguant éventuellement si nécessaire la production d' $^{233}\text{U}$  à un autre système. Pour cela, nous sommes partis du système de référence, sans stockage provisoire du protactinium (immédiatement réinjecté avec les autres actinides extraits). La durée totale du retraitement est allongée de 10 à 30 jours, mais l'extraction du neptunium est conservée car intéressante du point de vue des radiotoxicités générées. L'inventaire d'uranium dans ce système se stabilise à environ 2.4 t (dont 1.3 t d' $^{233}\text{U}$ ). Nous retrouvons le léger excès par rapport au cas de référence dû à l'allongement de la durée du retraitement. Du fait de l'extraction du neptunium, l'inventaire des transuraniens reste très faible, se stabilisant à 5.6 kg, pour un taux d'extraction du neptunium de 22.6 kg/an. Le taux de régénération décroît lentement, restant légèrement supérieur à 1 tout au long de la mise à l'équilibre, et se stabilise à 1.003 (taux de capture du  $^{232}\text{Th}$  de 1.025 n/fission, taux de capture du  $^{233}\text{Pa}$  de 0.027 n/fission, et taux d'absorption de l' $^{233}\text{U}$  de 0.995 n/fission). L'extraction du neptunium présente ici l'avantage de maintenir le système régénérateur malgré l'allongement de la durée de son retraitement.

## 5.2 Transmutation de produits de fission à vie longue

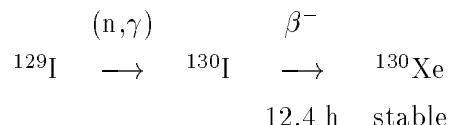
L'objectif est ici d'employer les neutrons disponibles pour la surgénération dans le cas de référence à la transmutation de produits de fission à vie longue. Nous allons envisager la transmutation à hauteur de leur production par le RSF des deux principaux produits de fission à vie longue; l' $^{129}\text{I}$  (demi-vie de  $1.6 \cdot 10^7$  ans) et le  $^{99}\text{Tc}$  (demi-vie de  $2.1 \cdot 10^5$  ans). Le spectre épithermique du RSF s'accompagne de sections efficaces de capture plus importantes, ce qui permet a priori de minimiser le séjour d'un noyau dans le cœur avant sa transmutation. Il est intéressant d'introduire la notion de demi-vie effective, résultant de la constante de décroissance  $\lambda_{nat}$  et de la section efficace de capture  $\sigma_{(n,\gamma)}$  :

$$T_{eff} = \frac{\ln 2}{\lambda_{nat} + \sigma_{(n,\gamma)} \phi} \quad (5.1)$$

## 5.2.1 Transmutation simultanée de l'iode et du technétium

### a - Recyclage de l'iode dans le sel

Dans le cas de référence, l'iode, soluble dans le sel, est extrait avec la même efficacité que les terres rares. Une partie est également extraite du sel à l'étape de fluoration, mais est aussitôt réinjectée dans le sel. A l'équilibre, le sel ne contient ainsi que 0.45 moles d'iode, parmi lesquelles environ 34% d' $^{129}\text{I}$ . Le reste est composé de 2% d' $^{127}\text{I}$  (stable), et de 64% d' $^{131}\text{I}$  de demi-vie très courte (8 jours). Afin de transmuter l' $^{129}\text{I}$ , nous avons simulé la réinjection de tout l'iode extraite jusqu'à atteindre l'équilibre. Le taux de production total d' $^{129}\text{I}$  est alors exactement compensé par sa transmutation, selon le schéma suivant :



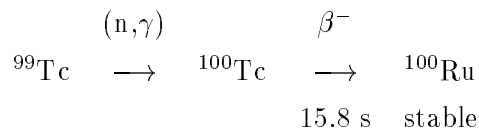
Cet équilibre impose un inventaire d'iode dans le sel bien plus important que dans le cas de référence, où l'iode n'est pas réinjecté. L' $^{129}\text{I}$  est alors l'isotope majoritaire de l'iode dans le sel (tableau 5.17), et est transmuté au taux de sa production sous un flux moyen de  $3.1 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ . De 1.038 à l'équilibre de référence, le taux de régénération est ramené à 1.007, soit une production nette de 7.5 kg/an d' $^{233}\text{U}$ .

	inventaire (kg)	$\sigma^{(n,\gamma)}$ (barn)	taux (kg/an)
$^{127}\text{I}$	94	6.4	5.9
$^{129}\text{I}$	290	3.6	10.2

TAB. 5.17 – *Caractéristiques des isotopes de l'iode intervenant à l'équilibre de sa transmutation.*

### b - Insertion de technétium dans le graphite

A la transmutation complète de l' $^{129}\text{I}$ , on souhaite ajouter celle du  $^{99}\text{Tc}$ , selon :



Le technétium est supposé s'échapper en moins d'une minute sous forme de poussières métalliques avec le bullage d'hélium. Une solution envisageable pour le transmuter est d'agglomérer ces poussières dans du graphite reconstitué, qu'on place ensuite dans le graphite pur du cœur. Il s'agit d'utiliser au mieux non seulement la petite fraction restante de neutrons disponibles pour la surgénération, laissée par l'iode du sel, mais aussi celle des neutrons quittant le cœur et étant capturés dans le réflecteur radial et les protections de  $\text{B}_4\text{C}$ . Une configuration adaptée consiste

ainsi à répartir le graphite contenant le technétium dans les hexagones en périphérie du cœur, sous forme de cylindres de 2.5 cm de diamètre (figure 5.18).

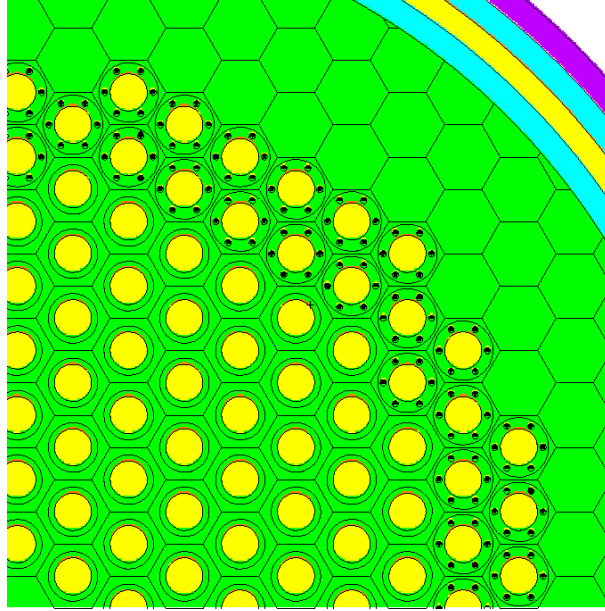


FIG. 5.18 – Coupe horizontale du cœur aménagé pour la transmutation du Tc.

Une proportion molaire de technétium dans le graphite de ces cylindres de 2% permet d'obtenir un taux de transmutation du  $^{99}\text{Tc}$  de 18 kg/an égal à sa production, et de le maintenir relativement constant sur une période de 5 ans. On procède ainsi par cycles de 5 ans, au terme desquels les cylindres sont recyclés et remplacés par de nouveaux cylindres ne contenant que 2% de  $^{99}\text{Tc}$  dans du graphite. Sur un tel cycle de 5 ans, l'inventaire total de  $^{99}\text{Tc}$  passe de 400 à 310 kg. La section efficace moyenne de capture du  $^{99}\text{Tc}$  est de 7.2 barn, et le flux moyen dans les cylindres est de  $2.2 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ , ce qui donne d'après la formule 5.1 une demi-vie effective du  $^{99}\text{Tc}$  de 20 ans. L'iode est toujours réinjectée et transmutée à hauteur de sa production, et le taux de régénération est d'environ 0.99. La transmutation de l' $^{129}\text{I}$  dans le sel est inchangée, avec toujours un flux moyen de  $3.1 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$  et une section efficace moyenne de capture de 3.6 barn, ce qui donne une demi-vie effective de l' $^{129}\text{I}$  de 28 ans. Ces demi-vies effectives peuvent être comparées à celles obtenues dans le réflecteur en nickel d'un réacteur rapide, avec la même contrainte d'une transmutation du  $^{99}\text{Tc}$  et de l' $^{129}\text{I}$  se faisant au taux de leur production, à savoir 37 ans pour le  $^{99}\text{Tc}$  et 70 ans pour l' $^{129}\text{I}$  [61].

### c - Bilan de la transmutation

La figure 5.19 montre la réduction de la radiotoxicité générée par les produits de fission à vie longue, du fait de la transmutation totale de l' $^{129}\text{I}$  et du  $^{99}\text{Tc}$ . A partir de 1000 ans, la radiotoxicité est ramenée à celle du thorium consommé pour la même production d'énergie.

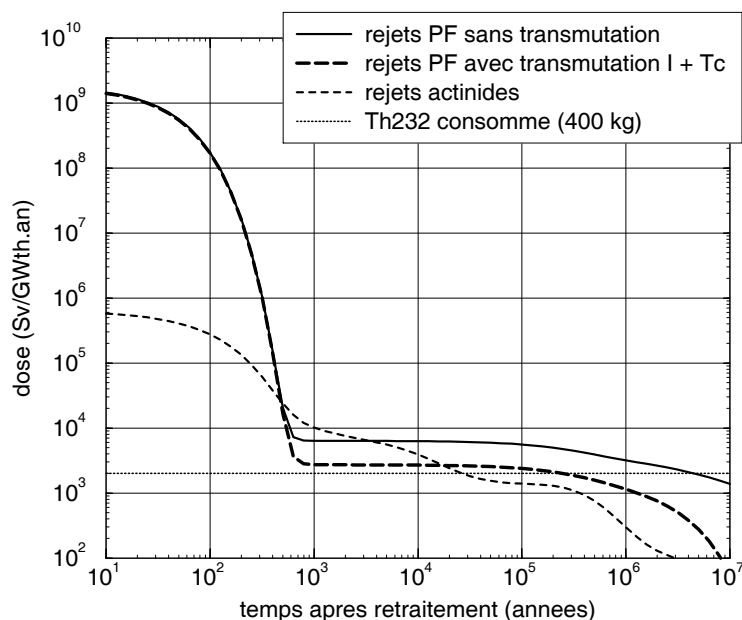


FIG. 5.19 – Radiotoxicité des PFVL rejetés avec et sans transmutation, comparée à celle des rejets d'actinides dans le cas de référence et à celle du  $^{232}\text{Th}$  consommé.

description du système	coef. de dilatation ( $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}\cdot^{\circ}\text{C}^{-1}$ )	coefficients de température ( $\text{pcm}\cdot^{\circ}\text{C}^{-1}$ )				
		Doppler	densité	sel	graphite	total
FLiBe thorium référence équilibre	$-6.7 \cdot 10^{-4}$	-3.3	+2.6	<b>-1.0</b>	+1.6	<b>+0.7</b>
FLiBe thorium I recyclée + Tc t = 0	$-6.7 \cdot 10^{-4}$	-3.9	+2.2	<b>-1.4</b>	+1.0	<b>0.0</b>
FLiNa thorium I recyclée + Tc t = 0	$-5.0 \cdot 10^{-4}$		+1.9	<b>-1.7</b>		<b>-0.7</b>
	$-1.0 \cdot 10^{-4}$	-3.7	+0.5	<b>-3.4</b>	+1.4	<b>-2.1</b>

TAB. 5.18 – Coefficients de température de RSF transmutant leur production d'iode dans le sel et de technétium dans le graphite, comparés à l'équilibre de référence.

Le tableau 5.18 fournit les coefficients de température du système à l'équilibre de transmutation de l'iode et au début d'un cycle de transmutation du  $^{99}\text{Tc}$ . Le sel utilisé pour les résultats précédents est le sel FLiBe de référence, mais les mêmes taux de transmutation ont été obtenus avec le sel FLiNa décrit plus haut. Dans les deux cas, le coefficient Doppler est plus important en valeur absolue qu'à l'équilibre de référence du fait de l'élargissement des résonances de capture de l'iode dans le sel. Le même effet dans le technétium explique la diminution du coefficient du graphite. Le coefficient global de température est donc plus faible que sans transmutation; nul avec le sel FLiBe, et négatif avec le FLiNa du fait d'un coefficient de dilatation plus élevé, encadré entre deux valeurs extrêmes supposées.

### 5.2.2 Remplacement du technétium par du thorium dans le graphite

Toujours en transmutant l'iode, il est possible de remplacer le  $^{99}\text{Tc}$  par du  $^{232}\text{Th}$ . Une concentration molaire de 6% de  $^{232}\text{Th}$  dans le graphite des cylindres permet d'obtenir un taux de régénération du sel de 1.00 environ. Sur quelques années de fonctionnement, ce taux reste constant, ce qui permet d'affirmer que dans ce cas, la surgénération ne se fait plus que dans les cylindres placés en périphérie du cœur (figure 5.18).

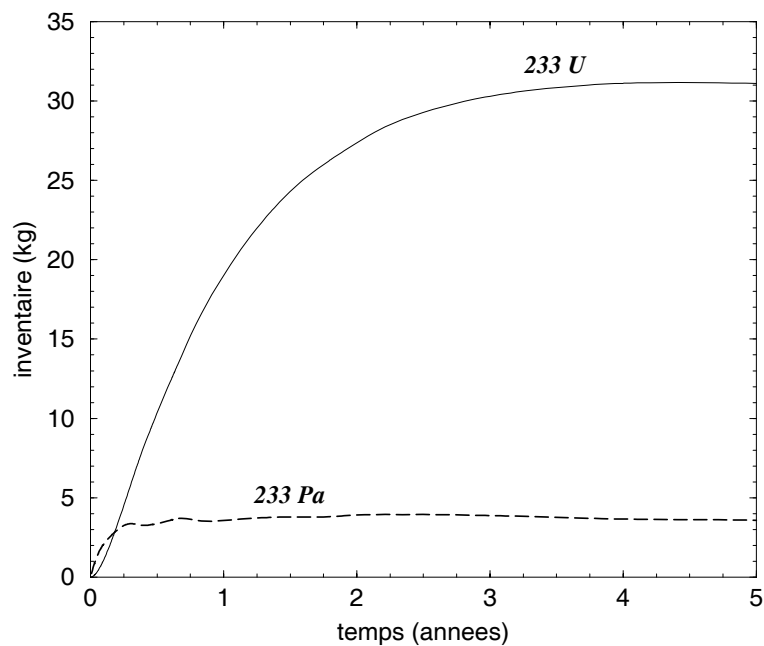


FIG. 5.20 – Evolution des quantités de  $^{233}\text{Pa}$  et  $^{233}\text{U}$  contenues dans les cylindres de graphite.

La figure 5.20 montre comment s'accumulent le  $^{233}\text{Pa}$  et l' $^{233}\text{U}$  formés dans l'ensemble des cylindres. Par rapport au cas où seule l'iode est transmutée, surgénérant dans le sel 7.5 kg/an d' $^{233}\text{U}$ , la surgénération d' $^{233}\text{U}$  dans le graphite reste compétitive pendant 4 ans suivant le démarrage. En effet, le taux de production d' $^{233}\text{U}$  est de 19 kg/an la première année, et diminue

progressivement jusqu'à atteindre 7.8 kg/an sur les quatre premières années. Cela impose un fonctionnement par cycles, comparable à celui proposé pour la transmutation du  $^{99}\text{Tc}$ .

noyau	t = 0			t = 5 ans		
	$\sigma^{cap}$ (barn)	$\sigma^{fis}$ (barn)	inventaire (kg)	$\sigma^{cap}$ (barn)	$\sigma^{fis}$ (barn)	inventaire (kg)
$^{232}\text{Th}$	2.35	0.005	1550	2.26	0.007	1370
$^{231}\text{Pa}$	109	0.11	0	104	0.14	0.014
$^{233}\text{Pa}$	36	0.032	0	32	0.046	3.6
$^{232}\text{U}$	20	26	0	18	23	0.030
$^{233}\text{U}$	12.4	102	0	10.7	86	31.1
$^{234}\text{U}$	37	0.21	0	29	0.24	11.4
$^{235}\text{U}$	19	85	0	16	70	3.3
$^{236}\text{U}$	13	0.23	0	11	0.21	1.1
$^{237}\text{Np}$	62	0.14	0	57	0.19	0.12
PF	33	-	0	4.0	-	130

TAB. 5.19 – *Sections efficaces moyennes (barn) de capture et de fission et inventaires (kg) des noyaux présents à t = 0 et à t = 5 ans dans les cylindres de graphite en périphérie du cœur.*

Le tableau 5.19 donne les caractéristiques des principaux noyaux présents dans les cylindres de graphite enrichi en thorium. On remarque que sur 5 ans, la production de transuraniens se limite à environ 0.1 kg de neptunium. Enfin, un effet similaire à celui produit par le  $^{99}\text{Tc}$  sur les coefficients de température au début d'un cycle est observé. Le coefficient "sel" est ainsi de -1.2 pcm/K, tandis que le coefficient du graphite est de 1.2 pcm/K. Comme dans le cas de la transmutation du  $^{99}\text{Tc}$ , avec le même sel FLiBe, le coefficient global de température est nul.

## 5.3 Apports du retraitement en ligne à la sûreté

### 5.3.1 Contrôle de la réactivité

#### a - Situations progressives d'arrêt du retraitement

- **Définition d'une situation d'arrêt minimal**

Le bon fonctionnement d'un REP repose sur une importante réserve de réactivité, gênante du point de vue de la sûreté, reconstituée après chaque déchargement. L'ajout d'acide borique dans l'eau du circuit primaire permet de compenser cet excédent initial de réactivité, à raison d'environ -10 pcm par ppm supplémentaire [46]. Une perte de réactivité de l'ordre de 10 000 pcm/an (soit environ 1 pcm/h) peut être ainsi gérée.



Dans un RSF, le retraitement en ligne permet de minimiser l'inventaire fissile en le maintenant en permanence au niveau strictement nécessaire pour stabiliser la réactivité. Ce niveau est d'autant plus bas que le bullage continu d'hélium entraîne rapidement hors du cœur les produits de fission gazeux et en particulier le xénon. Outre un ajustement à l'échelle de l'année, les extractions et réinjections rapides du retraitement continu semblent à première vue capables de modifier la réactivité à plus court terme. Pour vérifier cela, on se propose d'étudier pour deux valeurs de la durée de retraitement  $T$  (10 jours et 100 jours) la réaction du système à différentes modifications instantanées du retraitement (figure 5.21).

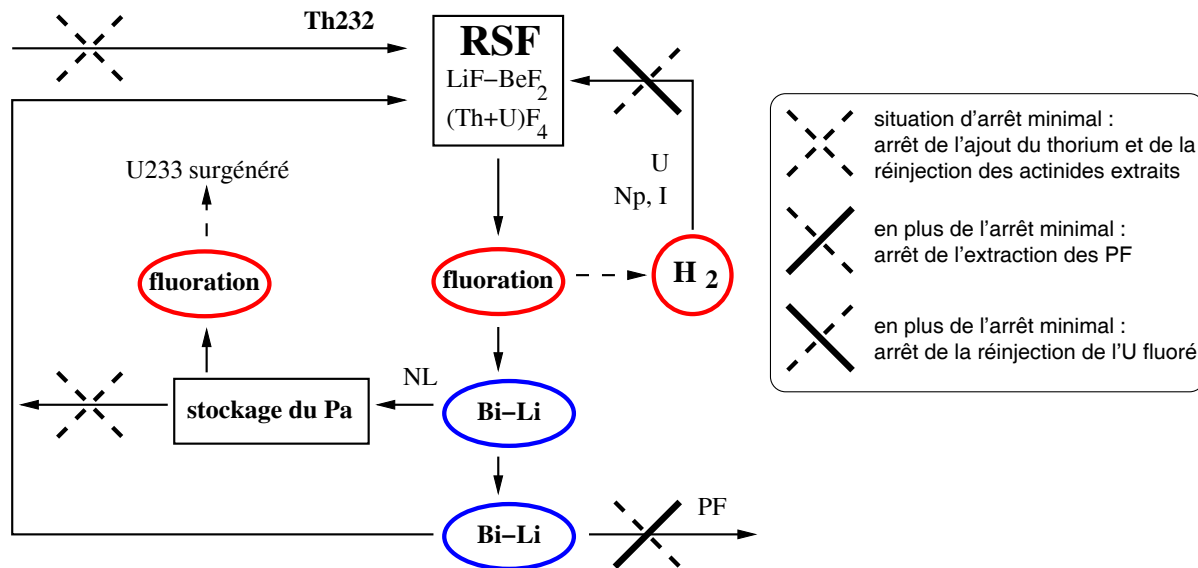


FIG. 5.21 – Localisation des principales situations d'arrêt du retraitement étudiées.

Les deux principales études concernent l'extraction des lanthanides et la réinjection des éléments extraits lors de la première phase de fluoration (l'uranium, le neptunium et l'iode qui n'a pas été extraite avec les lanthanides). Elles se définissent par rapport à une "situation d'arrêt minimal", point de départ commun qui consiste à ne plus alimenter le système en thorium et à ne plus y réinjecter le protactinium et les actinides qui l'accompagnent ( $^{233}\text{U}$  produit par désintégration du  $^{233}\text{Pa}$  et transuraniens extraits en même temps que le protactinium). A cela s'ajoute également l'arrêt du réajustement des concentrations de fluor, lithium et béryllium dans le sel. Toutes les autres opérations sont maintenues, y compris le bullage d'hélium.

Cette modification de base du retraitement est simulée à partir de l'équilibre du RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  de référence, choisi comme état du système à  $t=0$ . Dans ce cas, le déficit d' $^{233}\text{U}$  créé par l'arrêt de l'alimentation en thorium et de la réinjection d'une partie seulement de l' $^{233}\text{U}$  produit (le système étant surgénérateur, l'excès d' $^{233}\text{U}$  est extrait) s'avère très faible. La chute

de réactivité correspondante est d'autant plus limitée qu'elle est compensée par l'antiréactivité des transuraniens maintenus hors flux. Elle se fait à la vitesse de 3.17 pcm/h pour  $T = 10$  jours et de 1.08 pcm/h pour  $T = 100$  jours.

### • Arrêt de l'extraction des PF

On s'intéresse dans un premier temps à la valeur instantanée à  $t=0$  de la pente supplémentaire de chute de réactivité  $\left(\frac{\Delta k_{eff}(0)}{k_{eff}}\right)_{PF}$  générée par cet arrêt seul. On trouve une valeur de -0.13 pcm/h pour  $T = 10$  jours et de -0.06 pcm/h pour  $T = 100$  jours. A cet instant, on peut écrire d'après la définition de notre évaluateur de  $k_{eff}$  (chapitre 3) :

$$\left(\frac{\Delta k_{eff}(0)}{k_{eff}}\right)_{PF} = -\frac{\Delta N_{PF}}{N_{PF}(0)} \frac{a_{PF}(0)}{a(0)} \quad (5.2)$$

avec

- $N_{PF}$  l'inventaire des PF ( $N_{PF}(0)$  est l'inventaire à  $t=0$ )
- $a_{PF}(0)$  le nombre de neutrons capturés dans les PF à  $t=0$ , qu'on choisit d'exprimer en neutrons par fission, soit 0.015 n/f pour  $T = 10$  jours et 0.064 n/f pour  $T = 100$  jours
- $a(0)$  le nombre total de neutrons absorbés à  $t=0$ , soit 2.499 n/f dans les 2 cas

L'augmentation  $\Delta N_{PF}$  de l'inventaire des PF ne dépend que de la puissance et s'élève ici à  $+ 1.1 \cdot 10^{-4}$  mol/s. Par contre, la quantité de PF dans le sel combustible est à l'équilibre 9.2 fois plus importante pour  $T = 100$  jours (1940 kg) que pour  $T = 10$  jours (210 kg). Le rapport  $\frac{a_{PF}(0)}{a(0)}$  vaut 0.006 pour  $T = 10$  jours, et 0.026 pour  $T = 100$  jours, ce qui signifie que dans ce dernier cas, la proportion de neutrons absorbés dans les PF est environ 4.3 fois plus élevée. On retrouve bien le facteur 2.1 estimé entre les valeurs de  $\left(\frac{\Delta k_{eff}(0)}{k_{eff}}\right)_{PF}$  pour  $T = 10$  jours et pour  $T = 100$  jours ( $\frac{0.13}{0.06} \simeq 2.1 \simeq \frac{9.2}{4.3}$ ).

A partir de  $t=0$ ,  $a_{PF}(t)$  évolue mais sur quelques heures la correction reste minime et la formule 5.2 valable. Une bonne estimation de la pente totale de la chute de réactivité est donc la somme de la pente de l'arrêt minimal et de la contribution  $\left(\frac{\Delta k_{eff}}{k_{eff}}\right)_{PF}$ . On perd ainsi en tout 3.30 pcm/h pour  $T = 10$  jours et 1.14 pcm/h pour  $T = 100$  jours, ce qui n'est pas beaucoup plus rapide que dans la situation d'arrêt minimal. La figure 5.22 représente les augmentations relatives de  $N_{PF}$  et les chutes de réactivité totales  $\frac{\Delta k_{eff}}{k_{eff}}$  associées.

### • Isolement du circuit de sel primaire

Il s'agit ici d'étudier l'influence d'un isolement temporaire de l'ensemble du circuit de sel combustible, dans le cas par exemple d'une maintenance nécessaire sur un élément unique de l'usine de retraitement, point de passage obligé sans déviation possible. Il n'y a donc plus ici ni aucune extraction, ni aucune réinjection. Par rapport au cas précédent où en plus de la

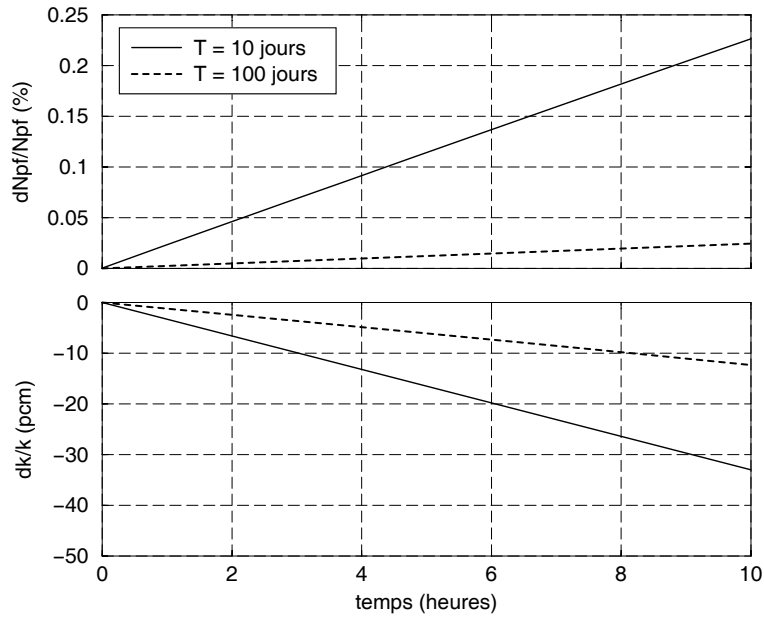


FIG. 5.22 – Empoisonnement lié à l’arrêt de l’extraction des produits de fission.

situation d’arrêt minimal les PF n’étaient plus extraits, la principale contribution supplémentaire à la chute de réactivité est l’accumulation du  $^{233}\text{Pa}$ . Comme dans le cas de l’accumulation des produits de fission, on peut écrire :

$$\left( \frac{\Delta k_{eff}(0)}{k_{eff}} \right)_{233Pa} = - \frac{\Delta N_{233Pa}}{N_{233Pa}(0)} \frac{a_{233Pa}(0)}{a(0)} \quad (5.3)$$

avec

- $N_{233Pa}$  l’inventaire de  $^{233}\text{Pa}$  (21.3 kg pour  $T = 10$  jours et 68.6 kg pour  $T = 100$  jours à l’équilibre)
- $a_{233Pa}(0)$  le nombre de neutrons capturés par le  $^{233}\text{Pa}$  à  $t=0$ , soit 0.006 n/f pour  $T = 10$  jours et 0.017 n/f pour  $T = 100$  jours

A  $t=0$ , la valeur de  $\Delta N_{233Pa}$  est donnée par le taux de capture du  $^{232}\text{Th}$  à l’équilibre, qui est de 2.68 kg/j pour  $T = 10$  jours et de 2.48 kg/j pour  $T = 100$  jours. Ces valeurs nous donnent  $\left( \frac{\Delta k_{eff}(0)}{k_{eff}} \right)_{233Pa} = -1.26$  pcm/h pour  $T = 10$  jours et  $-1.02$  pcm/h pour  $T = 100$  jours. Il ne s’agit ici que d’évaluer la chute instantanée effective de réactivité, sans se préoccuper de l’effet protactinium, qu’il faut gérer dans le cas d’un tel arrêt long de plusieurs semaines. En ajoutant la contribution du  $^{233}\text{Pa}$  précédemment évaluée à la résultante de la situation sans extraction des PF, on évalue  $\frac{\Delta k_{eff}(0)}{k_{eff}}$  à  $(-3.30) + (-1.26) = -4.56$  pcm/h pour  $T = 10$  jours et à  $(-1.14) + (-1.02) = -2.16$  pcm/h pour  $T = 100$  jours. Ces valeurs sont confirmées à quelques % près par les résultats de la simulation de la situation complète.

## b - Arrêt de la réinjection des produits de la fluoration

On vient de constater que la possibilité d’empoisonnement par les produits de fission, comme celle par le protactinium, est limitée à quelques pcm/h, du fait de leur faible participation de départ aux absorptions. Mais comme le montre la figure 5.21, ceci n’est pas le seul moyen d’action du retraitement sur la réactivité. Une analogie peut être faite entre l’ajout d’acide borique dans le cas d’un REP et la dilution de l’uranium du sel combustible d’un RSF, qui peut être réalisée par simple arrêt de la réinjection de ce dernier après sa fluoration [62]. Cette possibilité, propre au RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ , qui consiste en une vidange partielle et provisoire des principaux éléments fissiles du sel ( $^{233}\text{U}$  et  $^{235}\text{U}$ ), permet a priori une chute de réactivité d’autant plus significative que l’extraction d’uranium est rapide et que son inventaire est faible.

### • Contribution de l’arrêt de la réinjection de l’uranium fluoré à $t=0$

Si seuls les termes de création et d’absorption des neutrons (termes  $c$  et  $a$  définis au chapitre 3 pour notre évaluateur de  $k_{eff}$ ) concernant l’uranium évoluent, la variation de réactivité due à la non-réinjection de l’uranium s’écrit :

$$\left( \frac{\Delta k_{eff}(0)}{k_{eff}} \right)_U = \frac{\Delta c}{c} - \frac{\Delta a}{a} = \frac{\Delta c_U}{c(0) + \Delta c_U} - \frac{\Delta a_U}{a(0) + \Delta a_U} \simeq \frac{\Delta c_U}{c(0)} - \frac{\Delta a_U}{a(0)} \quad (5.4)$$

avec

- $c_U$  le nombre de neutrons créés par fission de l’uranium (2.420 n/f à  $t=0$ )
- $c(0)$  le nombre total de neutrons créés par fission à  $t=0$  (2.499 n/f)
- $a_U$  le nombre de neutrons capturés par l’uranium (1.239 n/f à  $t=0$ )
- $a(0)$  le nombre total de neutrons absorbés à  $t=0$  (2.499 n/f)

Supposer que les sections efficaces moyennes de l’uranium ne sont pas modifiées sur  $\Delta t$  nous permet d’écrire :

$$\Delta c_U = \Delta N_U \frac{c_U(0)}{N_U(0)} \quad (5.5)$$

$$\Delta a_U = \Delta N_U \frac{a_U(0)}{N_U(0)} \quad (5.6)$$

On fait l’hypothèse que sur  $\Delta t$  l’extraction par fluoration de l’uranium sans réinjection est la seule cause de variation de son inventaire  $N_U(t)$ . Dans ce cas, par définition de  $T$ , la dérivée de l’inventaire d’uranium en fonction du temps s’écrit simplement:

$$\frac{dN_U}{dt} = -\frac{N_U}{T} \quad (5.7)$$

Pour un laps de temps  $\Delta t$  petit devant  $T$ , on obtient après intégration de la formule 5.7, une variation  $\Delta N_U$  de l'inventaire d'uranium donnée par :

$$\frac{\Delta N_U}{N_U(0)} = -\frac{\Delta t}{T} \quad (5.8)$$

On obtient à partir des formules 5.4, 5.5, 5.6 et 5.8 :

$$\left( \frac{\Delta k_{eff}(0)}{k_{eff}} \right)_U = - \left( \frac{c_U(0)}{c(0)} - \frac{a_U(0)}{a(0)} \right) \frac{\Delta t}{T} = - 0.472 \frac{\Delta t}{T} \quad (5.9)$$

La chute de réactivité due à la dilution de l'uranium par sa non-réinjection est donc inversement proportionnelle à la durée de retraitement  $T$ . Elle dépend aussi, logiquement, des participations de l'uranium aux créations et aux absorptions totales de neutrons, et plus précisément de leur différence. On évalue ainsi cette contribution à -198 pcm/h pour  $T = 10$  jours et à 10 fois moins soit -19.8 pcm/h pour  $T = 100$  j.

#### • Chute de réactivité totale

Les résultats de la simulation complète de l'arrêt de la réinjection après fluoration sont présentés sur la figure 5.23. On vérifie que les sections efficaces moyennes et taux de réaction par noyau de l'uranium restent constants et la formule 5.9 exacte pour tout  $\Delta t$  inférieur à quelques dizaines d'heures. La pente de chute totale de la réactivité, faisant intervenir également le neptunium et l'iode, s'élève à -198 pcm/h pour  $T = 10$  jours et à -20.2 pcm/h pour  $T = 100$  jours, ce qui confirme les hypothèses faites plus haut. Pour donner un ordre de grandeur significatif, on peut remarquer qu'une perte de réactivité de 200 pcm (valeur de  $\beta_{eff}$  à l'équilibre) est réalisée en environ 1 h pour  $T = 10$  jours et 10 h pour  $T = 100$  jours.

En conclusion, outre l'absence de toute réserve de réactivité qui est un atout important pour la sûreté, la fluoration de l'uranium permet également de disposer d'une réserve d'antiréactivité non négligeable. Selon la vitesse du retraitement, le système peut perdre quelques centaines de pcm en quelques heures, ce qui peut par exemple s'avérer suffisant pour compenser l'augmentation de réactivité liée à un éventuel réchauffement différé du graphite en cœur.

### c - Ajout accidentel de réactivité par le retraitement

Pour mieux apprécier la réserve d'antiréactivité qu'offre le retraitement en ligne du RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ , il convient d'envisager le risque d'un ajout important de réactivité. On choisit de simuler la situation où l' $^{233}\text{U}$  surgénéré n'est accidentellement plus extrait du réservoir de stockage du protactinium, et est entièrement réinjecté avec les autres actinides. Le système étant légèrement sous-générateur pour  $T = 100$  jours, on n'étudie que le cas du retraitement dont la durée est 10 jours, et qui surgénère à l'équilibre 35.8 kg/an d' $^{233}\text{U}$  soit environ 4.1 g/h. Les

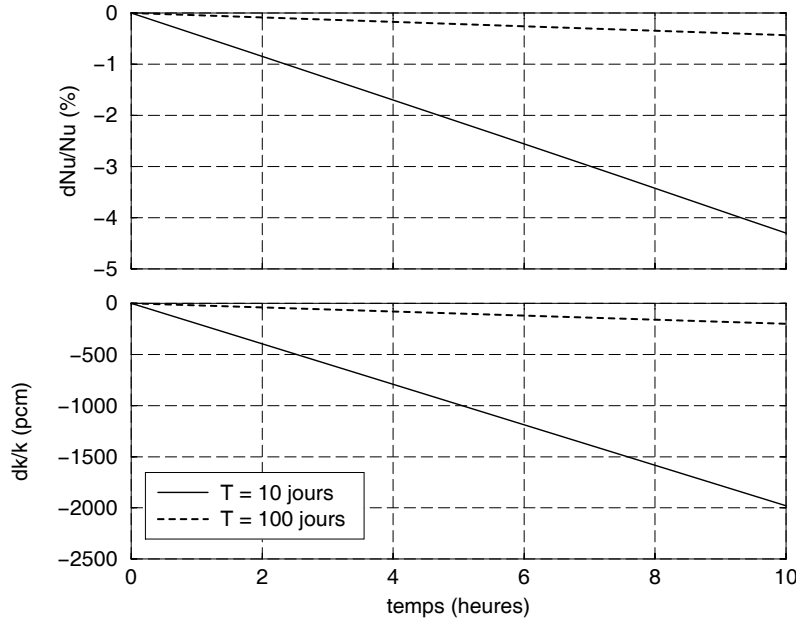


FIG. 5.23 – Chutes de l’inventaire d’uranium et de la réactivité liées à l’arrêt de la réinjection des éléments extraits lors de l’étape de fluoration.

formules 5.4, 5.5 et 5.6 écrites pour l’uranium restent naturellement valables pour la contribution à la variation de la réactivité de l’excès d’ $^{233}\text{U}$  introduit :

$$\left( \frac{\Delta k_{eff}(0)}{k_{eff}} \right)_{233U} = \frac{\Delta N_{233U}}{N_{233U}(0)} \left( \frac{c_{233U}(0)}{c(0)} - \frac{a_{233U}(0)}{a(0)} \right) \quad (5.10)$$

avec

- $N_{233U}$  l’inventaire d’ $^{233}\text{U}$  à l’équilibre (1250 kg à  $t=0$ )
- $c_{233U}(0)$  le nombre de neutrons créés par fission de l’ $^{233}\text{U}$  à  $t=0$  (2.191 n/f)
- $a_{233U}(0)$  le nombre de neutrons capturés par l’ $^{233}\text{U}$  à  $t=0$  (0.109 n/f)

On évalue ainsi  $\left( \frac{\Delta k_{eff}(0)}{k_{eff}} \right)_{233U}$  à +0.27 pcm/h, ce que confirme la simulation vérifiant également que les sections efficaces moyennes restent constantes. En valeur absolue, la contribution de l’excès d’ $^{233}\text{U}$  est donc 2 fois celle de l’arrêt de l’extraction des PF. Mais elle reste nettement inférieure à l’antiréactivité apportée par l’arrêt minimal et l’arrêt de la réinjection de l’uranium fluoré, comme le résume le tableau 5.20.

### 5.3.2 Non-prolifération de l’ $^{233}\text{U}$

Le retraitement de référence stocke provisoirement hors flux le protactinium extrait afin d’attendre sa désintégration en  $^{233}\text{U}$ . L’ $^{233}\text{U}$  surgénéré est directement prélevé dans ce réservoir,

<i>(pcm/h)</i>	<i>T = 10 jours</i>	<i>T = 100 jours</i>
situation d'arrêt minimal	-3.17	-1.08
arrêt de l'extraction des produits de fission solubles	-3.30	-1.14
arrêt du retraitement (circuit de sel isolé)	-4.56	-2.16
arrêt de la réinjection de l'uranium après sa fluoration	-198	-20.2
ajout accidentel de l' <sup>233</sup> U surgénéré	+0.27	non défini

TAB. 5.20 – Récapitulatif des valeurs de  $\frac{\Delta k_{eff}}{k_{eff}}$  totales en pcm/h des différentes situations d'arrêt du retraitement étudiées, comparées à un scénario d'ajout accidentel de réactivité.

par fluoration. Une telle extraction directe d'<sup>233</sup>U pose le problème de la prolifération de cet <sup>233</sup>U, pur et facilement accessible. Même si les quantités sont faibles, il convient de proposer une alternative moins proliférante à cette méthode d'extraction de l'<sup>233</sup>U surgénéré.

Une possibilité consiste à exploiter la traçabilité de l'<sup>232</sup>U, dont on a vu qu'un descendant, le <sup>208</sup>Tl, émet un gamma de 2.6 MeV. A l'équilibre de référence, la proportion molaire de l'<sup>232</sup>U dans l'uranium du sel est de 0.13%. Une telle concentration est suffisante pour détecter cet uranium, s'il venait à être prélevé illicitement. Nous avons donc simulé un système dans lequel l'<sup>233</sup>U surgénéré n'est plus prélevé au niveau du réservoir de stockage du protactinium, maintenu fermé et inaccessible, mais au niveau de la fluoration de l'uranium. L'<sup>233</sup>U prélevé à cette étape afin de maintenir constante la réactivité s'accompagne ainsi des autres isotopes de l'uranium, parmi lesquels l'<sup>232</sup>U facilement détectable.

La figure 5.24 montre comment la mise à l'équilibre de l'uranium est modifiée par rapport au cas de référence. L'inventaire d'uranium se stabilise à 1.9 t, contre 2.2 t dans le cas de référence. L'inventaire d'<sup>233</sup>U est à peine modifié, tandis que ceux de l'<sup>234</sup>U, de l'<sup>235</sup>U et de l'<sup>236</sup>U sont réduits. La proportion molaire d'<sup>232</sup>U dans l'uranium est inchangée par rapport au cas de référence (0.12%). L'inventaire des transuraniens produits par captures parasites successives sur l'uranium est réduit à environ 70 kg à l'équilibre, contre 130 kg dans le cas de référence (figure 5.25). Cela explique, avec la réduction de l'inventaire des isotopes de l'uranium produits à partir de l'<sup>233</sup>U, le meilleur taux de régénération obtenu à l'équilibre. Partant de l'état initial de référence, caractérisé par un taux de régénération de 1.09 environ, ce système voit en effet son taux de régénération se stabiliser à 1.050, contre 1.038 dans le cas de référence.

