

UNIVERSITE DE GRENOBLE  
INSTITUT POLYTECHNIQUE DE GRENOBLE

N° attribué par la bibliothèque

| - | - | - | - | - | - | - | - |

**THESE**

pour obtenir le grade de  
**DOCTEUR DE L'Université de Grenoble**  
délivré par l'Institut polytechnique de Grenoble

*Spécialité : Mécanique des Fluides, Procédés, Energétique*  
préparée au Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie  
dans le cadre de l'Ecole Doctorale Ingénierie - Matériaux, Mécanique,  
**Environnement, Energétique, Procédés, Production**

présentée et soutenue publiquement

par

**Xavier Doligez**

le 14 octobre 2010

**Influence du retraitement physico-chimique  
du sel combustible sur le comportement du  
MSFR et sur le dimensionnement de son  
unité de retraitement**

**JURY**

M. Hubert FLOCARD	Rapporteur et président du jury
M. Gilles MATHONNIERE	Rapporteur
M. Stéphane BOURG	Examineur
M. David LECARPENTIER	Examineur
M. Christian SIMON	Examineur
M. Daniel HEUER	Directeur de thèse
Mme Elsa MERLE-LUCOTTE	Co-directrice de thèse



# Remerciement

Ces quelques lignes ne sont certainement pas les plus facile à écrire : comment, en quelques paragraphes, remercier tous ceux qui m'ont accompagnés et guidés pendant ces trois ans ? La difficulté me paraît trop importante et je jette l'éponge à l'avance : je prie donc tous ceux qui n'apparaîtront pas dans la suite de m'excuser et de croire que ces oublis ne sont pas intentionnels.

Je tiens tout d'abord à remercier Serge Kox, directeur du LPSC, pour m'avoir accueilli dans son laboratoire ; pour sa disponibilité et son attention toute particulière qu'il accorde aux doctorants.

Je remercie vivement mes rapporteurs : Gilles Mathonnière et Hubert Flocard d'avoir accepté de rapporter sur mon manuscrit ; merci aussi aux autres membres du jury : Stéphane Bourg et Christian Simon (« les chimistes ») ainsi qu'à David Lecarpentier qui n'a malheureusement pas pu être présent le jour de ma soutenance. Merci à vous pour les remarques pertinentes que je me suis efforcé d'intégrer (non sans mal. . .) à ce manuscrit. Je tiens tout particulièrement à remercier Hubert qui a accepté de présider mon jury.

Merci aux chefs : Daniel et Elsa, pour m'avoir supporté, aidé et boosté quand cela était nécessaire, et d'avoir relu avec attention mon document quand celui-ci faisait encore peur à voir. Merci Daniel pour avoir inventé DALI, pour m'avoir initié à ce langage si. . . particulier et surtout pour m'avoir aidé à programmer ERE ce qui a rendu les études possibles. Merci Elsa, particulièrement pour les cours proposés, cette véritable bouffée d'air au milieu de ma recherche, même si ceux-ci ont pu m'apporter une bonne dose de stress et de boulot en plus. J'en profite pour remercier ici mes étudiants qui m'ont supporté mes cours, mes « bugs » au tableau tout en faisant semblant de comprendre. . .

Je tiens à remercier toutes les personnes avec qui j'ai pu travailler pendant ces trois ans. Merci à l'équipe toulousaine et particulièrement à Laurent Cassayre pour son explication de l'électrochimie et pour sa disponibilité ; merci à Christian Simon, Mathieu Salanne et l'équipe de l'UPMC qui m'ont accueilli pendant quelques temps pour que je puisse découvrir la dynamique moléculaire ; merci à Philippe Varaine du SPRC/LEDC qui m'a accueilli à Cadarache pour des simulations ERANOS, merci particulièrement à Pierre Sciorra qui a pris le temps de m'initier au LU. Il ne faut pas oublier l'équipe de Rudy Koennings de l'ITU et particulièrement Ondrej Benes qui a pris le temps de construire une base pour le système LIF-ThF<sub>4</sub>-ZrF<sub>4</sub>. Et donc merci aussi à Ioana Nutta pour l'initiation à FactSage.

Merci à tout le support technique nécessaire à l'établissement de cette thèse. Je pense tout particulièrement au service informatique du LPSC, à l'administration grâce à qui j'ai pu partir en mission aussi souvent que le budget le permettait, et à Em-

---

manuelle Vernay dont l'efficacité redoutable a permis de retrouver des papiers oubliés depuis longtemps. Je pense aussi au personnel d'entretien, qui, de part leurs horaires décalés, assurent une présence le soir au labo, et ont rendu un peu plus chaleureux le travail de rédaction.

Je tiens ensuite à remercier tout le groupe de physique des réacteurs de Grenoble qui m'a aidé et soutenu : Alexis Nuttin, Roger Brissot et Elsa : les enseignants de PG, finalement responsables de mon orientation ; Annick Billebaud et Olivier Méplan : merci pour nos discussions, et pour votre soutien sans faille. Merci à Véronique Ghetta et Michel Allibert pour les explications sans cesse renouvelées sur la physico-chimie des sels. Un grand merci Véronique, pour ton implication dans les écoles d'été d'Aussois et de Cargèse qui ont été mes premiers moments forts en tant que scientifique. Je remercie aussi Daniel, Sébastien Chabod, Eric Liatard et Grégoire Kessedjian pour les différents échanges que l'on a pu avoir. Reste les précaires : un grand merci Peg, et merci Nico (plus du tout précaire maintenant) pour m'avoir supporté en tant que colocataire (même si niveau ski, il vous reste encore des progrès à faire. . .). Merci (ainsi qu'à Greg) pour avoir disserté sans relâche sur des sujets plus absurdes les uns que les autres. Je vais ajouter Henry-Emmanuel Thiebault et didi et vous remercier pour être les premiers à aller boire un verre quand cela s'avère nécessaire. Merci, et courage aux nouveaux thésards Florence, Marya et Pouya.

Reste tous les autres. . . trop nombreux pour être cités, mais qui j'espère, se reconnaîtront : Je pense à ceux du shanon, ceux des fléchettes, ceux qui ne savent pas très bien skier sans oublier ceux qui savent très bien skier. Merci à vous tous pour toutes ces discussions « à la xav » : ceux d'Avatar révolution cinématographique, de la yourte, de « à Pi près » ou même les féministes sauront de quoi je parle. Une pensée pour les sportifs ; que ce soit à la tête de l'Aupet, à la pêche, sur le balcon pour la dernière clope, aux écrans, ou dans la souffrance à l'albaron, sans oublier les telemar-coeur et les véliplanchistes, ils sont toujours là pour vous détourner du droit chemin de la rédaction (et c'est ça qu'est bon !). Merci aussi à tous ceux pour qui après l'effort vient le réconfort : ceux du salon des vigneron indépendants, ceux de la cuisine sans qui mon pot de thèse n'aurait pas eu lieu, ceux du phare de Gatteville ou de l'île de Chausey. Merci aux artistes : les musiciens et les sculpteurs de papier maché. . . Bref, un énorme merci à tous ceux sans qui je ne serais pas moi-même aujourd'hui. . .