Le schéma de la figure 5.26 illustre le gain neutronique réalisé par prélèvement d'uranium à la fluoration et non seulement d'<sup>233</sup>U pur, en donnant les taux de réaction, de décroissance et

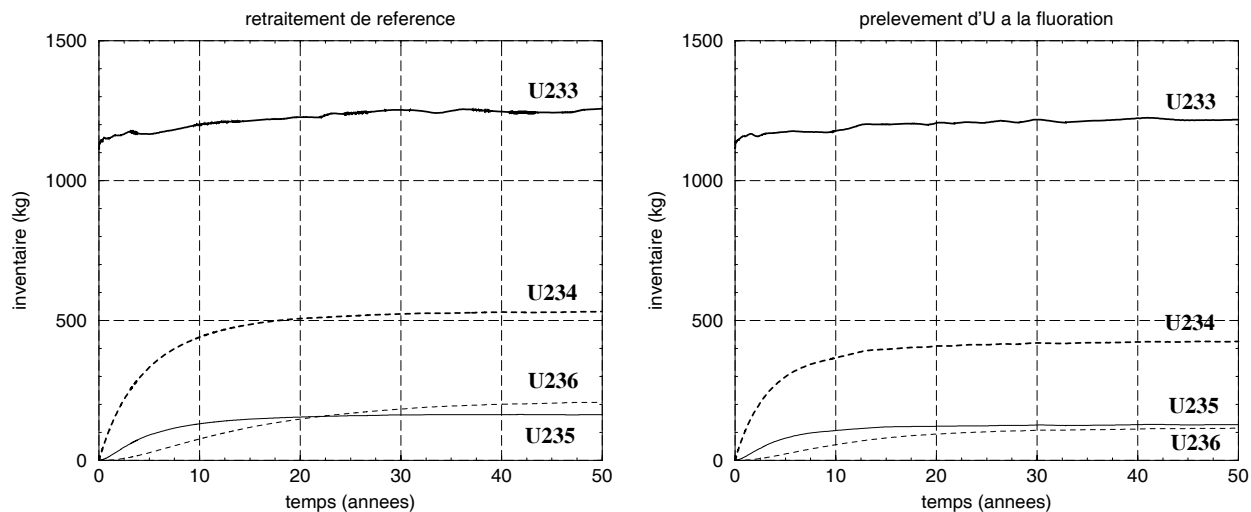


FIG. 5.24 – Mise à l'équilibre des isotopes de l'uranium dans le cas du prélèvement d'uranium à la fluoration, comparée au cas du retraitement de référence.

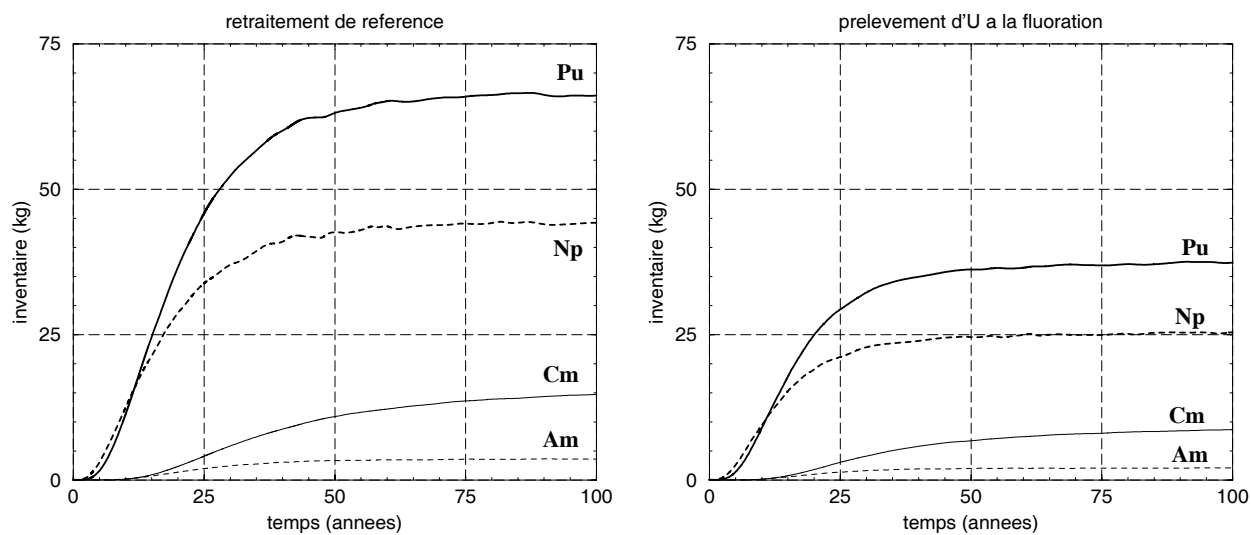


FIG. 5.25 – Mise à l'équilibre des transuraniens dans le cas du prélèvement d'uranium à la fluoration, comparée au cas du retraitement de référence.



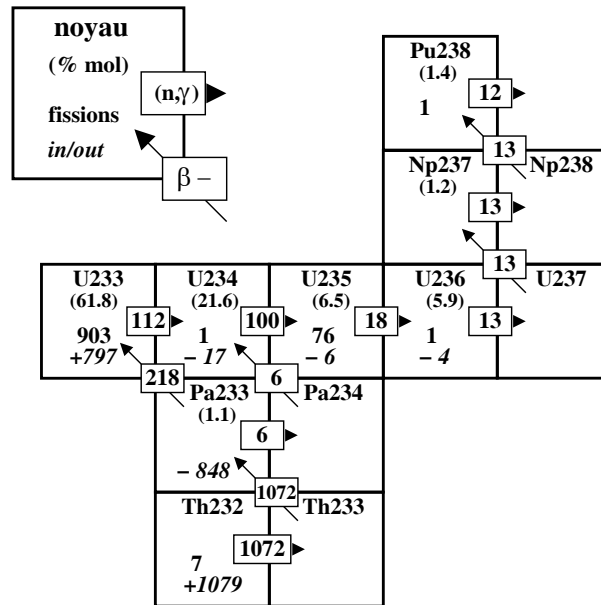


FIG. 5.26 – Représentation  $(N, Z)$  pour 1000 fissions de l'équilibre obtenu lorsque l' $^{233}\text{U}$  surgénéré est extrait avec les autres isotopes de l'uranium à la fluoration.

d'extraction des principaux noyaux à l'équilibre. Les termes d'extraction de l'uranium (négatifs pour les isotopes autres que l' $^{233}\text{U}$ ) expliquent notamment que le  $^{238}\text{Pu}$  ne capture à l'équilibre que 12 neutrons pour 1000 fissions, contre 20 dans le cas de référence.

#### 5.4 Le point sur les éléments de flexibilité du RSF $(\text{Th}/\text{U})\text{F}_4$

En partant du système de référence inspiré du projet MSBR, nous avons exploré dans ce chapitre quelques potentialités du concept de RSF à modérateur graphite pour une production durable d'énergie nucléaire, selon les trois critères retenus depuis le début. Le premier de ces critères est une utilisation optimale du combustible thorium. Nous avons donc envisagé différentes options destinées à améliorer l'économie de neutrons de ce réacteur, en utilisant le taux de régénération obtenu comme indicateur. L'aménagement d'une zone fertile en périphérie du cœur favorise la surgénération, au prix d'un doublement du facteur de forme. Le remplacement du sel FLiBe par le sel FLiNa (54% LiF - 13.5% NaF - 32%  $(\text{Th}+\text{U})\text{F}_4$ ) permet de diviser par 3 la production de tritium et de rendre le coefficient de température total du système négatif, malgré une légère détérioration du bilan neutronique. Mais c'est surtout le retraitement en ligne qui peut apporter au système le plus d'avantages, a priori insoupçonnés, selon les efforts consentis sur les procédés pyrochimiques utilisés. Présenté à l'origine comme une contrainte, pour l'extraction rapide des produits de fission, le retraitement en ligne nous est en effet apparu comme la principale source de flexibilité du système. Son ralentissement et sa simplification permettent

d'ajuster facilement le taux de régénération. L'extraction continue du neptunium, possible au niveau de la fluoration, est particulièrement intéressante, abaissant le temps de doublement à l'équilibre de 31 à 20 ans, tout en réduisant l'inventaire des transuraniens de deux ordres de grandeur. Certaines de ces options peuvent être couplées, afin d'obtenir un système surgénérateur performant, ou au contraire un producteur d'énergie simplifié.

La flexibilité de l'économie de neutrons d'un tel système nous a amené ensuite à envisager les possibilités de transmutation de produits de fission à vie longue, qui dominent la radiotoxicité des rejets après quelques milliers d'années. Par la réinjection de l'iode dans le sel, et le recyclage des poussières métalliques de technétium dans des cylindres de graphite en périphérie du cœur, il est possible de transmuter l' $^{129}\text{I}$  et le  $^{99}\text{Tc}$  à un taux égal à celui de leur production, le système restant juste régénérateur. Ce procédé permet en outre d'annuler le coefficient de température total du système, ce qui reste vrai lorsqu'on remplace le technétium par du thorium. Dans ce cas, la surgénération d' $^{233}\text{U}$  ne se fait plus dans le sel combustible mais dans les cylindres de graphite, moyennant un recyclage par cycles de quelques années.

Dernier critère abordé dans ce chapitre, la sûreté du réacteur peut directement être améliorée par le retraitement en ligne. L'extraction rapide des produits de fission permet notamment l'absence de réserve de réactivité dans le cœur. Ce dernier s'étouffe rapidement en cas d'arrêt de la réinjection dans le sel de l'uranium fluoré, avec une chute de réactivité d'environ 200 pcm/h pour une durée de retraitement  $T$  de 10 jours. Dans le cas d'un fonctionnement surgénérateur, le prélèvement au niveau de la fluoration de l' $^{233}\text{U}$  en excès, avec les autres isotopes de l'uranium, est favorable à la non-prolifération, du fait de la présence d' $^{232}\text{U}$  facilement détectable par son gamma associé de 2.6 MeV. Par tous ces éléments intéressants de flexibilité, le RSF (Th/U) $\text{F}_4$  semble particulièrement bien adapté à la production d'énergie en cycle thorium, ce qui nous amène à étudier la faisabilité de la transition à ce cycle.

## Chapitre 6

# Etude de transitions possibles vers la filière (Th/U)F<sub>4</sub>

Jusqu'à présent, nous avons déterminé les caractéristiques principales et exploré quelques-unes des multiples potentialités de la filière  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  en RSF à spectre épithermique. L'ensemble de ces études confirme l'intérêt suscité a priori par le cycle  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  en spectre thermique, dont le système étudié dans le cadre de ce travail est un exemple prometteur. Il convient maintenant d'examiner dans quelles conditions il est possible de démarrer une telle filière à partir des combustibles nucléaires disponibles actuellement. Le but de ce chapitre est d'aborder de la façon la plus complète possible le problème de la transition à la filière RSF thorium, tant du point de vue du comportement du système au cours de la transition que du point de vue des différents scénarios envisageables.

### 6.1 Transition vers le cycle asymptotique $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$

Le problème du passage au cycle thorium se ramène à celui de la production de l'inventaire initial d' $^{233}\text{U}$ , nécessaire pour démarrer l'un des systèmes  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  étudiés précédemment. Plutôt que de d'attendre d'avoir produit suffisamment de cet  $^{233}\text{U}$  dans un réacteur dédié, il semble intéressant de le faire progressivement dans le RSF lui-même, en remplaçant au démarrage l' $^{233}\text{U}$  par de la matière fissile plus facilement disponible.

#### 6.1.1 Utilisation du plutonium des combustibles REP usés

Une première solution consiste à utiliser le plutonium des combustibles REP usés comme inventaire fissile initial sur support thorium. Ce plutonium est progressivement remplacé par l' $^{233}\text{U}$  produit, dont on extrait l'excès éventuel comme dans le cas du RSF démarré directement en  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ . On appelle désormais "Th/Pu  $\rightarrow$   $^{233}\text{U}$ " ce type de transition.

## a - Transition Th/Pu $\rightarrow$ $^{233}\text{U}$ de référence

Pour se donner une première idée de la faisabilité d'une telle transition, on utilise un plutonium de bonne qualité fissile du point de vue du spectre épithermique du RSF qu'il s'agit de démarrer. On choisit le plutonium extrait du combustible utilisé d'un REP de type UOX, 5 ans après son déchargement [36]. Ce type de plutonium sera désormais appelé "Pu UOX 5", et le système démarré à partir de ce plutonium "Th/Pu UOX 5  $\rightarrow$   $^{233}\text{U}$ ".

### • Description du régime transitoire du système Th/Pu UOX 5 $\rightarrow$ $^{233}\text{U}$

Le retraitement en ligne est le même que celui appliqué au RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  de référence, avec extraction et stockage temporaire hors flux du  $^{233}\text{Pa}$ . Le sel initial choisi est semblable au sel du RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ , soit 70% LiF - 17.5%  $\text{BeF}_2$  - 12.5%  $(\text{Th}+\text{Pu})\text{F}_4$ , le plutonium remplaçant l' $^{233}\text{U}$  au démarrage. Pour "forcer" le système à rejoindre le même équilibre qu'en cas de démarrage à l' $^{233}\text{U}$ , on impose de la même façon un inventaire total de noyaux lourds constant, en ajustant pour cela l'alimentation en thorium. Le plutonium va ainsi être progressivement remplacé par l' $^{233}\text{U}$  produit, la différence étant comblée par l'apport de  $^{232}\text{Th}$ .

Pour rendre le système critique au démarrage, 3.7 t de Pu UOX 5 sont nécessaires. Cet inventaire initial de plutonium diminue progressivement jusqu'à atteindre sa valeur à l'équilibre  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ , soit un peu moins de 70 kg. Le taux de fission total du système étant de l'ordre de la tonne par an, on s'attend a priori à ce que la transition s'étale tout au plus sur une dizaine d'années. La figure 6.1 montre le remplacement du plutonium par l'uranium, à partir de l' $^{233}\text{U}$  produit par capture sur le  $^{232}\text{Th}$ . L'essentiel du plutonium disparaît en 5 ans, seul le  $^{242}\text{Pu}$  persistant au-delà d'une dizaine d'années. À partir du  $^{242}\text{Pu}$ , on produit par captures successives américium et curium. L'inventaire total des actinides mineurs, incluant le neptunium formé à partir de l'uranium, atteint la valeur maximale de 460 kg au bout de 10 ans, puis rejoint lentement la valeur de l'équilibre  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  (60 kg environ). La figure 6.2 illustre l'incinération totale progressive du plutonium sous la forme d'américium et de curium, les dernières fissions de cette chaîne se faisant sur le  $^{245}\text{Cm}$  et le  $^{251}\text{Cf}$ . L'inventaire du  $^{237}\text{Np}$  évolue quant à lui de la même façon que dans le cas de la transition  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ .

Le principe de la transition repose sur l'entretien de la puissance et de la réactivité par la fission du plutonium, en attendant que l'uranium prenne le relais. Comme le montre la figure 6.3, le changement de nature des noyaux fissiles entraîne une modification de la section efficace totale de fission, et des sections efficaces partielles de fission calculées pour les quatre principaux noyaux fissiles. Les sections efficaces partielles de fission du plutonium ( $^{239}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Pu}$ ) diminuent au profit des contributions de l' $^{233}\text{U}$  et de l' $^{235}\text{U}$ . Dans le détail, la contribution du  $^{241}\text{Pu}$  au taux de fission total passe d'environ 20% à 30% au cours des deux premières années, du fait de sa régénération par capture sur le  $^{240}\text{Pu}$ . Cet effet permet de prolonger la fission du plutonium au-delà de 5 ans après le démarrage.

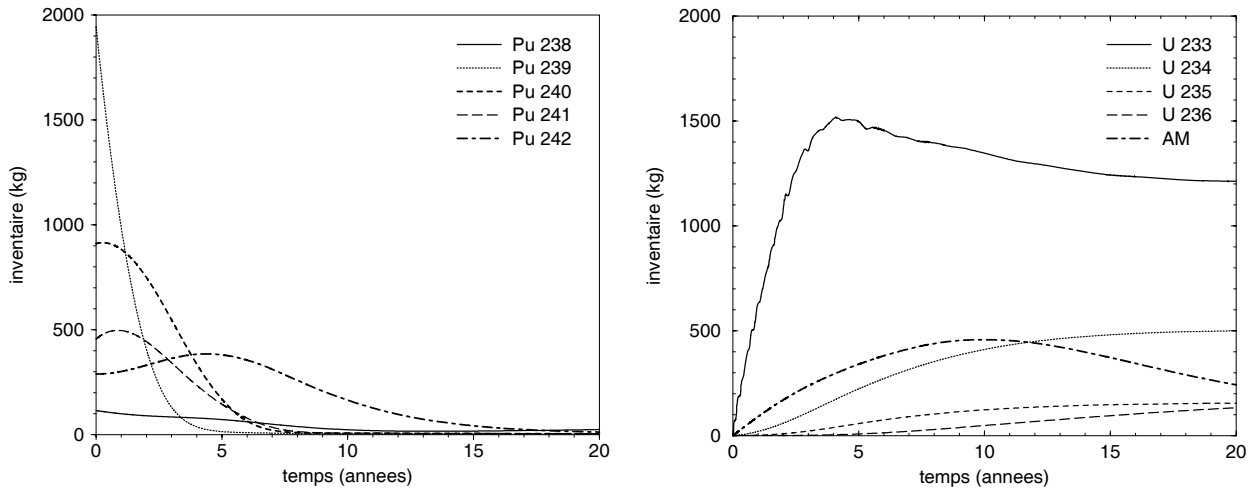


FIG. 6.1 – Evolution des inventaires de plutonium et d'uranium au cours des 20 premières années de la transition  $Th/Pu$  UOX 5  $\rightarrow$   $^{233}U$ .

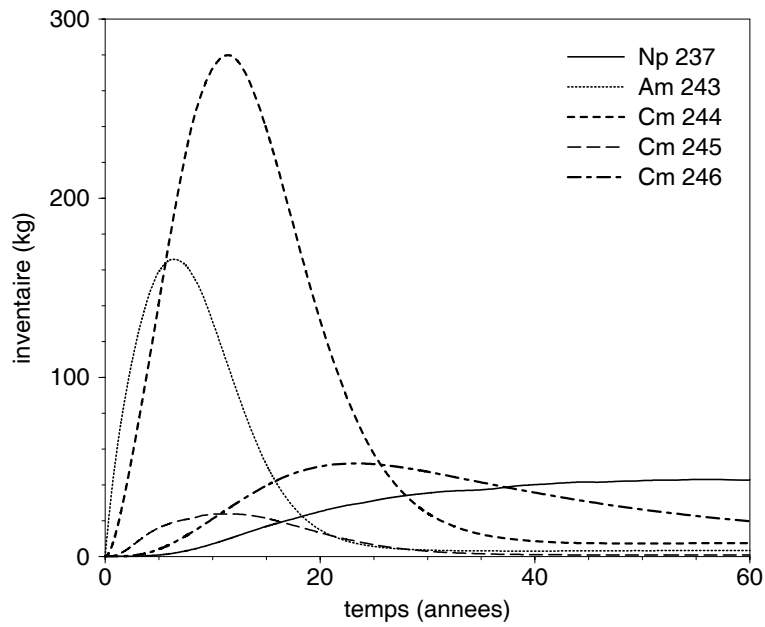


FIG. 6.2 – Evolution de l'inventaire des principaux actinides mineurs pendant 60 ans après le démarrage du RSF  $Th/Pu$  UOX 5  $\rightarrow$   $^{233}U$ .

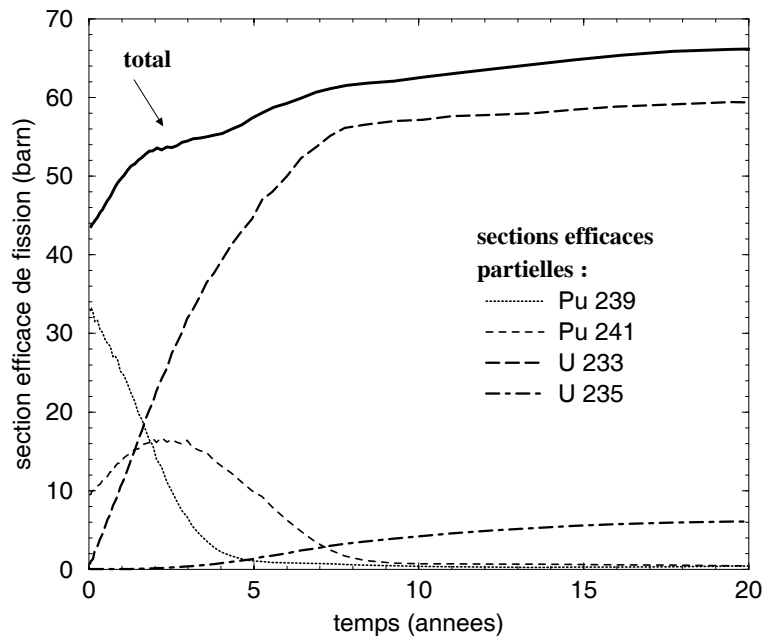


FIG. 6.3 – Evolution de la section efficace totale de fission et de la section efficace partielle de fission  $\frac{N_i \sigma_i}{N_{239\text{Pu}} + N_{241\text{Pu}} + N_{233\text{U}} + N_{235\text{U}}}$  de chaque noyau fissile  $i$ , dans la transition  $\text{Th/Pu UOX 5} \rightarrow {}^{233}\text{U}$ .

En une vingtaine d’années, la répartition des fissions rejoint donc celle de l’équilibre  ${}^{232}\text{Th}/{}^{233}\text{U}$ , avec environ 10% des fissions dans l’ ${}^{235}\text{U}$ , et le reste dans l’ ${}^{233}\text{U}$ . Sur cette période, la stabilisation de l’ ${}^{233}\text{U}$  a provoqué une augmentation de la section efficace totale de fission. La diminution de l’inventaire fissile est néanmoins suffisante pour se traduire par une augmentation du flux intégré total jusqu’à la valeur de  $3.2 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$  (figure 6.4).

Le temps que met le système  $\text{Th/Pu UOX 5} \rightarrow {}^{233}\text{U}$  pour rejoindre le RSF  ${}^{232}\text{Th}/{}^{233}\text{U}$  du point de vue de la surgénération d’ ${}^{233}\text{U}$  est également d’une vingtaine d’années. Entre-temps, le coût neutronique des réactions dans le plutonium amoindrit le taux de capture dans le thorium, et rend nécessaire le recours à un faible apport extérieur d’ ${}^{233}\text{U}$  pour maintenir la réactivité constante. Ceci explique que la production cumulée d’ ${}^{233}\text{U}$  reste négative pendant les 15 premières années, avec un déficit maximal à 5 ans d’environ 300 kg d’ ${}^{233}\text{U}$  (figure 6.5). Le système produit un inventaire initial d’ ${}^{233}\text{U}$  pour un RSF  ${}^{232}\text{Th}/{}^{233}\text{U}$  en 35 ans (“temps de premier doublement”), soit en 10 ans de plus qu’en cas de démarrage à l’ ${}^{233}\text{U}$ .

#### • Evolution de la radiotoxicité des rejets d’actinides

La quantité de transuraniens circulant dans le cœur et donc dans l’usine de retraitement est plus importante au cours du transitoire que dans le cas de référence  ${}^{232}\text{Th}/{}^{233}\text{U}$ . De fait, la

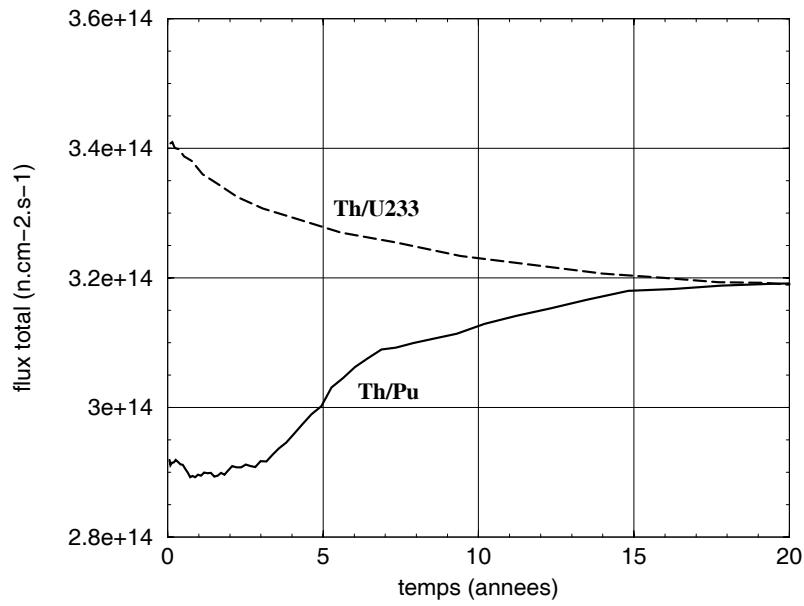


FIG. 6.4 – Evolution du flux total intégré au cours des 20 premières années de la transition  $Th/Pu$  UOX 5  $\rightarrow$   $^{233}U$ , comparée à la transition  $^{232}Th/^{233}U$ .

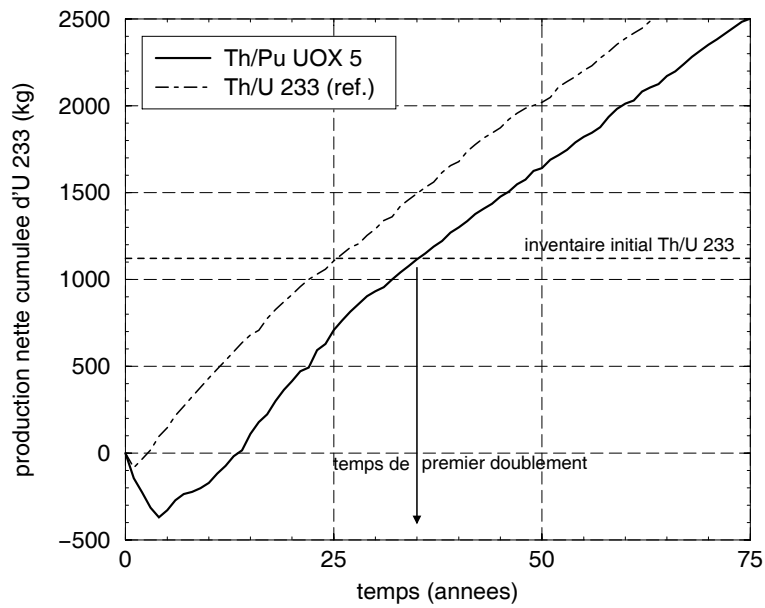


FIG. 6.5 – Production nette d' $^{233}U$ , accumulée en dehors du circuit de sel combustible au cours de la transition  $Th/Pu$  UOX 5  $\rightarrow$   $^{233}U$ .

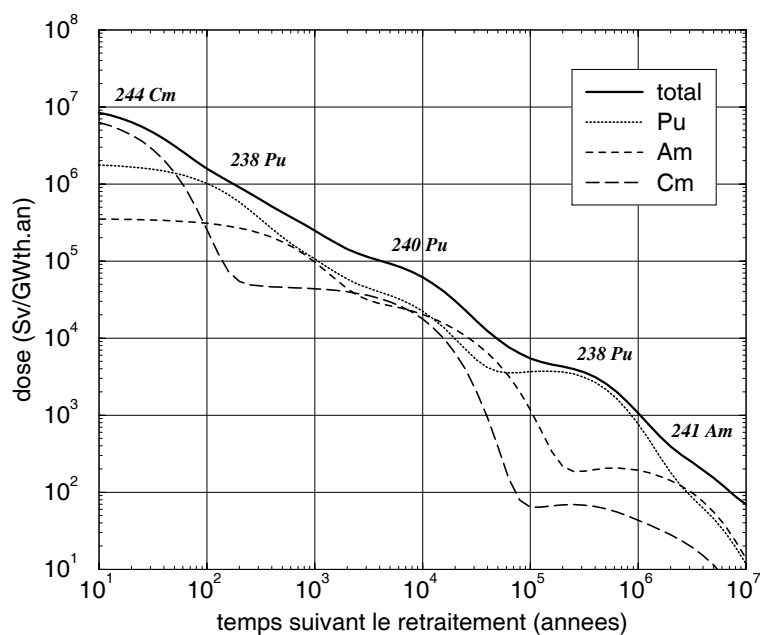


FIG. 6.6 – Evolution de la radiotoxicité des actinides rejetés 5 ans après le démarrage du RSF Th/Pu UOX  $5 \rightarrow ^{233}\text{U}$ . Les noyaux pères dont la radiotoxicité domine sont indiqués.

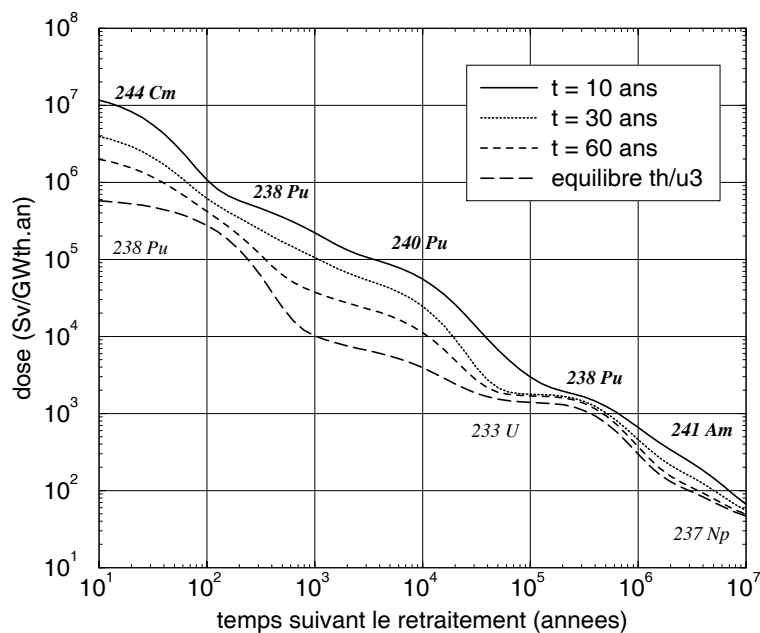


FIG. 6.7 – Radiotoxicité des actinides rejetés à différents instants  $t$  après le démarrage du RSF Th/Pu UOX  $5 \rightarrow ^{233}\text{U}$ , comparée à celle de l'équilibre  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  (Les noyaux dominants dans ce cas sont indiqués sous la courbe correspondante en cas de changement).



radiotoxicité générée par les pertes au retraitement est plus importante. Les éléments participant à la radiotoxicité des rejets 5 ans après le démarrage sont détaillés par la figure 6.6. A ce moment de la transition, le plutonium domine toujours le total sur une période s'étalant de  $10^2$  à  $10^6$  ans après le retraitement. La figure 6.7 montre comment la radiotoxicité totale des rejets converge vers celle générée à l'équilibre  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ .

### • Proportion de neutrons retardés

Le couple d'isotopes fissiles du plutonium présente des proportions  $\beta$  de neutrons retardés similaires aux valeurs de l'uranium ( $^{239}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Pu}$ : 210 et 540 pcm,  $^{233}\text{U}$  et  $^{235}\text{U}$ : 260 et 640 pcm). On s'attend donc à ce que la proportion de neutrons retardés reste sensiblement constante au cours du transitoire. En supposant toujours la perte d'un tiers des neutrons retardés dans les échangeurs, on suit l'évolution de la proportion effective  $\beta_{eff}$  de ces neutrons dans le cœur (figure 6.8). La contribution très faible des actinides mineurs (quelques pcm) est négligée.

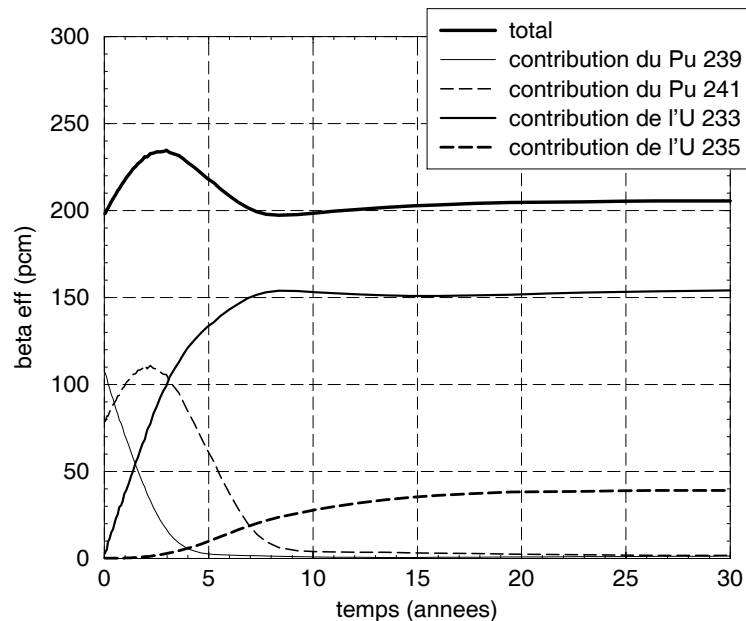


FIG. 6.8 – Mise à l'équilibre de la proportion effective de neutrons retardés  $\beta_{eff}$  lors du transitoire  $\text{Th}/\text{Pu UOX } 5 \rightarrow ^{233}\text{U}$ .

### b - Sensibilité de la transition au type de plutonium utilisé

Dans le cas de la transition  $\text{Th}/\text{Pu UOX } 5 \rightarrow ^{233}\text{U}$ , on s'est placé dans un cas favorable, en ayant recours à un plutonium de bonne qualité fissile. La nature épithermique du spectre dans le sel nous amène à étudier ce qu'il se passe lorsque le plutonium utilisé a été entreposé plus longtemps ou a été recyclé en combustible MOX.

• **Description du plutonium utilisé**

La première cause de modification de la qualité fissile du plutonium des combustibles usés est liée à la décroissance  $\beta^-$  du  $^{241}\text{Pu}$  avec une demi-vie de 14 ans environ. Le recyclage en combustible MOX a lui pour effet de diminuer la proportion du  $^{239}\text{Pu}$  au profit du  $^{240}\text{Pu}$  dans le combustible récupéré après déchargement.

$T_{ref}$	Pu de type UOX				Pu de type MOX			
	5 ans	20 ans	35 ans	50 ans	5 ans	20 ans	35 ans	50 ans
$^{238}\text{Pu}$	3.1	2.9	2.7	2.4	4.5	4.2	3.9	3.5
$^{239}\text{Pu}$	52.5	56.1	58.0	59.2	37.8	40.7	42.3	43.2
$^{240}\text{Pu}$	24.5	26.4	27.5	28.1	31.3	34.3	36.0	37.0
$^{241}\text{Pu}$	12.2	6.3	3.2	1.6	13.8	7.2	3.6	1.8
$^{242}\text{Pu}$	7.7	8.3	8.6	8.7	12.6	13.6	14.2	14.5

TAB. 6.1 – *Compositions isotopiques (%) du Pu extrait des combustibles UOX et MOX usés après 5, 20, 35 et 50 ans de refroidissement.*

Pour apprécier ces deux effets sur le comportement du plutonium en RSF  $\text{Th}/\text{Pu} \rightarrow ^{233}\text{U}$ , nous avons évalué les vecteurs isotopiques de plutonium issu de deux types de combustible REP (UOX et MOX), pour des durées de refroidissement  $T_{ref}$  augmentées par pas de 15 ans (demi-vie approximative du  $^{241}\text{Pu}$ ), de  $T_{ref} = 5$  ans à  $T_{ref} = 50$  ans (tableau 6.1). On n'extrait le Pu du combustible usé qu'au moment de l'utiliser, et on tient donc compte des décroissances produisant du plutonium à l'intérieur du combustible usé, comme la désintégration  $\alpha$  du  $^{244}\text{Cm}$  en  $^{240}\text{Pu}$  (18.1 ans de demi-vie). Pour le Pu UOX, on se base sur les données des réacteurs REP UOX de type N4 et de burn-up 47.5 GWj/t, utilisant de  $^{235}\text{U}$  enrichi à 4%. Le Pu MOX est calculé pour des REP MOX de burn-up 43.5 GWj/t, utilisant un combustible à 8.2 % de Pu [36]. On constate que l'évolution de la proportion de  $^{241}\text{Pu}$  est comparable pour les deux types de plutonium, et devient négligeable au-delà de 50 ans de refroidissement du combustible usé. Le Pu MOX se distingue par une proportion plus faible de  $^{239}\text{Pu}$  (environ 40% en moyenne au lieu de 55% pour le type UOX), dont une partie a été convertie en  $^{240}\text{Pu}$  lors du recyclage MOX (environ 35% de  $^{240}\text{Pu}$  au lieu de 25% pour le type UOX).

• **Modifications des performances surgénératrices**

Pour chacune des compositions initiales de plutonium présentées dans le tableau 6.1, nous avons simulé le transitoire jusqu'à ce que l'équilibre  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  soit atteint. La figure 6.9 montre qu'avec le temps de refroidissement du plutonium, son inventaire initial augmente significativement s'il est de type UOX (de 3.7 t pour  $T_{ref} = 5$  ans à 7.8 t pour  $T_{ref} = 50$  ans), et encore plus s'il est de type MOX (de 6.7 t pour  $T_{ref} = 5$  ans à 17.9 t pour  $T_{ref} = 50$  ans). On vérifie qu'au-delà de  $T_{ref} = 50$  ans, les modifications sont minimales.

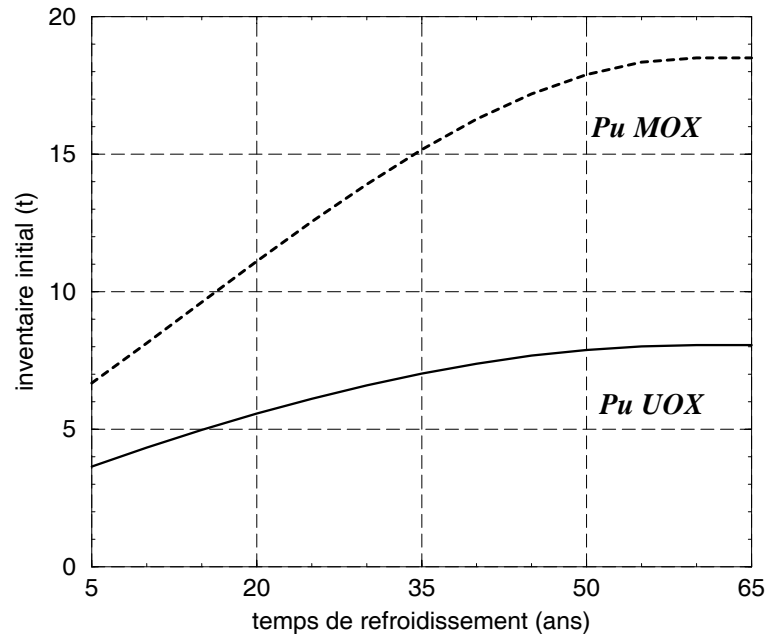


FIG. 6.9 – Influence du type de Pu et de son temps de refroidissement après déchargement sur l'inventaire initial du RSF Th/Pu  $\rightarrow$   $^{233}\text{U}$ .

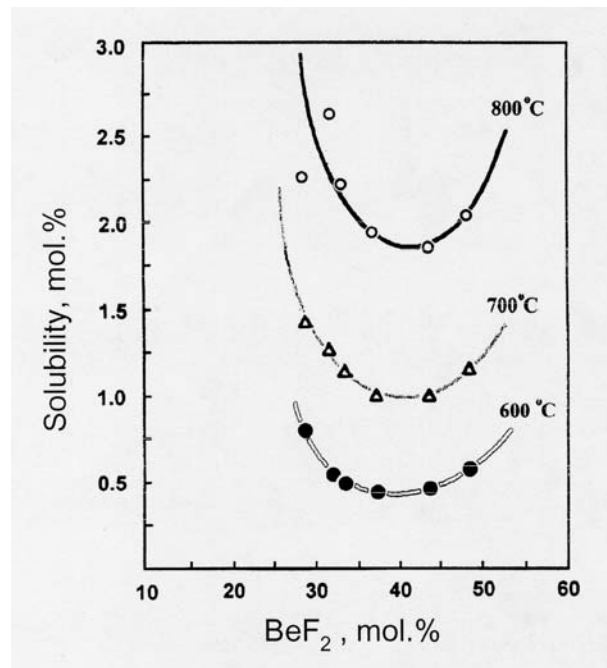


FIG. 6.10 – Solubilité du  $\text{PuF}_3$  dans le sel  $\text{LiF}-\text{BeF}_2$  [63].

De ce premier constat ressort la nécessité d'adapter l'usine de retraitement à l'importance de l'inventaire initial de plutonium, afin d'en extraire le moins possible. On suppose dans la suite que le plutonium est en permanence maintenu dans le sel combustible, par exemple par le biais de sa fluoration, suivie de sa réinjection, avec l'uranium avant l'extraction réductrice des autres actinides. Pour simplifier l'étude, nous allons à présent comparer trois transitions caractéristiques, basées sur le Pu UOX 5, le Pu UOX 50 (influence de la décroissance du  $^{241}\text{Pu}$ ), et enfin le Pu MOX 50 (influence du recyclage MOX). Pour ce dernier se pose le problème de la solubilité limitée du plutonium dans le sel retenu ( $4\text{LiF} - \text{BeF}_2$ , avec 12.5% de  $(\text{Th}+\text{Pu})\text{F}_4$ ). A partir des données disponibles pour le sel  $\text{LiF}-\text{BeF}_2$  pur (figure 6.10), on estime que la concentration maximale de plutonium dans le sel, acceptable au démarrage, est de quelques pourcents. Cette limite est pessimiste, dans la mesure où la faible proportion de  $\text{BeF}_2$  dans le sel utilisé tend à augmenter la solubilité du plutonium dans notre cas. Le cas  $\text{Th}/\text{Pu}$  MOX 50  $\rightarrow$   $^{233}\text{U}$  se situe juste à la limite de solubilité, avec une concentration en  $\text{PuF}_3$  d'environ 3% au démarrage. On le conserve comme transition caractéristique intéressante à étudier, mais ce problème de solubilité constitue une première raison de préférer le Pu UOX au Pu MOX.

	Pu UOX, $T_{ref} = 5$ ans			Pu UOX, $T_{ref} = 50$ ans			Pu MOX, $T_{ref} = 50$ ans		
	$\sigma_{cap}$	$\sigma_{fis}$	$N$ (kg)	$\sigma_{cap}$	$\sigma_{fis}$	$N$ (kg)	$\sigma_{cap}$	$\sigma_{fis}$	$N$ (kg)
$^{238}\text{Pu}$	13.7	1.78	110	9.3	1.70	190	6.4	1.63	620
$^{239}\text{Pu}$	24.4	42.0	1940	13.4	23.1	4630	8.2	14.1	7700
$^{240}\text{Pu}$	48.3	0.36	910	24.5	0.37	2200	10.5	0.39	6620
$^{241}\text{Pu}$	16.7	50.4	460	10.7	33.4	130	7.3	23.4	320
$^{242}\text{Pu}$	27.3	0.25	290	17.2	0.26	690	7.1	0.28	2620
total Pu	29.2	28.3	3710	16.7	14.4	7840	8.8	6.7	17880

TAB. 6.2 – Sections efficaces moyennes de capture  $\sigma_{cap}$  et de fission  $\sigma_{fis}$  (barn) et inventaires  $N$  (kg) des isotopes du plutonium au démarrage de trois RSF  $\text{Th}/\text{Pu} \rightarrow ^{233}\text{U}$ .

Pour les trois types de plutonium retenus, le tableau 6.2 fournit les sections efficaces moyennes de capture et de fission de chaque isotope au démarrage du système. On constate que les sections efficaces globales du plutonium sont réduites environ de moitié lorsqu'on passe du Pu UOX 5 au Pu UOX 50, et du Pu UOX 50 au Pu MOX 50. Ce durcissement progressif du spectre explique que les inventaires initiaux de plutonium correspondants soient à peu près doublés (de 3.7 t à 7.8 t, et de 7.8 t à 17.9 t). Dans tous les cas, les sections efficaces moyennes rejoignent progressivement les valeurs de l'équilibre  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ .

Le spectre moyen dans le sel, durci par le plutonium initial, converge vers le spectre plus doux de l'équilibre  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ . La comparaison des spectres au démarrage (figure 6.11) montre que les niveaux de flux sont identiques aux énergies supérieures au keV, et restent proches jusqu'à

quelques eV. La forte résonance de capture à 1 eV du  $^{240}\text{Pu}$  explique qu'aux énergies inférieures le niveau de flux est d'autant plus faible que la proportion de  $^{240}\text{Pu}$  est importante dans le plutonium initial. Cet effet explique le durcissement du spectre observé, responsable de l'augmentation de l'inventaire initial de plutonium. On remarque à 0.3 eV l'empreinte de la résonance d'absorption du  $^{239}\text{Pu}$ . Les spectres initiaux des transitions utilisant du Pu UOX 5, du Pu UOX 50 et du Pu MOX 50 (de valeurs intégrées respectives  $2.9 \cdot 10^{14}$ ,  $2.8 \cdot 10^{14}$  et  $2.6 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ) se déforment au cours du transitoire pour rejoindre le spectre à forte composante thermique de l'équilibre  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  ( $3.2 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ).

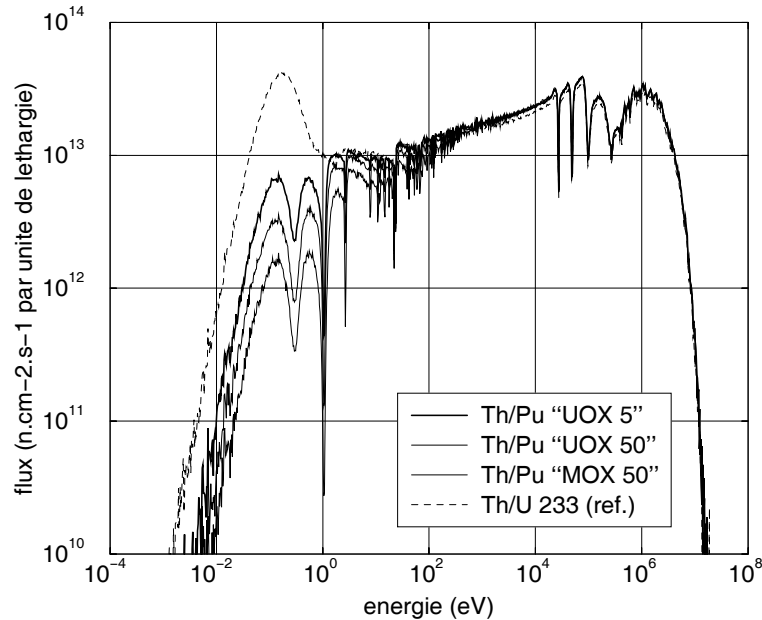


FIG. 6.11 – Spectres moyens dans le sel combustible au démarrage de trois RSF  $\text{Th}/\text{Pu} \rightarrow ^{233}\text{U}$ , comparés au cas de l'équilibre  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ .

La figure 6.12 compare l'évolution des stocks d' $^{233}\text{U}$  surgénéré, accumulés au cours des trois transitoires  $\text{Th}/\text{Pu} \rightarrow ^{233}\text{U}$  comparés. Par rapport au RSF  $\text{Th}/\text{Pu}$  UOX 5  $\rightarrow ^{233}\text{U}$ , la plus grande proportion de  $^{240}\text{Pu}$  dans le Pu UOX 50 explique une production d' $^{233}\text{U}$  plus rapide dès les premières années du transitoire. On constate en effet dans ce cas que la transition se fait sans recours à de l' $^{233}\text{U}$  autre que celui produit par le système, du fait d'un entretien plus efficace de la réactivité par régénération de  $^{241}\text{Pu}$  à partir du  $^{240}\text{Pu}$ . Pour la même raison, le gain sur la production d' $^{233}\text{U}$  au cours des premières années du transitoire est encore amélioré avec le Pu MOX 50, dont l'inventaire initial est cependant plus important, ce qui retarde considérablement la mise à l'équilibre. Le temps de premier doublement est ainsi dans ce cas de 70 ans, soit le double de celui du RSF  $\text{Th}/\text{Pu}$  UOX 5  $\rightarrow ^{233}\text{U}$ . Du point de vue de la vitesse de la transition  $\text{Th}/\text{Pu} \rightarrow ^{233}\text{U}$ , le plutonium de type UOX est donc préférable, et autorise une production d' $^{233}\text{U}$  proche de celle obtenue en cycle  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ .

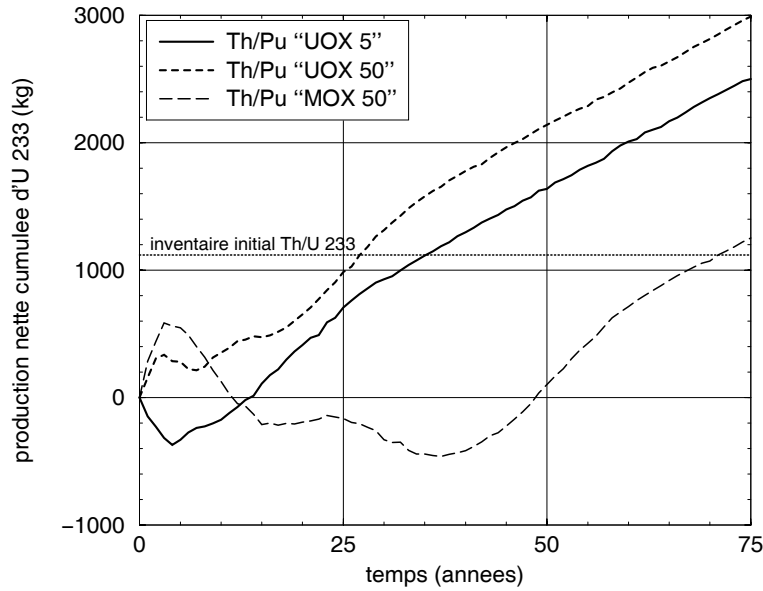


FIG. 6.12 – Production nette d' $^{233}\text{U}$  cumulée au cours de trois transitions  $\text{Th}/\text{Pu} \rightarrow ^{233}\text{U}$ , différant par le type de plutonium utilisé au démarrage.

Pour clore cet aperçu de la régénération en cours de transition  $\text{Th}/\text{Pu} \rightarrow ^{233}\text{U}$ , il est intéressant de mentionner l'influence de l'aménagement d'une zone fertile périphérique, telle qu'elle a été étudiée pour le RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  de référence au chapitre précédent. Nous choisissons pour cela le plutonium UOX 50, qui nous l'avons vu, est le plus intéressant en termes de quantité d' $^{233}\text{U}$  produite. A partir de ce plutonium, nous démarrons un RSF  $\text{Th}/\text{Pu} \rightarrow ^{233}\text{U}$  avec le même cœur à zone fertile périphérique que celui précédemment étudié. On rappelle que la zone fissile centrale regroupe 138 canaux de 12 cm de diamètre, et la zone fertile périphérique 114 canaux de 18 cm de diamètre. Avec cette géométrie de cœur, le spectre au démarrage est plus doux que dans le cas de référence à zone unique. Les sections efficaces moyennes de capture et de fission du plutonium sont alors environ quatre fois plus élevées (respectivement 58.3 barn pour la capture et 57.0 barn pour la fission), ce qui ramène l'inventaire initial nécessaire à 2.1 t, au lieu des 7.8 t pour le démarrage du  $\text{Th}/\text{Pu}$  UOX 50  $\rightarrow ^{233}\text{U}$  à zone unique.

La production d' $^{233}\text{U}$  diminue avec l'inventaire initial de plutonium, dans la mesure où le système régénère moins de  $^{241}\text{Pu}$  par capture sur le  $^{240}\text{Pu}$ . Alors que le RSF  $\text{Th}/\text{Pu}$  UOX 50  $\rightarrow ^{233}\text{U}$  à zone unique assure la transition sans apport extérieur d' $^{233}\text{U}$ , le système à zone fertile périphérique est ainsi consommateur net d' $^{233}\text{U}$  pendant les 15 premières années (figure 6.13). Le taux de régénération plus élevé en  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  de la configuration à zone fertile ne devient effectif qu'après une cinquantaine d'années. Le recours à cette méthode n'est donc intéressant qu'une fois le plutonium initial incinéré et l'équilibre  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  à peu près atteint.

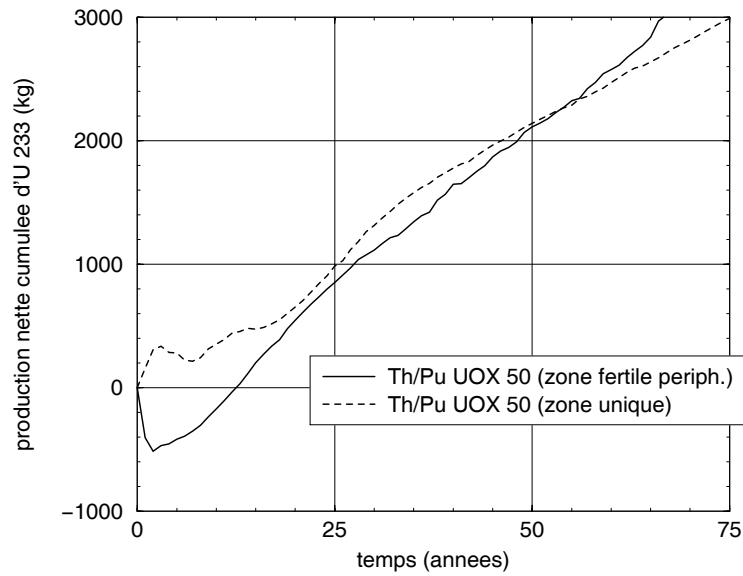


FIG. 6.13 – Influence de l'aménagement d'une zone fertile périphérique sur la production d' $^{233}\text{U}$  cumulée au cours de la transition  $\text{Th}/\text{Pu UOX } 50 \rightarrow ^{233}\text{U}$ .

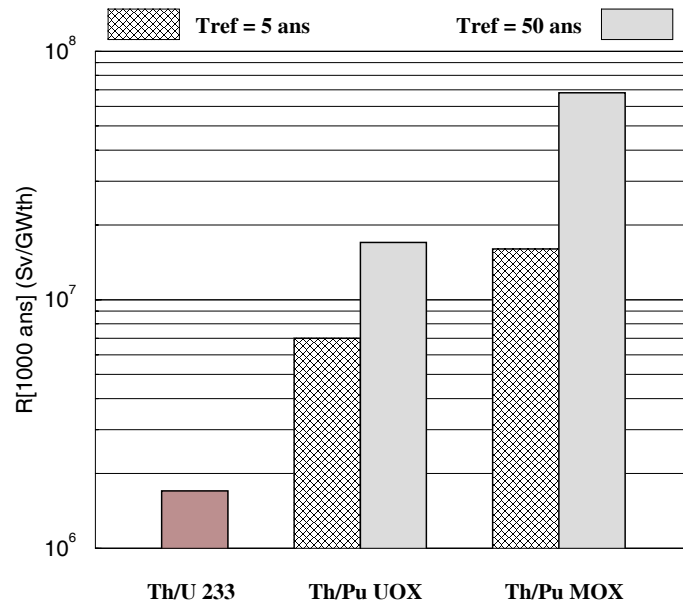


FIG. 6.14 – Comparaison au cas  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  des radiotoxicités des rejets d'actinides des transitions  $\text{Th}/\text{Pu UOX} \rightarrow ^{233}\text{U}$  et  $\text{Th}/\text{Pu MOX} \rightarrow ^{233}\text{U}$ , pour 200 ans de production d'énergie et après 1000 ans de décroissance, selon le temps de refroidissement  $T_{ref}$  du plutonium.

- Radiotoxicité totale des rejets d'actinides

La figure 6.14 montre que la radiotoxicité des rejets d'actinides après 1000 ans de décroissance est, par rapport au cas  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ , 10 fois plus élevée pour la transition Th/Pu UOX 50  $\rightarrow$   $^{233}\text{U}$ , et 40 fois plus élevée pour la transition Th/Pu MOX 50  $\rightarrow$   $^{233}\text{U}$ . On remarque que le Pu MOX 5 génère une radiotoxicité légèrement moindre que le Pu UOX 50, du fait d'un inventaire initial plus faible. Mais cette transition produit moins d' $^{233}\text{U}$ , avec un temps de premier doublement d'une cinquantaine d'années contre moins de 30 ans avec le Pu UOX 50. D'un point de vue général, le plutonium le mieux adapté à la transition Th/Pu  $\rightarrow$   $^{233}\text{U}$  est clairement de type UOX. Choisir ensuite le temps de refroidissement de ce type de plutonium doit résulter d'un compromis entre la vitesse de transition souhaitée et le niveau acceptable de radiotoxicité générée par les pertes au retraitement.

### 6.1.2 Utilisation d'uranium enrichi à 33% en $^{235}\text{U}$

#### a - Transition Th/ $^{enr}\text{U}$ $\rightarrow$ $^{233}\text{U}$

Le système présenté ici est démarré avec un inventaire initial d'uranium enrichi à 33% en  $^{235}\text{U}$ , toujours dans le but de rejoindre progressivement l'équilibre  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ . Cet enrichissement de 33% résulte d'un compromis entre une valeur suffisante pour démarrer et opérer une transition la plus rapide possible, et une valeur limitée par des contraintes de non-prolifération et d'entretien de la réactivité par production de  $^{239}\text{Pu}$  à partir de l' $^{238}\text{U}$ .

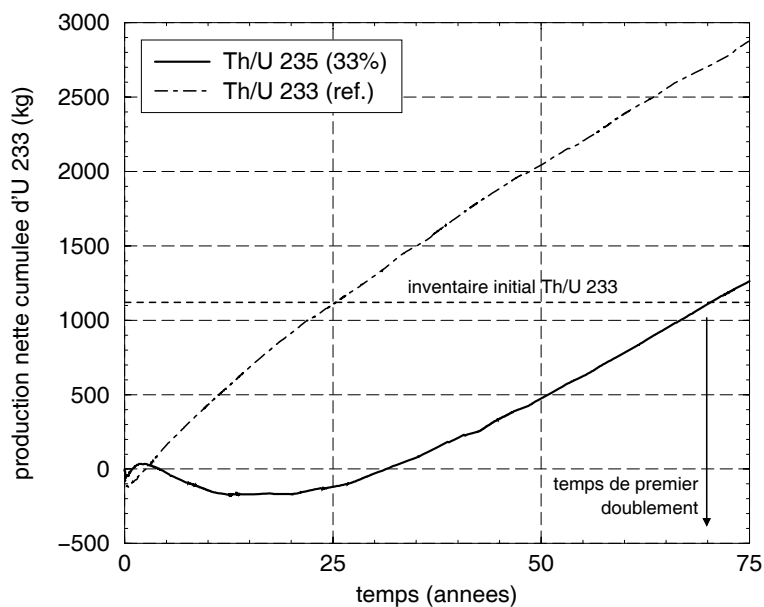


FIG. 6.15 – Production nette d' $^{233}\text{U}$  accumulée au cours de la transition Th/ $^{enr}\text{U}$  (33%)  $\rightarrow$   $^{233}\text{U}$ , comparée au cas  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  de référence.



Pour rendre le système critique au démarrage en remplaçant l' $^{233}\text{U}$  par de l'uranium enrichi à 33%, 1.98 t d' $^{235}\text{U}$  sont nécessaires, soit un total de 6.06 t d'uranium. A partir de ce seul apport fissile initial d' $^{235}\text{U}$ , le but est toujours d'atteindre le plus rapidement possible l'état d'équilibre  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ . Cet objectif revient à accumuler en cours de transition un stock d' $^{233}\text{U}$  qui soit le plus proche possible de celui constitué lors d'un démarrage directement à l' $^{233}\text{U}$ . La figure 6.15 montre que le stock d' $^{233}\text{U}$  en excès reste négatif (traduisant le recours à un léger apport extérieur d' $^{233}\text{U}$ ) ou nul pendant plus des 30 premières années de la transition  $\text{Th}/^{enr}\text{U} \rightarrow ^{233}\text{U}$ . Il faut attendre une cinquantaine d'années pour que le taux de production d' $^{233}\text{U}$  soit celui du transitoire  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ . La quantité nécessaire pour démarrer un RSF à l' $^{233}\text{U}$  n'est ainsi atteinte qu'au bout de 70 ans environ (temps de premier doublement).

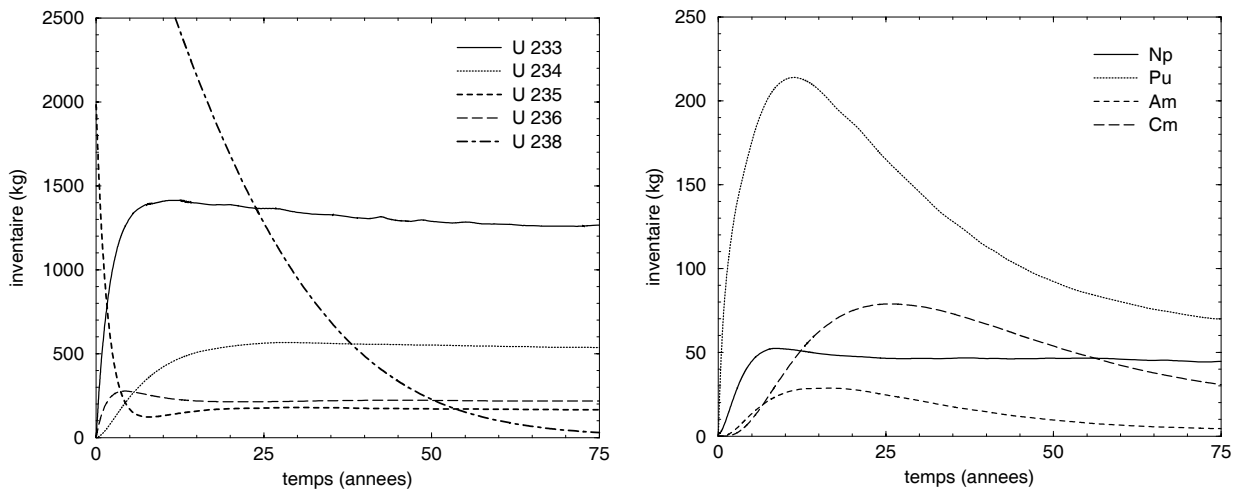


FIG. 6.16 – Evolution des inventaires d'uranium et de transuraniens au cours de la transition  $\text{Th}/^{enr}\text{U}$  (33%)  $\rightarrow ^{233}\text{U}$ .

Pour comprendre les raisons d'un tel "manque à gagner" en  $^{233}\text{U}$ , il est utile de détailler l'évolution des quantités de chaque actinide dans le sel combustible (figure 6.16). Les inventaires des isotopes de l'uranium rejoignent tous leur valeur d'équilibre en une cinquantaine d'années, à l'exception de l' $^{238}\text{U}$  initial qui n'a toujours pas disparu à  $t = 75$  ans. Les transuraniens formés par captures successives sur l'uranium sont 10 fois moins importants en masse que l'uranium, mais tous leurs transitoires s'étalent sur plusieurs dizaines d'années. Par ordre d'importance apparaît d'abord le plutonium formé à partir de l' $^{238}\text{U}$ , puis le neptunium provenant des captures sur l' $^{235}\text{U}$ , et enfin l'américium et le curium. On se rend compte que c'est essentiellement le plutonium, dont une partie est également produite après le démarrage par capture sur le neptunium issu de l' $^{235}\text{U}$ , qui ralentit la mise à l'équilibre et donc la production d' $^{233}\text{U}$ .

## b - Comparaison à la transition Th/Pu UOX 5 $\rightarrow$ $^{233}\text{U}$

Pour mieux apprécier le retard induit par la présence initiale d'uranium enrichi, il peut s'avérer intéressant de comparer du point de vue des captures parasites la transition  $\text{Th}/^{enr}\text{U} \rightarrow ^{233}\text{U}$  à une transition  $\text{Th}/\text{Pu} \rightarrow ^{233}\text{U}$  plus efficace. Nous nous baserons dans la suite sur celle utilisant du Pu d'origine UOX fraîchement refroidi (5 ans). Une première indication est celle de la radiotoxicité totale induite par les rejets produits au cours de la mise à l'équilibre du système. Ainsi, pour 200 ans de production d'énergie, et 1000 ans après le retraitement, le RSF démarré avec de l'uranium enrichi à 33% génère une radiotoxicité de  $4.4 \cdot 10^6$  Sv/GWth, contre  $7.0 \cdot 10^6$  Sv/GWth pour le RSF  $\text{Th}/\text{Pu} \rightarrow ^{233}\text{U}$  choisi, et  $1.7 \cdot 10^6$  Sv/GWth pour le RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ .

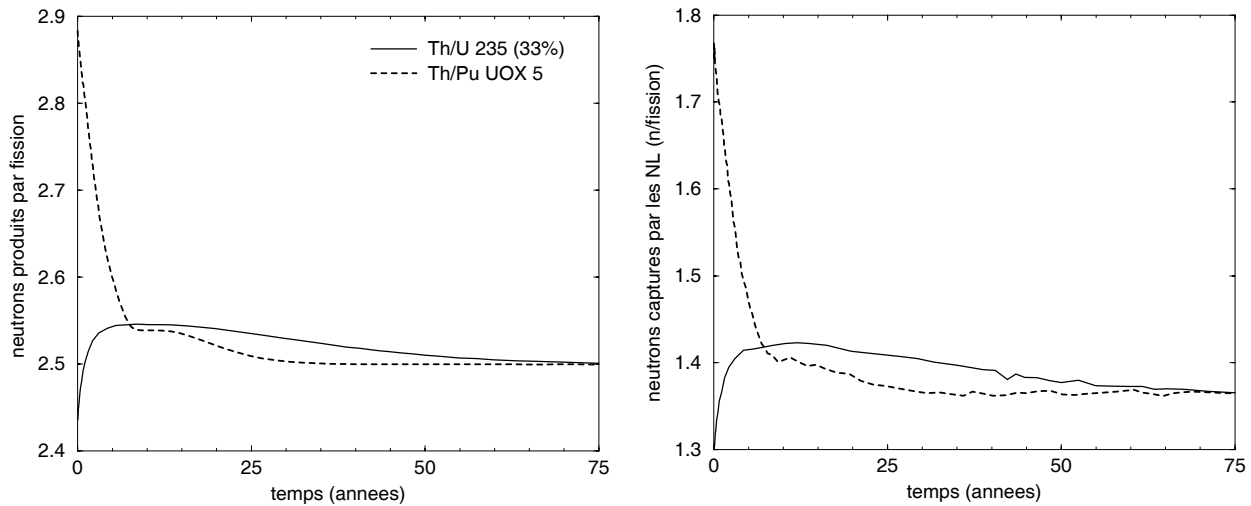


FIG. 6.17 – Nombre moyen  $\nu$  de neutrons produits par fission, et nombre de ces neutrons capturés par les noyaux lourds du sel dans le cas des deux transitions comparées.

Le graphe de gauche de la figure 6.17 représente l'évolution du nombre moyen  $\nu$  de neutrons produits par fission pour chaque transition. Mis à part un excès d'environ 0.3 neutron par fission pour la transition  $\text{Th}/\text{Pu} \rightarrow ^{233}\text{U}$  au démarrage (dû à la prédominance des fissions du plutonium), les valeurs de  $\nu$  sont comparables, avec même un léger avantage pour la transition  $\text{Th}/^{enr}\text{U} \rightarrow ^{233}\text{U}$  (fission du plutonium répartie sur l'ensemble de la transition). Le graphe de droite de la figure 6.17 représente le nombre de neutrons par fission capturés par les actinides. La différence entre  $\nu$  et ce dernier nombre est simplement la somme des autres taux d'absorption dans le sel, le graphite et le carbure de bore (valeur constante d'environ 1.1 n/fission). Le nombre total de neutrons par fission disponibles pour les captures dans le thorium et les autres actinides au cours de la transition  $\text{Th}/^{enr}\text{U} \rightarrow ^{233}\text{U}$  est donc sensiblement le même que dans le cas  $\text{Th}/\text{Pu} \rightarrow ^{233}\text{U}$ . La figure 6.18 fournit pour chaque transition les taux de capture dominants dans les actinides autres que le thorium. La transition  $\text{Th}/\text{Pu} \rightarrow ^{233}\text{U}$  consomme rapidement le

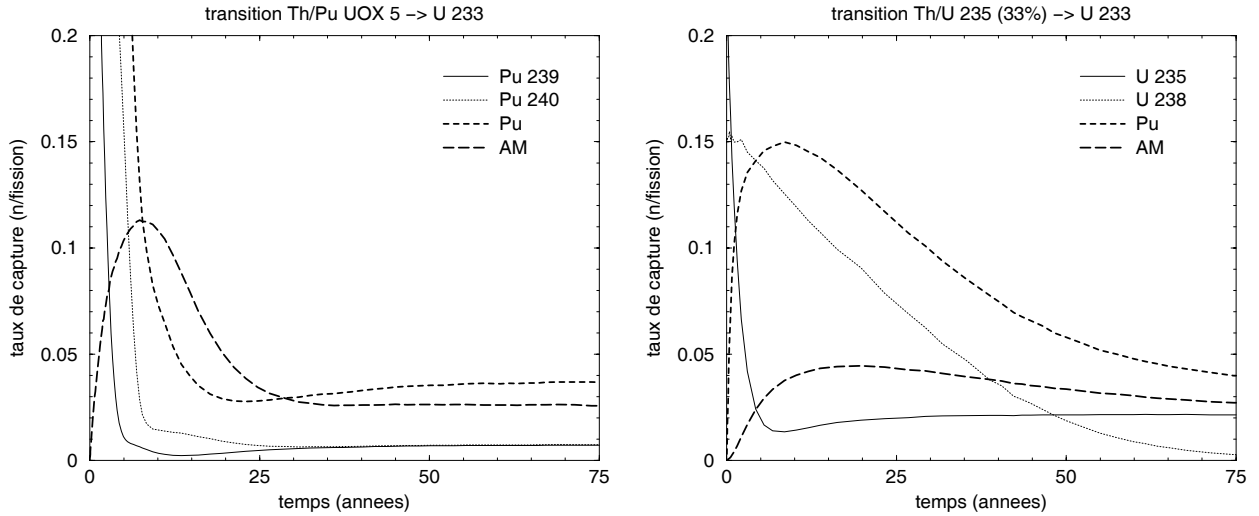
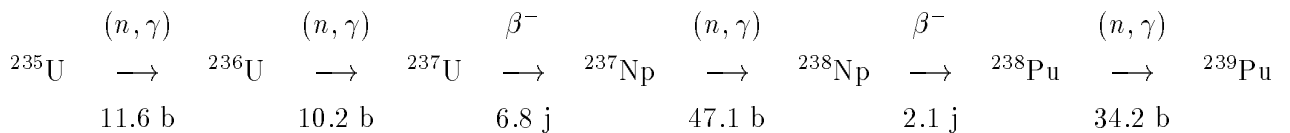


FIG. 6.18 – Principaux taux de capture intervenant dans la transition  $Th/^{enr}U \rightarrow ^{233}U$ , comparée à la transition  $Th/Pu UOX 5 \rightarrow ^{233}U$ .

plutonium par fission du  $^{239}Pu$  et du  $^{241}Pu$ , en attendant que l' $^{233}U$  en cours de formation prenne le relais. La régénération du  $^{241}Pu$  par capture sur le  $^{240}Pu$  permet de maintenir la réactivité constante en minimisant l'apport extérieur d' $^{233}U$ .

Dans le cas du démarrage à l'uranium enrichi, les captures parasites sont plus gênantes, car elles sont à la fois plus importantes et plus longues à disparaître. D'une part, comme l' $^{238}U$  qui le produit par capture, le  $^{239}Pu$  disparaît lentement, ce qui contribue à allonger le transitoire. D'autre part, l' $^{235}U$  présente une capture parasite plus coûteuse que celle sur le  $^{239}Pu$  dans la transition  $Th/Pu \rightarrow ^{233}U$ . En effet, un noyau de  $^{239}Pu$  peut produire un noyau fissile de  $^{241}Pu$  si une seconde capture suit la première capture parasite. Pour redonner un noyau fissile à partir d'un noyau d' $^{235}U$ , il faut enchaîner 4 captures successives:



Les sections efficaces indiquées sont celles au démarrage de la transition  $Th/^{enr}U \rightarrow ^{233}U$ . Rapportée au nombre de fissions, une capture parasite dans l' $^{235}U$  coûte donc bien deux fois plus cher qu'une capture parasite dans le  $^{239}Pu$ . Le taux de capture du  $^{238}Pu$  s'équilibre en une dizaine d'années avec celui de l' $^{235}U$ , si bien qu'alors le taux de capture de l' $^{235}U$  devient également son taux de production de  $^{239}Pu$ . A  $t = 25$  ans, le taux de production de  $^{239}Pu$  par l' $^{238}U$  est 4 fois supérieur à celui par l' $^{235}U$ , mais le coût neutronique parasite est le même, du fait des 4 captures successives nécessaires à partir de l' $^{235}U$ .

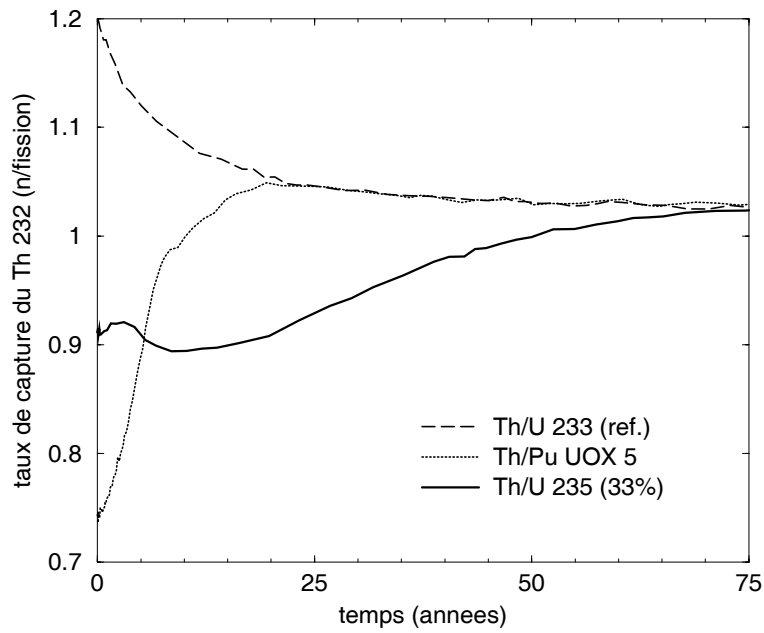


FIG. 6.19 – Evolution du taux de capture du  $^{232}\text{Th}$  suivant le type de transition effectuée.

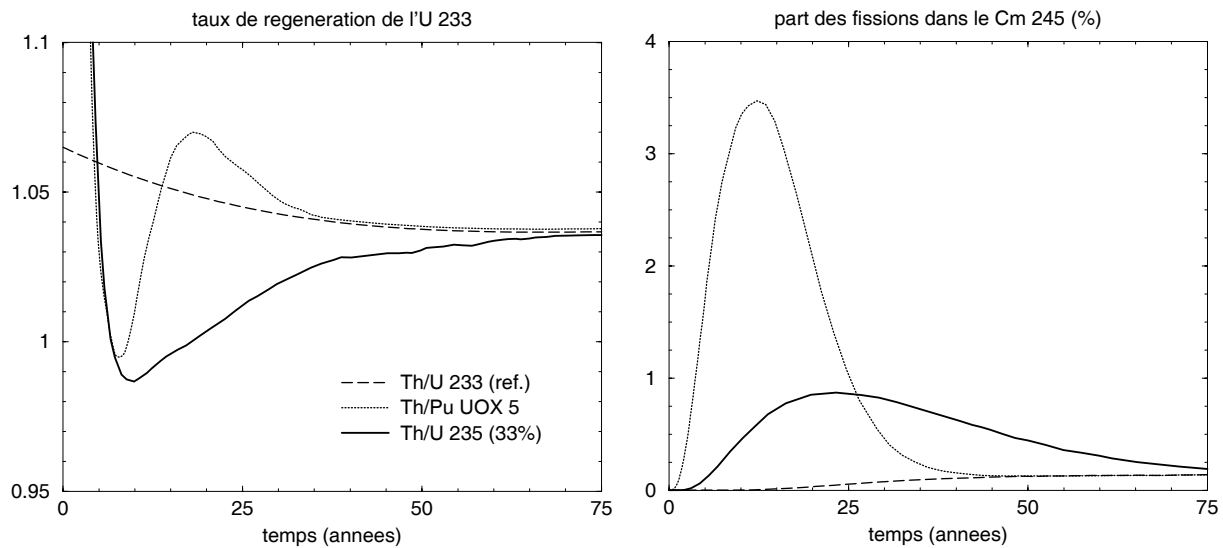


FIG. 6.20 – Evolution du taux de régénération de  $^{233}\text{U}$  dans le système démarré à l'uranium enrichi, comparée au cas des démarrages à  $^{233}\text{U}$  et au Pu issu de combustible UOX usé et refroidi 5 ans. On remarque la contribution temporaire du  $^{245}\text{Cm}$  à la fission (à droite).

Le taux de capture parasite plus important dans la transition  $\text{Th}/^{enr}\text{U} \rightarrow ^{233}\text{U}$  conduit à un taux de capture sur le thorium plus faible que dans les transitions  $\text{Th}/\text{Pu} \rightarrow ^{233}\text{U}$  et  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  (figure 6.19). On retrouve ainsi sur le taux de régénération les mêmes temps caractéristiques, observés pour le taux de capture du thorium, que mettent les transitions étudiées pour rejoindre le régime de régénération du RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ , soit une trentaine d'années pour  $\text{Th}/\text{Pu} \rightarrow ^{233}\text{U}$  et le double pour  $\text{Th}/^{enr}\text{U} \rightarrow ^{233}\text{U}$  (figure 6.20). Le passage d'une pente négative à une pente positive du taux de régénération se fait au moment où, par noyau d' $^{233}\text{U}$  consommé, les captures parasites ont suffisamment diminué pour que le taux de production d' $^{233}\text{U}$  par capture sur le  $^{232}\text{Th}$  augmente. Dans les deux transitions, la fission des actinides mineurs est dominée à plus de 90% par le  $^{245}\text{Cm}$ , qui atténue temporairement la consommation d' $^{233}\text{U}$ , et donc contribue à l'augmentation du taux de régénération précédant sa stabilisation (figure 6.20).

## 6.2 Capacités incinératrices des RSF à sels fluorures

Nous avons montré qu'une partie du plutonium des combustibles REP usés peut être facilement utilisée pour démarrer des RSF, et assurer leur transition au cycle thorium. Avant d'envisager plus en détail des scénarios de transition basés sur ce fonctionnement, il convient d'étudier les utilisations possibles des RSF à sels fluorures et à modérateur graphite pour l'incinération partielle ou totale du plutonium des REP.

### 6.2.1 Incinération de plutonium sur support fertile

Nous allons d'abord examiner les deux modes possibles d'incinération partielle du plutonium sur support fertile (support thorium, puis uranium), en gardant à l'esprit que la composante thermique du spectre en RSF peut poser des problèmes d'accumulation de transuraniens.

#### a - Support thorium

Avec le support thorium, l'idée est d'adapter le fonctionnement  $\text{Th}/\text{Pu} \rightarrow ^{233}\text{U}$  afin d'obtenir un incinérateur de plutonium, désigné par analogie par le terme "Th/Pu". Dans ce cas, un inventaire initial de plutonium permet de démarrer le système, qu'on alimente ensuite de façon continue en plutonium afin de maintenir la réactivité constante.

##### • Principe du mode incinérateur

Dans l'optique de l'incinération des stocks anciens de Pu UOX, on n'utilise pour cet incinérateur que du Pu UOX 50 décrit précédemment. Le sel combustible est le sel FLiBe de référence et le système a les mêmes caractéristiques que le RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  de référence. On rappelle que dans ces conditions, 7.84 t de plutonium du type choisi sont nécessaires pour démarrer. L'état initial est le même que celui du RSF  $\text{Th}/\text{Pu} \rightarrow ^{233}\text{U}$  utilisant le même plutonium. La durée

totale du retraitement  $T$  est allongée de 10 à 100 jours, car l'objectif n'est plus ici d'optimiser la surgénération de  $^{233}\text{U}$ , que l'on va se contenter de régénérer. Ainsi, tous les actinides sont maintenus dans le sel, y compris le protactinium et le neptunium. L'inventaire total de noyaux lourds est maintenu constant par ajustement de l'alimentation en thorium.

### • Résultats de l'évolution

Le fonctionnement de ce réacteur est simulé jusqu'à la mise à l'équilibre complète, qui se fait en une cinquantaine d'années. Du fait du retraitement plus lent, l'inventaire des produits de fission se stabilise sur cette période à 1.7 t, avec une section efficace moyenne de capture de 1.8 barn. Comme dans le fonctionnement  $\text{Th}/\text{Pu} \rightarrow ^{233}\text{U}$ , l'inventaire initial de plutonium diminue (figure 6.21). Mais du fait du pilotage de la réactivité par ajout non plus d' $^{233}\text{U}$  mais de plutonium, le système converge vers un état d'équilibre différent de l'équilibre  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ .

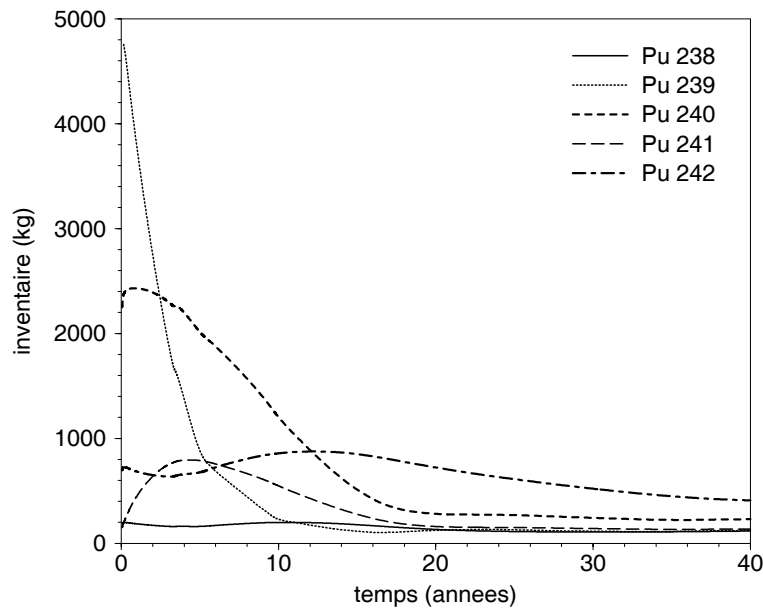


FIG. 6.21 – Evolution des inventaires de plutonium dans l'incinérateur  $\text{Th}/\text{Pu}$  (type  $\text{UOX}$ , 50 ans de refroidissement).