Merci à tous.

# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>5</b>
<b>1 Les réacteurs à sels fondus dans le contexte énergétique</b>	<b>9</b>
1.1 Besoin Energétique présent et futur . . . . .	9
1.1.1 L'offre et la demande énergétique d'ici 2050 . . . . .	9
1.1.2 La part du nucléaire . . . . .	9
1.1.3 La transition entre le parc actuel et la génération IV . . . . .	11
1.1.4 Le cycle thorium . . . . .	12
1.1.4.1 Propriétés neutroniques du cycle . . . . .	12
1.1.4.2 Impact radiologique et non-prolifération . . . . .	13
1.1.5 Gestion des déchets nucléaires . . . . .	15
1.1.5.1 Généralité sur la gestion actuelle en cycle U/Pu en France	15
1.1.5.2 Le procédé THOREX . . . . .	16
1.2 Le MSFR comme réacteur de quatrième génération . . . . .	17
1.2.1 Historique des RSF . . . . .	17
1.2.1.1 Les travaux de l'ORNL (Oack Ridge National Laboratory) . . . . .	17
1.2.1.2 Les études postérieures . . . . .	18
1.2.2 Du MSBR au TMSR . . . . .	19
1.2.3 Le MSFR . . . . .	20
1.2.3.1 Présentation du réacteur . . . . .	22
1.2.3.2 Présentation de l'unité de retraitement associée . . . . .	25
1.2.3.3 Remarque sur ce procédé . . . . .	28
<b>2 Méthodes et outils de calculs</b>	<b>31</b>
2.1 Calcul neutronique . . . . .	31
2.1.1 MCNP . . . . .	32
2.1.2 Les incertitudes en calcul statique . . . . .	33
2.1.2.1 Sensibilité aux données nucléaires . . . . .	33
2.1.2.2 Sensibilité à la densité . . . . .	34
2.1.2.3 Cas pratique et incertitudes . . . . .	36
2.2 L'évolution . . . . .	36
2.2.1 L'équation de Bateman . . . . .	36
2.2.1.1 Principe général . . . . .	36
2.2.1.2 Modification pour les sels fondus . . . . .	38
2.2.2 Retraitement en batch, simulation continue . . . . .	40

---

2.2.3	Les contraintes d'évolution . . . . .	43
2.2.3.1	Contrainte de criticité . . . . .	43
2.2.3.2	La contrainte de la composition . . . . .	43
2.2.4	Les incertitudes en évolution . . . . .	44
2.3	L'environnement DALI . . . . .	47
2.3.1	Généralité . . . . .	47
2.3.2	Réaliser une évolution avec MCNP (le module REM) . . . . .	47
2.3.2.1	Principe général . . . . .	47
2.3.2.2	Un calcul piloté par la précision . . . . .	48
2.3.2.3	Les ajustements . . . . .	49
2.3.3	Simuler l'unité de retraitement (le module SUR) . . . . .	50
2.3.3.1	Généralités . . . . .	50
2.3.3.2	Rendement d'une étape chimique . . . . .	51
2.3.3.3	Illustration par un exemple . . . . .	53
2.3.4	Etudier l'évolution d'un réacteur (ERE) . . . . .	53
2.3.4.1	Motivation . . . . .	53
2.3.4.2	Définition de la géométrie . . . . .	54
2.3.4.3	Les contraintes de l'évolution . . . . .	54
2.3.4.4	Les transferts . . . . .	56
2.4	Bilan sur les outils de calcul . . . . .	58
<b>3</b>	<b>Description détaillée de l'unité de retraitement</b>	<b>61</b>
3.1	Les besoins en retraitement . . . . .	61
3.1.1	Quels éléments pour quelles extractions ? . . . . .	61
3.1.2	Bilan neutronique du cas de référence . . . . .	63
3.1.3	Les limites du retraitement . . . . .	65
3.1.3.1	L'intégrité chimique du sel . . . . .	65
3.1.3.2	La régénération . . . . .	66
3.1.3.3	Les coefficients de sûreté . . . . .	67
3.1.3.4	Le potentiel électrochimique . . . . .	69
3.1.4	Bilan sur le comportement global du retraitement . . . . .	71
3.2	L'unité pyrochimique . . . . .	72
3.2.1	La fluoration . . . . .	72
3.2.1.1	Principe de base et besoin énergétique . . . . .	72
3.2.1.2	Situation technologique . . . . .	73
3.2.2	Les échangeurs chimiques . . . . .	74
3.2.2.1	Principe de base . . . . .	75
3.2.2.2	Efficacité d'extraction . . . . .	79
3.2.2.3	Volume mis en jeu . . . . .	82
3.2.2.4	Prise en compte de la cinétique de réaction . . . . .	83
3.2.3	Bilan de la séparation actinides/lanthanides . . . . .	86
3.2.3.1	Efficacité de la séparation . . . . .	86
3.2.3.2	Analyse des inconnues . . . . .	87
3.2.4	Problème des alcalins et des alcalino-terreux . . . . .	89
3.2.4.1	Bilan neutronique détaillé . . . . .	90

3.2.4.2	Une évolution sans extraction des alcalins et alcalino-terreux . . . . .	91
3.2.4.3	Paramètres physico-chimiques d'un mélange LiF-ThF <sub>4</sub> -(Rb-Cs)F-(Sr-Ba)F <sub>2</sub> . . . . .	92
3.2.5	Le problème du zirconium . . . . .	94
3.2.5.1	Pression de vapeur saturante . . . . .	96
3.2.5.2	La précipitation dans le bismuth . . . . .	98
3.2.6	Bilan sur l'unité d'extraction des lanthanides : choix effectués . . . . .	99
3.3	L'unité de bullage . . . . .	101
3.3.1	Les éléments extraits par le bullage . . . . .	102
3.3.1.1	Liste des éléments . . . . .	102
3.3.1.2	La question de l'oxygène et de l'azote . . . . .	102
3.3.1.3	Le séparateur de bulles . . . . .	104
3.3.2	Principe théorique . . . . .	104
3.3.2.1	Estimation des taux de production . . . . .	106
3.3.2.2	Importance de la solubilité . . . . .	108
3.3.2.3	Calcul du temps caractéristique de l'extraction du sel . . . . .	109
3.3.2.4	Recherche d'un point de fonctionnement . . . . .	111
3.3.3	Le deuxième étage du bullage . . . . .	112
3.3.3.1	Quantités en jeu . . . . .	112
3.3.4	Le bullage dans la couverture . . . . .	114
3.3.5	La question du tritium . . . . .	115
3.3.6	Bilan sur l'unité de bullage : choix effectués . . . . .	116
<b>4</b>	<b>Prédimensionnement de l'unité de retraitement</b> . . . . .	<b>117</b>
4.1	Généralités et méthodes de calcul . . . . .	118
4.1.1	Rappel sur le système . . . . .	118
4.1.1.1	Installation pyrochimique . . . . .	118
4.1.1.2	Installation de bullage . . . . .	119
4.1.1.3	Dénomination des étapes de l'unité de retraitement . . . . .	119
4.1.2	Méthodologie de calcul des grandeurs de l'aval du cycle . . . . .	120
4.1.2.1	Inventaire . . . . .	120
4.1.2.2	Radiations gamma . . . . .	121
4.1.2.3	Flux de neutrons . . . . .	121
4.1.2.4	Flux de chaleur . . . . .	121
4.1.2.5	Radiotoxicité . . . . .	122
4.2	Radiation, bilan matière et flux de chaleur dans le cas de référence . . . . .	123
4.2.1	Unité de retraitement pyrochimique . . . . .	123
4.2.1.1	Risque de criticité . . . . .	123
4.2.1.2	Puissance résiduelle . . . . .	125
4.2.1.3	Débit d'équivalent de dose ambiant . . . . .	127
4.2.1.4	Flux de matière . . . . .	131
4.2.1.5	Emission de neutrons . . . . .	131
4.2.2	Unité de bullage . . . . .	132
4.2.2.1	Puissance résiduelle . . . . .	133
4.2.2.2	Radiations dans les bouteilles . . . . .	135

4.2.3	Prédimensionnement du stockage . . . . .	136
4.2.3.1	Stockage . . . . .	136
4.2.3.2	Radiotoxicité . . . . .	139
4.3	Conclusion . . . . .	142
<b>5</b>	<b>Sensibilité du réacteur au retraitement</b>	<b>145</b>
5.1	Retraitement des produits de fission . . . . .	145
5.1.1	Considérations générales . . . . .	145
5.1.2	La question des alcalins et alcalino-terreux . . . . .	146
5.1.2.1	Taux de production . . . . .	146
5.1.2.2	Une incinération est-elle possible? . . . . .	147
5.1.3	La question de l'iode et du tchénetium . . . . .	149
5.1.3.1	L'iode . . . . .	149
5.1.3.2	Le tchénetium 99 et l'étain 126 . . . . .	150
5.1.4	La question du zirconium . . . . .	151
5.1.4.1	Caractéristiques des isotopes . . . . .	151
5.1.4.2	Etape de substitution . . . . .	152
5.2	Retraitement des noyaux lourds . . . . .	153
5.2.1	Considérations générales . . . . .	153
5.2.2	Contribution neutronique et probabilités d'apparition . . . . .	154
5.2.2.1	Définition . . . . .	154
5.2.2.2	Calcul des probabilités d'apparition ( $P_j^i$ ) . . . . .	155
5.2.2.3	Application numérique . . . . .	156
5.2.2.4	Lien avec les grandeurs intégrales . . . . .	158
5.2.2.5	Formation des TRans-Uraniens . . . . .	160
5.2.2.6	Influence de la régénération et découplage des chaînes . . . . .	160
5.2.3	Cas de l'extraction de l'américium . . . . .	162
5.2.3.1	Flux de matière . . . . .	162
5.2.3.2	Bilan sur la gestion des déchets . . . . .	163
5.2.4	Extraction du protactinium . . . . .	164
5.2.4.1	Régénération . . . . .	164
5.2.4.2	Formation d'uranium 232 . . . . .	165
5.2.4.3	Flux de Pa-231 . . . . .	166
5.3	Conclusion sur la sensibilité du réacteur à l'unité de retraitement . . . . .	167
	<b>Conclusion</b>	<b>169</b>
	<b>Annexe A : Décallage du potentiel</b>	<b>173</b>
	<b>Liste des figures</b>	<b>175</b>
	<b>Liste des tableaux</b>	<b>179</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>181</b>



# Introduction

Face à une démographie mondiale en pleine transition et une augmentation du niveau de vie global, la société doit relever le défi d'une production énergétique pérenne et bon marché. L'énergie nucléaire pourrait représenter une bonne alternative aux énergies carbonnées puisqu'elle est déjà accessible au niveau industriel. Cependant, les réacteurs construits aujourd'hui ne peuvent pas être qualifiés légitimement de "durables". Dans le but de résoudre cette question, de gros efforts de recherche et développement sont effectués pour mettre au point les réacteurs nucléaires du futur : la quatrième génération de réacteur. Une coopération internationale d'initiative américaine, le forum international génération IV (ou GIF) est censée encadrer ces recherches en les focalisant sur un certain nombre de problématiques :

- améliorer la sûreté nucléaire : les réacteurs de génération IV devront avoir un niveau de sûreté au moins équivalent à ceux de la génération précédente,
- améliorer la résistance à la prolifération : détourner de la matière fissile devra être plus contraignant que d'enrichir de l'uranium naturel jusqu'à un grade militaire,
- optimiser l'utilisation des ressources naturelles : les réacteurs devront être en mesure de produire autant de matière fissile qu'ils en consomment,
- minimiser les déchets : les actinides mineurs devront être incinérés pour conduire à la fermeture du cycle du combustible,
- diminuer les coûts de construction et d'exploitation des réacteurs.

Le dernier point met insiste sur le fait que les réacteurs du futur doivent, pour exister, être compétitifs économiquement. Par conséquent, chaque étude sur les réacteurs du futur doit chercher la simplicité du procédé de retraitement ou de fabrication du combustible.

Parmi les nombreux concepts de réacteurs possibles, le GIF a élu 6 concepts de réacteurs comme étant potentiellement des réacteurs de génération IV : les réacteurs à neutrons rapides (RNR) caloportés au sodium, les RNR caloportés au gaz, les RNR caloportés au plomb, les réacteurs à eau super-critique, les réacteurs à haute température et enfin les réacteurs à sels fondus.

L'étude des réacteurs à sels fondus a commencé aux Etats-Unis à l'Oak Ridge National Laboratory (ORNL) dans les années 50. L'ORNL a développé un concept de réacteur de puissance fondé sur l'utilisation des sels fondus en cycle thorium : le MSBR. Ce concept comportait un réacteur modéré au graphite et dont le combustible circulait dans des canaux de graphite. Associée à ce réacteur, une unité de retraitement du sel combustible avait été étudiée pour former un système complet et innovant. L'idée, reprise ultérieurement, est de profiter du caractère liquide du combustible pour effectuer un retraitement continu. Plusieurs questions sont restées en suspens suite à l'arrêt du

programme sur les sels fondus en 1976 : la sûreté du réacteur, la corrosion des matériaux et la viabilité du procédé de retraitement qui était complexe.

Depuis les années 2000, le CNRS, et particulièrement le groupe de physique des réacteurs du LPSC pour la partie neutronique et physique du coeur, effectue une réévaluation des réacteurs à sels fondus. Les études effectuées ont mis en évidence une configuration particulière dans laquelle il n'y a plus de modérateur. Puisque le spectre neutronique devient rapide, les besoins en retraitement ont changé et il a fallu développer un nouveau procédé, et définir une nouvelle unité de retraitement associée au réacteur.