L'équilibre  $\text{Th}/\text{Pu}$  est entre autres caractérisé par un inventaire de plutonium plus important d'environ 1 t, contre un peu moins de 70 kg pour l'équilibre  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ . Le tableau 6.3 compare les caractéristiques des isotopes du plutonium au démarrage et à l'équilibre. On remarque d'abord que les sections efficaces moyennes à l'équilibre sont plus importantes, traduisant un léger adoucissement du spectre. Cet effet est dû à la diminution du taux de capture dans certains isotopes du plutonium, dont les résonances situées à des énergies de l'ordre de l'eV piègent les neutrons en cours de ralentissement, et dépeuplent ainsi la région thermique du spectre. Le taux de capture global du  $^{240}\text{Pu}$ , qui présente une forte résonance de capture à 1 eV, est par

exemple divisé par un peu plus de 3 au cours du régime transitoire. La diminution importante de l'inventaire de plutonium s'accompagne d'une modification de sa nature, et plus précisément de sa qualité fissile. La proportion molaire d'isotopes fissiles du plutonium ( $^{239}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Pu}$ ) passe ainsi de 60.8% au démarrage à seulement 26.5% à l'équilibre.

	t = 0			t = 50 ans		
	$\sigma_{cap}$	$\sigma_{fis}$	M (kg)	$\sigma_{cap}$	$\sigma_{fis}$	M (kg)
$^{238}\text{Pu}$	9.3	1.7	190	19.7	1.9	130
$^{239}\text{Pu}$	13.4	23.1	4630	55.2	90.7	130
$^{240}\text{Pu}$	24.5	0.37	2200	71.4	0.36	240
$^{241}\text{Pu}$	10.7	33.4	130	30.3	85.5	140
$^{242}\text{Pu}$	17.2	0.26	690	18.2	0.24	380
total Pu	16.7	14.4	7840	37.3	23.9	1020

TAB. 6.3 – Sections efficaces moyennes (barn) et inventaires (kg) des isotopes du plutonium au démarrage et à l'équilibre de l'incinérateur à support thorium.

A partir du  $^{232}\text{Th}$ , dont l'inventaire passe de 60 t au démarrage à 64 t à l'équilibre, le système génère de  $^{233}\text{U}$ , qui participe majoritairement aux fissions à l'équilibre. Son inventaire, ainsi que celui des autres isotopes de l'uranium produit par captures successives, sont représentés sur la figure 6.22. A l'équilibre, 3.1 t d'uranium sont dans le sel, dont 1.8 t d' $^{233}\text{U}$ . A  $t = 10$  ans, on remarque que l'inventaire d' $^{233}\text{U}$  passe par un maximum (2.1 t), du fait d'une contribution encore importante du plutonium aux fissions (environ 40%, soit le double de l'équilibre). A partir de l'uranium se forme du  $^{237}\text{Np}$ , dont l'inventaire reste limité à l'équilibre (65 kg contre 44 kg à l'équilibre  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ ). Les autres actinides mineurs (essentiellement américium et curium) sont produits progressivement à partir du plutonium (figure 6.23). Le  $^{244}\text{Cm}$  est majoritaire, passant par un maximum (600 kg) à  $t = 25$  ans. L' $^{241}\text{Am}$  n'est pas représenté : son inventaire passe par un maximum (80 kg) à  $t = 5$ ans, puis se stabilise à 8 kg.

Le bilan neutronique détaillé du tableau 6.4 nous permet d'abord de vérifier qu'à l'équilibre le système régénère exactement l' $^{233}\text{U}$  qu'il consomme (taux de régénération de 1.000 d'après les valeurs du bilan). Par définition de l'équilibre, il ne peut en effet en être autrement, dans la mesure où l' $^{233}\text{U}$  reste intégralement dans le sel combustible. Par rapport à l'équilibre  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ , l' $^{233}\text{U}$  contribue moins aux fissions, au profit du plutonium. Le taux de fission de l' $^{233}\text{U}$  (88% des fissions à l'équilibre  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ ) n'est ainsi que de 65% environ ici. Le plutonium contribue à 22% des fissions, cette proportion étant directement liée au débit de l'alimentation en plutonium du système à l'équilibre. Ce débit d'alimentation, qui est aussi le taux d'incinération du plutonium à l'équilibre, se stabilise ainsi à environ 220 kg/an. Sur les 50 ans de la mise à l'équilibre, 11.0 t de plutonium sont introduites dans le système, auxquelles il faut ajouter la

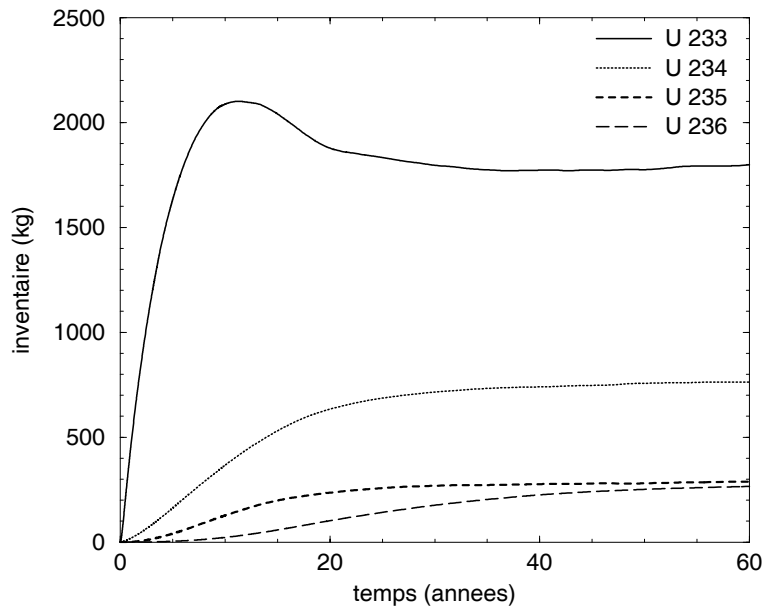


FIG. 6.22 – Evolution des inventaires d'uranium dans l'incinérateur Th/Pu (type UOX, 50 ans de refroidissement).

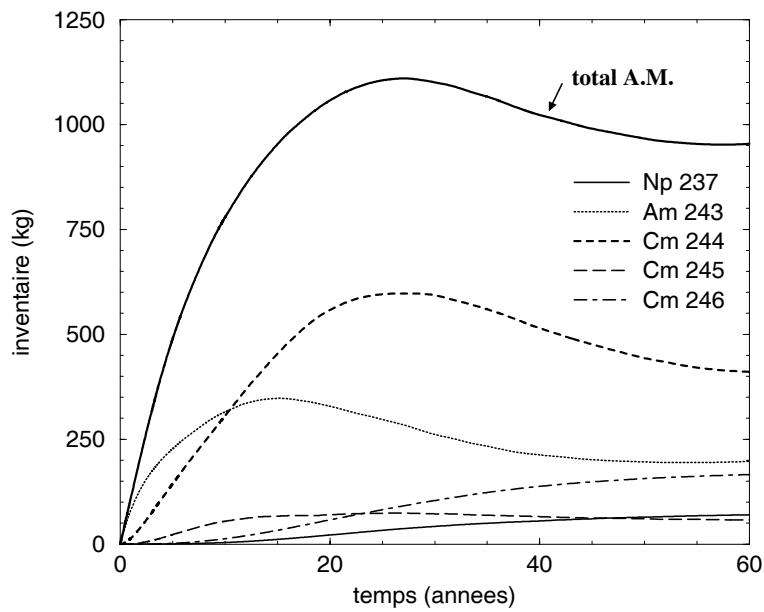


FIG. 6.23 – Evolution des principaux inventaires d'actinides mineurs dans l'incinérateur Th/Pu (type UOX, 50 ans de refroidissement).



Réaction	Production	Consommation	
<i>fission</i>	2.628	1.000	<sup>232</sup> Th 0.007
			<sup>233</sup> U <b>0.646</b>
			autres U 0.080
			<b>Pu 0.217</b>
			Am 0.001
			Cm 0.048
			Cf 0.001
<i>(n, 2n)</i>	0.026	0.013	<sup>9</sup> Be 0.012 <sup>232</sup> Th 0.001
<i>(n, γ)</i>	-	1.549	Li + Be + F 0.016
			PF 0.057
			<sup>232</sup> Th <b>0.746</b>
			<sup>231</sup> Pa 0.001
			<sup>233</sup> Pa <b>0.014</b>
			<sup>233</sup> U <b>0.086</b>
			autres U 0.138
			<sup>237</sup> Np 0.018
			<b>Pu 0.339</b>
			Am 0.069
Cm 0.062			
Bk 0.001			
Cf 0.002			
<i>(n, α)</i>	-	0.021	Li + Be + F 0.021
<i>(n, p)</i>	-	0.001	<sup>19</sup> F 0.001
<i>(n, γ)</i> graphite	-	0.041	coeur 0.022
			réflecteurs 0.019
<i>(n, α)</i> B <sub>4</sub> C ( <sup>10</sup> B)	-	0.029	échangeur 0.028
			enceinte 0.001
<i>fuite</i>	-	0.000	-
<i>total</i>	2.654	2.654	-

TAB. 6.4 – Bilan neutronique détaillé de l'incinérateur Th/Pu UOX 50 à l'équilibre.

proportion incinérée de l'inventaire initial de plutonium, ce qui donne un total de 17.8 t incinérées, et donc un taux d'incinération moyen sur les cinquante premières années de 360 kg/an. En 100 ans de fonctionnement, on peut donc incinérer 29 t de plutonium issu de combustible REP UOX usé, et laissé refroidir 50 ans ou plus.

## b - Support uranium

On vient de voir que le fonctionnement du RSF à support thorium en incinérateur de plutonium est intéressant. En remplaçant le plutonium ajouté par de l' $^{233}\text{U}$ , il est en outre possible de rejoindre l'équilibre  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  par une transition de type  $\text{Th}/\text{Pu} \rightarrow ^{233}\text{U}$ . Si le thorium est remplacé par de l'uranium naturel pour jouer le rôle de support fertile, la quantité de transuraniens risque d'augmenter fortement, au-delà des limites de solubilité du plutonium dans le sel utilisé. Pour s'en convaincre, nous avons simulé le même type de fonctionnement incinérateur, en ramenant la durée de retraitement  $T$  à 10 jours afin d'accélérer la mise à l'équilibre, et en remplaçant le sel FLiBe à support thorium de référence par un sel d'uranium naturel; 61% LiF - 21% BeF<sub>2</sub> - 18% (U/Pu)F<sub>4</sub>, de densité 3.6 g/cm<sup>3</sup> à 900 K [26]. Le plutonium choisi pour cette étude est également de type UOX, mais on préfère au Pu "UOX 50" le Pu "UOX 5", plus riche en isotopes fissiles, afin de réduire l'inventaire de plutonium dès le démarrage. Le sel combustible est alors constitué de 82 t d'uranium naturel et d'environ 4 t de Pu UOX 5.

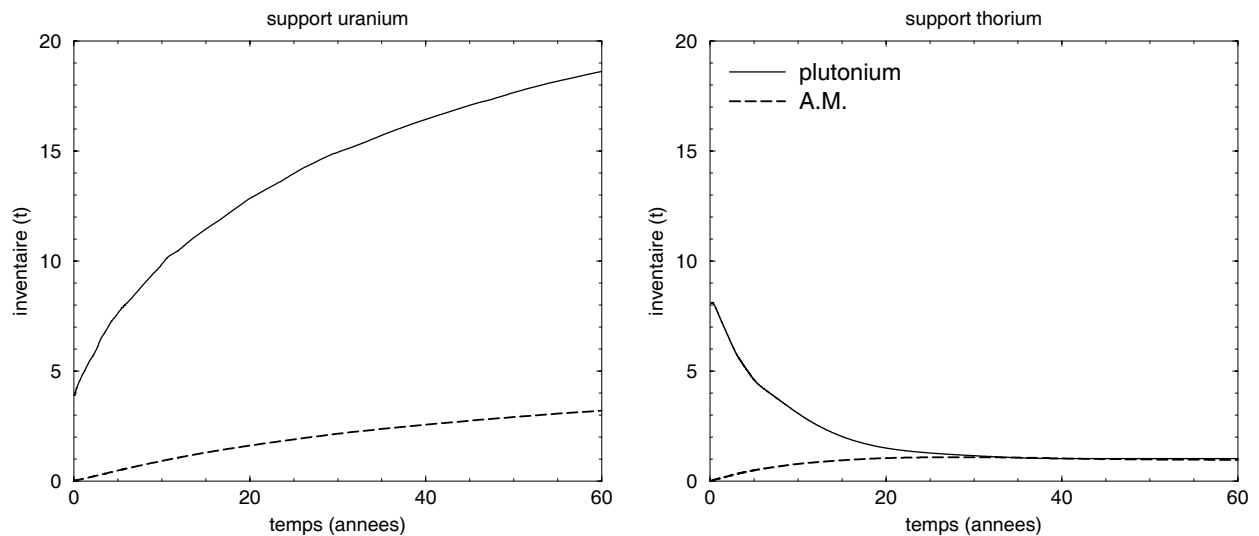


FIG. 6.24 – Comparaison des inventaires de plutonium et d'actinides mineurs dans l'incinérateur à support uranium par rapport au support thorium.

La figure 6.24 compare l'évolution des inventaires de plutonium et d'actinides mineurs dans ce système au cas de l'incinérateur à support thorium. L'accumulation de ces éléments est bien

trop élevée avec le support uranium, alors que l'inventaire de transuraniens se stabilise à moins de 2 t dans le cas du support thorium. A  $t = 50$  ans, l'inventaire de plutonium est d'environ 18 t, ce qui correspond à la masse initiale de plutonium dans le sel du système Th/Pu  $\rightarrow$   $^{233}\text{U}$  démarré avec du Pu MOX 50. Nous avons vu que ce cas se situe à la limite de solubilité du plutonium dans le sel, mais reste envisageable car ne concerne que le démarrage du système dans lequel le plutonium est rapidement incinéré. Ici, cette limite est plus gênante, dans la mesure où elle est atteinte progressivement, et suffit pour conclure que ce système est inadapté à l'incinération de plutonium. Remarquons que 34 t de plutonium sont introduites dans le système au cours des cinquante premières années. L'inventaire de plutonium passant de 4 t à 18 t, et celui des actinides mineurs de 0 t à 3 t, un tel système incinère 17 t de ce plutonium sur cette période, soit 340 kg/an. Ce taux est comparable à celui obtenu en support thorium, qu'on ne peut donc que préférer au support uranium pour l'incinération du plutonium.

## 6.2.2 Incinération de fin de cycle sur support inerte

Le support thorium est particulièrement intéressant s'il s'agit de passer au cycle thorium, tout en incinérant du plutonium à raison de quelques centaines de  $\text{kg}\cdot\text{an}^{-1}\cdot\text{GWe}^{-1}$ . Si c'est par contre la vitesse d'incinération qui prime, il est préférable de recourir à un support inerte, avec lequel le taux d'incinération est maximal. Dans ce cas, la concentration de noyaux lourds dans le sel du RSF à modérateur graphite est plus faible qu'avec un support fertile, et le spectre bien plus doux. Nous allons décrire deux utilisations possibles d'un tel système alliant spectre thermique et retraitement en ligne pour l'extraction exclusive des produits de fission.

### a - Arrêt de la filière REP actuelle

Le premier cadre d'étude est celui d'un arrêt rapide de la production d'énergie nucléaire actuelle, dont on suppose qu'il doit s'accompagner de l'incinération totale du stock de plutonium issu des combustibles REP usés. Nous allons examiner ici ce que peut apporter un RSF à modérateur graphite et retraitement en ligne dans ce contexte.

#### • Présentation du système

Nous reprenons ici les principales caractéristiques du RSF sous-critique proposé par C. Bowman pour l'incinération du plutonium américain, en les adaptant à notre dimensionnement de référence. La puissance totale est ainsi fixée ici à 2500 MWth, alors qu'elle n'est que de 750 MWth dans le concept de C. Bowman. Le but n'est pas ici de comparer notre étude à celle du projet de C. Bowman, mais plutôt de s'en inspirer afin de pouvoir évaluer les performances de notre système de référence pour l'incinération de plutonium sur support inerte. Le dimensionnement retenu pour cette étude est donc celui de référence, avec une proportion volumique de sel en cœur d'environ 30%. La figure 6.25 représente la géométrie utilisée pour les calculs MCNPX de

ce système sous-critique. Un module de spallation est disposé à la place de l'hexagone central de contrôle et des 6 hexagones premiers voisins. Le volume total de sel est donc légèrement plus faible que dans le cas de référence ( $45.5 \text{ m}^3$ ). La cible de spallation en elle-même est modélisée par un cylindre de plomb de 30 cm de rayon, et de 1.5 m de hauteur, dont seul un tiers se situe au-dessus du plan médian du cœur pour tenir compte du décentrage de la source de neutrons de spallation. Cette cible est enveloppée de 5 mm d'acier, et placée sous un tube de 10 cm de rayon, qui amène un faisceau de protons de 1 GeV de rayon moitié.

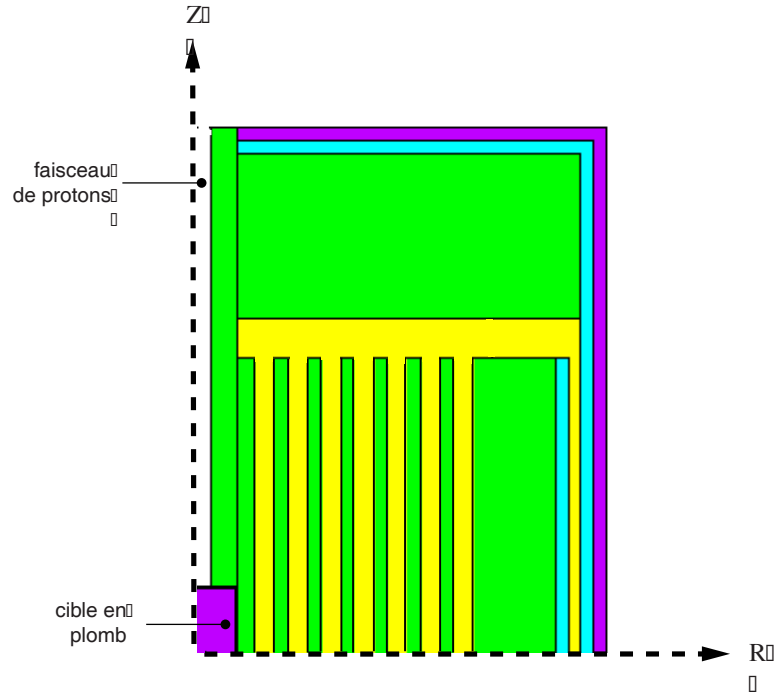


FIG. 6.25 – Coupe verticale du RSF incinérateur de Pu sous-critique simulé.

Le sel combustible utilisé est le  $\text{NaF} - \text{ZrF}_4$ , préféré au  $\text{FLiBe}$  car bénéficiant d'une meilleure solubilité du plutonium, et permettant en outre de recycler le zirconium des gaines du combustible REP usé. La proportion molaire de  $\text{NaF}$ , moins volatile que le  $\text{ZrF}_4$ , est prise égale à 60%, afin de rendre la température de fusion du sel moins dépendante des changements de composition [24]. Le plutonium que nous choisissons d'incinérer, en l'introduisant en continu dans le système, est de type UOX, et a été laissé refroidir pendant 50 ans après son déchargement. Au démarrage, il suffit de diluer 180 kg de ce plutonium dans le  $\text{NaF} - \text{ZrF}_4$  afin d'ajuster le  $k_{eff}$  à 0.96. Cet inventaire initial de plutonium est tellement faible que la densité du sel peut être prise égale à celle du sel pur, soit  $2.7 \text{ g/cm}^3$  [64]. Dans un tel système, la sous-criticité est rendue nécessaire du fait des coefficients de température du système, largement positifs. Cet effet défavorable de la température sur la réactivité est dû à la combinaison d'un spectre thermique et d'un combustible à base de plutonium seul. Au démarrage, on évalue ainsi le coefficient total à

environ +15 pcm/K, avec un effet dominant dû au réchauffement du graphite et au décalage du spectre maxwellien vers les énergies supérieures qui l'accompagne. En effet, le réchauffement du sel seul provoque une augmentation de réactivité d'environ +5 pcm/K (coefficient de dilatation du sel de  $-2.0 \cdot 10^{-4} \text{ g.cm}^{-3} \cdot \text{K}^{-1}$  [24]), contre +13 pcm/K pour le graphite.

Nous avons simulé le fonctionnement de ce système en incinérateur de plutonium, à puissance et réactivité constantes, comme toujours. Pour ce faire, on ajuste l'alimentation continue du système en plutonium de type "UOX 50", le même que le plutonium utilisé pour le démarrage. Contrairement au RSF de C. Bowman, on n'injecte ni actinides mineurs, ni produits de fission, car nous nous plaçons dans un cas de figure où l'incinération du plutonium est prioritaire. Afin d'incinérer entièrement le plutonium introduit, on procède à un retraitement en ligne du sel qui ne consiste qu'à extraire les produits de fission, avec une durée totale de retraitement  $T$  de 10 jours. Ce choix diffère du retraitement dans le concept de C. Bowman, qui est de type "once-through", c'est à dire qu'il consiste à extraire chaque jour le même volume de sel (quelques litres), et à le remplacer par le même volume de sel "frais", chargé du plutonium provenant des combustibles REP usés. Avec un tel retraitement, le taux d'incinération est de fait limité (de l'ordre de 70% pour le plutonium). Le but est ici d'évaluer la faisabilité d'un RSF à retraitement en ligne simplifié pour l'incinération complète du seul plutonium.

#### • Résultats de l'évolution

Au cours de la mise à l'équilibre du système, la réactivité est contrôlée par l'intermédiaire du coefficient de multiplication de la source de neutrons  $k_s$ , calculé après chaque calcul MCNPX comme expliqué en annexe A. L'alimentation en plutonium est ajustée en ligne afin de maintenir ce coefficient à sa valeur initiale ( $0.954 \pm 0.005$ ). On vérifie a posteriori par des calculs MCNP que le  $k_{eff}$  évolue en parallèle, et se stabilise à une valeur légèrement supérieure au  $k_s$  ( $0.961 \pm 0.002$ ), ce qui montre que les neutrons de spallation sont moins efficaces que les neutrons de fission pour produire de nouveaux neutrons. Au centre du réacteur, au niveau du module de spallation, un neutron voit en effet moins de combustible qu'un neutron de fission créé dans le sel. En outre, les neutrons de spallation sont plus capturés par le plomb de la cible que ne le sont les neutrons de fission. On évalue également l'intensité nécessaire du faisceau de protons de 1 GeV, qui fluctue autour de 60 mA. Le rendement de la cible de spallation de plomb, évalué à partir des calculs MCNPX, est de  $28.9 \pm 0.3$  neutrons par proton de 1 GeV.

Les produits de fission sont rapidement extraits, et leur inventaire (duquel on décompte le zirconium du sel) se stabilise à moins de 100 kg (figure 6.26). Leur section efficace moyenne de capture diminue sensiblement, passant de 70 barn à  $t = 0$ , à 13 barn à  $t = 50$  ans. Cette évolution traduit un durcissement progressif du spectre dans le sel, dont l'essentiel se fait au cours des toutes premières années suivant le démarrage, comme le montre la figure 6.27.

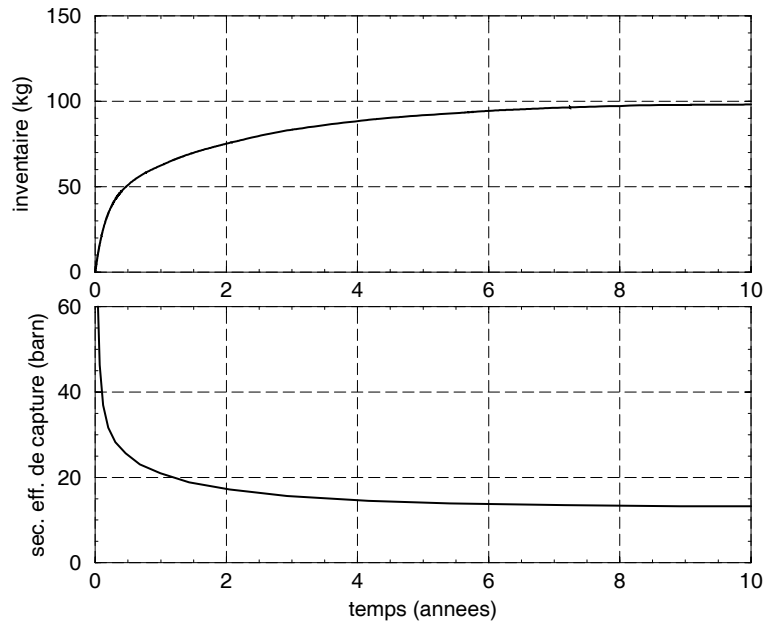


FIG. 6.26 – Mise à l'équilibre de l'inventaire et de la section efficace moyenne de capture des produits de fission (sans le zirconium) dans le sel combustible de l'incinérateur.

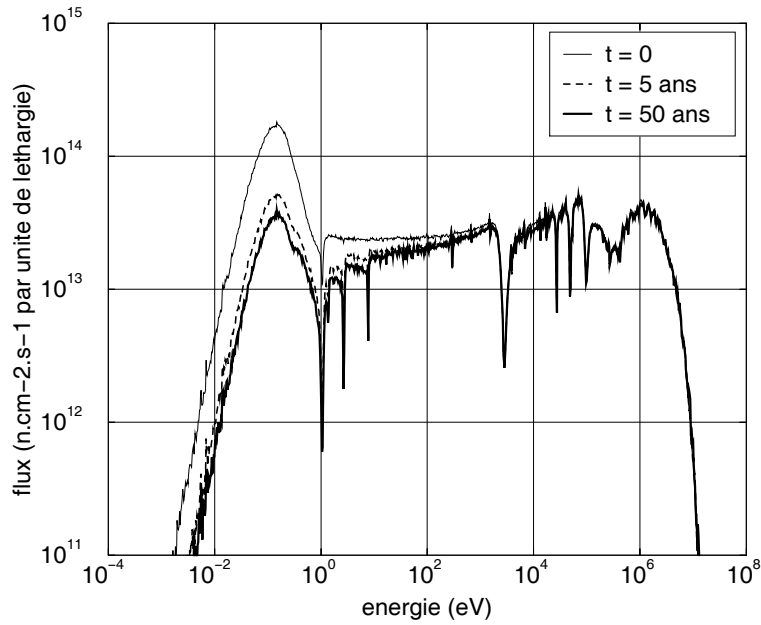


FIG. 6.27 – Comparaison des spectres moyens dans le circuit complet de sel combustible de l'incinérateur au démarrage, à l'équilibre, ainsi qu'à t = 5 ans.

Au démarrage, le spectre montre une composante thermique importante, ce qui explique qu'un très faible inventaire de plutonium soit nécessaire pour démarrer. L'atténuation de la partie thermique du spectre s'explique par l'accumulation en autres d'isotopes fertiles du plutonium, dont les résonances (visibles sur le spectre) piègent de plus en plus de neutrons en cours de ralentissement avant qu'ils n'atteignent les énergies inférieures à l'eV. On remarque notamment l'empreinte de la résonance de capture à 1 eV du  $^{240}\text{Pu}$ , à 3 eV du  $^{242}\text{Pu}$  et à 8 eV du  $^{244}\text{Cm}$ . Au-delà du keV, on trouve les résonances de capture du  $^{23}\text{Na}$  à 3 keV, et du  $^{19}\text{F}$  (30, 50 et 100 keV). La valeur intégrée du flux passe de  $7.5 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$  au démarrage à  $4.3 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$  à l'équilibre. A  $t=5$  ans, elle est déjà de  $4.7 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ , ce qui montre à nouveau que le spectre n'évolue rapidement qu'au cours des premières années de fonctionnement. On retrouve ce durcissement rapide du spectre sur l'évolution des sections efficaces moyennes de capture et de fission des isotopes du plutonium au cours des trois premières années (figure 6.28).

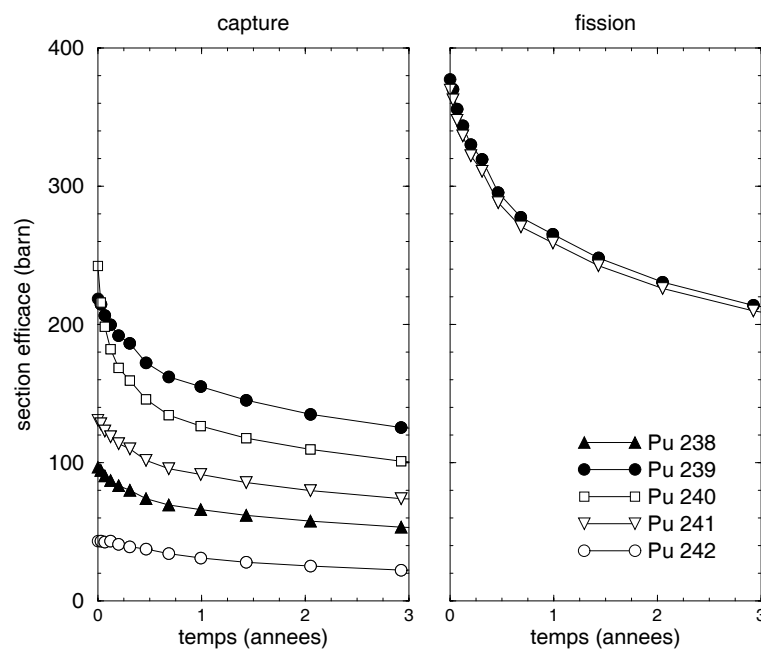


FIG. 6.28 – Evolution des sections efficaces moyennes (capture et fission) des isotopes du plutonium au cours des trois premières années du RSF incinérateur de Pu.

Au cours de la mise à l'équilibre, le durcissement du spectre et la chute des sections efficaces s'accompagnent d'une accumulation des transuraniens, initialement présents à l'état de traces de plutonium, dans le sel. L'inventaire des transuraniens passe ainsi de 180 kg à 4.3 t au bout de 50 ans, la densité du sel passant alors de  $2.7 \text{ g/cm}^3$  à environ  $2.9 \text{ g/cm}^3$ . La figure 6.29 montre, outre cette accumulation, l'évolution des sections efficaces moyennes totales de capture (de 210 barn à 28 barn) et de fission (de 230 barn à 17 barn).

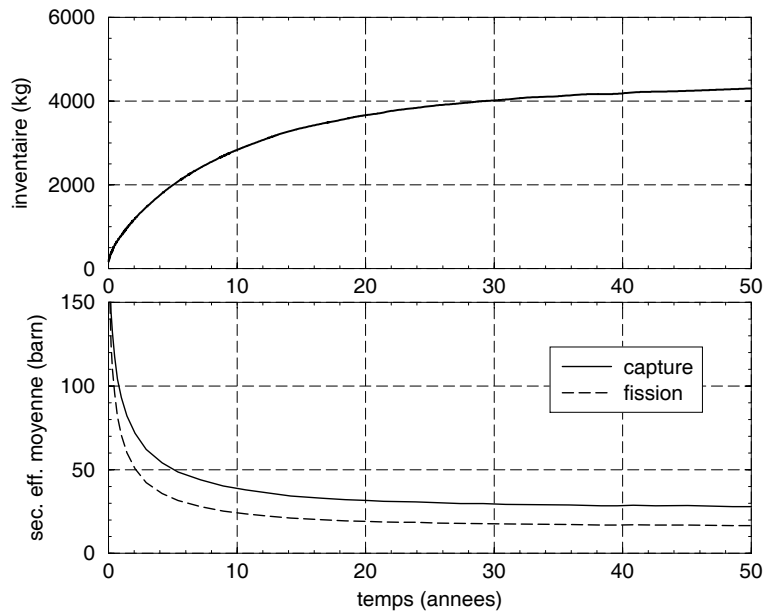


FIG. 6.29 – Mise à l'équilibre de l'inventaire et des sections efficaces moyennes (capture et fission) des transuraniens dans le sel combustible du RSF incinérateur de Pu.

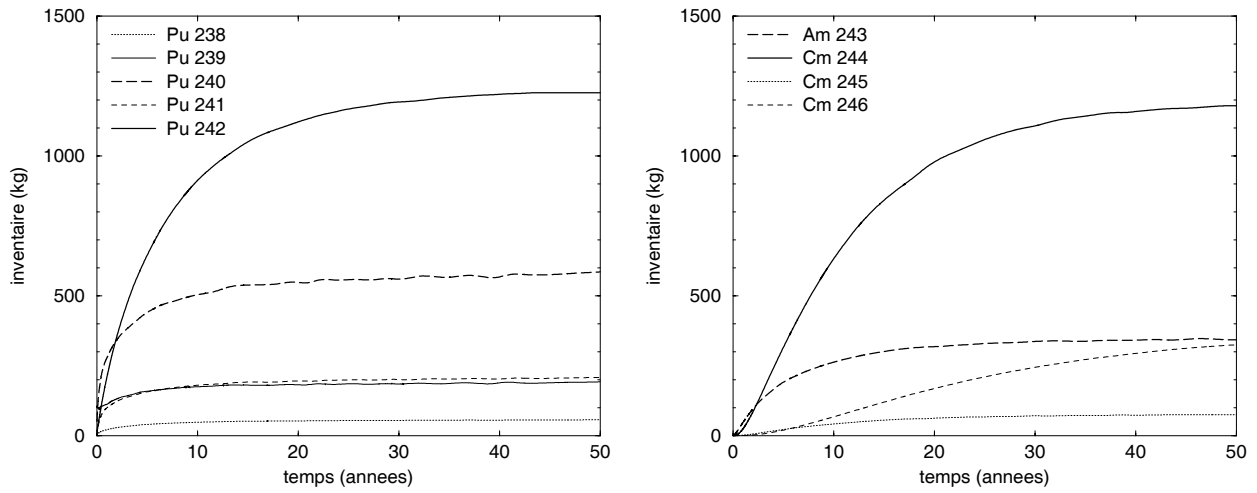


FIG. 6.30 – Evolution des principaux isotopes du plutonium, de l'américium et du curium dans le RSF incinérateur de Pu.



La figure 6.30 donne le détail des inventaires des isotopes du plutonium, et des principaux actinides mineurs. Le  $^{244}\text{Cm}$  domine ces derniers, et s'accumule à hauteur de 1.2 t, soit trois fois plus que dans l'incinérateur à support thorium. Les noyaux dont l'inventaire n'est pas représenté car trop faible sont le  $^{237}\text{Np}$  (0.3 kg à l'équilibre), l' $^{241}\text{Am}$  (5.1 kg), le  $^{242}\text{Cm}$  (4.4 kg), le  $^{249}\text{Bk}$  (1.3 kg) et le  $^{252}\text{Cf}$  (6.5 kg). L'inventaire important de  $^{244}\text{Cm}$  est la conséquence de l'incinération complète du plutonium. Dans un incinérateur de type "once-through", comme le concept proposé par C. Bowman, cet inventaire est moindre car l'incinération du plutonium est incomplète. L'étude [23] montre que dans ce cas, pour une même puissance installée totale de 2500 MWth, soit un peu plus de trois réacteurs de 750 MWth chacun, l'inventaire de  $^{244}\text{Cm}$  n'est que de 0.2 t à l'équilibre. Avec la stabilisation de l'inventaire des transuraniens dans le sel, le débit de l'alimentation en plutonium décroît. Il est de 6.8 kg/j au démarrage, puis est réduit de moitié au cours des trois premières années et se stabilise finalement à 2.7 kg/j. A l'équilibre, cette quantité de plutonium est compensée par la fission de 2.2 kg/j d'isotopes fissiles du plutonium ( $^{239}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Pu}$ ), et la fission de 0.5 kg/j de transplutoniens (dont 0.4 kg/j de  $^{245}\text{Cm}$ ) formés par capture. Au cours des cinquante années que dure la mise à l'équilibre, la quantité totale de plutonium introduite s'élève à 53.1 t, pour un inventaire final de 4.3 t de transuraniens, soit 48.8 t de plutonium incinérées sur cette période. Le taux d'incinération total du plutonium n'est donc pas de 100%, mais d'environ 92% sur les 50 premières années, et de 96% sur 100 ans de fonctionnement. Il n'en reste pas moins meilleur que celui obtenu avec un système de type "once-through", pour lequel ce taux ne dépasse pas 70% [23]. La complexité supplémentaire des opérations de retraitement se justifie dans l'optique d'une phase d'incinération préalable à la poursuite durable d'une production d'énergie nucléaire.

Comme dans l'incinération en "once-through", le plutonium de l'inventaire final est fortement dénaturé, ce qui satisfait aux contraintes de non-prolifération. La figure 6.31 compare la composition isotopique du plutonium introduit à celle des transuraniens présents en quantité significative dans le sel à l'équilibre. Ces derniers sont dominés par les trois mêmes noyaux que dans le cas d'un retraitement "once-through", à savoir le  $^{240}\text{Pu}$ , le  $^{242}\text{Pu}$  et le  $^{244}\text{Cm}$ . Mais du fait d'une incinération plus poussée, les proportions sont différentes : environ 10% de  $^{240}\text{Pu}$ , 30% de  $^{242}\text{Pu}$  et 30% de  $^{244}\text{Cm}$ , au lieu de respectivement 30%, 30% et 10% [23].

Pour évaluer le bilan radiotoxique d'une telle incinération, il est indispensable de tenir compte de l'inventaire final. La figure 6.32 représente l'évolution de la radiotoxicité qui serait générée par le stock total de plutonium introduit dans le système au cours des cinquante premières années de fonctionnement, à la puissance de 2500 MWth. Cette radiotoxicité est comparée à celle générée par l'inventaire final, environ 10 fois plus faible à partir de 100 ans. La contribution majoritaire à la radiotoxicité de l'inventaire final, jusqu'à  $10^5$  ans après son stockage, est celle du  $^{244}\text{Cm}$ , qui décroît rapidement en  $^{240}\text{Pu}$  avec une demi-vie de 18.1 ans.

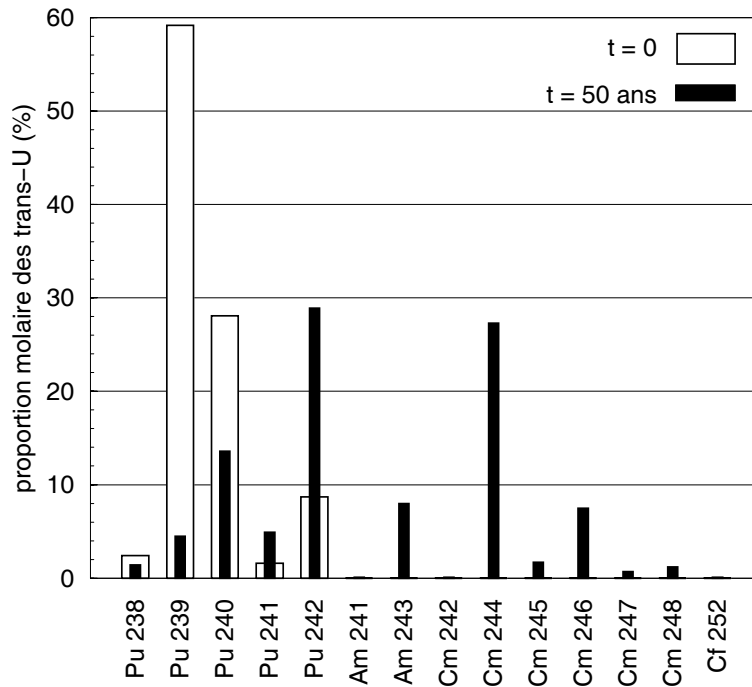


FIG. 6.31 – Composition molaire (à 0.1% près) des transuraniens au démarrage et à l'équilibre du RSF incinérateur de Pu.

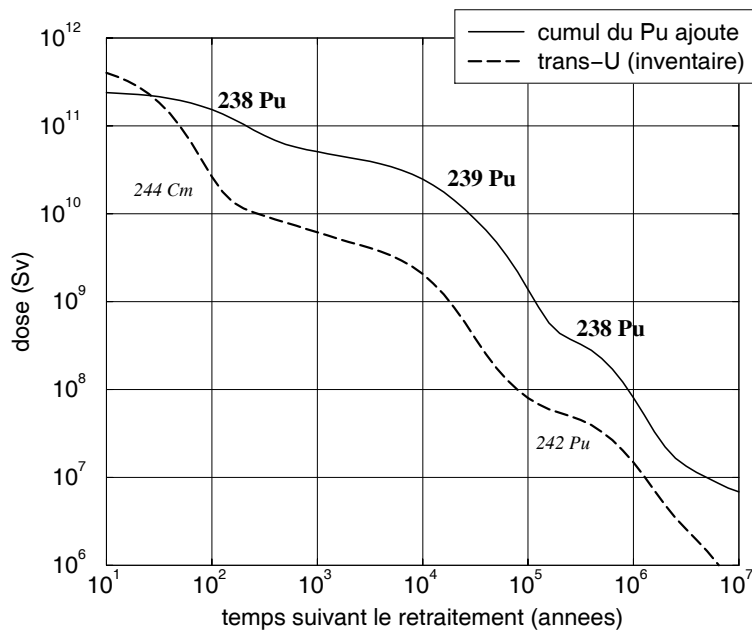


FIG. 6.32 – Comparaison des radiotoxicités générées par l'ensemble du plutonium introduit et des transuraniens accumulés dans le RSF incinérateur de Pu au cours des cinquante premières années de fonctionnement à la puissance totale de 2500 MWth. Les contributions dominantes sont indiquées pour chaque courbe (en italique pour l'inventaire des transuraniens).