Le CNRS, par le biais du PCR-ANSF (Programme Concerté de Recherche - Applications au Nucléaire des Sels Fondus), étudie entre autres la chimie et la physico-chimie des sels fondus autant pour les problématiques des matériaux que pour celles de l'extraction des produits de fission du sel combustible. C'est dans ce cadre qu'a été défini le nouveau procédé du retraitement du Molten Salt Fast Reactor (ou MSFR) qu'il a fallu intégrer dans les études systèmes des RSF. L'objectif de cette thèse est donc d'appréhender et de maîtriser les aspects du retraitement pour quantifier le procédé, coupler le réacteur à l'unité de retraitement, et tirer de ce couplage les grandeurs caractéristiques pour une étude de sûreté ou de radioprotection du système.

Le premier chapitre présente donc le concept du MSFR et de quelles manières ce système pourrait faire face aux enjeux énergétiques de demain. Nous présenterons les avantages que peut apporter le cycle thorium dans la gestion du combustible et le fait que les réacteurs à fluorures fondus sont très adaptés au cycle thorium. La deuxième partie de ce chapitre présentera un rapide historique des réacteurs à sels fondus pour montrer la démarche qui conduit naturellement au concept MSFR. C'est aussi dans cette partie que nous présentons l'unité de retraitement telle qu'elle est aujourd'hui définie.

Pour satisfaire les objectifs de la thèse il a fallu rénover les outils numériques utilisés au LPSC. Le deuxième chapitre explicite donc les codes de simulations utilisés et ceux que nous avons dû développer pour mener à bien notre étude.

Le troisième chapitre présente une étude détaillée des besoins du réacteur en termes de retraitement et de quelles manières l'unité associée permet de satisfaire ces besoins. Cette étude montre que les besoins en retraitement sont issus de problèmes physico-chimiques et non de neutronique. Nous avons ainsi identifié une limite haute sur le débit de retraitement (de 2000 jours environ) pour permettre un contrôle simple du potentiel électrochimique du sel combustible ; cette limite pouvant être toutefois repoussée en modifiant le mode d'alimentation du thorium. Du point de vue de la neutronique, il n'y a pas de contrainte équivalente, puisque la limite identifiée est d'environ 10000 jours. Les deux parties suivantes de ce chapitre sont consacrées à l'étude quantitative de l'extraction de certains éléments. Cette étude a, par exemple, montré que l'extraction des alcalins et des alcalino-terreux était impossible (sauf par dissociation complète du sel combustible), mais qu'elle n'était pas nécessaire pour le bon fonctionnement du réacteur.

Une fois les outils de simulation développés et l'unité de retraitement étudiée, nous avons pu quantifier les débits de matière, et par conséquent, les radiations émises par les inventaires en jeu. Les résultats, en terme de dégagement de chaleur, de débit

d'équivalent de dose ou de flux gamma sont présentés dans le chapitre 4.

Enfin, le chapitre 5 présente l'influence que peut avoir le retraitement sur le réacteur. La première partie de ce chapitre est consacrée à la question des produits de fission, et de leurs comportement dans l'unité de retraitement. Nous avons identifié trois types de produits de fission pouvant poser un problème : les alcalins et alcalino-terreux dont nous avons envisagé une incinération, l'iode dont le comportement dans l'unité de retraitement est incertain, et enfin, le zirconium pour lequel il faut absolument une étape particulière. La deuxième partie du chapitre est consacrée aux noyaux lourds, responsables des bonnes caractéristiques neutroniques du coeur. Nous avons développé un formalisme probabiliste qui permet d'étudier la réponse du réacteur suite à une perturbation du cas nominal sans nécessiter de simulation supplémentaire. Nous montrons, dans cette section, que les propriétés du réacteurs sont largement dictées par le comportement de l'U-233 et que l'incinération des éléments transuraniens ne perturbent pas les bonnes caractéristiques du MSFR.

Ce travail montre le caractère robuste du procédé de retraitement face aux faibles exigences du MSFR. Nous verrons que seul le zirconium nécessite une attention plus particulière. Pour pouvoir réaliser une étude plus complète, un effort sur les données physico-chimiques est indispensable, mais les outils nécessaires ont été développés pour mener à bien ce travail.



# Chapitre 1

## Les réacteurs à sels fondus dans le contexte énergétique

### 1.1 Besoin Énergétique présent et futur

#### 1.1.1 L'offre et la demande énergétique d'ici 2050

Plusieurs études montrent aujourd'hui très clairement que la consommation énergétique devrait considérablement augmenter durant les prochaines décennies. On estime que, malgré l'amélioration de l'efficacité énergétique, la production d'énergie devra doubler d'ici 2050 [Me-08-1] pour passer de 10, en 2000, à environ 20 milliards de tonnes équivalent pétrole (tep). Plusieurs raisons peuvent facilement expliquer ce phénomène comme notamment l'augmentation de la population ou l'augmentation du niveau de vie moyen (un français consomme un peu moins de 4 tepts alors qu'un indien consommait dix fois moins en 2006 [IAE]). La part des énergies fossiles est largement prépondérante comme le montre la figure 1.1 qui présente l'évolution de la production énergétique des dernières décennies [IAE].

A cette crise énergétique latente, nous devons rajouter aussi le contexte climatique dont l'origine du réchauffement actuel semble être anthropique. Le défi semble donc lourd à relever puisqu'il s'agit d'augmenter la production d'énergie en diminuant la consommation d'énergie fossile, pour des aspects essentiellement environnementaux.

Malgré les défauts qui sont habituellement liés à l'énergie nucléaire, il faut reconnaître que c'est une énergie non-émettrice de CO<sub>2</sub>, relativement bon marché et sûre grâce à la technologie des réacteurs actuels. Son potentiel de déploiement est très fort comme peut le montrer la référence [Me-08-1] et il paraît donc indispensable de se pencher sur le futur du nucléaire et des problématiques qu'il soulève.

#### 1.1.2 La part du nucléaire

L'énergie nucléaire représente dans le monde 16% de la production d'électricité mondiale avec 438 réacteurs. En France, c'est 78% de l'électricité qui sont produits à l'aide de 58 réacteurs de puissance, qui sont tous des réacteurs à eau pressurisée [EL-06]. Les avantages de cette filière sont nombreux, comme par exemple une sûreté élevée et un pilotage relativement facile à mettre en oeuvre. Par contre, nous devons

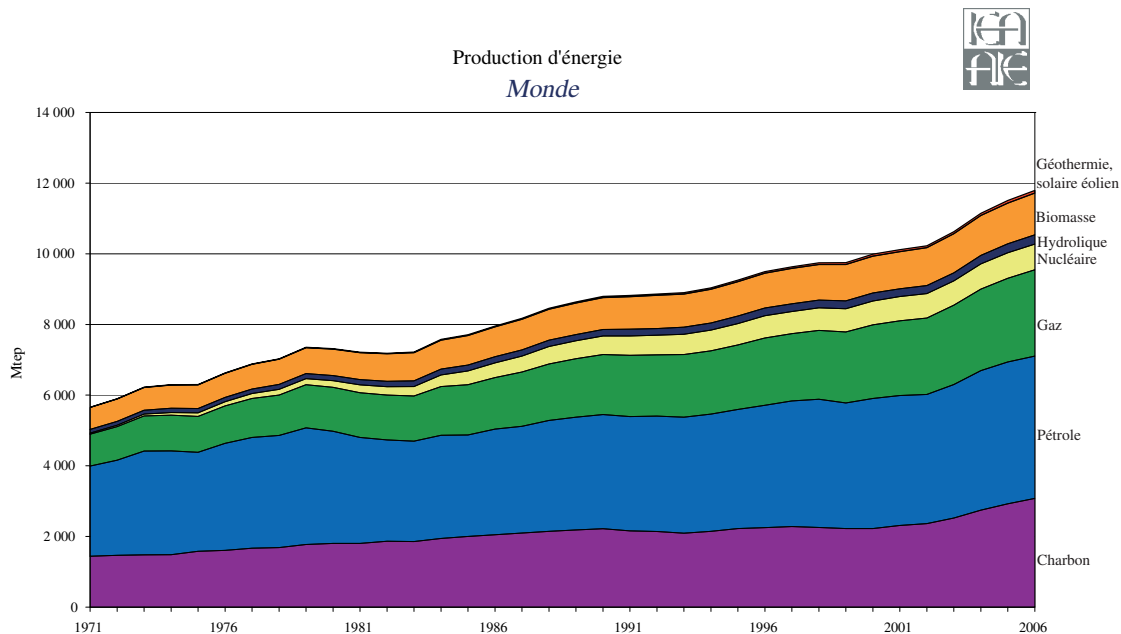


FIGURE 1.1: Evolution de la production mondiale d'énergie

noter deux inconvénients majeurs qui sont une gestion des ressources non optimisée (très forte consommation en uranium naturel) et une production de déchets importante. En effet, actuellement, les actinides mineurs ne sont pas recyclés et représentent 95% de la chaleur dégagée dans les colis de stockage. le parc français n'en produit que 1,85 tonnes par an, alors qu'il produit près de 60 tonnes de produits de fission [Sa-95]. Le recyclage de ces actinides mineurs ne réduirait la quantité de déchet de manière significative, mais bien l'emprise et les contraintes du stockage.

Pour envisager sereinement un déploiement du nucléaire au niveau mondial, et même dans des contextes géopolitiques douteux, il faut rénover le nucléaire vers une nouvelle génération de réacteur : la génération IV [GEN-IV]. Le forum international du même nom a défini 5 critères que les réacteurs de demain devront satisfaire : une sûreté au moins équivalente aux réacteurs précédents, présentant une gestion optimisée du combustible, générant le moins de déchets possibles, apportant une excellente résistance à la prolifération des armes nucléaires tout en restant compétitif économiquement. Ce forum a retenu 6 concepts de réacteurs comme pouvant réunir toutes ces caractéristiques, les états membres ayant la charge d'effectuer les recherches pour chacun de ces réacteurs. On compte les réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium, les réacteurs à neutrons rapides refroidis au plomb, les réacteurs à neutrons rapides refroidis au gaz, les réacteurs à eau super-critique, les réacteurs à très hautes températures et les réacteurs à sels fondus.

Comme il n'y a qu'un seul isotope fissile présent à l'état naturel (l'uranium 235), les 6 réacteurs cités par le forum GEN-IV espèrent régénérer la matière fissile à partir de noyaux dits fertiles : l'uranium 238 pour créer du plutonium 239 ou le thorium 232 pour créer de l'uranium 233. Un argument souvent avancé en faveur du cycle uranium est qu'il permettra de réduire les quantités d'uranium appauvri accumulées au cours des dernières décennies, comme il est dit que le thorium est presque 3 fois plus abondant sur terre que l'uranium et donc, que dans le cadre d'un développement

durable, il faudra privilégier cette filière. Les chiffres nous montrent qu'il y a environ 200 000 tonnes d'uranium appauvri en stock en France, issues de l'enrichissement et quelques 30 000 tonnes de thorium [*An-06*] - le thorium est un résidu de l'extraction de certains éléments comme les terres rares par exemple. Ces quantités représentent environ 200 000 année-réacteurs si l'on choisit le cycle uranium et 30 000 si l'on choisit le cycle thorium. Le problème des stocks d'uranium ne sera donc pas résolu avec tel ou tel concept de réacteur (en tout cas, pas avant quelques milliers d'années). Le choix du combustible doit donc se faire selon d'autres critères.

### 1.1.3 La transition entre le parc actuel et la génération IV

L'avantage du nucléaire comme source d'énergie se situe sans doute dans le prix du kWh. En effet, contrairement aux ressources fossiles où le prix de l'électricité est fortement indexé sur celui des matières premières, le prix du kWh nucléaire ne dépend que très peu du prix du kilo d'uranium. Les réacteurs d'aujourd'hui fonctionnent en cycle presque ouvert pour la France et ouvert pour la quasi-totalité du parc mondial. Dans le cas de réacteurs GEN-IV, le réacteur est plus cher mais le prix de l'électricité produite ne dépend plus du prix de l'uranium. En effet, si les réacteurs sont régénérateurs, ils produisent autant de matière fissile qu'ils en consomment. Le prix de la matière fissile est donc intégré dans le prix de fabrication du réacteur. Puisque nous ne pouvons pas estimer précisément le prix de l'uranium dans le siècle prochain, il est très difficile de savoir quand la génération future de réacteur sera rentable. Il est donc, par conséquent, difficile de prévoir l'effort à effectuer sur la recherche de ces nouveaux concepts.

Des améliorations sur les réacteurs actuels permettraient en plus d'optimiser l'utilisation du combustible. Perrine Guillemin a montré dans sa thèse [Gu-09] que le CANDU actuel (réacteur canadien), possédait des capacités de régénération intéressantes puisqu'il est régénérateur en cycle thorium sans modification. Cette prouesse est, entre autre, due au niveau d'absorption parasite réduit, grâce à la gestion de la réactivité par rechargement en ligne. Cependant, cette régénération se paye par un faible burn-up, ce qui implique un retraitement performant impliquant donc un coût élevé. Il est beaucoup plus difficile de trouver des configurations de réacteurs à eau pressurisée pouvant réellement améliorer la gestion du combustible. Cependant ces résultats montrent que des optimisations sur les réacteurs actuels sont encore possibles, rendant encore plus incertaine la date du déploiement des réacteurs de quatrième génération.

C'est essentiellement pour ces raisons que l'avènement de la quatrième génération de réacteur n'est pas admis par l'ensemble des acteurs du nucléaire. Cependant, dans le cadre d'un développement durable du nucléaire, il faut le penser pérenne et donc les réacteurs du futur devront tendre vers un système de quatrième génération. Nous verrons que le système étudié dans ce travail couvre l'ensemble du cycle du combustible puisque la production d'énergie en réacteur et le retraitement du combustible sont fortement couplés, ce qui fait sa particularité.