## b - Arrêt de la filière RSF thorium

Nous venons de voir qu'un RSF à modérateur graphite et retraitement en ligne simplifié permet l'incinération efficace du plutonium industriel actuel, à condition de recourir à la sous-criticité et d'accepter un inventaire final de transuraniens de 4 t environ. Dans l'hypothèse d'une production durable d'énergie nucléaire basée sur le cycle  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  en spectre épithermique, il convient d'envisager l'arrêt définitif d'un tel cycle qui exige l'incinération des inventaires restants, constitués essentiellement d'uranium riche en  $^{233}\text{U}$ . A priori, une telle incinération est plus aisée que celle du plutonium issu des REP. Il s'agit ici d'évaluer dans quelle mesure l'uranium à l'équilibre du cycle thorium peut être incinéré ou dénaturé. On conserve pour cela le même système de référence, toujours pour une puissance totale de 2500 MWth, dont nous simulons pour simplifier le fonctionnement en régime critique. Le sel combustible retenu est l'eutectique "2 LiF - BeF<sub>2</sub>", pour lequel on peut recycler les composantes LiF et BeF<sub>2</sub> présentes dans le sel des RSF producteurs d'énergie du cycle  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ . On choisit d'incinérer tous les actinides présents à l'équilibre du RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  de référence, à l'exception du thorium qui est séparé auparavant. Cette composition est utilisée pour l'inventaire initial nécessaire au démarrage du système, et est introduite ensuite en cours de fonctionnement afin de maintenir la réactivité constante. Du fait d'un spectre à forte composante thermique, la quantité de ces actinides nécessaire pour démarrer est très faible (180 kg environ). On prend donc comme densité celle du sel pur "2 LiF - BeF<sub>2</sub>", qui est d'environ 2.0 g/cm<sup>3</sup> [64]. La proportion choisie d'un tiers de BeF<sub>2</sub> est la proportion minimale assurant une température de fusion relativement basse, inférieure à 500 °C. Minimiser ainsi la proportion de BeF<sub>2</sub> permet de se placer dans de bonnes conditions de solubilité des actinides, et également de limiter la viscosité du sel.

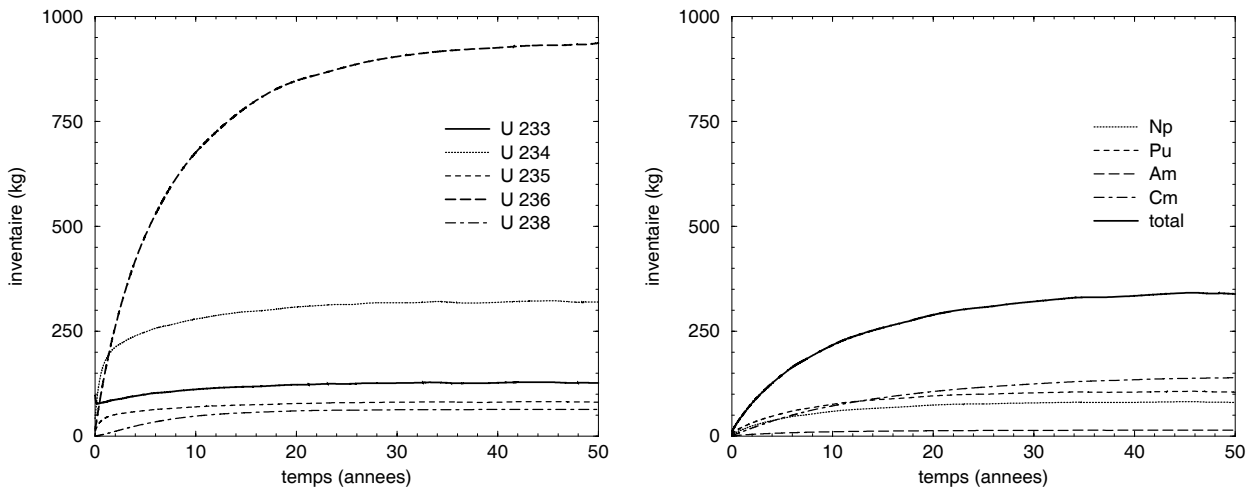


FIG. 6.33 – Mise à l'équilibre de l'uranium et des transuraniens dans l'incinérateur de fin de cycle thorium.

Comme dans le système incinérateur de plutonium étudié précédemment, l'apparition dès les premières années de noyaux fertiles présentant de fortes résonances de capture aux énergies supérieures à l'eV ( $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$ ,  $^{244}\text{Cm}$ ) durcit le spectre. Il en résulte une augmentation rapide de l'inventaire d'actinides qui se stabilise en une trentaine d'années à 1.9 t, dont seulement 0.3 t de transuraniens. La densité du sel passe alors de 2.0 à 2.1 g/cm<sup>3</sup>. Le détail des isotopes de l'uranium et des éléments transuraniens est donné par la figure 6.33. Le flux intégré dans le sel est de  $1.4 \cdot 10^{15} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$  au démarrage, de  $8.9 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$  5 ans plus tard, et de  $7.4 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$  à l'équilibre. Le tableau 6.5 donne les proportions molaires des différents actinides présents dans le sel au démarrage et à l'équilibre de ce système. On remarque l'effet du léger durcissement du spectre sur leurs sections efficaces moyennes de capture et de fission. La composition des actinides incinérés, introduits en continu dans le système, est riche en  $^{233}\text{U}$ . L'inventaire final de l'incinérateur est à l'inverse dominé par l' $^{236}\text{U}$ , et pauvre en isotopes fissiles. Ce système assure donc une dénaturation efficace des actinides de l'équilibre  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ . Il permet en outre une incinération rapide de ces actinides. Le débit de l'alimentation en actinides passe ainsi de 3.9 kg/j au démarrage, à 2.9 kg/j 5 ans plus tard et finalement 2.6 kg/j à l'équilibre. A l'équilibre, cette alimentation est compensée chaque jour par la fission de 2.1 kg d'uranium et de 0.5 kg de transuraniens, dont 0.4 kg de plutonium.

Dans la situation d'arrêt d'un parc de RSF basé sur le cycle  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ , il est intéressant de convertir quelques RSF producteurs d'énergie en incinérateurs. Il suffit pour cela de modifier la composition du sel combustible, la structure du réacteur et l'usine de retraitement restant inchangées. Il est commode de définir alors pour ces systèmes une durée typique d'utilisation en mode incinérateur. Cette durée doit être suffisamment longue pour que l'accumulation initiale des actinides ne nuise pas trop au taux d'incinération. Mais elle doit rester inférieure à la durée de vie d'un réacteur, afin de pouvoir convertir un producteur d'énergie en incinérateur. Un bon compromis est ainsi une durée d'utilisation en incinérateur de 25 ans, temps au bout duquel le système est proche de l'équilibre. Sur ces 25 premières années, le système de référence utilisé selon le mode incinérateur décrit ici consomme, inventaire initial compris, 25.6 t d'actinides composés essentiellement d'uranium. Plaçons nous dans le cas d'un parc de RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  d'une puissance installée totale comparable à celle du parc REP actuel, soit 50 GWe, ayant fonctionné pendant 50 ans effectifs. Au bout de ces 50 ans, chacun des 50 RSF a accumulé un inventaire de transthoriciens de 2.3 t (environ 2.2 t d'uranium et 0.1 t de transuraniens), dont on suppose que l'incinération complète est exigée avant l'arrêt définitif du parc. Un seul RSF converti en incinérateur peut donc incinérer en 25 ans l'équivalent de 11 inventaires de transthoriciens à l'équilibre. Il suffit par conséquent de 5 incinérateurs, soit 10% du parc RSF, fonctionnant pendant 25 ans, pour incinérer l'ensemble des transthoriciens du parc. Il reste après cette phase d'incinération environ 8 t d'uranium fortement dénaturé et 1.5 t de transuraniens, au lieu de 110 t d'uranium riche en  $^{233}\text{U}$  et de 5 t de transuraniens sans incinération.

	t = 0				t = 50 ans			
	$\sigma^{cap}$ (barn)	$\sigma^{fis}$ (barn)	M (kg)	mol. (%)	$\sigma^{cap}$ (barn)	$\sigma^{fis}$ (barn)	M (kg)	mol. (%)
$^{231}\text{Pa}$	177	0.06	0.09	0.1	152	0.09	0.14	-
$^{233}\text{Pa}$	28.8	0.02	1.65	0.9	29.4	0.03	0.87	0.1
$^{232}\text{U}$	26.4	30.7	0.23	0.1	23.9	28.6	1.4	0.1
$^{233}\text{U}$	20.7	196	98	<b>54.3</b>	17.4	161	130	7.0
$^{234}\text{U}$	44.4	0.22	42	<b>22.9</b>	36.3	0.23	320	<b>17.5</b>
$^{235}\text{U}$	34.7	189	13	7.1	28.8	151	82	4.4
$^{236}\text{U}$	8.0	0.12	17	9.1	6.3	0.12	940	<b>50.3</b>
$^{238}\text{U}$	6.2	0.01	0.22	0.1	7.6	0.02	63	3.4
$^{237}\text{Np}$	91.4	0.08	3.4	1.9	79.6	0.12	81	4.3
$^{238}\text{Pu}$	145	4.8	3.8	2.1	114	4.1	56	3.1
$^{239}\text{Pu}$	344	590	0.51	0.3	280	478	9.4	0.5
$^{240}\text{Pu}$	292	0.15	0.22	0.1	278	0.20	10	0.5
$^{241}\text{Pu}$	200	563	0.24	0.1	162	453	4.6	0.2
$^{242}\text{Pu}$	30.5	0.06	0.37	0.2	31.2	0.10	26	1.4
$^{243}\text{Am}$	64.1	0.12	0.28	0.2	64.5	0.16	14	0.7
$^{244}\text{Cm}$	14.7	0.48	0.62	0.3	16.4	0.54	55	2.9
$^{245}\text{Cm}$	84.1	577	0.07	-	66.5	458	1.8	0.1
$^{246}\text{Cm}$	2.4	0.16	0.38	0.2	2.7	0.21	69	3.5

TAB. 6.5 – Sections efficaces moyennes (capture et fission, en barn) et inventaires (masses et proportions molaires) des principaux actinides intervenant au démarrage et à l'équilibre du RSF incinérateur des transthoriens du cycle (Th/U)F<sub>4</sub> à l'équilibre.

Ce scénario sommaire montre que la faiblesse des inventaires du cycle thorium en spectre thermique constitue du point de vue de l'incinération de fin de cycle un net avantage par rapport au cycle uranium, ou au cycle actuel des REP. Pour s'en convaincre, considérons le même type de scénario pour un parc REP UOX de 50 GWe, sans retraitement de type MOX. Après un an de fonctionnement à 1 GWe, un REP UOX de type N4 produit environ 270 kg de plutonium [2]. En 50 ans, un tel réacteur produit donc 13.5 t de plutonium qu'on stocke afin d'introduire dans un RSF incinérateur de plutonium inspiré du concept de C. Bowman, tel que nous l'avons étudié plus haut. Comme dans le cas précédent, on utilise chaque incinérateur pendant 25 ans, durant lesquels il consomme en tout 28.4 t de plutonium, soit à peu près la production de 2 REP pendant 50 ans. Il faut donc 25 RSF incinérateurs pendant 25 ans pour incinérer totalement le stock de plutonium constitué par les REP, soit 5 fois plus que dans le cas du parc RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ , à puissance installée et durée de fonctionnement égales. Il ressort de cette comparaison qu'il est rapide et relativement simple d'incinérer les derniers inventaires d'un parc de RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  à spectre épithermique, en utilisant une petite partie des réacteurs en incinérateur d'uranium et de transuraniens. Dans ce cycle, il ne se pose plus de problème comparable à celui de l'accumulation du plutonium produit par les REP par exemple. Ce constat étant fait, nous allons donc pouvoir aborder par la suite l'étude de scénarios de transition, voire de déploiement important du cycle thorium, sans plus nous préoccuper de la gestion de la fin de ce cycle.

### 6.3 Scénarios possibles de transition vers la filière (Th/U) $F_4$

Le cycle thorium en spectre épithermique, pour lequel nous avons vu que le RSF à modérateur graphite est un système particulièrement bien adapté, répond à tous les critères d'un développement durable de l'énergie nucléaire. Nous allons étudier ici comment peut se réaliser une transition à ce cycle, à partir de la filière REP actuelle, suivant que la puissance nucléaire totale installée actuelle est suffisante, ou est au contraire appelée à se déployer de façon importante. Dans tous les cas, nous nous basons sur le parc REP français actuel, en supposant qu'il n'est plus renouvelé à partir de 2000.

#### 6.3.1 Remplacement des REP actuels par des RSF

Un premier scénario envisageable est celui du remplacement direct des REP actuels par des RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ . Pour cela, il est possible d'utiliser le plutonium issu des combustibles REP usés, qu'ils soient de type UOX ou MOX, comme inventaire initial de RSF  $\text{Th}/\text{Pu} \rightarrow ^{233}\text{U}$ . Nous imposons dans cette transition l'incinération totale des stocks de plutonium, en maintenant une puissance totale installée comparable à celle du parc français actuel.

## a - Hypothèses de départ

Nous nous limitons donc ici au démarrage de RSF  $\text{Th}/\text{Pu} \rightarrow {}^{233}\text{U}$ , et stockons l' ${}^{233}\text{U}$  surgénéré sans l'utiliser pour démarrer de RSF  ${}^{232}\text{Th}/{}^{233}\text{U}$ . Compte tenu de la sensibilité observée de la transition  $\text{Th}/\text{Pu} \rightarrow {}^{233}\text{U}$  en RSF au type de plutonium utilisé, il est nécessaire de définir précisément le parc REP de départ utilisé pour chaque scénario.

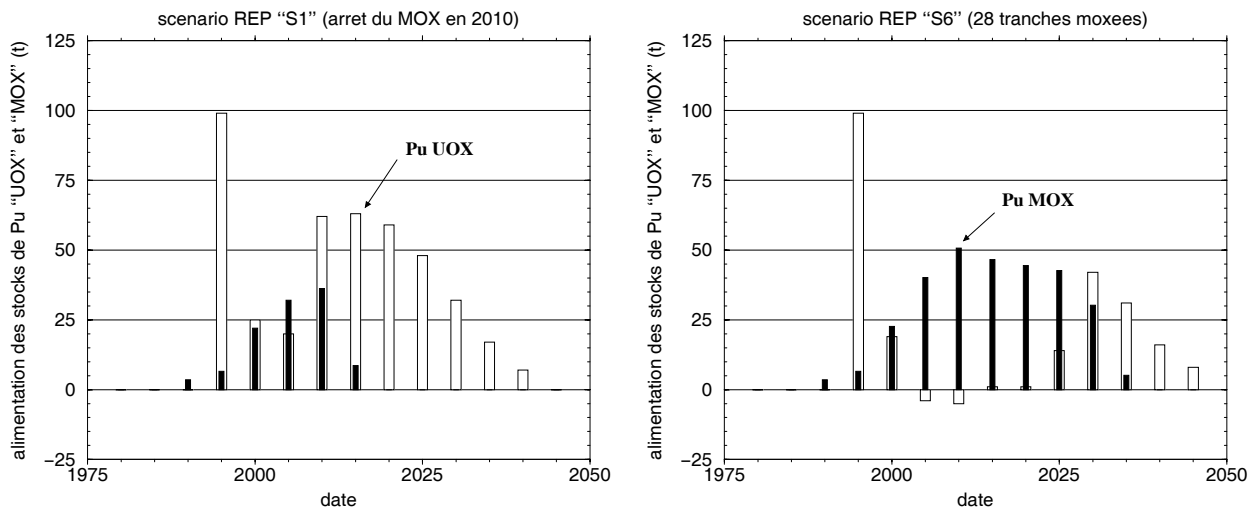


FIG. 6.34 – Alimentation des stocks de Pu selon deux scénarios d'évolution du parc REP.

Nous nous basons sur deux évolutions possibles du parc REP actuel non renouvelé, suivant que le retraitement MOX du plutonium soit abandonné en 2010 (scénario "S1" du rapport d'évaluation du parc nucléaire actuel [65]), ou qu'il soit au contraire généralisé jusqu'à l'arrêt définitif (scénario "S6" du même rapport). La figure 6.34 donne pour ces deux scénarios REP la quantité de chaque type de plutonium déchargé et stocké, par période de 5 ans. On remarque pour le scénario "S6" qu'entre 2005 et 2010, ainsi qu'entre 2010 et 2015, du Pu "UOX" est prélevé des stocks du fait de son recyclage en MOX. Dans ce scénario, le plutonium stocké est ainsi majoritairement de type "MOX", alors qu'il est essentiellement de type "UOX" dans le scénario "S1". A partir de ces données, nous pouvons suivre au cours de nos scénarios l'évolution des stocks de plutonium, selon son type et son "âge", c'est à dire son temps de refroidissement. Nous pouvons ainsi démarrer en conséquence des RSF  $\text{Th}/\text{Pu} \rightarrow {}^{233}\text{U}$ , pour lesquels nous avons vu que l'inventaire initial de plutonium dépend fortement de son type et de son âge, en prenant soin de réactualiser l'état des stocks de plutonium disponible pour la suite. Comme le montre la figure 6.35, représentant l'état des stocks de plutonium en 2020, date de départ choisi pour le premier RSF, nous tenons compte de l'âge du plutonium à 5 ans près.

Pour chaque type de plutonium, selon son origine et son âge à 5 ans près, nous avons déterminé par simulation la production annuelle du RSF  $\text{Th}/\text{Pu} \rightarrow {}^{233}\text{U}$  correspondant. La

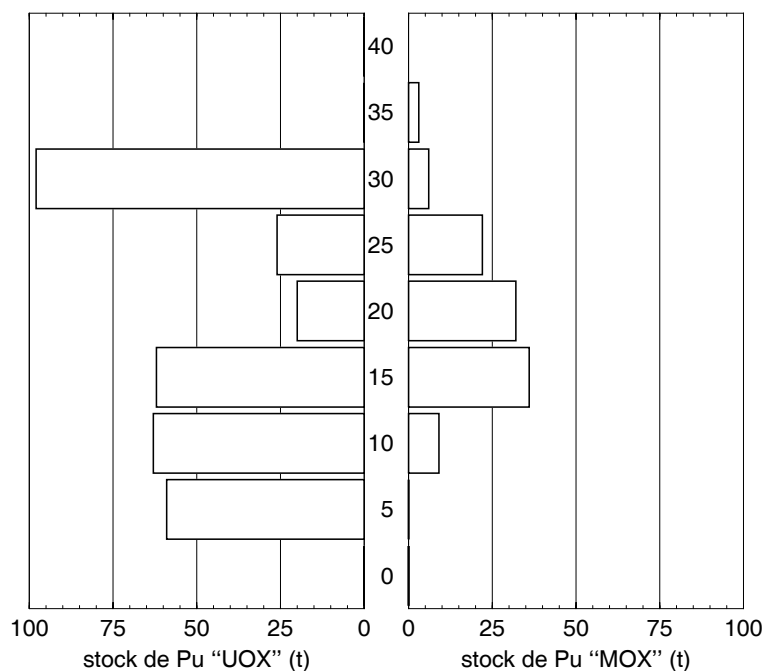


FIG. 6.35 – “Pyramide des âges” du plutonium disponible en 2020 dans le scénario REP S1. En ordonnée est indiquée le temps de refroidissement du plutonium à 5 ans près.

production ou consommation d' $^{233}\text{U}$  de chaque RSF Th/Pu  $\rightarrow$   $^{233}\text{U}$  démarré est ainsi suivie année par année, et le stock global d' $^{233}\text{U}$  est réactualisé en conséquence. Dans le scénario de simple remplacement des REP par des RSF, ce stock n'est pas utilisé pour démarrer directement des RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ , et doit rester positif dans la mesure du possible, puisqu'on ne suppose aucun apport extérieur d' $^{233}\text{U}$ .

### b - Incinération totale du plutonium des REP

A partir de 2020, on commence à démarrer des RSF Th/Pu  $\rightarrow$   $^{233}\text{U}$ , au rythme maximal de 3 par an. Ce taux est comparable à celui des REP, démarrés au rythme de 2 GWe par an entre 1975 et 2000 (4 GWe par an entre 1980 et 1985). La contrainte d'un stock total d' $^{233}\text{U}$  positif impose d'utiliser prioritairement le plutonium de type UOX en commençant par le plus âgé, facilitant la transition. Quand tout le plutonium de type “UOX” est consommé, on utilise celui de type “MOX”, en préférant encore le plus âgé, afin de limiter son accumulation. La figure 6.36 montre que pour les deux parcs REP de départ considérés, la puissance totale installée est augmentée en 2050 de 50% par rapport à sa valeur actuelle de 50 GWe. En 2050, les REP sont tous arrêtés et les RSF démarrés au plutonium à partir de 2020 ont tous un fonctionnement proche de l'équilibre  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ .



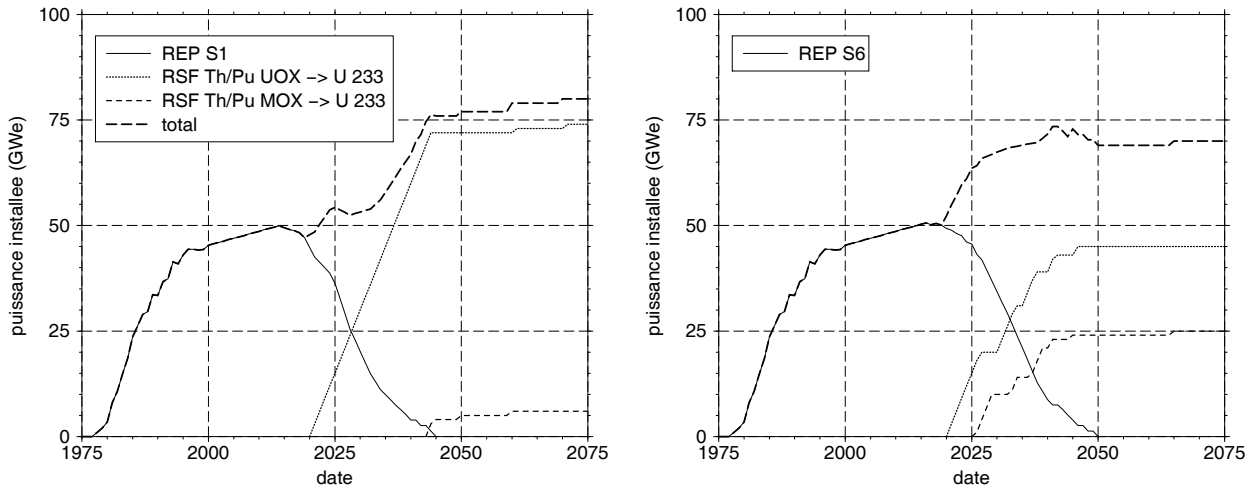


FIG. 6.36 – Evolution des puissances installées (GWe) dans un scénario de remplacement des REP par des RSF Th/Pu  $\rightarrow$   $^{233}\text{U}$ , avec incinération totale du plutonium stocké, selon le parc REP de départ (“S1” à gauche, “S6” à droite).

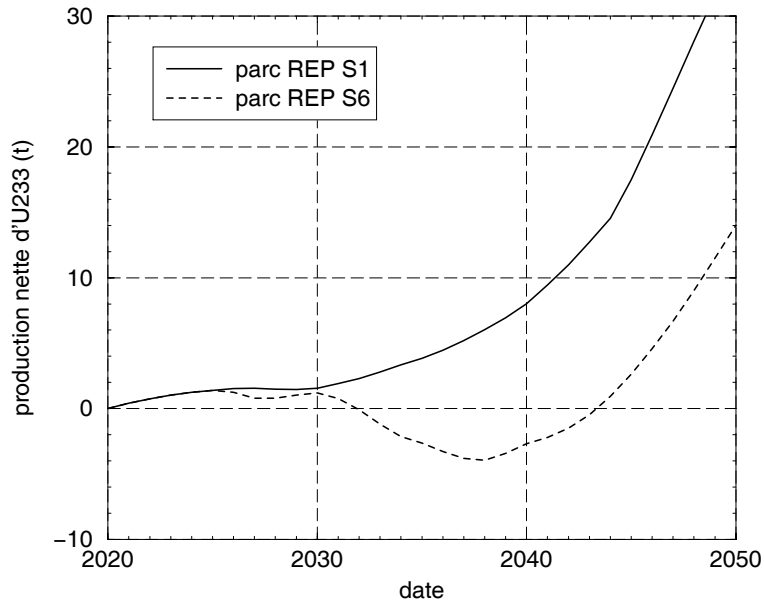


FIG. 6.37 – Evolution du stock d' $^{233}\text{U}$  surgénéré au cours du scénario de remplacement, selon le parc REP de départ.

On constate que le remplacement est plus facile à partir du parc REP “S1”, stockant surtout du plutonium de type “UOX” plus approprié à la transition  $\text{Th}/\text{Pu} \rightarrow {}^{233}\text{U}$  en RSF. En effet, la figure 6.37 montre que dans le cas du parc REP “S6”, la transition consomme un peu d’ ${}^{233}\text{U}$  jusqu’en 2045, et donc nécessite un faible apport extérieur d’ ${}^{233}\text{U}$ . Cela ne se produit pas dans le cas de la transition à partir du parc REP “S1”, plus rapide, que nous conservons comme seule hypothèse de départ dans toute la suite. Remarquons qu’une fois que les RSF fonctionnent en  ${}^{232}\text{Th}/{}^{233}\text{U}$ , la surgénération n’y est plus utile et on peut les rendre régénérateurs en ralentissant leur retraitement en ligne ou en leur faisant transmuter des produits de fission à vie longue. Le stock d’ ${}^{233}\text{U}$  constitué au cours de la transition est ainsi stabilisé.

### 6.3.2 Déploiement de RSF à partir des REP actuels

Dans l’optique d’une augmentation importante de la demande d’énergie nucléaire, on peut envisager un fort déploiement de la filière REP actuelle, produisant suffisamment de plutonium pour passer ensuite à une filière thorium [66]. Ce type de scénario pose de nombreux problèmes, et ne répond pas entièrement aux exigences de développement durable que nous nous sommes données. Nous nous limitons donc toujours au parc REP français actuel, non renouvelé et évoluant selon le scénario “S1” précédemment décrit. A partir de ce parc REP, nous souhaitons évaluer dans quelle mesure la puissance totale installée peut être multipliée, en utilisant le plutonium pour démarrer des RSF  $\text{Th}/\text{Pu} \rightarrow {}^{233}\text{U}$ , dont la production d’ ${}^{233}\text{U}$  permet ensuite de démarrer des RSF  ${}^{232}\text{Th}/{}^{233}\text{U}$  surgénérateurs. Conformément aux prévisions décrites au chapitre 1, nous adoptons comme objectif pour les scénarios de déploiement à suivre d’avoir multiplié par 10 la puissance nucléaire installée en 2050.

#### a - Evaluation de la vitesse de déploiement maximale d’un parc de RSF

La figure 6.38 montre l’évolution des puissances installées dans un scénario basé sur l’incinération totale du plutonium en RSF  $\text{Th}/\text{Pu} \rightarrow {}^{233}\text{U}$ , puis le déploiement illimité de RSF  ${}^{232}\text{Th}/{}^{233}\text{U}$  surgénérateurs de référence. La puissance installée du parc REP de départ (50 GWe) n’est multipliée par 10 qu’en 2085. En remplaçant les RSF  ${}^{232}\text{Th}/{}^{233}\text{U}$  de référence (taux de régénération à l’équilibre d’environ 1.04) par des RSF optimisés, couplant zone fertile périphérique et extraction continue du neptunium (taux de régénération à l’équilibre d’environ 1.07), le déploiement est à nouveau trop lent, n’atteignant le facteur 10 qu’en 2070. Ce système optimisé étant jugé trop complexe pour un déploiement massif, et n’apportant qu’une amélioration minimale à la vitesse du déploiement, nous conservons dans la suite le RSF  ${}^{232}\text{Th}/{}^{233}\text{U}$  de référence. On remarque qu’entre 2020 et 2040, pratiquement aucun RSF n’est démarré directement en  ${}^{232}\text{Th}/{}^{233}\text{U}$ . La cause en est le retard induit par la transition  $\text{Th}/\text{Pu} \rightarrow {}^{233}\text{U}$  sur la production d’ ${}^{233}\text{U}$  utilisable pour démarrer directement des RSF  ${}^{232}\text{Th}/{}^{233}\text{U}$  surgénérateurs.

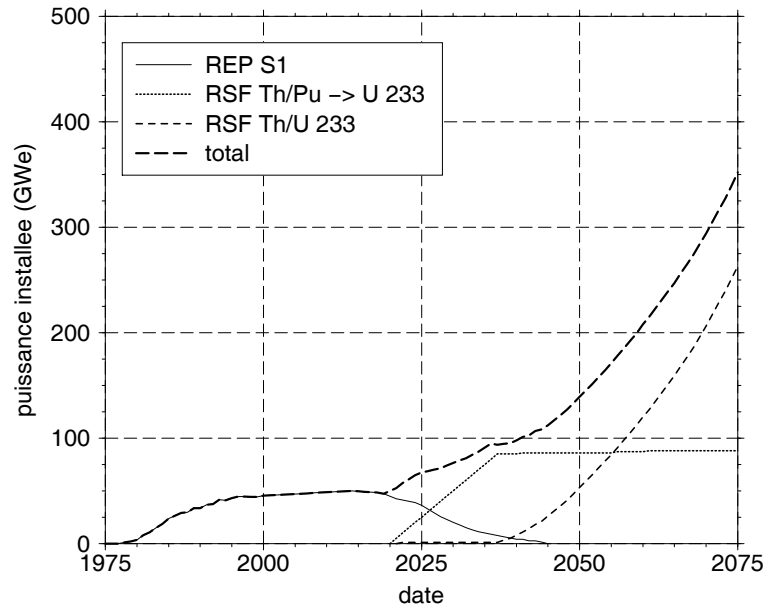


FIG. 6.38 – Scénario de déploiement basé sur l'utilisation optimale du plutonium des REP en RSF Th/Pu  $\rightarrow$   $^{233}\text{U}$  et sur le démarrage de RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  de référence, surgénérateurs.

### b - Complémentarité des RSF avec les RNR

Une solution pour s'affranchir de la lenteur de cette transition Th/Pu  $\rightarrow$   $^{233}\text{U}$  est de recourir à une production extérieure d' $^{233}\text{U}$ , suffisante pour pouvoir démarrer dès 2020 des RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  surgénérateurs. On pourrait ainsi se passer des RSF Th/Pu  $\rightarrow$   $^{233}\text{U}$ , et de la gestion attentive du plutonium qu'ils nécessitent. Cette idée de systèmes spécialisés dans la production d' $^{233}\text{U}$  pour des réacteurs producteurs d'énergie n'est pas nouvelle. Un projet japonais [19] a ainsi proposé dans les années 80 le concept de réacteur AMSB (Accelerator Molten-Salt Breeder), un RSF sous-critique sophistiqué dont la production importante d' $^{233}\text{U}$  était destinée à alimenter des RSF à modérateur graphite classiques. Ce projet trop complexe n'a pu aboutir, face à la concurrence des réacteurs à neutrons rapides et cycle uranium.

Plutôt que de considérer les RNR comme des producteurs d'énergie, il peut être intéressant de les considérer comme producteurs d' $^{233}\text{U}$ . En effet, un RNR classique de 1 GWe a besoin d'un inventaire total d'environ 12 t de plutonium pour fonctionner en cycle U/Pu. La surgénération de plutonium dans ses couvertures peut atteindre environ 200 kg/an, ce qui donne un temps de doublement de 60 ans, soit plus du double d'un temps de doublement typique d'un RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  [67]. En remplaçant l'uranium des couvertures par du thorium, on peut obtenir, moyennant quelques aménagements accessibles, une production de 200 kg d' $^{233}\text{U}$  par an et par GWe. A l'aide d'un retraitement pyrochimique adapté, cette production conséquente peut permettre le démarrage immédiat de RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  surgénérateurs.

### 6.3.3 Déploiement plus rapide de RSF basé sur des RNR

#### a - Avec des réacteurs $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ de référence

Nous remplaçons donc les RSF Th/Pu  $\rightarrow$   $^{233}\text{U}$  du scénario précédent par des RNR U/Pu à couverture thorium, démarrés en 2015 et produisant par an et par GWe 200 kg d' $^{233}\text{U}$ . Le stock de plutonium des REP est entièrement utilisé pour démarrer environ 40 RNR, à raison de 12 t de plutonium par RNR. Avec l' $^{233}\text{U}$  produit, nous démarrons dès 2020 des RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  surgénérateurs de référence, en supposant qu'un délai de 2 ans est nécessaire à l'extraction pyrochimique de l' $^{233}\text{U}$  avant son utilisation.

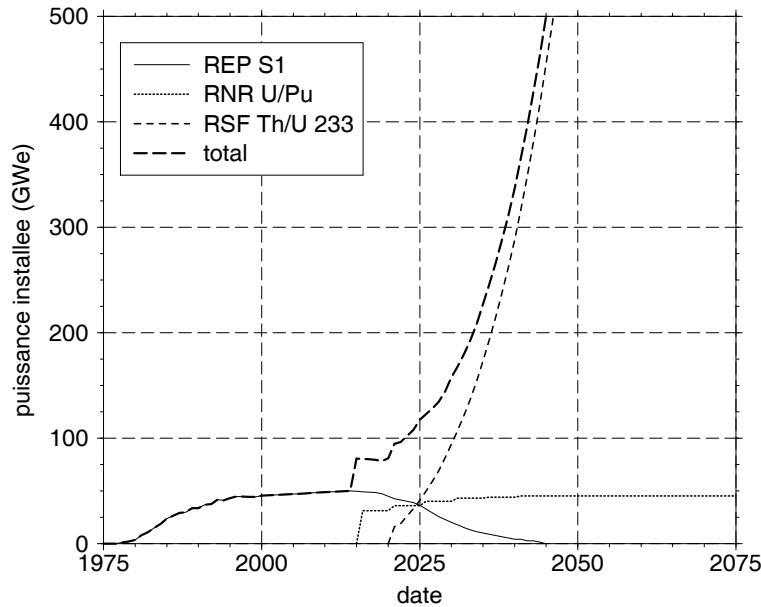


FIG. 6.39 – Scénario “REP-RNR-RSF” basé sur l'utilisation du Pu des REP en RNR U/Pu producteurs d' $^{233}\text{U}$  et sur le démarrage de RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  de référence, surgénérateurs.

La figure 6.39 montre que ce scénario permet de multiplier la puissance installée par 10 avant 2050. Par rapport au scénario basé sur la transition Th/Pu  $\rightarrow$   $^{233}\text{U}$ , 40 ans sont ainsi gagnés. Les études de sensibilité réalisées en annexe B nous permettent d'estimer que le facteur 10 est ici atteint en 2045, à plus ou moins 5 ans près. En effet, avec une section efficace de capture de l' $^{233}\text{U}$  augmentée uniformément de 10% sur tout le spectre, le facteur 10 n'est atteint qu'en 2055, tandis qu'avec une section efficace de diffusion élastique sur le graphite augmentée de la même façon, il est atteint en 2040.

Il apparaît ainsi une sorte de symbiose entre les RNR, producteurs efficaces d' $^{233}\text{U}$  de par leur bonne économie de neutrons, et les RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ , systèmes surgénérateurs les plus intéressants en cycle thorium. Notons qu'un système sous-critique à combustible solide et spectre

rapide a dans ce scénario un rôle important à jouer. Il peut permettre notamment l'incinération des actinides mineurs produits par les RNR. Une autre utilisation intéressante de ce type de réacteur peut être de produire de l' $^{233}\text{U}$  sur un support de transuraniens [61].

### b - Flexibilité de la transition REP-RNR-RSF

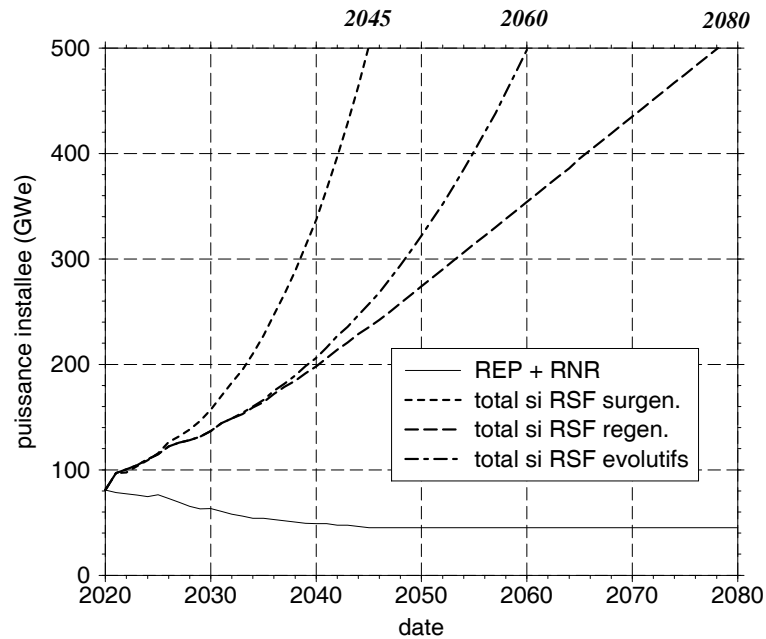


FIG. 6.40 – Puissance totale installée pour des variantes du scénario REP-RNR-RSF exploitant la flexibilité de la régénération en RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ .

Le recours à la production d' $^{233}\text{U}$  par RNR permet de s'affranchir du retard lié à la transition  $\text{Th}/\text{Pu} \rightarrow ^{233}\text{U}$ . Il est alors possible d'exploiter pleinement la flexibilité de surgénération en RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ . La figure 6.40 compare le déploiement basé sur des RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  de référence à deux autres scénarios pour lesquels les RSF sont simplifiés. Avec des RSF régénérateurs, les RNR sont les seuls producteurs d' $^{233}\text{U}$ . Entre 2020 et 2080, les 40 RNR démarrés à partir des stocks de plutonium produisent 480 t d' $^{233}\text{U}$ , ce qui permet de démarrer un peu plus de 400 RSF. Le facteur 10 sur la puissance totale est ainsi atteint en 2080, résultat comparable à celui du scénario REP-RSF basé sur des RSF tous surgénérateurs.

Un autre scénario de la figure 6.40 tient compte d'un perfectionnement progressif de la surgénération des RSF démarrés. Dans ce cas, on attribue aux premiers RSF démarrés avant 2025 un taux de régénération de 1.00, puis on augmente ce taux pour les nouveaux RSF démarrés, à raison de 1% supplémentaire tous les 5 ans jusqu'en 2040. Tous les nouveaux RSF démarrés après 2040 sont ainsi des RSF de référence (taux de régénération de 1.04), et le facteur 10 sur la puissance totale installée est atteint en 2060.

Le scénario REP-RNR-RSF est donc intéressant dans la mesure où il exploite au mieux les performances propres à chaque système. Les RNR à couverture thorium, systèmes perfectionnés au nombre limité, autorisent une production rapide et importante d' $^{233}\text{U}$ . Les RSF à modérateur graphite assurent une production durable d'énergie, et permettent, de par la flexibilité de leur surgénération, de se déployer en fonction des besoins du moment.

#### 6.4 *Le point sur les modalités de transition vers la filière (Th/U)F<sub>4</sub>*

Dans ce dernier chapitre, nous avons étudié dans quelles conditions il est possible d'assurer le passage au cycle thorium en RSF, présentant de multiples avantages pour une production d'énergie durable. Nous avons en premier lieu envisagé d'utiliser le plutonium des combustibles usés provenant des réacteurs actuels de type REP. On substitue pour cela dans le système de référence l'inventaire initial d' $^{233}\text{U}$  par du plutonium. Une fois ce système Th/Pu  $\rightarrow$   $^{233}\text{U}$  démarré, le plutonium initial est progressivement remplacé par l' $^{233}\text{U}$  formé par capture sur le thorium, jusqu'à ce que l'équilibre  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  soit atteint. Nous avons mis en évidence la forte dépendance de l'inventaire initial et de la durée du régime transitoire avec le type de plutonium utilisé, selon son temps de refroidissement et son recyclage ou non en combustible MOX. Avec du plutonium issu d'un combustible UOX après seulement 5 ans de refroidissement, l'inventaire initial nécessaire est inférieur à 4 t, et l'équilibre  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  est atteint en une vingtaine d'années. Avec du plutonium issu d'un combustible MOX ayant refroidi 50 ans, l'inventaire initial nécessaire est, comme le temps de mise à l'équilibre, environ quatre fois plus important, ce dernier cas se situant à la limite de solubilité du plutonium dans le sel FLiBe. Remarquons que l'usine de retraitement doit être adaptée à la présence de plutonium dans le sel combustible, et ce d'autant plus que l'inventaire initial est important et le régime transitoire long. Ce type de transition reste donc envisageable dans la plupart des cas, mais impose une gestion rigoureuse du plutonium disponible. L'utilisation d'uranium enrichi n'est guère préférable. La condition d'autosuffisance en  $^{233}\text{U}$  du système Th/ $^{enr}\text{U}$   $\rightarrow$   $^{233}\text{U}$  impose en effet de limiter l'enrichissement en  $^{235}\text{U}$ , que nous avons fixé à 33%. Dans ce cas, la production de  $^{239}\text{Pu}$  par capture sur l' $^{238}\text{U}$  permet de compenser la disparition rapide de l' $^{235}\text{U}$ , mais retarde par ailleurs la mise à l'équilibre  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ , atteint après une cinquantaine d'années.

Avant de proposer quelques scénarios de transition, nous avons pris soin d'évaluer dans quelle mesure des RSF à modérateur graphite et sels fluorures peuvent contribuer à l'incinération d'un stock résiduel de plutonium, ou à l'éventuel arrêt définitif du cycle thorium. Nous avons d'abord montré qu'en support thorium, un mode incinérateur de plutonium est possible, avec un taux d'incinération moyen d'environ  $300 \text{ kg}\cdot\text{an}^{-1}\cdot\text{GWe}^{-1}$ , pour un inventaire à l'équilibre de transuraniens légèrement inférieur à 2 t. Nous avons ensuite étudié une version à cycle fermé du concept d'incinérateur sous-critique de plutonium industriel proposé par C. Bowman. Le

retraitement en ligne du sel combustible, dont le rôle se limite à l'extraction des produits de fission, autorise une incinération totale du plutonium introduit, au prix d'un inventaire plus élevé d'actinides mineurs (1.9 t à l'équilibre, dont 1.2 t de  $^{244}\text{Cm}$ ). Afin d'illustrer comparativement la facilité d'incinération de fin de cycle propre à l'utilisation du thorium en spectre thermique, nous avons enfin étudié le fonctionnement d'un système alimenté en continu par les transthoriums issus du sel combustible d'un RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  à l'équilibre.

Pour l'étude de scénarios réalistes, nous nous sommes placés dans le cas du parc REP français actuel, en supposant qu'il n'est pas renouvelé. Dans le cas d'un simple remplacement des REP par des RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ , nous avons montré que la transition  $\text{Th}/\text{Pu} \rightarrow ^{233}\text{U}$  est possible, permettant par ailleurs l'incinération totale des stocks de plutonium. Il ressort de la prise en compte précise des caractéristiques du plutonium disponible que cette transition est facilitée dans le cas où le retraitement MOX est arrêté en 2010. Nous nous sommes ensuite placés dans une situation où un déploiement significatif de la puissance nucléaire installée est nécessaire, toujours à partir du parc REP français actuel, en nous basant sur le facteur 10 établi au chapitre 1. Nous avons alors montré qu'une production extérieure d' $^{233}\text{U}$  est indispensable, et peut être assurée par des RNR U/Pu, équipés de couvertures en thorium et pouvant ainsi fournir de l' $^{233}\text{U}$  à raison d'au moins  $200 \text{ kg}\cdot\text{an}^{-1}\cdot\text{GWe}^{-1}$ . Remarquons que des REP à support thorium chargé à 10% en plutonium peuvent également être employés dans ce but, et produire selon une étude récente 230 kg d' $^{233}\text{U}$  par tonne de plutonium consommée [68]. Ces résultats nous conduisent à recommander une gestion prudente des stocks de plutonium, qui est dans tous les cas indispensable au démarrage d'une filière RSF (Th/U) $\text{F}_4$ .





# Conclusion

Dans ce travail, nous avons tenté d'évaluer les potentialités, mais aussi les limites, du concept de réacteur à sels fondus pour une production durable d'énergie nucléaire. La question de la gestion des déchets de la filière REP relève en effet plus généralement du problème mondial de l'énergie, qui se pose en termes d'épuisement des ressources naturelles et de détérioration de l'environnement. De ces deux points de vue, le nucléaire est incapable dans son état actuel de se développer de façon à répondre à une part significative des besoins énergétiques mondiaux en plein essor. Pour remplacer les énergies fossiles limitées et émettrices de gaz à effet de serre, le nucléaire devrait, en symbiose avec les énergies renouvelables, satisfaire aux contraintes d'un développement durable en étant sobre, propre et sûr. Compte tenu de ces contraintes, le cycle thorium en spectre thermique est clairement la voie la plus prometteuse.

Un concept particulièrement adapté à un fonctionnement surgénérateur dans ce cas est celui de réacteur à sels fondus. Ce type original de réacteurs a bénéficié par le passé de nombreuses expériences et études, notamment dans les années 1960 avec le projet MSBR d'un réacteur à sels fondus surgénérateur à support thorium et modérateur graphite, et plus récemment avec le concept AMSTER proposé par EDF. A l'aide de procédés pyrochimiques connus, le sel combustible de ces réacteurs peut être retraité en ligne, et s'affranchir de limites neutroniques difficilement surmontables avec des combustibles solides classiques.

Afin d'évaluer les possibilités offertes par ce concept, nous avons développé des outils de simulation adaptés, organisés autour du code de transport Monte Carlo MCNP. Ils permettent de simuler avec précision le fonctionnement d'un réacteur à sels fondus de son démarrage à son équilibre, en tenant compte de ses différentes opérations de retraitement.

Nos premières études ont retrouvé les avantages du cycle thorium en spectre épithermique, en réévaluant le projet MSBR par le biais d'un système de référence. Dans ce réacteur industriel d'une puissance de 2500 MWth, l'extraction en ligne des produits de fission et du protactinium autorise à l'équilibre un taux de régénération de 1.04 environ, et un temps de doublement d'une trentaine d'années. Le faible inventaire d'uranium (2.2 t à l'équilibre dont 1.2 t d'<sup>233</sup>U) et de transuraniens (0.1 t) permet de réduire la radiotoxicité à 1000 ans des rejets en actinides de plus d'un facteur 100 par rapport au cycle uranium en spectre rapide.

A partir du système de référence, nous avons pu étudier séparément quelques options intéressantes. Il ressort de ces études que c'est le retraitement en ligne qui apporte le plus de flexibilité au système. Il est en effet aisé d'adapter l'économie de neutrons au fonctionnement souhaité (sur- ou ré-génération, transmutation de PFVL), en ajustant par exemple la durée du retraitement. Un élément caractéristique de cet apport important du retraitement en ligne est l'étape de fluoration de l'uranium, préalable à l'extraction des produits de fission. Elle permet de minimiser les rejets d'uranium, et de bloquer la production de transuraniens au niveau du neptunium, dans le cas où ce dernier, fluoré avec l'uranium, est séparé puis stocké. Grâce à l'extraction rapide des produits de fission, en particulier gazeux, le cœur fonctionne sans réserve de réactivité, et s'étouffe en quelques heures lorsque l'uranium fluoré n'est plus réinjecté. Tous ces éléments de flexibilité contribuent à rendre ce réacteur particulièrement intéressant pour une production durable d'énergie nucléaire basée sur le cycle thorium.

Notre étude de la transition vers le cycle asymptotique  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  a montré les limites de l'utilisation du plutonium issu des REP. Nous avons constaté que la vitesse de la transition  $\text{Th}/\text{Pu} \rightarrow ^{233}\text{U}$  est fortement dépendante de l'origine du plutonium utilisé, et de son temps de refroidissement. Dans un scénario de transition basé sur l'utilisation optimale du stock de plutonium français, un facteur 10 sur la puissance nucléaire installée d'ici 2050 est ainsi hors d'atteinte, si on se limite aux seules performances surgénératrices des RSF. Seul un apport extérieur d' $^{233}\text{U}$ , produit par exemple par quelques réacteurs à neutrons rapides classiques à support uranium, équipés de couvertures en thorium, permettrait un tel déploiement. Dans l'optique du démarrage d'une filière thorium, ces considérations prospectives incitent plus généralement à privilégier une gestion raisonnée du plutonium dans le cycle du combustible actuel.

Outre des études cinétiques de sûreté réalistes, la poursuite des travaux sur les RSF producteurs d'énergie en cycle thorium réclame des efforts importants de R&D pluridisciplinaire, alliant neutronique et pyrochimie. Nous avons vu en effet que ces deux derniers domaines sont étroitement couplés dans le fonctionnement d'un RSF, qualifié de "réacteur de chimiste". Il est ainsi nécessaire d'approfondir nos connaissances des propriétés physico-chimiques des sels combustibles utilisables, ainsi que de matériaux comme le graphite. Par ailleurs, il serait utile d'étudier les procédés d'extraction et les problèmes de corrosion intervenant dans une unité de retraitement en ligne, à l'aide d'une boucle à sels fondus expérimentale.

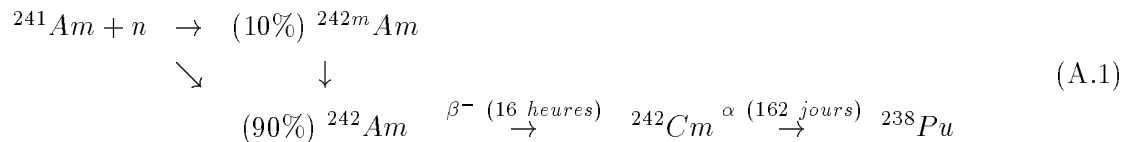
En parallèle, il convient d'améliorer la précision des données nucléaires importantes, telles les sections efficaces de capture et de fission de l' $^{233}\text{U}$ , ou encore les sections efficaces de diffusion élastique du graphite et du fluor. La plate-forme expérimentale PEREN, en construction à l'ISN de Grenoble, a ainsi pour but d'acquérir une connaissance précise des propriétés neutroniques du modérateur graphite, des sels utilisés, et du combustible nucléaire lui-même.

## Annexe A

# Incinération d'actinides mineurs sur support inerte à sels chlorures

Le but est ici de compléter l'exposé des outils de simulation, et plus particulièrement de présenter les méthodes développées pour l'étude de systèmes sous-critiques. On choisit pour cela d'évaluer dans quelle mesure un RSF sous-critique à spectre rapide peut se prêter à l'incinération d'actinides mineurs. Le système étudié sera semblable à celui présenté au chapitre 3 pour la production d'énergie en cycle U/Pu, et sera comparé à un ADS à combustible solide.

Le problème principal posé par l'incinération d'actinides mineurs purs en spectre rapide est celui de la production rapide de  $^{238}\text{Pu}$  par décroissance  $\alpha$  du  $^{242}\text{Cm}$ , lui-même produit à partir de  $^{241}\text{Am}$  selon le schéma A.1. L'accumulation du  $^{238}\text{Pu}$  provoque alors une augmentation difficilement gérable de la réactivité. Rappelons que  $^{242m}\text{Am}$  est supposé produit à raison de 10% par capture sur  $^{241}\text{Am}$ . Il décroît vers son fondamental par une transition isomérique de 141 ans de demi-vie et peut également produire de  $^{243}\text{Am}$  par capture.



Dans ce qui suit, on se concentre sur ce problème du  $^{238}\text{Pu}$ . Des calculs préliminaires ont en effet montré que la contribution du  $^{237}\text{Np}$  à la formation de  $^{238}\text{Pu}$  par capture d'un neutron s'avère négligeable, compte tenu des proportions respectives d'américium et de neptunium entrant en jeu. Par ailleurs, la longue durée de vie du  $^{237}\text{Np}$  et son faible impact sur la radiotoxicité des actinides mineurs rendent son incinération accessoire au niveau de cette étude.

En combustible solide, les faibles proportions de neutrons retardés des actinides mineurs (tableau A.1) impliquent le recours pour raison de sûreté à la sous-criticité. L'étude récente [69] a montré qu'un ADS refroidi au plomb peut convenir pour incinérer un mélange d'américium et

de curium, moyennant un retraitement optimisé alternant des cycles de quelques années (entre 2 et 5 ans). Ce système d'une puissance d'environ 1.6 GWth est muni d'un réflecteur en plomb et d'une cible de spallation également constituée de plomb. Un combustible nitrure et une matrice inerte en nitrure de zirconium sont choisis pour adoucir le spectre par rapport à un combustible oxyde et une matrice en acier, et limiter ainsi l'apport de réactivité par le  $^{238}\text{Pu}$  formé.

noyau	$^{241}\text{Am}$	$^{242m}\text{Am}$	$^{243}\text{Am}$	$^{243}\text{Cm}$	$^{245}\text{Cm}$
$\beta$ (pcm)	140	250	230	70	170

TAB. A.1 – *Proportion de neutrons retardés des actinides mineurs [70].*

Un sel combustible à base de NaCl autorise de fortes concentrations d'actinides et un spectre aussi rapide que dans un combustible solide, le rôle de la matrice inerte étant joué essentiellement par le chlore. Il est en outre possible de produire des neutrons par réaction de spallation de protons de haute énergie sur les nombreux noyaux lourds contenus dans le sel, avec un rendement qui reste à déterminer. La rencontre de ces quelques caractéristiques intéressantes des sels chlorures a ainsi conduit le JAERI à proposer dans les années 80 le projet d'incinérateur d'actinides mineurs [21] déjà présenté au chapitre 1, dont on propose de s'inspirer ici.

Un réacteur à sels fondus sous-critique à spectre rapide destiné à brûler des actinides mineurs peut être adapté à différents types de scénarios. On opte ici pour un parc de réacteurs de type REP dans une partie desquels le plutonium est multirecyclé (figure A.1). Un tel scénario de multirecyclage MOX annule les rejets de plutonium mais maximise la production d'actinides mineurs, ce qui justifie pleinement le recours à un système dédié à leur incinération. Dans ce cas, les actinides mineurs constituent les déchets ultimes du cycle, produits de surcroît en quantité notable par rapport au cycle REP ouvert. Ce même scénario a été choisi pour l'étude précédemment évoquée d'un incérateur d'Am et de Cm à combustible solide [69]. Partir de ces mêmes hypothèses nous permettra d'évaluer certaines performances du RSF par comparaison.

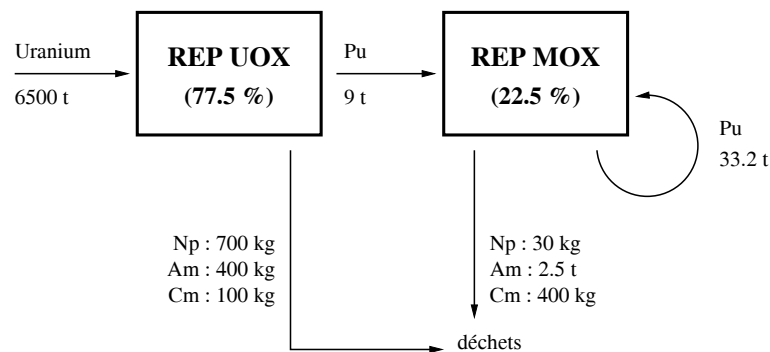


FIG. A.1 – *Bilan annuel des déchets dans le scénario de multirecyclage MOX choisi [71].*

## A.1 Illustration du problème de l'accumulation du $^{238}\text{Pu}$

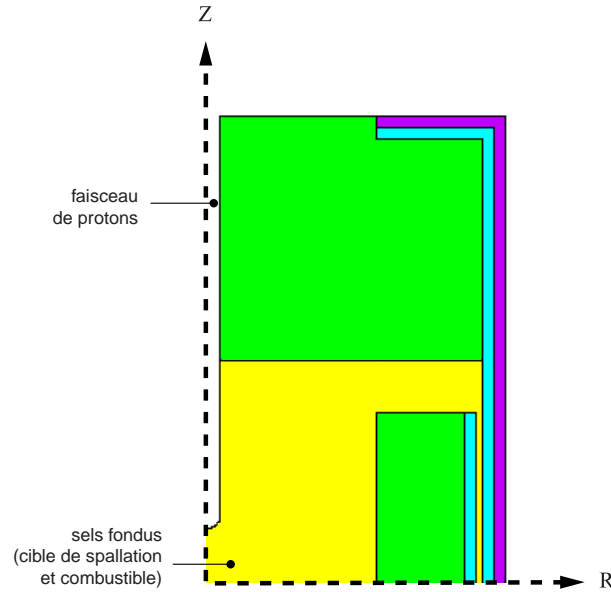


FIG. A.2 – Coupe verticale du RSF incinérateur d'actinides mineurs sous-critique simulé.

Le dimensionnement du système retenu est le même que celui du producteur d'énergie en cycle U/Pu, pour la même puissance de 2500 MWth. On y ajoute le tube à vide d'un faisceau de protons de 1 GeV, dont la fenêtre hémisphérique en acier se situe à 50 cm au-dessus du centre du cœur (figure A.2). La simulation neutronique de ce système est assurée par le code MCNPX, qui couple MCNP 4B pour le transport des neutrons d'énergies inférieures à 20 MeV à des codes comme LAHET pour les énergies supérieures.

La composition des actinides mineurs mis aux déchets dans le scénario choisi est donnée par le tableau A.2. En fixant la concentration des chlorures de ces actinides dans le sel NaCl à 20%, on obtient au démarrage un facteur de multiplication effectif  $k_{eff}$  de  $0.943 \pm 0.002$ .

isotope	$^{241}\text{Am}$	$^{242m}\text{Am}$	$^{243}\text{Am}$	$^{243}\text{Cm}$	$^{244}\text{Cm}$	$^{245}\text{Cm}$	$^{246}\text{Cm}$
fraction molaire (%)	52.0	0.6	32.8	0.1	12.3	2.1	0.1

TAB. A.2 – Composition isotopique des Am et Cm à l'équilibre du multirecyclage MOX [72].

La densité de ce sel est évaluée à  $3.3 \text{ g/cm}^3$  à 900 K. Pour cela, nous nous basons sur le sel 64% NaCl - 36% (U/Pu)Cl<sub>3</sub>, utilisé pour le RSF producteur d'énergie précédemment étudié, et dont on sait que la densité est de  $3.8 \text{ g/cm}^3$  à 900 K. En écrivant la densité connue de ce sel comme le rapport de la masse d'une mole de sel sur le volume d'une mole de sel, on en déduit une valeur effective de la densité des noyaux lourds dilués sous forme de chlorures. Cette den-

sité partielle va nous permettre de tenir compte, dans l'évaluation de la densité inconnue, des liaisons ioniques dans le sel qui conditionnent sa valeur. La composition du nouveau sel étant proche de celle du sel de référence, nous pouvons prendre en première approximation comme densité effective des noyaux lourds dans ce sel la valeur obtenue avec le sel de référence. Nous en déduisons finalement une estimation de la densité du nouveau sel, à  $\pm 0.1 \text{ g/cm}^3$  près. Cette méthode sera utilisée par la suite chaque fois qu'il sera nécessaire d'évaluer la densité inconnue d'un nouveau sel à partir de la densité connue d'un sel de référence, et de composition proche.

Réaction	Production	Consommation	
<i>source</i>	0.09	-	-
<i>fission</i>	3.63	1.00	$^{241}\text{Am}$ 0.47
			$^{242m}\text{Am}$ 0.04
			$^{243}\text{Am}$ 0.24
			$^{244}\text{Cm}$ 0.16
			$^{245}\text{Cm}$ 0.09
$(n, 2n)$	0.02	0.01	-
$(n, \gamma)$	-	2.14	$^{23}\text{Na}$ 0.01
			$^{35}\text{Cl}$ 0.03
			$^{241}\text{Am}$ 1.25
			$^{243}\text{Am}$ 0.68
			$^{244}\text{Cm}$ 0.16
$^{245}\text{Cm}$ 0.01			
$(n, \alpha)$	-	0.10	$^{35}\text{Cl}$ 0.10
$(n, p)$	-	0.27	$^{35}\text{Cl}$ 0.27
$(n, \gamma)$ nickel	-	0.20	-
$(n, p)$ nickel	-	0.01	-
$(n, \alpha)$ $\text{B}_4\text{C}$	-	0.01	-
<i>fuite</i>	-	0.00	-
<i>total</i>	3.74	3.74	-

TAB. A.3 – Bilan neutronique au démarrage du RSF incinérateur d'actinides mineurs.

Le bilan neutronique du sel à  $t = 0$ , détaillé à 0.01 neutron/fission près (tableau A.3), montre la prédominance de l' $^{241}\text{Am}$  qui totalise presque la moitié des fissions et les deux tiers des captures. Ce bilan est obtenu à partir des taux de réaction calculés par MCNPX pour tous les neutrons suivis d'énergie inférieure à 150 MeV, le code ne disposant pas des sections efficaces au-dessus de cette énergie. A la première ligne de ce bilan figure un terme *source* qui correspond

à l'apport extérieur de neutrons produits par spallation des protons sur les noyaux lourds du sel. Ce terme dépend de la séparation arbitraire en énergie entre les neutrons de spallation (neutrons de la source) et les neutrons de propagation (neutrons du cœur), fixée ici de fait à 150 MeV. La formule A.2 montre qu'on peut obtenir une première évaluation du facteur de multiplication global de la source de neutrons  $k_s$  (relative au seuil en énergie de 150 MeV) à partir de la définition de ce dernier et des termes *source* et *total* du bilan.

$$k_s = \frac{N_{total} - N_{source}}{N_{total}} = \frac{N_{crés}}{N_{total}} = 0.976 \pm 0.005 \quad (\text{A.2})$$

avec

- $N_{total}$  le nombre total de neutrons suivis par MCNPX
- $N_{source}$  le nombre de neutrons issus de la source
- $N_{crés} = N_{total} - N_{source}$  le nombre de neutrons créés dans le cœur

L'erreur statistique théorique sur  $k_s$  est calculée à partir du nombre total de neutrons  $N_{total}$  suivis dans chaque calcul MCNP :

$$\frac{dk_s}{k_s} = 2 \frac{dN_{total}}{N_{total}} \simeq \frac{2}{\sqrt{N_{total}}} \quad (\text{A.3})$$

On fixe le nombre de protons source  $N_{protons}$  dans tous les calculs MCNPX à 300, ce qui donne à suivre à MCNP 4B environ 160000 neutrons. La formule A.3 donne  $\frac{dk_s}{k_s} = 0.005$ . Cette incertitude, comme celles sur les sections efficaces moyennes par exemple, est calculée par REM en cours d'évolution par lecture de  $N_{total}$  dans un fichier de sortie de MCNPX.

### A.1.1 Augmentation rapide de la réactivité

À partir de  $t = 0$ , le système évolue à puissance constante, avec une durée de retraitement  $T$  de 100 jours. Aucun ajout d'actinides mineurs n'est effectué par ailleurs et la réactivité est laissée libre d'évoluer. Le coefficient de normalisation  $\varphi$  de REM représente ici le nombre total de protons source pour MCNPX par seconde. L'intensité du faisceau de protons  $I_p$  est donc directement obtenue en ampères en multipliant  $\varphi$  par la charge élémentaire  $e$ . L'ajustement de  $\varphi$  par REM simule ainsi une modulation de  $I_p$  qui serait destinée à maintenir la puissance constante, sans recours pour cela à des barres de pilotage ou à des poisons consommables. La figure A.3 illustre l'accumulation des isotopes fertiles du plutonium, à partir du  $^{238}\text{Pu}$  produit par capture sur l' $^{241}\text{Am}$ . Figure également l'inventaire des produits de fission, lentement extraits du sel et qui ne représentent à  $t = 3$  ans que 0.2 % du total des captures.

Comme pour les simulations de réacteurs critiques, on souhaite suivre la réactivité en cours d'évolution. Mais l'estimateur du  $k_{eff}$  n'est plus utilisable ici, dans la mesure où les taux de

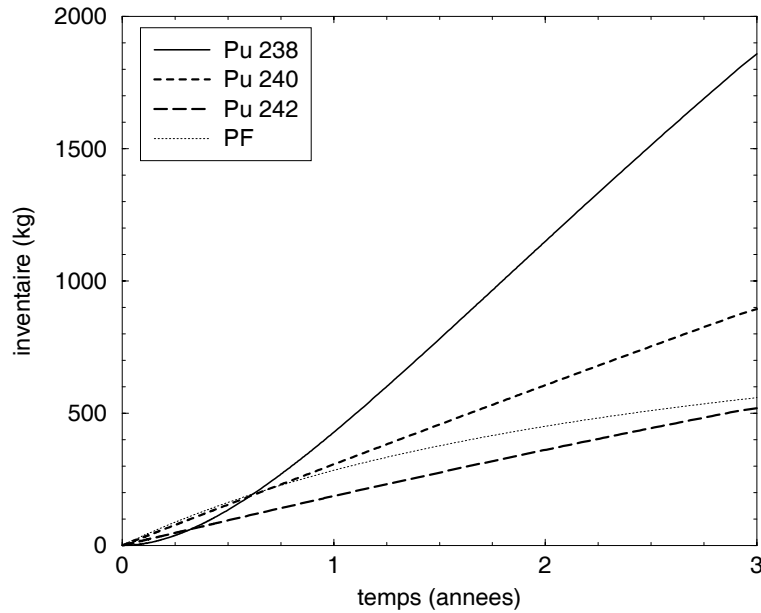


FIG. A.3 – Accumulation du Pu dans le sel du RSF incinérateur d'actinides mineurs.

réaction calculés par MCNPX font intervenir tous les neutrons, et non les seuls neutrons issus de la source de fission globale comme c'est le cas pour les calculs critiques avec MCNP. Il faut se contenter de l'estimation du  $k_s$  obtenue à partir des nombres de neutrons  $N_{total}$  et  $N_{source}$  lisibles dans un fichier de sortie fourni par MCNPX. A posteriori, on pourra cependant effectuer des calculs de  $k_{eff}$  avec MCNP à partir des fichiers générés par REM pour MCNPX en cours d'évolution.  $N_{total}$  et  $N_{source}$  sont déterminés à partir de termes fournis par MCNPX se basant sur une coupure en énergie des neutrons fixée à 20 MeV, à savoir :

- $N_{créés}^{spallation}$  le nombre de neutrons créés par les réactions de spallation
- $N_{absorbés}^{spallation}$  le nombre de neutrons absorbés par les réactions de spallation
- $N_{total}^{MCNPX}$  le nombre total de neutrons pour MCNPX, c'est à dire à toutes les énergies

Le nombre de neutrons source pour le cœur  $N_{source}$  est donc  $N_{créés}^{spallation} - N_{absorbés}^{spallation}$  tandis que le nombre total de neutrons pour le cœur  $N_{total}$  vaut  $N_{total}^{MCNPX} - N_{absorbés}^{spallation}$ . La formule A.2 donne ainsi comme estimation, pour un seuil en énergie de 20 MeV,  $k_s = 0.969 \pm 0.005$  à  $t = 0$ . Cette valeur est logiquement plus faible que l'estimation précédente obtenue pour un seuil à 150 MeV, le nombre de neutrons source  $N_{source}$  étant dans ce cas plus grand. Cet estimateur du  $k_s$  calculé à partir des bilans établis par MCNPX est conservé par la suite pour toutes nos simulations de RSF sous-critiques. La figure A.4 montre l'évolution de  $k_s$  au cours des trois premières années de ce fonctionnement. Du fait de l'accumulation du  $^{238}\text{Pu}$ , on constate une nette augmentation de ce facteur de multiplication. Parallèlement, on calcule que le  $k_{eff}$  passe



de  $0.943 \pm 0.002$  à  $0.989 \pm 0.002$ . L'intensité du faisceau qui est de 80 mA à  $t = 0$  doit chuter jusqu'à 30 mA 3 ans plus tard, tandis que le flux moyen dans l'ensemble du sel passe de  $1.1 \cdot 10^{15}$  à  $1.5 \cdot 10^{15} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$  au cours de la même période.

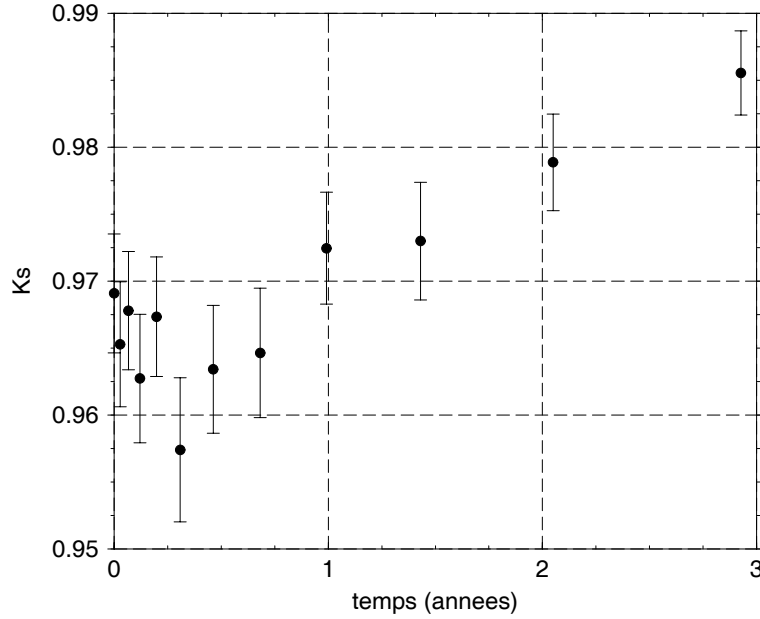


FIG. A.4 – Augmentation du  $k_s$  au démarrage du RSF incinérateur d'actinides mineurs.

Du fait de la faible diminution de la concentration des noyaux lourds sur cette courte période, le rendement de spallation, c'est à dire le nombre de neutrons source produits par proton incident reste constant. Par définition, il est donné par le rapport  $\frac{N_{source}}{N_{protons}} = 19.7 \pm 0.3$ . Compte tenu de la simplification apportée par la spallation directe dans le sel, ce rendement reste acceptable.

### A.1.2 Compensation par un inventaire initial de plutonium

isotope	$^{238}\text{Pu}$	$^{239}\text{Pu}$	$^{240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Pu}$	$^{242}\text{Pu}$
fraction molaire (%)	6	29	30	10	25

TAB. A.4 – Composition isotopique du Pu à l'équilibre du multirecyclage MOX [72].

Le système à combustible solide est confronté au même problème d'augmentation de réactivité. On parvient néanmoins à le résoudre dans ce cas en ajoutant au combustible une proportion de plutonium, issu du scénario de multirecyclage MOX choisi (figure A.1) et dont la composition est donnée par le tableau A.4. Ce plutonium, en dépit de sa faible concentration en  $^{239}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Pu}$  par rapport au Pu MOX actuel, est suffisamment fissile en spectre rapide pour constituer une réserve initiale de réactivité qui en s'épuisant parvient à compenser l'augmentation due au  $^{238}\text{Pu}$ . Le facteur  $k_s$  de cet incinérateur est ainsi maintenu constant à 0.96 durant 5 ans en fixant

la proportion molaire initiale de plutonium dans les actinides à 34 %. En essayant d'appliquer cette solution au RSF, on constate que pour disposer d'une concentration initiale conséquente de plutonium, il est nécessaire de diminuer la proportion de l'ensemble des noyaux lourds dans le sel afin de maintenir la réactivité constante. La contrainte d'une température de fusion du sel maximale de 900 K impose une proportion minimale de noyaux lourds dans le sel de 18%, soit seulement 2% de moins que dans le cas du démarrage sans plutonium. Cette proportion minimale de 18% n'autorise qu'une concentration initiale de plutonium de 6%, pour un  $k_{eff}$  proche du démarrage sans Pu ( $0.945 \pm 0.002$  à  $t = 0$ ). Ces 6 % se révèlent rapidement insuffisants pour compenser la production rapide de  $^{238}\text{Pu}$  et l'augmentation de réactivité est comparable au cas précédent ( $k_{eff} = 0.982 \pm 0.002$  à  $t = 3$  ans).

noyau	combustible solide nitrure		RSF NaCl-(Am+Cm)Cl <sub>3</sub>	
	t = 0 (%)	t = 3 ans (%)	t = 0 (%)	t = 3 ans (%)
$^{238}\text{Pu}$	3.2	10.9	0.9	7.9
$^{239}\text{Pu}$	33.9	27.8	6.2	5.3
$^{240}\text{Pu}$	6.3	6.6	1.9	3.0
$^{241}\text{Pu}$	15.3	12.2	2.7	2.1
$^{242}\text{Pu}$	3.2	3.0	1.2	1.7
total Pu	61.9	60.5	12.9	20.0
$^{241}\text{Am}$	15.5	11.9	40.8	33.6
$^{242m}\text{Am}$	2.5	5.0	3.7	5.5
$^{243}\text{Am}$	7.8	6.3	20.7	17.6
total Am	25.8	23.2	65.2	56.7
$^{242}\text{Cm}$	-	0.3	-	0.4
$^{243}\text{Cm}$	0.4	0.5	0.4	0.4
$^{244}\text{Cm}$	6.1	7.0	13.6	13.4
$^{245}\text{Cm}$	5.8	8.5	7.9	9.1
total Cm	12.3	16.3	21.9	23.3

TAB. A.5 – Répartition des fissions (%) à  $t = 0$  et à  $t = 3$  ans dans le RSF incinérateur d'actinides mineurs, et dans un système à combustible solide [69]. Dans les deux cas, on a recours à un inventaire initial de Pu pour compenser la réactivité apportée par le  $^{238}\text{Pu}$ .

Le tableau A.5 compare les répartitions des fissions dans les combustibles des deux systèmes démarrant avec leurs concentrations initiales respectives de Pu. On vérifie effectivement que dans le cas du combustible solide nitrure, la proportion des fissions dans le Pu reste relativement constante, l'augmentation du taux de fission du  $^{238}\text{Pu}$  étant bien compensée par la disparition des  $^{239}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Pu}$  présents au départ. Au contraire, dans le sel combustible du RSF, l'augmentation

de la proportion des fissions dans le  $^{238}\text{Pu}$  n'est pas suffisamment compensée par le Pu initial et se fait au détriment des fissions dans l'Am.

## A.2 Extraction en ligne du plutonium

### A.2.1 Mise à l'équilibre du plutonium en cœur

Pour maintenir la réactivité constante, on se propose d'extraire en continu une partie du plutonium contenu dans le sel, en partant de l'état initial avec Am et Cm seuls. On peut utiliser pour ce faire un procédé analogue à celui utilisé pour l'extraction du Pu surgénéré dans le cas du producteur d'énergie en cycle U/Pu (extraction du Pu à 99 % par électrodéposition en deux temps), toujours avec la même durée de retraitement  $T$  de 100 jours. L'inventaire de  $^{238}\text{Pu}$  se stabilise en 3 ans à 230 kg, la majorité du  $^{238}\text{Pu}$  formé se retrouvant hors flux (1.8 t à  $t = 3$  ans). La figure A.5 montre cette stabilisation du plutonium rendue possible par un stockage hors flux conséquent. Le  $^{238}\text{Pu}$  ne réalise alors que 1.0 % des fissions à  $t = 3$  ans.

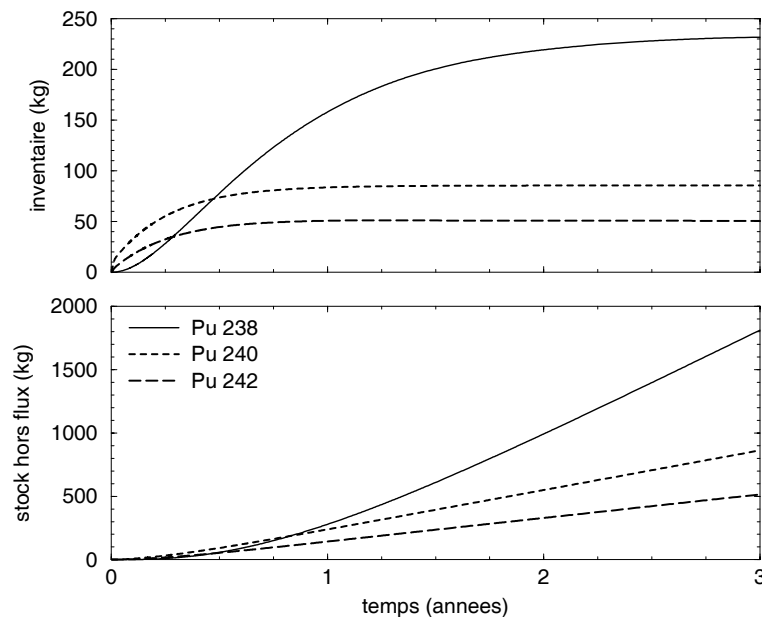


FIG. A.5 – Inventaires et stocks des principaux isotopes du plutonium en cas d'extraction continue de ce dernier du sel du RSF incinérateur d'actinides mineurs.

Comme l'illustre la figure A.6, le  $k_s$  reste alors relativement constant, diminuant toutefois légèrement après un an du fait de la mise à l'équilibre du  $^{238}\text{Pu}$  et de la disparition progressive des actinides mineurs. En 3 ans, le  $k_{eff}$  passe ainsi de  $0.943 \pm 0.002$  à  $0.935 \pm 0.002$ . Sur le même intervalle, l'intensité du faisceau de protons augmente de 80 mA à 120 mA, tandis que le flux moyen dans le sel reste sensiblement égal à sa valeur initiale de  $1.1 \cdot 10^{15} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ .

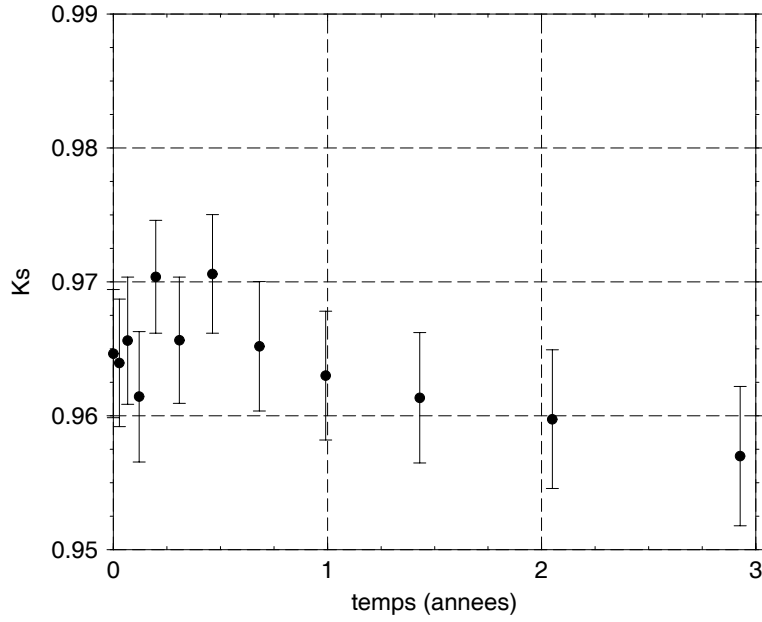


FIG. A.6 – Evolution du  $k_s$  au démarrage du RSF incinérateur d'actinides mineurs dans le cas de l'extraction continue du plutonium.

	t = 0			t = 3 ans		
	$\sigma^{cap}$ (barn)	$\sigma^{fis}$ (barn)	inventaire (kg ou t)	$\sigma^{cap}$ (barn)	$\sigma^{fis}$ (barn)	inventaire (kg ou t)
$^{237}\text{Np}$	0.99	0.45	0	1.03	0.43	140 kg
$^{238}\text{Pu}$	0.48	1.18	0	0.50	1.17	230 kg
$^{239}\text{Pu}$	0.26	1.65	0	0.27	1.66	2.0 kg
$^{240}\text{Pu}$	0.33	0.50	0	0.34	0.49	85 kg
$^{241}\text{Pu}$	0.28	2.03	0	0.29	2.07	0.3 kg
$^{242}\text{Pu}$	0.28	0.37	0	0.29	0.36	50 kg
$^{241}\text{Am}$	1.06	0.41	34.3 t	1.11	0.39	29.3 t
$^{242m}\text{Am}$	0.19	2.99	400 kg	0.21	3.07	580 kg
$^{243}\text{Am}$	0.92	0.33	21.8 t	0.96	0.31	19.1 t
$^{242}\text{Cm}$	0.15	0.25	0	0.16	0.24	560 kg
$^{243}\text{Cm}$	0.13	2.12	66 kg	0.14	2.15	56 kg
$^{244}\text{Cm}$	0.56	0.57	8.2 t	0.58	0.55	8.3 t
$^{245}\text{Cm}$	0.21	1.85	1.4 t	0.22	1.89	1.6 t
$^{246}\text{Cm}$	0.14	0.40	67 kg	0.15	0.39	96 kg

TAB. A.6 – Sections efficaces moyennes (barn) de capture et de fission et inventaires des actinides intervenant à  $t = 0$  et à  $t = 3$  ans dans le fonctionnement avec extraction du plutonium.

Sur ces trois années, les sections efficaces moyennes varient peu, l'état du système ne différant de son état initial décrit par le bilan à  $t = 0$  pratiquement que par la disparition d'une partie de l'américium. C'est ce qu'illustre le tableau A.6, montrant également que l'inventaire de curium augmente légèrement, passant de 9.7 à 10.6 t. Par tonne d'américium incinérée sur cette période, on stocke environ 420 kg de Pu, dont 240 kg de  $^{238}\text{Pu}$ , 2.2 kg de  $^{239}\text{Pu}$ , 110 kg de  $^{240}\text{Pu}$ , 0.3 kg de  $^{241}\text{Pu}$  et 67 kg de  $^{242}\text{Pu}$ . Les proportions relatives des isotopes du Pu en stock, comme celles en cœur d'ailleurs, s'expliquent par la prédominance de l'extraction rapide du Pu sur les captures. Les isotopes autres que le  $^{238}\text{Pu}$  en quantités notables sont le  $^{240}\text{Pu}$  produit par décroissance  $\alpha$  du  $^{244}\text{Cm}$ , et le  $^{242}\text{Pu}$  produit par capture électronique de l' $^{242}\text{Am}$ . Le  $^{239}\text{Pu}$  et le  $^{241}\text{Pu}$  ne peuvent être produits ici que par capture respectivement sur le  $^{238}\text{Pu}$  et le  $^{240}\text{Pu}$ , et ne sont donc présents qu'en faible quantité du fait de l'extraction rapide du Pu.