## 1.1.4 Le cycle thorium

### 1.1.4.1 Propriétés neutroniques du cycle

Comme nous venons de le présenter, les combustibles basés sur le cycle thorium représentent l'une des deux possibilités de combustible pour le nucléaire du futur. Le noyau fertile est le thorium 232 et le fissile est l'uranium 233. L'idée est de maximiser le nombre de neutrons dits "utiles" pendant le fonctionnement du réacteur. Un neutron utile est un neutron qui provoque une fission, ou qui, par capture sur noyau fertile, crée un noyau fissile. Dans le cas du cycle thorium, ce processus se fait selon la réaction :



Le protactinium a une période de 27 jours et décroît selon un processus  $\beta^-$  (comme le thorium 233). La période du protactinium, beaucoup plus longue que son équivalent en cycle uranium (la décroissance du neptunium 239 est de 2,9 jours) provoque des difficultés dans la gestion des systèmes fondés sur le thorium. On peut noter en début d'irradiation une perte brutale de réactivité qui reprend une fois que le protactinium est à l'équilibre (au bout d'une centaine de jours environ). De la même façon, à l'arrêt du réacteur, la concentration d'uranium 233 augmente pendant une centaine de jours après l'arrêt du réacteur et peut donc poser des problèmes de sûreté.

La figure 1.2 présente le nombre de neutrons disponibles en fonction de l'énergie de ces neutrons, après avoir assuré la criticité et la régénération. Si le cycle uranium nécessite un spectre neutronique rapide pour pouvoir atteindre la régénération, le cycle thorium peut être régénérateur quelle que soit l'énergie des neutrons puisque le nombre de neutrons disponibles est positif dans tout le domaine énergétique.

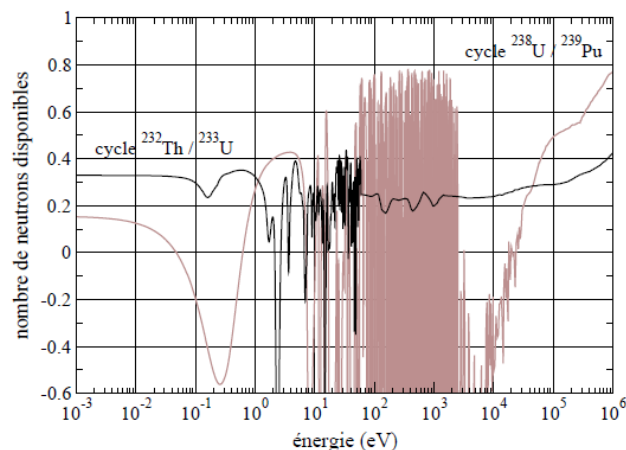


FIGURE 1.2: Nombre de neutrons disponibles en cycle thorium et en cycle uranium

D'autre part, la place du thorium 232 dans la charte isotopique (figure 1.3) est telle qu'il faudra beaucoup plus de captures neutroniques successives avant de voir apparaître les actinides mineurs (neptunium, américium et curium) qui posent des problèmes dans la gestion actuelle des déchets nucléaires à long terme.



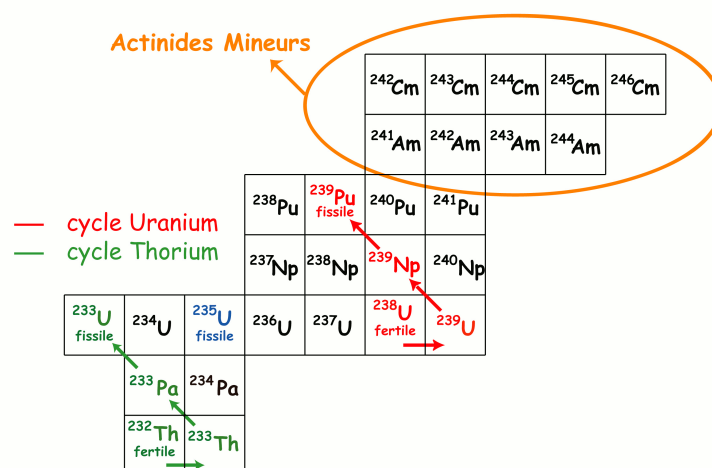


FIGURE 1.3: Extrait de la charte des isotopes

#### 1.1.4.2 Impact radiologique et non-prolifération

Nous devons nuancer ce qui pourrait passer pour un réel avantage en insistant sur le fait que les noyaux lourds du cycle thorium ne sont pas forcément plus faciles à gérer que les isotopes de l'américium ou du curium du cycle uranium. Citons deux exemples : d'une part la production de protactinium 231 par réaction (n,2n) sur le thorium 232 qui a presque 33 000 ans de période ; et d'autre part l'uranium 232, qui a 72 ans de période, créé par réaction (n, $\gamma$ ) sur le protactinium 231. Un de ses descendants (le thallium 208) émet un rayonnement gamma de 2,6 MeV avec un rapport de branchement de 36% (le tableau 1.1 résume les principaux facteurs de doses de différents actinides [JO]).

Cycle thorium			Cycle uranium		
isotope	période	facteur de dose	isotope	période	facteur de dose
Th-232	$1,4 \cdot 10^{10}$ ans	$2,3 \cdot 10^{-7}$	U-235	$7,04 \cdot 10^8$ ans	$4,7 \cdot 10^{-9}$
Pa-231	$3,27 \cdot 10^4$ ans	$7,1 \cdot 10^{-7}$	U-238	$4,47 \cdot 10^9$ ans	$4,5 \cdot 10^{-11}$
U-232	72 ans	$3,3 \cdot 10^{-7}$	Np-237	$2,14 \cdot 10^6$ ans	$1,1 \cdot 10^{-7}$
U-233	$1,58 \cdot 10^5$ ans	$5,1 \cdot 10^{-8}$	Pu-239	$2,41 \cdot 10^4$ ans	$2,5 \cdot 10^{-7}$

TABLE 1.1: Facteurs de dose des principaux actinides (en Sievert par Becquerel)

Deux enjeux de l'aval du cycle thorium sont ainsi mis en évidence : celui de ne pas séparer l'uranium 232 de l'uranium 233 pour des raisons de non-prolifération, et celui de produire le moins possible de protactinium 231 en fonctionnement : c'est à dire soit de l'incinérer en spectre rapide, soit d'en minimiser sa production en spectre thermique (la section efficace (n,2n) du thorium 232 est nulle à basse énergie, cependant il y a toujours une composante rapide dans un spectre thermique).

L'uranium 232 est souvent considéré comme un bon polluant de l'uranium et donc un bon isotope pour la résistance à la prolifération. Une sphère d'uranium de 10 kg d'uranium 233 (masse critique) qui contiendrait 5 ppm d'uranium 232 provoque des débits de dose qui sont énormes : 0,11 mSv/h après un mois, 1,1 mSv/h après un an et

2 mSv/h après 2 ans. Si un individu mal intentionné arrivait à extraire de l'uranium pur mais dont le vecteur isotopique contiendrait de l'uranium 232, même en très faible quantité, le débit de radiation gamma deviendrait très vite trop important pour imaginer une manipulation à des fins terroristes.