### A.2.2 Évaluation du bilan radiotoxique de la méthode

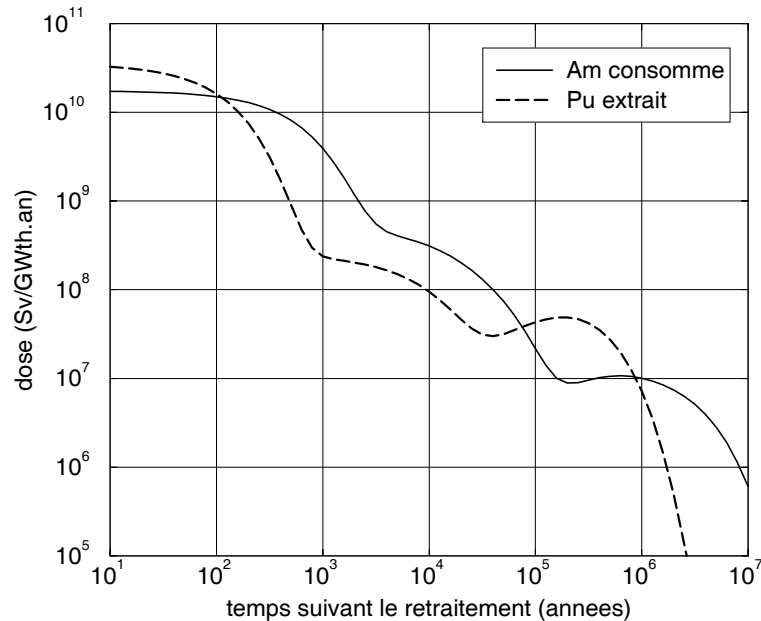


FIG. A.7 – Comparaison des radiotoxicités normalisées par GWth.an du plutonium extrait et de l'américium consommé au cours des trois premières années du RSF incinérateur d'actinides mineurs avec extraction continue du plutonium.

L'incinération de l'américium est incomplète, puisqu'elle s'accompagne du rejet d'une partie de son inventaire transmutée en plutonium. Bien qu'il permette un fonctionnement à réactivité constante, ce stockage de plutonium n'est pas satisfaisant et détériore le bilan radiotoxique de l'incinérateur, c'est à dire la différence entre la radiotoxicité des noyaux incinérés et des noyaux rejetés. Dans un premier temps, on calcule donc la radiotoxicité induite par le stock de

plutonium constitué après 3 ans de fonctionnement (3.2 t). La figure A.7 montre l'évolution de cette radiotoxicité au cours du temps, exprimée en Sv et normalisée à une production d'énergie de 1 GWth.an. On la compare à la radiotoxicité induite par la quantité d'américium ( $^{241}\text{Am}$  et  $^{243}\text{Am}$ ) incinérée au cours des trois mêmes années (7.7 t), représentée sur la figure A.7 avec la même normalisation. On constate que la réduction maximale est atteinte après 1000 ans, et n'atteint qu'un facteur 15.

L'intérêt d'une telle incinération est donc limité du point de vue de la réduction de la radioactivité. Il reste envisageable à partir de  $t = 3$  ans de modifier le retraitement de façon à poursuivre l'incinération, en continuant à stabiliser l'inventaire de Pu par extraction continue. On peut ainsi soit recharger le sel en Am et Cm pour un nouveau cycle de 3 ans, soit alimenter le système en Am et Cm de manière continue, la réactivité étant ainsi maintenue constante dans les deux cas. Le Pu à forte teneur en  $^{238}\text{Pu}$  stocké hors flux pourrait alors être utilisé comme matière fissile en RNR, par exemple pour démarrer une filière au thorium. On réalise que ces types de fonctionnement par cycles se rapprochent beaucoup de la gestion de l'incinération en réacteur à combustible solide. La question se pose donc du réel intérêt d'un RSF dans ce cas, le système à combustible solide nitrure se révélant plus flexible quant aux possibilités d'utilisation d'une réserve de réactivité suffisante. Tout ceci nous rappelle que l'incinération des actinides mineurs est un problème particulièrement délicat, qu'il convient d'éviter autant que faire se peut en préférant par exemple le cycle thorium au cycle uranium.

## Annexe B

# Sensibilité aux données neutroniques du RSF (Th/U)F<sub>4</sub> de référence

L'objet de cette annexe est d'évaluer la sensibilité des principaux résultats obtenus au chapitre 4 pour le RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  de référence, à des variations de certaines données neutroniques de base. En faisant varier essentiellement des sections efficaces telles qu'elles sont lues par MCNP, de façon homothétique sur l'ensemble du spectre en énergie, nous avons simulé la mise à l'équilibre du système de référence. Dans chaque cas, nous avons procédé à la comparaison succincte de chaque nouvel équilibre obtenu avec l'équilibre de référence. Les paramètres principaux retenus pour cette comparaison sont le taux de régénération et le temps de doublement, respectivement de 1.038 et 31 ans dans le cas de référence.

### B.1 Incertitudes concernant les principaux noyaux lourds

Les sections efficaces de tous les noyaux lourds sont lues dans la base ENDF/B-VI. Seules les sections efficaces de quelques produits de fission non disponibles dans cette base sont lues dans la base JENDL 3.2, ainsi que celles du  $^{19}\text{F}$  dont les fichiers ENDF/B-VI sont inutilisables par NJOY. Nous nous limitons ici aux incertitudes liées aux deux réactions prédominantes : la fission de  $^{233}\text{U}$  accompagnée de sa capture parasite, et la capture du  $^{232}\text{Th}$ .

#### B.1.1 Modification de la section efficace de capture de $^{233}\text{U}$

Une valeur caractéristique des incertitudes sur les sections efficaces de capture et de fission des actinides est 10% [73]. Une grandeur importante pour  $^{233}\text{U}$  est le rapport  $\alpha$  de la section efficace moyenne de capture sur celle de fission, qui conditionne la proportion de captures parasites. Nous choisissons ici de ne modifier que la section efficace de capture de  $^{233}\text{U}$ , en augmentant sa valeur de 10% sur toute la gamme d'énergie, directement dans le fichier au format

ENDF lu par MCNP. Nous ne renormalisons pas la section efficace totale de  $^{233}\text{U}$ , le but ici étant d'évaluer l'effet d'une augmentation du paramètre  $\alpha$  de l'ordre de 10%.

Au démarrage du système, dont la simulation utilise la section efficace de capture de  $^{233}\text{U}$  ainsi modifiée, le paramètre  $\alpha$  vaut  $\frac{10.4}{77.8} = 0.134$ , contre 0.122 dans le cas de référence. La section efficace moyenne de capture (1.60 barn) et l'inventaire (66.8 t) du  $^{232}\text{Th}$  restent inchangés. D'après la formule 4.9, l'inventaire initial d' $^{233}\text{U}$  augmente alors simplement comme le rapport inverse des valeurs de  $(1 + \alpha)$ , soit une augmentation d'environ 1%. En ajustant la valeur de  $k_{eff}$  au démarrage à  $1.000 \pm 0.002$ , on obtient effectivement un inventaire initial d' $^{233}\text{U}$  de 1.14 t, contre 1.12 t dans le cas de référence. Cet inventaire se stabilise à 1.30 t, pour un inventaire total d'uranium de 2.34 t, supérieur à celui du cas de référence (2.16 t) du fait d'une capture parasite plus probable sur  $^{233}\text{U}$ . Pour la même raison, l'inventaire des transuraniens atteint 150 kg à l'équilibre, contre seulement 130 kg dans le cas de référence. Le flux moyen est de  $3.13 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ , légèrement inférieur à celui de référence ( $3.18 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ).

réaction	noyau(x)	référence		$\sigma_{capture}^{233\text{U}} + 10\%$	
		taux (n/f)	sec eff (barn)	taux (n/f)	sec eff (barn)
<i>fission</i>	$^{232}\text{Th}$	0.007	0.0095	=	0.0097
	$^{233}\text{U}$	<b>0.878</b>	67.0	<b>0.869</b>	64.9
	autres U	0.094	9.8	0.102	9.7
	trans-U	0.021	15.6	0.022	15.2
<i>(n, <math>\gamma</math>)</i>	Li + Be + F	0.031	0.0022	=	=
	PF	0.015	3.19	=	=
	$^{232}\text{Th}$	<b>1.030</b>	1.50	<b>1.005</b>	1.48
	$^{231}\text{Pa}$	0.001	80.3	=	78.4
	$^{233}\text{Pa}$	<b>0.006</b>	26.3	=	26.0
	$^{233}\text{U}$	<b>0.109</b>	8.32	<b>0.119</b>	8.93
	autres U	0.158	16.5	0.169	16.0
	trans-U	0.062	47.4	0.066	46.1

TAB. B.1 – *Consommations de neutrons (neutrons par fission) et sections efficaces moyennes (barn) des réactions de fission et de capture à l'équilibre du RSF de référence, sans et avec augmentation de 10% de la section efficace de capture de  $^{233}\text{U}$ .*

Le bilan neutronique de l'équilibre obtenu à partir de la section efficace modifiée ne diffère du bilan de référence que par le détail des contributions aux réactions de fission et de capture dans le sel, donné par le tableau B.1. On remarque d'abord que le taux de capture de  $^{233}\text{U}$  est augmenté d'un peu moins de 10%, tandis que son taux de fission a diminué par rapport au cas



de référence au profit de celui des autres isotopes de l'uranium, d'où un taux d'absorption de l' $^{233}\text{U}$  pratiquement inchangé. En termes de capture, on constate une nette augmentation de la contribution des isotopes de l'uranium autres que l' $^{233}\text{U}$ , ainsi que des transuraniens, tous produits en excès du fait de la capture parasite augmentée de l' $^{233}\text{U}$ . Les neutrons supplémentaires consommés par ces derniers sont pour l'essentiel déduits du taux de capture du  $^{232}\text{Th}$ , qui passe ainsi de 1.030 à 1.005. Le taux de régénération à l'équilibre est alors seulement de 1.011, soit une production d' $^{233}\text{U}$  de 10 kg/an, et un temps de doublement à l'équilibre d'environ 110 ans, contre 31 ans dans le cas de référence.

Dans le cas modifié, les sections efficaces moyennes nous montrent que le spectre est un peu plus dur que dans le cas de référence. Cela s'explique par le report dans l' $^{233}\text{U}$  d'une partie des captures se faisant sans modification dans le  $^{232}\text{Th}$ , l' $^{233}\text{U}$  capturant à plus basse énergie que le  $^{232}\text{Th}$  (première résonance de capture à 2 eV, contre 20 eV pour le  $^{232}\text{Th}$ ).

A titre de comparaison, une étude de l'ORNL n'évalue qu'à  $\pm 0.006$  l'incertitude sur le taux de régénération liée à une incertitude de 10% sur le paramètre  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$ , identique à celle choisie pour notre étude [74]. Cette évaluation ne tient compte que d'une variation instantanée du paramètre  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$ , ce qui explique sa sous-estimation de l'effet réel obtenu à l'équilibre du fait d'une accumulation plus importante d'uranium et de transuraniens.

Précisons que le but de notre étude de l'influence d'une augmentation du paramètre  $\alpha$  de l' $^{233}\text{U}$  de 10% est avant tout d'illustrer clairement la faiblesse de la marge de surgénération du RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ . L'incertitude réelle sur ce paramètre est en effet plus faible, et est évaluée d'après des mesures intégrales en spectre épithermique réalisées à la fin des années 1960 à environ  $\pm 2.9\%$  [74]. A partir du bilan neutronique présenté dans le tableau B.1, nous évaluons aisément les marges d'incertitude du taux de régénération correspondant à cette précision de  $\pm 2.9\%$  sur  $\alpha$ , en supposant que l'évolution des taux de capture est linéaire. L'encadrement obtenu pour le taux de régénération à l'équilibre est alors  $\tau = 1.038_{-0.008}^{+0.006}$  soit une production d' $^{233}\text{U}$  de  $36_{-8}^{+6}$  kg/an et un temps de doublement associé de  $31_{-4}^{+9}$  ans.

### B.1.2 Modification intégrale de la section efficace de capture du $^{232}\text{Th}$

La réaction prédominante du RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  est la capture dans le  $^{232}\text{Th}$ , conditionnant la régénération d' $^{233}\text{U}$ . La section efficace de cette réaction diffère sensiblement entre les bases disponibles, avec notamment une sous-évaluation mesurée de la base JENDL 3.2, d'environ 10% entre 0.5 keV et 4 keV [75]. La figure B.1 montre qu'il existe une autre gamme d'énergie sur laquelle JENDL 3.2 sous-évalue cette section efficace, par rapport à la base ENDF/B-VI que nous utilisons pour nos calculs de référence. Afin d'évaluer la sensibilité des résultats concernant la surgénération à la section efficace de capture du  $^{232}\text{Th}$ , nous choisissons de recalculer la mise à l'équilibre de référence en utilisant JENDL 3.2 pour les sections efficaces du  $^{232}\text{Th}$ .

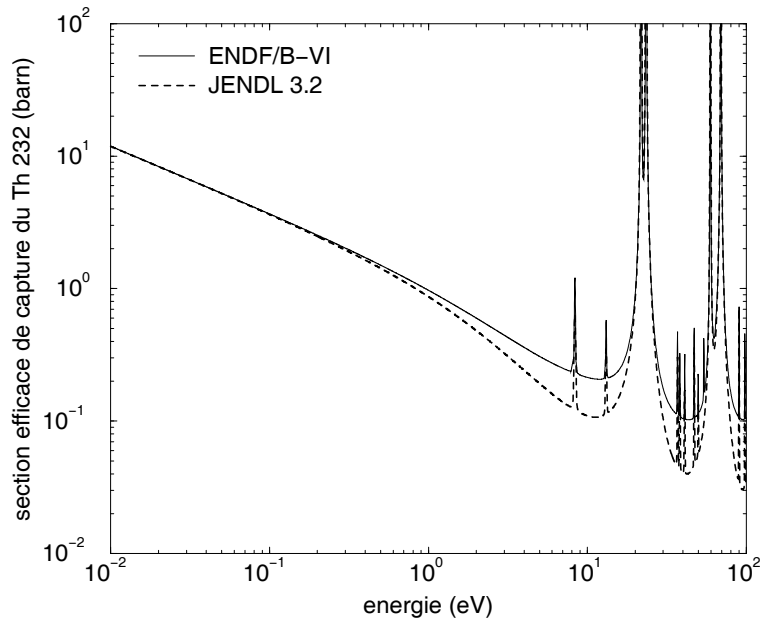


FIG. B.1 – Comparaison des évaluations de la section efficace de capture du  $^{232}\text{Th}$  selon les bases ENDF/B-VI et JENDL 3.2, entre  $10^{-2}$  eV et  $10^2$  eV.

Ce faisant, on constate qu'1.08 t d' $^{233}\text{U}$  suffisent pour démarrer. Dès le démarrage, l'inventaire d'uranium est plus faible que dans le cas de référence, et se stabilise à 2.07 t, dont 1.20 t d' $^{233}\text{U}$ . Par captures successives, on forme ainsi un peu moins de transuraniens (120 kg à l'équilibre). Le flux moyen à l'équilibre est légèrement supérieur ( $3.23 \cdot 10^{14}$  n.cm $^{-2}$ .s $^{-1}$ ).

Par rapport au bilan neutronique de l'équilibre de référence, seul le taux de capture du  $^{232}\text{Th}$  est modifié, passant de 1.030 à 1.025 n/fission. Les 0.005 n/fission perdus par le thorium sont capturés dans le graphite du cœur (0.051 n/fission au lieu de 0.049) et dans le carbure de bore protégeant les échangeurs (0.031 n/fission au lieu de 0.028). Le taux de régénération à l'équilibre est ainsi de 1.032, soit une production d' $^{233}\text{U}$  à l'équilibre de 30 kg/an, et un temps de doublement de 36 ans, contre 31 ans dans le cas de référence.

	$^{232}\text{Th}$ dans ENDF/B-VI		$^{232}\text{Th}$ dans JENDL 3.2	
	$\sigma^{cap}$	$\sigma^{fis}$	$\sigma^{cap}$	$\sigma^{fis}$
$^{232}\text{Th}$	1.50	0.0095	1.46	0.0098
$^{233}\text{Pa}$	26.3	0.061	26.7	0.060
$^{233}\text{U}$	8.32	67.0	8.53	68.7

TAB. B.2 – Sections efficaces moyennes (barn) de capture et de fission du  $^{232}\text{Th}$ , du  $^{233}\text{Pa}$  et de  $^{233}\text{U}$  à l'équilibre de référence, selon la base utilisée pour le  $^{232}\text{Th}$ .

Le tableau B.2 montre que la base JENDL 3.2 surévalue la fission du  $^{232}\text{Th}$ , du fait d'un seuil plus bas situé à 0.4 MeV (0.5 MeV selon ENDF/B-VI). On constate surtout, à travers l'exemple des sections efficaces moyennes du  $^{233}\text{Pa}$  et de  $^{233}\text{U}$ , un léger adoucissement du spectre, qui accompagne la diminution des inventaires à taux de réaction et flux inchangés. Cet effet est dû aux neutrons d'énergies épithermiques qui ne sont plus capturés dans le  $^{232}\text{Th}$  comme dans le cas de référence, mais sont ralentis avant d'être absorbés soit dans le graphite, soit dans le carbure de bore en périphérie du cœur.

Nous venons de voir que les performances du RSF de référence sont sensibles aux différences sur la section efficace de capture du  $^{232}\text{Th}$  entre les bases. Toutefois, cette sensibilité est moins gênante que celle relative à  $^{233}\text{U}$ , dans la mesure où une sous-évaluation de la capture du thorium se compense aisément en pratique par une augmentation de la proportion de noyaux lourds dans le sel, et donc de l'inventaire de thorium.

## B.2 Incertitudes concernant le modérateur graphite

Nous avons vérifié à l'occasion du dimensionnement du système de référence à son démarrage que le graphite joue le rôle de modérateur principal des neutrons dans le cœur. Il est intéressant d'évaluer la sensibilité de la surgénération du RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  aux deux principales caractéristiques du graphite naturel intervenant dans la modération des neutrons, à savoir sa section efficace de diffusion élastique et sa densité.

### B.2.1 Modification de la section efficace de diffusion élastique

On procède à une augmentation uniforme de 10% de la section efficace de diffusion élastique du graphite naturel à partir du fichier au format ENDF issu de la base ENDF/B-VI, et on recalcule toute la mise à l'équilibre. Au démarrage de référence, la section efficace moyenne de diffusion élastique sur le graphite est de 4.54 barn, et totalise environ 82% des diffusions dans le cœur. Avec la section efficace modifiée, la valeur moyenne passe à 4.78 barn, et la contribution aux diffusions dans le cœur à 83%. Le graphite étant le matériau modérateur le plus efficace présent dans le cœur, les neutrons sont un peu mieux modérés. L'inventaire d' $^{233}\text{U}$  nécessaire au démarrage est de 1.09 t, et se stabilise à 1.19 t. L'inventaire d'uranium atteint 2.10 t en tout à l'équilibre, et celui des transuraniens 120 kg, soit 10 kg de moins que dans le cas de référence. Le flux moyen à l'équilibre est de  $3.13 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ .

La réduction des inventaires d'uranium et de transuraniens assure une meilleure économie de neutrons que dans le cas de référence. Une façon de l'illustrer au cours de la mise à l'équilibre est de comparer les productions nettes cumulées d' $^{233}\text{U}$ , ce que fait la figure B.2. L'inventaire initial d' $^{233}\text{U}$  représenté est à peu près le même dans les deux cas (environ 1.1 t). Avec la section efficace modifiée, la production d' $^{233}\text{U}$  est augmentée, avec notamment un temps de premier

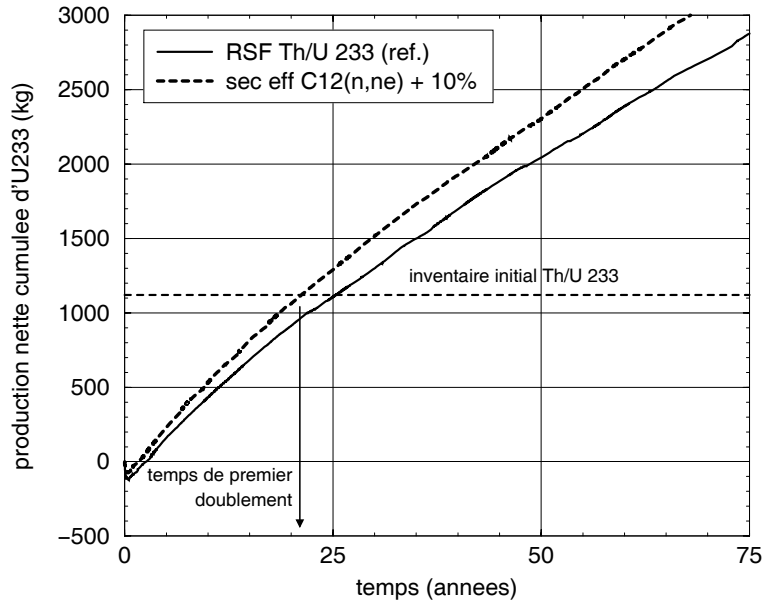


FIG. B.2 – Sensibilité de la production d' $^{233}\text{U}$  du RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  de référence à la section efficace de diffusion élastique du graphite.

réaction	noyau(x)	référence		$\sigma_{(n,ne)}^{12\text{C}} + 10\%$	
		taux (n/f)	sec eff (barn)	taux (n/f)	sec eff (barn)
<i>fission</i>	$^{232}\text{Th}$	0.007	0.0095	=	=
	$^{233}\text{U}$	<b>0.878</b>	67.0	<b>0.879</b>	71.4
	autres U	0.094	9.8	0.096	10.1
	trans-U	0.021	15.6	0.018	16.4
$(n, \gamma)$	Li + Be + F	0.031	0.0022	=	0.0024
	PF	0.015	3.19	=	3.28
	$^{232}\text{Th}$	<b>1.030</b>	1.50	<b>1.035</b>	1.52
	$^{231}\text{Pa}$	0.001	80.3	=	85.2
	$^{233}\text{Pa}$	<b>0.006</b>	26.3	=	27.1
	$^{233}\text{U}$	<b>0.109</b>	8.32	<b>0.108</b>	8.85
	autres U	0.158	16.5	0.156	16.8
	trans-U	0.062	47.4	0.060	49.9

TAB. B.3 – Consommations de neutrons (neutrons par fission) et sections efficaces moyennes (barn) des réactions de fission et de capture à l'équilibre du RSF de référence, sans et avec augmentation de 10% de la section efficace de diffusion élastique du graphite naturel.

doublément réduit d'environ 5 ans par rapport à la valeur de référence de 25 ans. A partir d'une cinquantaine d'années, les pentes de chaque courbe de production se stabilisent au taux de production d' $^{233}\text{U}$  à l'équilibre, plus important avec la section efficace modifiée.

Le détail du bilan neutronique à l'équilibre pour les réactions de fission et de capture, seules modifiées, est donné par le tableau B.3. On constate bien que les captures dans l'uranium et les transuraniens diminuent légèrement, au profit de la capture dans le  $^{232}\text{Th}$ , tandis que le taux de capture du  $^{233}\text{Pa}$  et le taux d'absorption de  $^{233}\text{U}$  restent inchangés. On en déduit un taux de régénération à l'équilibre de 1.043, soit une production d' $^{233}\text{U}$  de 41 kg/an et un temps de doublément de 27 ans, soit 4 ans de moins que dans le cas de référence.

### B.2.2 Modification de la densité

Dans toutes nos études, la densité du graphite est prise égale à celle du graphite naturel, soit  $2.3 \text{ g/cm}^3$ . Afin d'évaluer la sensibilité de nos résultats à la valeur de la densité du graphite, nous avons recalculé la mise à l'équilibre pour une valeur de  $1.9 \text{ g/cm}^3$ , valeur plus proche d'un graphite de type nucléaire. Nous avons comparé les résultats obtenus au cas de référence, en termes de régénération, mais aussi de coefficients de température.

Avec cette nouvelle valeur de densité, la section efficace moyenne de diffusion élastique est pratiquement inchangée (4.51 barn), mais du simple fait de la diminution de la densité atomique du graphite utilisé, le libre parcours moyen des neutrons passe de 1.9 cm à 2.3 cm environ. Ce graphite constitue un modérateur moins efficace, et le spectre se durcit par rapport au cas de référence. Le paramètre  $\alpha$  de  $^{233}\text{U}$  passe ainsi au démarrage de 0.122 à  $\frac{8.7}{69.5} = 0.125$ , et la section efficace de capture vaut 1.52 barn au lieu de 1.60 barn. En conséquence, l'inventaire initial d' $^{233}\text{U}$  n'est plus de 1.12 t, mais de 1.20 t.

L'inventaire d'uranium se stabilise à 2.43 t, dont 1.42 t d' $^{233}\text{U}$ . Il se forme logiquement un excès de transuraniens, dont l'inventaire est de 160 kg à l'équilibre. Le flux moyen à l'équilibre est de  $3.27 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ . Le tableau B.4 illustre le durcissement du spectre à l'équilibre, par rapport au cas de référence utilisant un graphite de plus haute densité.

	$d_{\text{graphite}} = 2.3 \text{ g/cm}^3$		$d_{\text{graphite}} = 1.9 \text{ g/cm}^3$	
	$\sigma^{cap}$	$\sigma^{fis}$	$\sigma^{cap}$	$\sigma^{fis}$
$^{232}\text{Th}$	1.50	0.0095	1.42	0.0096
$^{233}\text{Pa}$	26.3	0.061	26.0	0.062
$^{233}\text{U}$	8.32	67.0	7.31	56.7

TAB. B.4 – Sections efficaces moyennes (barn) à l'équilibre du système de référence pour deux valeurs de la densité du graphite.

Du point de vue du calcul du taux de régénération, seul change le taux de capture dans le thorium, passant de 1.030 pour le cas de référence à 1.008. Le taux de régénération à l'équilibre est ainsi de 1.015, soit une production d' $^{233}\text{U}$  de 14 kg/an et un temps de doublement de 86 ans, soit presque le triple du cas de référence. Cette diminution des captures dans le thorium s'explique par un taux de capture plus élevé dans l'uranium (0.278 n/fission au lieu de 0.267), et dans les transuraniens (0.068 n/fission au lieu de 0.062).

L'utilisation d'un graphite moins dense se traduit donc par un durcissement du spectre, défavorable à la surgénération car privilégiant les captures dans l'uranium et les transuraniens aux dépens de la capture dans le thorium. Cela ne remet toutefois pas en cause les performances du RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  de référence, accessibles avec un graphite de densité plus faible. Il suffit pour cela de diminuer la proportion de sel en cœur de quelques pourcents afin de retrouver la même contribution du graphite à la modération que dans le cas de référence.

Il est désormais acquis que l'effet modérateur du graphite conditionne en grande partie les coefficients de température du sel et de l'ensemble du système. Sa densité joue donc a priori un rôle important dans la valeur de ces coefficients de température. Le tableau B.5 montre que la diminution de densité du graphite affecte la valeur de tous les coefficients.

description du système	coef. de dilatation ( $\text{g.cm}^{-3}.\text{K}^{-1}$ )	coefficients de température (pcm/K)				
		Doppler	densité	sel	graphite	total
FLiBe thorium référence $t = 0$	$-6.7 \cdot 10^{-4}$	-3.5	+2.0	<b>-1.5</b>	+2.2	<b>+0.8</b>
FLiBe thorium $d_{\text{graphite}} = 1.9$ $t = 0$	$-6.7 \cdot 10^{-4}$	-4.0	+2.3	<b>-1.9</b>	+1.7	<b>+0.3</b>

TAB. B.5 – Coefficients de température au démarrage du RSF  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  pour une densité du graphite de  $2.3 \text{ g/cm}^3$  (valeur de référence) et de  $1.9 \text{ g/cm}^3$ .

Lorsque la densité du graphite diminue, le durcissement du spectre accentue l'effet Doppler au niveau des premières résonances de capture du  $^{232}\text{Th}$ . Il en est de même pour l'effet lié à la dilatation du sel. En effet, le spectre est d'autant mieux thermalisé qu'il est plus dur avant l'augmentation de température, car le graphite conserve sensiblement le même pouvoir de modération par rapport au sel, avec un libre parcours moyen des neutrons de 2.3 cm (au lieu de 1.9 cm à haute densité) contre 3.6 cm dans le sel. La résultante de ces deux effets opposés sur le coefficient global du sel est donc toujours négative, mais légèrement plus importante en valeur absolue que dans le cas de référence, grâce à la prédominance de l'effet Doppler.

La contribution du réchauffement du graphite seul est également favorable à la sûreté (+1.7 pcm/K au lieu de +2.2). Cet effet positif sur la réactivité est lié au décalage de la maxwellienne vers les hautes énergies. Il est atténué lorsque la densité du graphite diminue, car avec elle diminue également la probabilité de diffusion des neutrons dans le graphite, et donc l'influence du décalage de la maxwellienne sur la réactivité.

Le coefficient de température total est plus faible avec le graphite de densité 1.9 g/cm<sup>3</sup>. On remarque en outre que la valeur totale calculée (+0.3 pcm/K) est plus éloignée de la somme des contributions du sel et du graphite (-0.2 pcm/K) que dans le cas de référence (+0.8 pcm/K au lieu de +0.7). Les deux contributions de signes opposés ont en effet sensiblement la même valeur absolue, contrairement au cas de référence pour lequel la contribution du graphite domine largement. Ces deux effets proches en valeur absolue sont pris en compte simultanément dans le calcul du coefficient de température total et se modifient mutuellement, d'où l'écart observé de la valeur résultante avec la somme des deux effets séparés.





# Bibliographie

- [1] ELECNUC. Les centrales nucléaires dans le Monde, CEA (1999).
- [2] J.P. Schapira. Le rôle potentiel du cycle du combustible à base de thorium, dans “Les déchets nucléaires”, ed. R. Turley (1997).
- [3] D.E. Beller et al. The U.S. accelerator transmutation of waste program, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 463, 468-486 (2001).
- [4] International Energy Agency. Key world energy statistics, <http://www.iea.org> (2002).
- [5] World Energy Council. L'énergie pour le monde de demain, ed. Technip (1993).
- [6] J.L. Bobin, H. Nifenecker, C. Stéphan. L'énergie dans le monde: bilan et perspectives, ed. EDP Sciences (2001).
- [7] J.M Jancovici. Le réchauffement climatique : réponse à quelques questions élémentaires, La Jaune et la Rouge, No. 555, 5-18 (2000).
- [8] G. Brundtland. Our Common Future, Oxford University Press (1987).
- [9] P.R. Bauquis. Un point de vue sur les besoins et les approvisionnements en énergie à l'horizon 2050, Revue de l'Energie, No. 509 (1999).
- [10] IIASA-WEC. Global Energy Perspectives, Cambridge University Press (1998).
- [11] H. Nifenecker et al. Hybrid Nuclear Reactors, Progress in Particle and Nuclear Physics, Vol. 43, 683-827 (1999).
- [12] CIPR Publication 76. Age-dependent doses to members of the public from intake of radio-nuclides, part 5, compilation of ingestion and inhalation dose coefficients (1995).
- [13] S. David. Capacité des réacteurs hybrides au plomb pour la production d'énergie et l'incinération avec multirecyclage des combustibles, évolution des paramètres physiques, radio-toxicités induites, Thèse de doctorat (UJF - Grenoble I) ISN 99-27 (1999).

- [14] R.C. Briant, A.M. Weinberg. Aircraft Nuclear Propulsion Reactor, Nuclear Science and Engineering, vol. 2, 795-853 (1957).
- [15] P.N. Haubenreich, J.R. Engel. Experience with the Molten Salt Reactor Experiment, Nuclear Applications and Technology, vol. 8, 118-136 (1970).
- [16] M.W. Rosenthal et al. Molten Salt Reactors-History, Status, and Potential, Nuclear Applications and Technology, vol. 8, 107-117 (1970).
- [17] E.S. Bettis, R.C. Robertson. The design and performance features of a single-fluid molten salt breeder reactor, Nuclear Applications and Technology, vol. 8, 190-207 (1970).
- [18] M.E. Whatley et al. Engineering development of the MSBR fuel recycle, Nuclear Applications and Technology, vol. 8, 170-178 (1970).
- [19] K. Furukawa et al. Thorium Molten-Salt Nuclear Energy Synergetics, Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 27, No. 12, 1157-1178 (1990).
- [20] M. Taube. Fast reactors using molten chloride salts as fuel, Final report 1972-1977, Swiss Federal Institute for Reactor Research (1978).
- [21] Y. Kato et al. Accelerator molten salt target system for transmutation of long lived nuclides, Meeting on Accelerator-Based Transmutation, PSI-Proceedings 92-02 (1992).
- [22] C.D. Bowman. Once-Through Thermal-Spectrum Accelerator-Driven System for LWR Waste Destruction Without Reprocessing: Tier-1 Description, ADNA/98-04 (1998).
- [23] O. Méplan. Technical report on Bowman's reactor, rapport interne ISN (1999).
- [24] M. Valade. Etude de l'incinération des transuraniens en réacteur à sel fondu, Thèse de doctorat (Université Louis Pasteur de Strasbourg, 2000).
- [25] V. Berthou. Le concept TASSE (Thorium ADS with simplified fuel cycle for long term energy production), Thèse de doctorat (Université d'Evry - Val d'Essonne, 2000).
- [26] D. Lecarpentier. Le concept AMSTER, aspects physiques et sûreté, Thèse de doctorat (Conservatoire National des Arts et Métiers, 2001).
- [27] S.K. Oh, K. Chung. AMBIDEXTER nuclear energy complex: a practicable approach for rekindling nuclear energy application, Nuclear Engineering and Design, 207, 11-19 (2001).
- [28] P. Faugeras. Revue des domaines clefs d'études sur les réacteurs à sels fondus, note CEA SPRC/LEDC 98/405 (1998).
- [29] W.R. Grimes. Molten-Salt Reactor Chemistry, Nuc. App. and Tech., vol. 8, 137-155 (1970).

- [30] C. Jouault. Séparation pyrochimique d'éléments facilement réductibles contenus dans des déchets nucléaires, Thèse de doctorat (INP de Grenoble, 2000).
- [31] J. Lacquement. Current Reprocessing of Spent Nuclear Fuel in Molten Salts, PRACTIS-GEDEON Workshop on Pyrochemistry and Fuel Cycles for Innovative Nuclear Systems, Cadarache, 19-20 Juin 2002.
- [32] F. Lemort. Etude de la séparation actinides-lanthanides des déchets nucléaires par un procédé pyrochimique nouveau, Thèse de doctorat (INP de Grenoble, 1997).
- [33] L.M. Ferris et al. Equilibrium Distribution of Actinide and Lanthanide Elements between Molten Fluoride Salts and Liquid Bi Solutions, *J. Inorg. Nucl. Chem.*, 32, 2019-2035 (1970).
- [34] J.F. Briesmeister. MCNP - A General Monte Carlo N Particle Transport Code, LANL, report 12625-M (1997).
- [35] L.S. Waters. MCNPX User's Manual Version 2.1.5, LANL, report jaUR-99-1995 (1999).
- [36] J.P. Schapira. Transmutation des radionucléides à vie longue : principes, méthodes, réacteurs, accélérateurs, Cours de DEA Paris XI - Grenoble I - Tours - INSTN.
- [37] Cross Section Evaluation Working Group. Data Formats and Procedures for the Evaluated Nuclear Data File ENDF-6, National Nuclear Data Center, BNL-NCS-44945 (1995).
- [38] G. Fioni et al. Transmutation of Am-241 in a high thermal neutron flux, American Institute of Physics Conference Series, 447, 43-51 (1998).
- [39] NJOY 97.0. Code System for Producing Pointwise and Multigroup Neutron and Photon Cross Sections from ENDF/B-VI Data, RSICC CODE PACKAGE PSR-368 (1998).
- [40] Groupe de travail CEA-EDF "cœur". Synthèse des études réalisées entre 1973 et 1983, dossier "cœur", rapport interne EDF HT/12/75/83 (1983).
- [41] H. Moriyama et al. Equilibrium Distributions of Actinides and Fission Products in Pyrochemical Separation Systems, LiCl-KCl/Cd System, *Journal of Nuclear Science and Technology*, 27, 937-943 (1990).
- [42] M. Allibert. Communication privée, Novembre 2001.
- [43] D.I. Poston et al. User's Manual for Monteburns Version 1.0, Los Alamos Laboratory report LA-UR-99-4999 (1999).
- [44] J. Fréhaut. Dommages dans les matériaux irradiés, dans "Electronucléaire, une présentation par des physiciens", publication du Cercle d'Etudes Sur l'Energie Nucléaire (1999).

- [45] R.E. MacFarlane et al. Radiation damage calculations with NJOY, *Journal of Nuclear Materials*, 122-123, 1041-1046 (1984).
- [46] P. Reuss. *La neutronique, "Que sais-je?"*, Presses Universitaires de France (1998).
- [47] G.J. Janz et al. *J. Phys. Chem. Ref. Data*, Vol. 17, Suppl. 2, p. 75 (1988).
- [48] A. Lecocq. Graphite, dans "Analyse critique du projet MSBR", rapport EDF (1977).
- [49] R. Barjon. *Physique des réacteurs nucléaires* (1993).
- [50] A. Nuttin et al. Thorium Fuel Cycles: A Graphite-Moderated Molten Salt Reactor Versus a Fast Spectrum Solid Fuel System, *International Conference on Future Nuclear Systems (GLOBAL 2001)*, Paris, 9-13 Septembre 2001.
- [51] R.B. Briggs. Tritium in Molten Salt Reactors, *Reactor Technology*, Vol. 14, No. 4 (1971).
- [52] P.A. Platonov et al. Radiation damage and life-time evaluation of RBMK graphite stack, Kurchatov Institute.
- [53] S.F. Mughabghab et al. *Neutron Cross Sections from Neutron Resonance Parameters and Thermal Cross Sections*, Academic Press (1981).
- [54] P. Beaujard. Etude bibliographique sur le carbone 14, Note technique IPSN (1997).
- [55] R.E. MacFarlane. New thermal neutron scattering files for ENDF/B-VI release 2 (1994).
- [56] R.E. Thoma et al. *J. Inorg. Nucl. Chem.*, 34, 9, 2747 (1972).
- [57] J.P. Goumondi. Maîtrise du tritium dans les usines de retraitement du combustible REP, dans "Journées tritium de la SFRP", 51-70 (1986).
- [58] P. Faugeras. Communication privée, Octobre 2001.
- [59] B.N. Hoglund. The Multi-Mission Molten Salt Reactor, Versatility in Achieving Excess Fissile Destruction, Resource Extension and Proliferation Resistance Mission Requirements, <http://home.earthlink.net/~bhoglund/multiMissionMSR.html> (1995).
- [60] M. Jacquin, A. Lecocq, J.L. Romet. Traitement en continu du sel MSBR, rapport interne EDF/DER/RNE/PhR HF/13/11/76 (1976).
- [61] D. Kerdraon. Optimisation par simulation du couplage entre un réacteur sous-critique et sa source de spallation, application à un démonstrateur, Thèse de doctorat (INP de Grenoble) ISN 01-102 (2001).

- [62] Y. Shimazu. Reactivity Control Capability of Fuel-Salt Processing System in a Molten-Salt Breeder Reactor, *Journal of Nuclear Science and Technology*, 15, 461-465 (1978).
- [63] J.C. Mailen et al. Solubility of  $\text{PuF}_3$  in Molten  $2\text{LiF}-\text{BeF}_2$ , *Journal of Chemical and Engineering Data*, 16, 68-69 (1971).
- [64] G.J. Janz et al. *J. Phys. Chem. Ref. Data*, Vol. 3, No. 1, p. 34 (1974).
- [65] P. Girard, Y. Marignac et J. Tassart. Mission d'évaluation de la filière nucléaire, *Le parc nucléaire actuel*, Mars 2000.
- [66] H. Nifenecker et al. Scenarios with an Intensive Contribution of Nuclear Energy to the World Energy Supply, *International Conference on Future Nuclear Systems (GLOBAL 2001)*, Paris, 9-13 Septembre 2001.
- [67] M. Salvatores. Notions élémentaires sur les réacteurs nucléaires, dans "Les déchets nucléaires", ed. R. Turlay (1997).
- [68] O. Deruelle. Mise au point d'un système de spectroscopie pour mesurer des sections efficaces neutroniques applicables à un possible développement du nucléaire comme source d'énergie, Thèse de doctorat (Paris XI, 2002).
- [69] S. David. Incinération d'actinides mineurs en spectre rapide, note interne IPN (2000).
- [70] J. Blachot et al. Status of delayed neutron data, *OECD/NEA* (1990).
- [71] M. Delpech et al. Multirecyclage de plutonium en REP et RNR - Impact réacteur et scénarios, Note technique CEA DRN/DER/SRPC/LEDC/96-461 (1996).
- [72] F. Lelièvre. Stratégies pour l'incinération de déchets nucléaires dans des réacteurs hybrides, Thèse de doctorat, université PARIS XI Orsay.
- [73] M. Salvatores et A. Zaetta. Transmutation : physique et stratégie, dans "Les déchets nucléaires", ed. R. Turlay (1997).
- [74] A.M. Perry et al. Influence of neutron data in the design of other types of power reactors, *Conference on neutron cross sections and technology*, Washington DC, 4-7 Mars 1968.
- [75] L. Perrot. Validation des bases de données de sections efficaces par l'utilisatin d'un spectromètre à temps de ralentissement au plomb entre 0.1 eV et 30 keV, méthodologie - résultats, Thèse de doctorat (Université Joseph Fourier - Grenoble I) ISN 01-121 (2001).



# Table des figures

1.1	Evolution de la concentration atmosphérique des principaux gaz à effet de serre (CO <sub>2</sub> en parts par million en volume, méthane et protoxyde d'azote en parts par milliard en volume) au cours des deux derniers siècles, comparée à celle de la population mondiale [6]. . . . .	11
1.2	Variations de la température moyenne globale entre 1880 et 2000, ramenées à la moyenne sur cette période [7]. . . . .	13
1.3	Evolution des parts de marché de l'énergie [6]. Les courbes lisses représentent les prévisions du modèle utilisé, et les lignes brisées l'évolution réelle. . . . .	14
1.4	Evolution pour l' <sup>233</sup> U et le <sup>239</sup> Pu du nombre $N_d(E) = \nu(E) - 2(1 + \alpha(E))$ . . . . .	17
1.5	Evolution de la radiotoxicité par ingestion du combustible déchargé d'un REP pour une énergie fournie de 1 GWth.an. . . . .	19
2.1	Schéma de principe de l'expérience ARE. . . . .	24
2.2	Coupe du réacteur expérimental MSRE. . . . .	25
2.3	Vue d'ensemble du projet MSBR. . . . .	26
2.4	Le projet de réacteur sous-critique à sels fondus chlorures du JAERI pour l'incinération de transuraniens en spectre rapide. . . . .	27
2.5	Diagramme de phase des sels NaCl-UCl <sub>3</sub> et NaCl-PuCl <sub>3</sub> [20]. . . . .	30
2.6	Diagramme de phase du sel LiF-BeF <sub>2</sub> -ThF <sub>4</sub> [29]. . . . .	31
2.7	Procédés pyrochimiques étudiés pour le retraitement des combustibles usés [30]. . . . .	32
2.8	Coefficients de partage mesurés à 600 °C entre le sel LiF-BeF <sub>2</sub> -ThF <sub>4</sub> (72-16-12 % molaire) et du bismuth enrichi en lithium [33]. . . . .	34
2.9	Comparaison de principe du retraitement d'un combustible solide et du retraitement en ligne du sel combustible d'un RSF de type MSBR. . . . .	35
2.10	Schéma de principe détaillé du retraitement en ligne du MSBR. . . . .	36
3.1	Coupe au quart verticale du RSF (U/Pu)Cl <sub>3</sub> . . . . .	42
3.2	Schéma de principe du retraitement en ligne du RSF (U/Pu)Cl <sub>3</sub> , équipé d'un dispositif d'extraction de plutonium en cas de surgénération de ce dernier. . . . .	46

3.3	Organisation des outils d'évolution autour du code MCNP. . . . .	48
3.4	Coefficients de partage d'actinides (triangles) et de lanthanides (ronds) mesurés dans le système d'extraction réductrice LiCl-KCl/Cd à 873 K [41]. Les courbes regroupent les coefficients mesurés dans le système LiF-BeF <sub>2</sub> /Bi à la même température. . . . .	53
3.5	Détail progressif des trois niveaux du calcul d'évolution dans REM. . . . .	55
3.6	Prise en compte de l'évolution de la section efficace moyenne globale de capture de l' <sup>238</sup> U. La figure principale ne représente en entier que les trois premiers pas MCNP. L'encadré représente la même section efficace sur les six premiers mois du calcul d'évolution. . . . .	57
3.7	Evolution de l'alimentation et de l'inventaire d' <sup>238</sup> U sous la contrainte d'une proportion constante de noyaux lourds dans le sel. . . . .	58
3.8	Corrections du débit de réinjection du plutonium, et stabilisation de la réactivité au cours des six premiers mois d'évolution du RSF (U/Pu)Cl <sub>3</sub> . . . . .	62
3.9	Influence du type de plutonium utilisé au démarrage du RSF (U/Pu)Cl <sub>3</sub> sur la mise à l'équilibre des inventaires de plutonium et d'actinides mineurs. . . . .	64
3.10	Spectre moyen dans le sel combustible du RSF (U/Pu)Cl <sub>3</sub> à l'équilibre, comparé au spectre moyen dans le cœur d'un réacteur rapide à combustible solide [13]. . .	66
3.11	Taux de réaction de l' <sup>238</sup> U et du <sup>239</sup> Pu à l'équilibre du RSF (U/Pu)Cl <sub>3</sub> , exprimés par fission et par unité de léthargie. . . . .	66
4.1	Vue détaillée du cœur dans une version dite intégrée du projet MSBR [40]. . . .	76
4.2	Coupe au quart verticale de la géométrie générale utilisée dans les simulations, dans le cas du dimensionnement pris comme référence. . . . .	77
4.3	Coupe horizontale du coeur de référence (diamètre des canaux de 15 cm). . . . .	78
4.4	Dimensionnement pour le système <sup>232</sup> Th/ <sup>233</sup> U de référence du réflecteur radial seul puis des réflecteurs axiaux avec un réflecteur radial épais de 50 cm. . . . .	79
4.5	Répartition radiale au démarrage de la puissance volumique dans le sel en cœur. . .	81
4.6	Schéma de principe du retraitement en ligne du MSBR réévalué. . . . .	88
4.7	Mise à l'équilibre des produits de fission dans le sel combustible de référence. . .	92
4.8	Comparaison de l'empoisonnement des produits de fission dans le système de référence au cas d'un réacteur à combustible solide et spectre rapide [13]. . . . .	93
4.9	Comparaison de l'évolution de l'empoisonnement des produits de fission dans le RSF de référence à ceux obtenus pour des sels à 10 et 15% de concentration molaire en noyaux lourds (géométrie de référence). . . . .	95



4.10	Comparaison de l'évolution de l'empoisonnement des produits de fission dans le RSF de référence à ceux obtenus pour des proportions volumiques de sel en cœur de 19.4% et 43.5% (diamètres des canaux de 12 et 18 cm respectivement). . . . .	96
4.11	Mise à l'équilibre de l'inventaire des isotopes du protactinium et de l'uranium dans le système de référence. . . . .	98
4.12	Mise à l'équilibre de l'inventaire des transuraniens dans le système de référence. . . . .	99
4.13	Mise à l'équilibre de l'inventaire des isotopes du plutonium, de l'américium et du curium dans le système de référence. . . . .	99
4.14	Evolution des sections efficaces moyennes (capture et fission) des noyaux fissiles sur les cinquante premières années de fonctionnement du système de référence. . . . .	100
4.15	Mise à l'équilibre de la proportion effective $\beta_{eff}$ de neutrons retardés dans le RSF $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ de référence. . . . .	101
4.16	Mise à l'équilibre des inventaires d'uranium et de transuraniens pour différentes proportions de noyaux lourds dans le sel du système de référence. . . . .	102
4.17	Mise à l'équilibre des inventaires d'uranium et de transuraniens pour différentes proportions de sel en cœur dans le système de référence. . . . .	103
4.18	Composition molaire par élément (%) des transuraniens à l'équilibre des systèmes se distinguant par leur proportion volumique de sel en cœur. . . . .	103
4.19	Production nette d' $^{233}\text{U}$ , accumulée en dehors du circuit de sel combustible au fur et à mesure du fonctionnement de référence. . . . .	105
4.20	Mise à l'équilibre du taux de régénération du système de référence. . . . .	106
4.21	Productions nettes extrêmes d' $^{233}\text{U}$ , encadrant la production du système de référence (proportion molaire de noyaux lourds de 12.5%, et proportion volumique de sel de 30.2%). . . . .	107
4.22	Spectre moyen sur l'ensemble du circuit de sel combustible à l'équilibre de référence comparé au spectre moyen dans le cœur d'un réacteur rapide à combustible solide [13]. . . . .	111
4.23	Taux de réaction du $^{232}\text{Th}$ , de l' $^{233}\text{U}$ et de l' $^{235}\text{U}$ à l'équilibre de référence, exprimés par fission et par unité de léthargie. . . . .	111
4.24	Détail des taux de capture dans les produits de fission pour deux retraitements ayant la même durée totale $T = 10$ jours, mais des efficacités d'extraction $\varepsilon_e$ différentes. . . . .	113
4.25	Représentation dans le plan (N,Z) des taux de réaction, de décroissance et de retraitement normalisés pour 1000 fissions, caractérisant l'équilibre $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ de référence. . . . .	114

4.26	Radiotoxicité des rejets et des inventaires d'actinides du RSF $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ de référence, comparé à différents cycles du combustible [13], après 200 ans de production d'énergie et 1000 ans de décroissance. . . . .	115
4.27	Radiotoxicité des rejets d'actinides à l'équilibre du RSF $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ de référence, comparé à différents cycles du combustible [13]. . . . .	116
4.28	Radiotoxicités des rejets d'actinides à l'équilibre du RSF $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ et d'un réacteur rapide $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ [13]. Pour ce dernier, on donne en outre les contributions du Pa et de l'U, ainsi que les contributions dominantes au cours du temps. . . . .	116
4.29	Détail de la radiotoxicité des actinides rejetés à l'équilibre du RSF $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ de référence. Les principaux noyaux intervenant sont mentionnés. . . . .	117
4.30	Evolution de l'inventaire de $^6\text{Li}$ et du taux de production de tritium associé. . . . .	119
4.31	Evolution des propriétés physiques du graphite sous irradiation et détermination d'une valeur critique $F_{crit}$ de la fluence [52]. . . . .	121
4.32	Evolution estimée des proportions molaires de $^{13}\text{C}$ et de $^{14}\text{C}$ dans le graphite du cœur et du réflecteur. . . . .	123
4.33	Sections efficaces du $^{232}\text{Th}$ et de l' $^{233}\text{U}$ entre $10^{-3}$ et $10^3$ eV. . . . .	126
4.34	Section efficace de capture du $^{232}\text{Th}$ et flux au démarrage du système de référence autour de 20 eV, pour deux températures du sel combustible sans modification de la densité. . . . .	127
4.35	Spectres moyens dans le graphite du cœur pour $T = 900$ et $1200$ K, et sections efficaces dominantes (fission de l' $^{233}\text{U}$ et capture du $^{232}\text{Th}$ ) entre $10^{-2}$ et $10^1$ eV. . . . .	128
5.1	Cœur à zone fertile périphérique (à gauche) et cœur à zone fertile centrale. . . . .	132
5.2	Représentation (N,Z) de la régénération de l' $^{233}\text{U}$ à l'équilibre du RSF de référence, du RSF à zone fertile périphérique et du RSF à zone fertile centrale. La zone a est la zone centrale du cœur, la zone b la zone périphérique et la zone c le reste du sel combustible. . . . .	135
5.3	Répartition radiale de la puissance volumique et du taux de dommages dans le graphite selon la configuration du cœur. . . . .	136
5.4	Eclatement du canal unique du cœur de référence en 7 canaux, à volume total constant. . . . .	137
5.5	Rapports des flux au démarrage du système de référence entre la configuration à sept canaux et celle à canal unique par manche, dans le graphite du cœur et dans le sel des canaux. . . . .	138
5.6	Taux d'absorption (capture et fission) dans le sel des canaux du système de référence à $t = 0$ , exprimé par fission et par unité de léthargie. . . . .	139

5.7	Rapport des taux d'absorption dans le sel des canaux au démarrage entre la configuration à sept canaux et celle à canal unique par manche. . . . .	139
5.8	Répartition radiale à $t = 0$ de la puissance volumique dans le sel des canaux du RSF (Th/U)F <sub>4</sub> , pour les trois valeurs étudiées de la puissance totale $P$ . . . . .	145
5.9	Influence de la réduction de la puissance volumique sur la production cumulée d' <sup>233</sup> U. . . . .	148
5.10	Evolution au démarrage de l'inventaire et du taux de capture des produits de fission et du <sup>233</sup> Pa pour le même retraitement de référence avec trois durées $T$ différentes. . . . .	150
5.11	Détail des taux de capture dans les produits de fission pour deux retraitements ne différant que par la valeur de leur durée de retraitement $T$ . . . . .	152
5.12	Comparaison des inventaires par élément à l'équilibre du système de référence et de sa variante avec réinjection du protactinium extrait. . . . .	153
5.13	Inventaire et stock de neptunium en cas d'extraction continue de ce dernier. . . . .	156
5.14	Influence de l'extraction continue du Np sur les transuraniens à l'équilibre. . . . .	156
5.15	Représentation (N,Z) pour 1000 fissions de l'équilibre avec extraction du Np. . . . .	158
5.16	Radiotoxicité des rejets d'actinides à l'équilibre du cycle <sup>232</sup> Th/ <sup>233</sup> U de référence, comparé à celui avec extraction du Np. . . . .	159
5.17	Radiotoxicités générées par 200 ans de production d'énergie, après 1000 ans de décroissance, pour le RSF (Th/U)F <sub>4</sub> de référence et celui avec extraction continue du Np. . . . .	159
5.18	Coupe horizontale du coeur aménagé pour la transmutation du Tc. . . . .	163
5.19	Radiotoxicité des PFVL rejetés avec et sans transmutation, comparée à celle des rejets d'actinides dans le cas de référence et à celle du <sup>232</sup> Th consommé. . . . .	164
5.20	Evolution des quantités de <sup>233</sup> Pa et <sup>233</sup> U contenues dans les cylindres de graphite. . . . .	165
5.21	Localisation des principales situations d'arrêt du retraitement étudiées. . . . .	167
5.22	Empoisonnement lié à l'arrêt de l'extraction des produits de fission. . . . .	169
5.23	Chutes de l'inventaire d'uranium et de la réactivité liées à l'arrêt de la réinjection des éléments extraits lors de l'étape de fluoration. . . . .	172
5.24	Mise à l'équilibre des isotopes de l'uranium dans le cas du prélèvement d'uranium à la fluoration, comparée au cas du retraitement de référence. . . . .	174
5.25	Mise à l'équilibre des transuraniens dans le cas du prélèvement d'uranium à la fluoration, comparée au cas du retraitement de référence. . . . .	174
5.26	Représentation (N,Z) pour 1000 fissions de l'équilibre obtenu lorsque l' <sup>233</sup> U surgénéré est extrait avec les autres isotopes de l'uranium à la fluoration. . . . .	175

6.1	Evolution des inventaires de plutonium et d'uranium au cours des 20 premières années de la transition Th/Pu UOX $5 \rightarrow {}^{233}\text{U}$ . . . . .	179
6.2	Evolution de l'inventaire des principaux actinides mineurs pendant 60 ans après le démarrage du RSF Th/Pu UOX $5 \rightarrow {}^{233}\text{U}$ . . . . .	179
6.3	Evolution de la section efficace totale de fission et de la section efficace partielle de fission $\frac{N_i \sigma_i}{N_{239}\text{Pu} + N_{241}\text{Pu} + N_{233}\text{U} + N_{235}\text{U}}$ de chaque noyau fissile $i$ , dans la transition Th/Pu UOX $5 \rightarrow {}^{233}\text{U}$ . . . . .	180
6.4	Evolution du flux total intégré au cours des 20 premières années de la transition Th/Pu UOX $5 \rightarrow {}^{233}\text{U}$ , comparée à la transition ${}^{232}\text{Th}/{}^{233}\text{U}$ . . . . .	181
6.5	Production nette d' ${}^{233}\text{U}$ , accumulée en dehors du circuit de sel combustible au cours de la transition Th/Pu UOX $5 \rightarrow {}^{233}\text{U}$ . . . . .	181
6.6	Evolution de la radiotoxicité des actinides rejetés 5 ans après le démarrage du RSF Th/Pu UOX $5 \rightarrow {}^{233}\text{U}$ . Les noyaux pères dont la radiotoxicité domine sont indiqués. . . . .	182
6.7	Radiotoxicité des actinides rejetés à différents instants $t$ après le démarrage du RSF Th/Pu UOX $5 \rightarrow {}^{233}\text{U}$ , comparée à celle de l'équilibre ${}^{232}\text{Th}/{}^{233}\text{U}$ (Les noyaux dominants dans ce cas sont indiqués sous la courbe correspondante en cas de changement). . . . .	182
6.8	Mise à l'équilibre de la proportion effective de neutrons retardés $\beta_{eff}$ lors du transitoire Th/Pu UOX $5 \rightarrow {}^{233}\text{U}$ . . . . .	183
6.9	Influence du type de Pu et de son temps de refroidissement après déchargement sur l'inventaire initial du RSF Th/Pu $\rightarrow {}^{233}\text{U}$ . . . . .	185
6.10	Solubilité du $\text{PuF}_3$ dans le sel LiF- $\text{BeF}_2$ [63]. . . . .	185
6.11	Spectres moyens dans le sel combustible au démarrage de trois RSF Th/Pu $\rightarrow {}^{233}\text{U}$ , comparés au cas de l'équilibre ${}^{232}\text{Th}/{}^{233}\text{U}$ . . . . .	187
6.12	Production nette d' ${}^{233}\text{U}$ cumulée au cours de trois transitions Th/Pu $\rightarrow {}^{233}\text{U}$ , différant par le type de plutonium utilisé au démarrage. . . . .	188
6.13	Influence de l'aménagement d'une zone fertile périphérique sur la production d' ${}^{233}\text{U}$ cumulée au cours de la transition Th/Pu UOX $50 \rightarrow {}^{233}\text{U}$ . . . . .	189
6.14	Comparaison au cas ${}^{232}\text{Th}/{}^{233}\text{U}$ des radiotoxicités des rejets d'actinides des transitions Th/Pu UOX $\rightarrow {}^{233}\text{U}$ et Th/Pu MOX $\rightarrow {}^{233}\text{U}$ , pour 200 ans de production d'énergie et après 1000 ans de décroissance, selon le temps de refroidissement $T_{ref}$ du plutonium. . . . .	189
6.15	Production nette d' ${}^{233}\text{U}$ accumulée au cours de la transition Th/ ${}^{enr}\text{U}$ (33%) $\rightarrow {}^{233}\text{U}$ , comparée au cas ${}^{232}\text{Th}/{}^{233}\text{U}$ de référence. . . . .	190
6.16	Evolution des inventaires d'uranium et de transuraniens au cours de la transition Th/ ${}^{enr}\text{U}$ (33%) $\rightarrow {}^{233}\text{U}$ . . . . .	191

6.17	Nombre moyen $\nu$ de neutrons produits par fission, et nombre de ces neutrons capturés par les noyaux lourds du sel dans le cas des deux transitions comparées.	192
6.18	Principaux taux de capture intervenant dans la transition $\text{Th}/^{enr}\text{U} \rightarrow ^{233}\text{U}$ , comparée à la transition $\text{Th}/\text{Pu UOX } 5 \rightarrow ^{233}\text{U}$ .	193
6.19	Evolution du taux de capture du $^{232}\text{Th}$ suivant le type de transition effectuée.	194
6.20	Evolution du taux de régénération de l' $^{233}\text{U}$ dans le système démarré à l'uranium enrichi, comparée au cas des démarrages à l' $^{233}\text{U}$ et au Pu issu de combustible UOX usé et refroidi 5 ans. On remarque la contribution temporaire du $^{245}\text{Cm}$ à la fission (à droite).	194
6.21	Evolution des inventaires de plutonium dans l'incinérateur Th/Pu (type UOX, 50 ans de refroidissement).	196
6.22	Evolution des inventaires d'uranium dans l'incinérateur Th/Pu (type UOX, 50 ans de refroidissement).	198
6.23	Evolution des principaux inventaires d'actinides mineurs dans l'incinérateur Th/Pu (type UOX, 50 ans de refroidissement).	198
6.24	Comparaison des inventaires de plutonium et d'actinides mineurs dans l'incinérateur à support uranium par rapport au support thorium.	200
6.25	Coupe verticale du RSF incinérateur de Pu sous-critique simulé.	202
6.26	Mise à l'équilibre de l'inventaire et de la section efficace moyenne de capture des produits de fission (sans le zirconium) dans le sel combustible de l'incinérateur.	204
6.27	Comparaison des spectres moyens dans le circuit complet de sel combustible de l'incinérateur au démarrage, à l'équilibre, ainsi qu'à $t = 5$ ans.	204
6.28	Evolution des sections efficaces moyennes (capture et fission) des isotopes du plutonium au cours des trois premières années du RSF incinérateur de Pu.	205
6.29	Mise à l'équilibre de l'inventaire et des sections efficaces moyennes (capture et fission) des transuraniens dans le sel combustible du RSF incinérateur de Pu.	206
6.30	Evolution des principaux isotopes du plutonium, de l'américium et du curium dans le RSF incinérateur de Pu.	206
6.31	Composition molaire (à 0.1% près) des transuraniens au démarrage et à l'équilibre du RSF incinérateur de Pu.	208
6.32	Comparaison des radiotoxicités générées par l'ensemble du plutonium introduit et des transuraniens accumulés dans le RSF incinérateur de Pu au cours des cinquante premières années de fonctionnement à la puissance totale de 2500 MWth. Les contributions dominantes sont indiquées pour chaque courbe (en italique pour l'inventaire des transuraniens).	208
6.33	Mise à l'équilibre de l'uranium et des transuraniens dans l'incinérateur de fin de cycle thorium.	209

6.34	Alimentation des stocks de Pu selon deux scénarios d'évolution du parc REP. . .	213
6.35	“Pyramide des âges” du plutonium disponible en 2020 dans le scénario REP S1. En ordonnée est indiqué le temps de refroidissement du plutonium à 5 ans près. .	214
6.36	Evolution des puissances installées (GWe) dans un scénario de remplacement des REP par des RSF Th/Pu $\rightarrow$ $^{233}\text{U}$ , avec incinération totale du plutonium stocké, selon le parc REP de départ (“S1” à gauche, “S6” à droite). . . . .	215
6.37	Evolution du stock d' $^{233}\text{U}$ surgénéré au cours du scénario de remplacement, selon le parc REP de départ. . . . .	215
6.38	Scénario de déploiement basé sur l'utilisation optimale du plutonium des REP en RSF Th/Pu $\rightarrow$ $^{233}\text{U}$ et sur le démarrage de RSF $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ de référence, surgénérateurs. . . . .	217
6.39	Scénario “REP-RNR-RSF” basé sur l'utilisation du Pu des REP en RNR U/Pu producteurs d' $^{233}\text{U}$ et sur le démarrage de RSF $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ de référence, surgé- nérateurs. . . . .	218
6.40	Puissance totale installée pour des variantes du scénario REP-RNR-RSF exploi- tant la flexibilité de la régénération en RSF $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ . . . . .	219
A.1	Bilan annuel des déchets dans le scénario de multirecyclage MOX choisi [71]. . .	226
A.2	Coupe verticale du RSF incinérateur d'actinides mineurs sous-critique simulé. . .	227
A.3	Accumulation du Pu dans le sel du RSF incinérateur d'actinides mineurs. . . .	230
A.4	Augmentation du $k_s$ au démarrage du RSF incinérateur d'actinides mineurs. . .	231
A.5	Inventaires et stocks des principaux isotopes du plutonium en cas d'extraction continue de ce dernier du sel du RSF incinérateur d'actinides mineurs. . . . .	233
A.6	Evolution du $k_s$ au démarrage du RSF incinérateur d'actinides mineurs dans le cas de l'extraction continue du plutonium. . . . .	234
A.7	Comparaison des radiotoxicités normalisées par GWth.an du plutonium extrait et de l'américium consommé au cours des trois premières années du RSF incinérateur d'actinides mineurs avec extraction continue du plutonium. . . . .	235
B.1	Comparaison des évaluations de la section efficace de capture du $^{232}\text{Th}$ selon les bases ENDF/B-VI et JENDL 3.2, entre $10^{-2}$ eV et $10^2$ eV. . . . .	240
B.2	Sensibilité de la production d' $^{233}\text{U}$ du RSF $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ de référence à la section efficace de diffusion élastique du graphite. . . . .	242

# Liste des tableaux

1.1	Inventaire d'un REP au démarrage et après un an de fonctionnement à 1 GWe [2].	8
1.2	Evolution de la production annuelle d'énergie primaire en milliards de "tonnes équivalent pétrole" (Gtep), au cours des trente dernières années [4]. . . . .	10
1.3	Réserves en Gtep [5], et en années d'exploitation au taux actuel de consommation.	10
1.4	Approximation du nombre $N_d$ de neutrons disponibles par fission pour les pertes et la surgénération selon le combustible, le type de spectre et le $k_{eff}$ . . . . .	16
1.5	Demi-vie et nocivités (puissance dégagée et radiotoxicité par ingestion [12]) des principaux produits de fission (vie longue ou moyenne) et actinides produits en réacteur. . . . .	18
1.6	Influence du type de spectre sur l'inventaire d' $^{233}\text{U}$ , ramené à celui de $^{232}\text{Th}$ , nécessaire dans un réacteur basé sur le cycle $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ . . . . .	20
1.7	Proportion de neutrons retardés de quelques noyaux, fertiles et fissiles [11]. . . . .	21
2.1	Caractéristiques du sel combustible $^7\text{LiF} - \text{BeF}_2 - (\text{Th}+\text{U})\text{F}_4$ du projet MSBR. . . . .	26
3.1	Caractéristiques géométriques du RSF (U/Pu) $\text{Cl}_3$ de 2500 MWth. . . . .	43
3.2	Valeurs initiales des inventaires $N$ , des sections efficaces moyennes $\sigma$ et des taux de réaction $\tau$ de l' $^{238}\text{U}$ et du $^{239}\text{Pu}$ dans le sel combustible $\text{NaCl}-(\text{U}/\text{Pu})\text{Cl}_3$ , détaillées cellule par cellule pour le calcul du taux de régénération total du système. 44	44
3.3	Classes d'efficacité d'extraction des produits de fission solubles, représentatives des performances recherchées pour le retraitement du projet MSBR. . . . .	51
3.4	Extrait de la classification périodique des éléments illustrant la répartition des classes d'efficacité (0, 1, 2 et 3) souhaitées et supposées des produits de fission [40].	52
3.5	Compositions isotopiques (% molaire) du plutonium au démarrage (pour deux temps de refroidissement $T_{ref}$ du combustible REP UOX utilisé) et à l'équilibre du RSF (U/Pu) $\text{Cl}_3$ . . . . .	63
3.6	Sections efficaces moyennes des réactions $(n, \gamma)$ , $(n, \alpha)$ et $(n, p)$ sur les composants légers du sel (Na et Cl) et les produits de fission à l'équilibre du RSF (U/Pu) $\text{Cl}_3$ . . . . .	65

3.7	Sections efficaces moyennes (en barn) de capture et de fission, et inventaires (kg) des actinides à l'équilibre du RSF (U/Pu)Cl <sub>3</sub> . . . . .	65
3.8	Bilan neutronique détaillé de l'équilibre du RSF (U/Pu)Cl <sub>3</sub> . . . . .	68
3.9	Coefficients de température du RSF (U/Pu)Cl <sub>3</sub> . . . . .	71
4.1	Sections efficaces de capture (mbarn) à 0.025 eV des composantes légères envisageables pour un sel combustible à base de fluorures. . . . .	75
4.2	Valeurs initiales des inventaires $N$ et sections efficaces moyennes $\sigma$ du <sup>232</sup> Th et de l' <sup>233</sup> U dans le sel combustible LiF-BeF <sub>2</sub> -(Th/U)F <sub>4</sub> , détaillées cellule par cellule pour le calcul du taux de régénération total du système. . . . .	80
4.3	Caractéristiques initiales du sel combustible LiF-BeF <sub>2</sub> -(Th/U)F <sub>4</sub> , pour la proportion de référence de noyaux lourds en sel (12.5%) et deux autres proportions différant de $\pm 20\%$ (diamètre des canaux de 15 cm). . . . .	83
4.4	Paramètres caractérisant le ralentissement des neutrons dans le cœur de référence. . . . .	85
4.5	Caractéristiques géométriques initiales du système de 2500 MWth pour les trois proportions volumiques de sel en cœur retenues. . . . .	86
4.6	Caractéristiques initiales du sel combustible de référence 70.0% LiF - 17.5% BeF <sub>2</sub> - 12.5% (Th/U)F <sub>4</sub> , pour la proportion volumique de sel en cœur de référence (30.2%) et deux autres proportions l'encadrant (19.4% et 43.5%). . . . .	87
4.7	Flux total et sections efficaces moyennes à $t = 50$ ans, pour la proportion volumique de référence de sel en cœur (30.2%) et deux autres proportions l'encadrant (19.4% et 43.5%). . . . .	96
4.8	Evolution de la répartition en masse des actinides (tonnes) entre thorium, uranium et transuraniens, à inventaire de noyaux lourds constants, dans le cas de référence. . . . .	97
4.9	Sections efficaces moyennes de capture du <sup>238</sup> Pu et du <sup>237</sup> Np à l'équilibre en fonction de la proportion volumique de sel en cœur. . . . .	104
4.10	Temps de premier doublement caractérisant la surgénération d' <sup>233</sup> U des régimes transitoires obtenus pour différentes compositions et proportions du sel en cœur. . . . .	107
4.11	Sections efficaces moyennes (mbarn) des réactions $(n, \gamma)$ , $(n, \alpha)$ et $(n, p)$ sur les composantes légères du sel et les produits de fission à l'équilibre du RSF <sup>232</sup> Th/ <sup>233</sup> U de référence. . . . .	108
4.12	Sections efficaces moyennes (barn) de capture et de fission, et inventaires (kg) des actinides à l'équilibre du RSF <sup>232</sup> Th/ <sup>233</sup> U de référence. . . . .	109
4.13	Calcul indicatif de $\frac{N_{233U}}{N_{232Th}}$ par la condition de régénération appliquée au démarrage d'un réacteur à combustible solide et spectre rapide [13], et à l'équilibre du RSF de référence. . . . .	110
4.14	Bilan neutronique détaillé de l'équilibre du RSF <sup>232</sup> Th/ <sup>233</sup> U de référence. . . . .	112



4.15 Inventaires $N$ , sections efficaces $\sigma$ et contributions à la production de tritium du $^6\text{Li}$ et du $^7\text{Li}$ pour le système de référence, du démarrage à l'équilibre. . . . .	119
4.16 Coefficients de température du RSF (Th/U) $F_4$ de référence, comparés à ceux des études MSBR et AMSTER. . . . .	125
4.17 Sections efficaces moyennes (barn) obtenues pour chaque calcul de contribution à la variation de la réactivité et comparées au cas de référence, à $t = 0$ . . . . .	125
5.1 Sections efficaces moyennes (barn) en cœur obtenues à $t = 0$ pour les configurations à zone fertile périphérique et centrale, comparées au cas de référence. . . .	133
5.2 Consommations de neutrons (n/fission) à l'équilibre du RSF (Th/U) $F_4$ , pour trois configurations de cœur ("=" signifie que la valeur est inchangée par rapport au cas de référence). . . . .	133
5.3 Proportion $a_{u3}$ des absorptions de $^{233}\text{U}$ et taux de régénération $\tau_r$ zone par zone, pour les trois configurations de cœur étudiées. . . . .	134
5.4 Coefficients de température des configurations à deux zones étudiées, à l'équilibre.	136
5.5 Sections efficaces moyennes (barn) dans le sel des canaux obtenues à $t = 0$ pour la configuration à 7 canaux, comparées au cas de référence. . . . .	138
5.6 Bilan neutronique détaillé de l'équilibre du RSF $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ à sel FLiNa. . . . .	141
5.7 Quelques conséquences du remplacement du FLiBe par le FLiNa, à l'équilibre. . .	142
5.8 Inventaires $N$ , sections efficaces $\sigma$ et contributions à la production de tritium du $^6\text{Li}$ et du $^7\text{Li}$ à l'équilibre du système de référence pour les sels FLiBe et FLiNa.	143
5.9 Coefficients de température du système avec le sel FLiNa à $t = 0$ et à l'équilibre, comparés à ceux obtenus avec le sel FLiBe à l'équilibre. . . . .	144
5.10 Comparaison à $t = 0$ des flux moyens ( $\text{n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ) dans le sel en cœur, le graphite, et la protection neutronique latérale ( $\text{B}_4\text{C}$ ) pour trois valeurs de la puissance. . .	146
5.11 Consommations en n/fission à l'équilibre du RSF (Th/U) $F_4$ pour trois valeurs de la puissance ("=" signifie que la valeur est inchangée par rapport au cas de référence). . . . .	147
5.12 Consommations de neutrons (n/fission) et sections efficaces moyennes $\sigma$ (barn) des réactions de fission et de capture à l'équilibre pour $T = 10$ et 30 jours. . . . .	151
5.13 Consommations de neutrons (n/fission) et sections efficaces moyennes $\sigma$ (barn) des réactions de fission et de capture à l'équilibre du RSF (Th/U) $F_4$ sans décroissance hors flux du $^{233}\text{Pa}$ extrait, comparées à celles du cas de référence. . . . .	154
5.14 Bilan neutronique à l'équilibre du RSF (Th/U) $F_4$ avec extraction continue du Np.	157
5.15 Calcul du taux de régénération à l'équilibre du système couplant zone fertile périphérique et extraction continue du neptunium, à partir des taux de réaction du $^{232}\text{Th}$ , du $^{233}\text{Pa}$ et de $^{233}\text{U}$ exprimés en n/fission. . . . .	160

5.16	Calcul du temps de doublement à l'équilibre du système couplant zone fertile périphérique et extraction continue du neptunium, à partir de la production annuelle d' $^{233}\text{U}$ . . . . .	161
5.17	Caractéristiques des isotopes de l'iode intervenant à l'équilibre de sa transmutation. . . . .	162
5.18	Coefficients de température de RSF transmutant leur production d'iode dans le sel et de technétium dans le graphite, comparés à l'équilibre de référence. . . . .	164
5.19	Sections efficaces moyennes (barn) de capture et de fission et inventaires (kg) des noyaux présents à $t = 0$ et à $t = 5$ ans dans les cylindres de graphite en périphérie du cœur. . . . .	166
5.20	Récapitulatif des valeurs de $\frac{\Delta k_{eff}}{k_{eff}}$ totales en pcm/h des différentes situations d'arrêt du retraitement étudiées, comparées à un scénario d'ajout accidentel de réactivité. . . . .	173
6.1	Compositions isotopiques (%) du Pu extrait des combustibles UOX et MOX usés après 5, 20, 35 et 50 ans de refroidissement. . . . .	184
6.2	Sections efficaces moyennes de capture $\sigma_{cap}$ et de fission $\sigma_{fis}$ (barn) et inventaires $N$ (kg) des isotopes du plutonium au démarrage de trois RSF Th/Pu $\rightarrow$ $^{233}\text{U}$ . . . . .	186
6.3	Sections efficaces moyennes (barn) et inventaires (kg) des isotopes du plutonium au démarrage et à l'équilibre de l'incinérateur à support thorium. . . . .	197
6.4	Bilan neutronique détaillé de l'incinérateur Th/Pu UOX 50 à l'équilibre. . . . .	199
6.5	Sections efficaces moyennes (capture et fission, en barn) et inventaires (masses et proportions molaires) des principaux actinides intervenant au démarrage et à l'équilibre du RSF incinérateur des transthoriums du cycle (Th/U) $F_4$ à l'équilibre. . . . .	211
A.1	Proportion de neutrons retardés des actinides mineurs [70]. . . . .	226
A.2	Composition isotopique des Am et Cm à l'équilibre du multirecyclage MOX [72]. . . . .	227
A.3	Bilan neutronique au démarrage du RSF incinérateur d'actinides mineurs. . . . .	228
A.4	Composition isotopique du Pu à l'équilibre du multirecyclage MOX [72]. . . . .	231
A.5	Répartition des fissions (%) à $t = 0$ et à $t = 3$ ans dans le RSF incinérateur d'actinides mineurs, et dans un système à combustible solide [69]. Dans les deux cas, on a recours à un inventaire initial de Pu pour compenser la réactivité apportée par le $^{238}\text{Pu}$ . . . . .	232
A.6	Sections efficaces moyennes (barn) de capture et de fission et inventaires des actinides intervenant à $t = 0$ et à $t = 3$ ans dans le fonctionnement avec extraction du plutonium. . . . .	234

B.1	Consommations de neutrons (neutrons par fission) et sections efficaces moyennes (barn) des réactions de fission et de capture à l'équilibre du RSF de référence, sans et avec augmentation de 10% de la section efficace de capture de l' <sup>233</sup> U. . . . .	238
B.2	Sections efficaces moyennes (barn) de capture et de fission du <sup>232</sup> Th, du <sup>233</sup> Pa et de l' <sup>233</sup> U à l'équilibre de référence, selon la base utilisée pour le <sup>232</sup> Th. . . . .	240
B.3	Consommations de neutrons (neutrons par fission) et sections efficaces moyennes (barn) des réactions de fission et de capture à l'équilibre du RSF de référence, sans et avec augmentation de 10% de la section efficace de diffusion élastique du graphite naturel. . . . .	242
B.4	Sections efficaces moyennes (barn) à l'équilibre du système de référence pour deux valeurs de la densité du graphite. . . . .	243
B.5	Coefficients de température au démarrage du RSF <sup>232</sup> Th/ <sup>233</sup> U pour une densité du graphite de 2.3 g/cm <sup>3</sup> (valeur de référence) et de 1.9 g/cm <sup>3</sup> . . . . .	244

Dans l'éventualité d'une contribution significative du nucléaire aux besoins énergétiques mondiaux, le problème de la gestion des déchets actuels remet en question la pérennité de la filière REP. En complément des recherches sur le stockage et l'incinération de ces déchets, il convient donc d'envisager des systèmes innovants dédiés à une production d'énergie nucléaire durable, aussi sobre, propre et sûre que possible. Nous nous intéressons ici au concept de réacteur à sels fondus, dont le combustible est liquide. Cette particularité autorise un retraitement en ligne pyrochimique, qui peut permettre de s'affranchir de certaines limites neutroniques. Le projet MSBR (Molten Salt Breeder Reactor) d'un réacteur à sels fluorures et à modérateur graphite a ainsi montré à la fin des années 1960 que la surgénération en cycle thorium et en spectre thermique est accessible avec un retraitement en ligne approprié.

A l'aide d'outils de simulation développés autour du code Monte Carlo MCNP, nous réévaluons dans un premier temps les performances d'un système de référence inspiré du projet MSBR. L'étude complète de la phase de mise à l'équilibre de ce réacteur d'une puissance de 2500 MWth, démarré en  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ , nous permet de valider nos choix de référence. L'équilibre obtenu montre une réduction importante des inventaires et des radiotoxicités induites par rapport aux autres cycles possibles. Le retraitement en ligne associé est suffisamment efficace pour rendre le système surgénérateur, avec un temps de doublement d'une trentaine d'années à l'équilibre.

A partir du système de référence, nous testons ensuite différentes options en termes d'économie de neutrons, de transmutation et de contrôle de la réactivité. Il en ressort que c'est le retraitement en ligne qui apporte le plus de flexibilité à ce système particulièrement bien adapté à la production d'énergie en cycle thorium. L'étude de scénarios de transition à cette filière quantifie les limites d'un éventuel déploiement à partir du parc français actuel, et montre enfin qu'une gestion raisonnée du plutonium disponible serait nécessaire dans tous les cas.

## Abstract

In the event of a significant nuclear contribution to world energy needs, the problem of present nuclear waste management throws the durability of the PWR fuel cycle back into question. Studies on storage and incineration of these waste should therefore go hand in hand with studies on innovative systems dedicated to a durable nuclear energy production, as sober, clean and safe as possible. We are here interested in the concept of molten salt reactor, whose fuel is liquid. This particularity allows an online pyrochemical reprocessing, which gives the possibility to overcome some neutronic limits. In the late sixties, the MSBR (Molten Salt Breeder Reactor) project of a graphite-moderated fluoride molten salt reactor proved thus that breeding is attainable with thorium in a thermal spectrum, provided that the online reprocessing is appropriate.

By means of simulation tools developed around the Monte Carlo code MCNP, we first re-evaluate the performance of a reference system, which is inspired by the MSBR project. The complete study of the pre-equilibrium transient of this 2500 MWth reactor, started with  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  fuel, allows us to validate our reference choices. The obtained equilibrium shows an important reduction of inventories and induced radiotoxicities in comparison with the other possible fuel cycles. The online reprocessing is efficient enough to make the system breed, with a doubling time of about thirty years at equilibrium.

From the reference system, we then test different options in terms of neutron economy, transmutation and control of reactivity. We find that the online reprocessing brings most of its flexibility to this system, which is particularly well adapted to energy production with thorium. The study of transition scenarios to this fuel cycle quantifies the limits of a possible deployment from the present french park, and finally shows that a reasoned management of the available plutonium would be necessary in any case.

## Mots-clés

Réacteur à sels fondus, neutronique, MCNP, pyrochimie, retraitement en ligne, cycle thorium, surgénération, radiotoxicité, sûreté, transmutation, incinération, scénario de transition