D'autre part, du point de vue des produits de fission, la probabilité d'apparition est sensiblement différente. En effet, le strontium 90 est produit plus de 3 fois plus dans le cycle thorium que dans le cycle uranium. On peut citer deux conséquences notables de ce fait : d'une part comme le strontium possède une demie vie relativement longue (de l'ordre de 30 ans), la radiotoxicité et la chaleur dégagée par l'ensemble des produits de fission seront plus importantes sur les 300 premières années de stockage. Si la fission de l'uranium 233 provoque plus de strontium 90, les isotopes à plus courte période seront donc moins produits. La chaleur résiduelle à très court terme est donc plus faible, ce qui peut apporter de réels avantages sur les problématiques de sûreté.

Les deux derniers points sont illustrés dans les figures 1.4 et 1.5 : la première montre la radiotoxicité des produits de fission de l'uranium 233 comparée à celle du plutonium 239. En ce qui concerne la problématique du stockage des déchets nucléaires, ce sont les actinides mineurs qui sont les éléments les plus problématiques. Par opposition, les produits de fission sont des éléments à vie courte dont le stockage ne pose pas de réel problème. Cependant, ce sont bien les produits de fission qui sont responsables du dimensionnement du stockage puisqu'ils sont responsables du dégagement de chaleur le plus important (en début de vie du stockage).

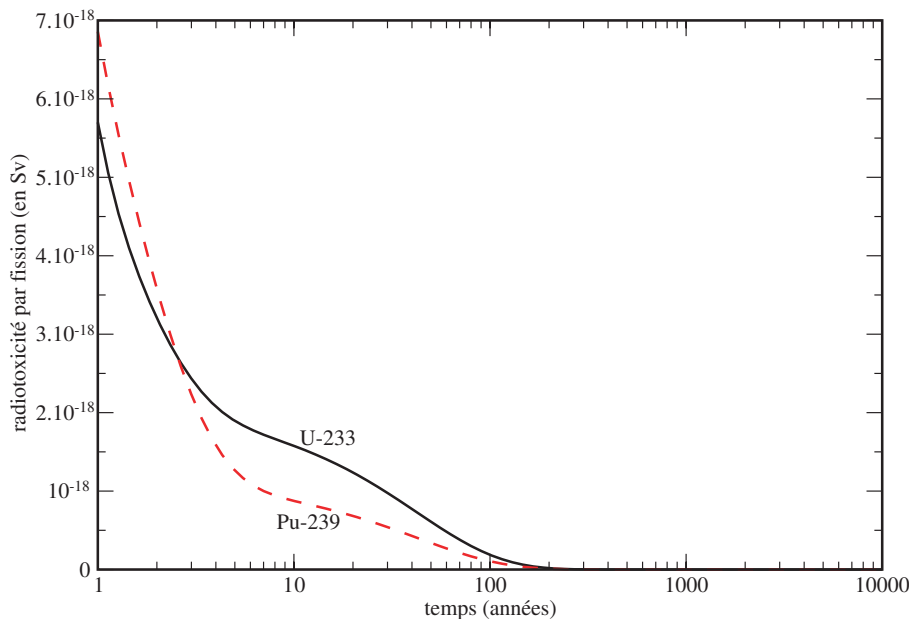


FIGURE 1.4: Comparaison des radiotoxicités des produits de fission de l'U-233 et du Pu-239

La figure 1.5 présente la chaleur résiduelle du cycle thorium comparée à celle du cycle uranium (les probabilités d'apparition des produits de fission sont celles de fissions induites par neutrons rapides). Notons toutefois que les pertes en actinides mineurs, qui dépendent du système et du retraitement envisagé, doivent s'ajouter à ces courbes

pour être représentatifs des déchets produits. Comme nous le verrons dans le chapitre 4, les produits de fission ne sont pas les éléments dimensionnants des déchets à long terme.

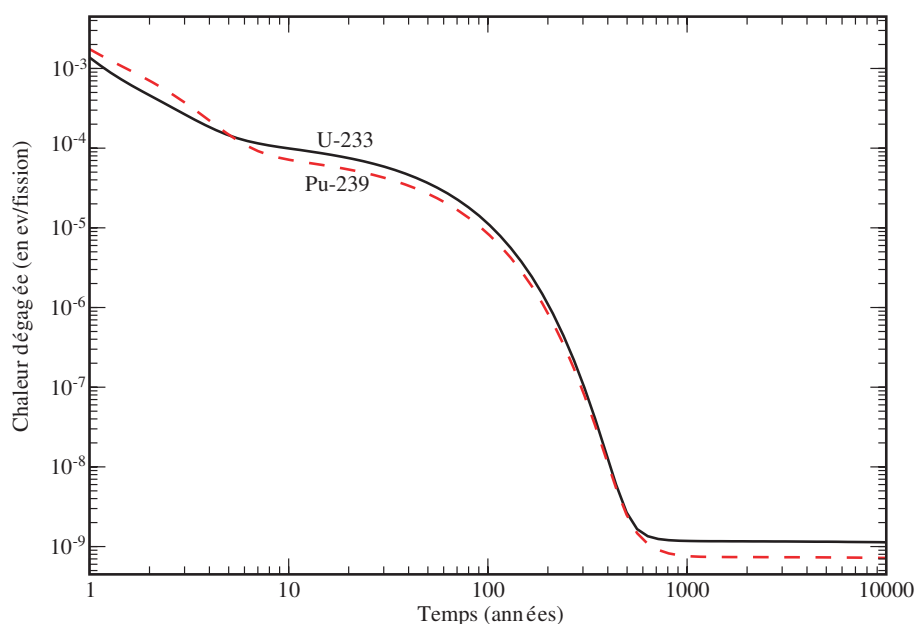


FIGURE 1.5: Comparaison des chaleurs résiduelles des produits de fission de l'U-233 et du Pu-239

A cause du problème de la radiation gamma de l'uranium 232, la gestion du cycle devient plus complexe. L'irradiation est d'autant plus forte que le temps de refroidissement du combustible utilisé est court (ce qui pourrait être le cas dans le but d'optimiser la matière fissile). Les problématiques du transport ou du retraitement doivent alors intégrer les problèmes de radioprotection ou de radiolyse. Pour éviter les dommages de l'irradiation sur la structure moléculaire des principes actifs, on peut envisager de la simplifier au maximum et d'utiliser les liquides ioniques à haute température (sels fondus), et donc un retraitement par voie pyrochimique.

## 1.1.5 Gestion des déchets nucléaires

### 1.1.5.1 Généralité sur la gestion actuelle en cycle U/Pu en France

Après sa sortie du réacteur, le combustible nucléaire subit une série d'opérations avant de voir la matière étiquetée "valorisable" ou "déchet". Les déchets d'activation ou les déchets technologiques sont aujourd'hui envoyés sur le site de stockage de l'Aube [An-04]. Le combustible repose 4 ans en piscine avant toute intervention, pour laisser refroidir le combustible. Il faut alors séparer l'uranium et le plutonium des actinides et des produits de fission. La stratégie de gestion des produits de fission est relativement établie aujourd'hui : l'iode et les gaz rares sont rejetés dans la biosphère et les autres éléments sont coulés dans des verres dans le but d'être enfouis en couche géologique profonde.

L'uranium et le plutonium sont extraits et stockés temporairement puisque valorisable. L'uranium de retraitement est enrichi à plus de 1% en uranium 235 ce qui

est plus que l'enrichissement naturel. Il paraît donc raisonnable de vouloir valoriser cette matière, même si la présence d'uranium 234 et 236 (poisons neutroniques) affaiblissent l'atout que pourrait représenter l'uranium de retraitement. Le plutonium possède un vecteur isotopique très intéressant (riche en Pu-239) et repart potentiellement en réacteur sous forme de combustible MOX.

Par contre les actinides mineurs pourraient, après extraction, être incinérés dans des réacteurs dédiés (réacteurs sous-critiques assistés par accélérateur, ou réacteurs à neutrons rapides) ou enfouis avec les produits de fission. Les études montrent que l'enfouissement des actinides devrait être moins contraignant puisqu'ils seraient beaucoup moins mobiles que les produits de fission [Da-07]; leur impact sur l'environnement devrait donc être beaucoup plus faible en cas de rejet (fuite dans l'écosystème).

Le facteur dimensionnant des sites de stockage est la chaleur dégagée par les colis à enfouir. Cette chaleur est maximale à l'état initial et est largement dominée par les produits de fission à durée de vie moyenne (~30 ans) comme le césium 137 et le strontium 90. A la lecture du paragraphe précédent, le cycle thorium semble donc désavantagé par rapport au cycle uranium à cause de sa production de strontium 90. Nous verrons cependant dans les chapitres suivants qu'il est possible de séparer ces produits de fission dans la gestion de l'aval du cycle avec un procédé adapté de retraitement des réacteurs à sels fondus.

### 1.1.5.2 Le procédé THOREX

Le retraitement des combustibles du cycle uranium n'est pas à démontrer ici : les unités UP2 et UP3 de la Hague permettent de retraiter jusqu'à 1700 tonnes de combustibles usés par an pour en extraire l'uranium et le plutonium grâce au procédé PUREX (Plutonium and Uranium Refining by Extraction) [MS-06].

Il y a un peu plus d'un demi-siècle, les Etats-Unis ont montré la faisabilité du retraitement des combustibles thoriés en traitant 900 tonnes de combustible pour extraire environ 1500 kg d'uranium 233 [Gr-07]. La difficulté d'un tel procédé est la dissolution du thorium métal ou du thorium oxyde dans une solution aqueuse. Celle-ci est effectuée dans une solution d'acide nitrique et d'acide hydrofluoridrique et possède une cinétique très lente. Il faut donc lui ajouter un catalyseur. Les problèmes de corrosion dus à la présence de fluor ont contraint les Américains à utiliser du nitrate d'aluminium. Cet ajout imposait une étape supplémentaire pour l'extraction et, augmentait ainsi la quantité de déchets.

La chimie du procédé THOREX est légèrement différente de celle du procédé PUREX [Si-00] et l'on attend 50 à 70% de déchets de plus (en volume de verre) en sortie du procédé THOREX par rapport au procédé PUREX. A cela il faut ajouter que le protactinium n'est pas extrait de l'ensemble des produits de fission. Ceci pourrait être particulièrement problématique pour le protactinium 231 qui termine donc dans les verres. Le protactinium 233 ayant 27 jours de période, il suffit d'attendre quelques mois avant d'effectuer ce retraitement pour qu'il ait complètement décrépu en uranium et que l'on ne retrouve pas d'uranium 233 dans les déchets ultimes où il serait responsable de la majorité de la radiotoxicité à long terme entre 10 000 et 100 000 ans.

## 1.2 Le MSFR comme réacteur de quatrième génération

### 1.2.1 Historique des RSF

Les réacteurs à sels fondus sont issus d'une réflexion du début des années 1950. A l'époque, le contexte géopolitique mondial était un contexte de guerre froide et les Américains (comme les Russes) envisageaient sérieusement de construire des avions à propulsion nucléaire. Le concept du réacteur à sels fondus a été retenu grâce à sa grande compacité comme nous le verrons dans le paragraphe ci-dessous.

Une fois la faisabilité d'un tel réacteur prouvée, le projet a évolué vers un réacteur de puissance qui possédait une gestion des ressources plus optimisée. L'idée était de profiter des très bonnes caractéristiques neutroniques de l'uranium 233 pour avoir un réacteur régénérateur. Un des points noirs de ce concept était le retraitement, nécessairement ambitieux pour garder la régénération. Le concept a aujourd'hui bien évolué vers un modèle de réacteur prometteur. Ce paragraphe présente brièvement les travaux américains ainsi que les différents concepts employant des sels chlorures. La deuxième partie présentera le modèle américain des années 70 qui a évolué vers la configuration actuelle.

#### 1.2.1.1 Les travaux de l'ORNL (Oack Ridge National Laboratory)

Les premières études sur les RSF sont issues de recherches pour la propulsion aérienne avec l'ARE (Aircraft Reactor Experiment [Br-57]). Utiliser un réacteur nucléaire devait permettre à l'avion de voler pendant plusieurs dizaines de jours sans nécessité de faire le plein de carburant. Le concept de l'ARE comprenait un réacteur d'une puissance de 2,5MW thermique qui a fonctionné au sol pendant une centaine d'heures. Le sel combustible était un mélange de fluorure de sodium (53%), fluorure de zirconium (41%) et de fluorure d'uranium (6%). Cette expérience a été un succès malgré de sévères dommages sur les matériaux de structure dûs à la corrosion du sel.

Fort de cette expérience, l'ORNL construit en 1964 un réacteur de démonstration de 8 MW thermique : le molten salt reactor experiment (MSRE) [Ro-70, Ha-70] dont on peut voir une représentation sur la figure 1.6. La structure est un bloc de graphite percé de canaux dans lequel circule le sel combustible. Ce sel est un mélange de fluorure de lithium, fluorure de béryllium, fluorure de zirconium et de fluorure d'uranium. Les problèmes de corrosion mis en évidence par l'ARE ont été en partie résolus par le développement d'un nouvel alliage : l'hastelloy-N qui est un alliage base nickel. On compte 4 ans de fonctionnement avec différents noyaux fissiles (l'uranium enrichi à 30% en U-235 pendant 3 ans, l'uranium 233 pur pendant 1 an et un mélange de plutonium uranium 233 la dernière année). Il faut toutefois noter qu'il n'y a jamais eu de fluorure de thorium dans le MSRE

La suite logique de ces deux réacteurs expérimentaux est un réacteur de puissance : c'est le projet MSBR (ou Molten Salt Breeder Reactor), qui n'a jamais été construit [Ro-70, Ro-71-1] (voir figure 1.7). Comme pour le MSRE, le MSBR était modéré au graphite. Dans sa phase la plus aboutie, le sel primaire était un mélange ternaire de fluorure de lithium, fluorure de béryllium et de fluorure de noyaux lourds. La teneur en noyaux lourds (majoritairement du thorium et un peu d'uranium) était fixée à 12,3%. L'unité de retraitement associée au réacteur [Ro-70] était prévue pour fonctionner intégralement

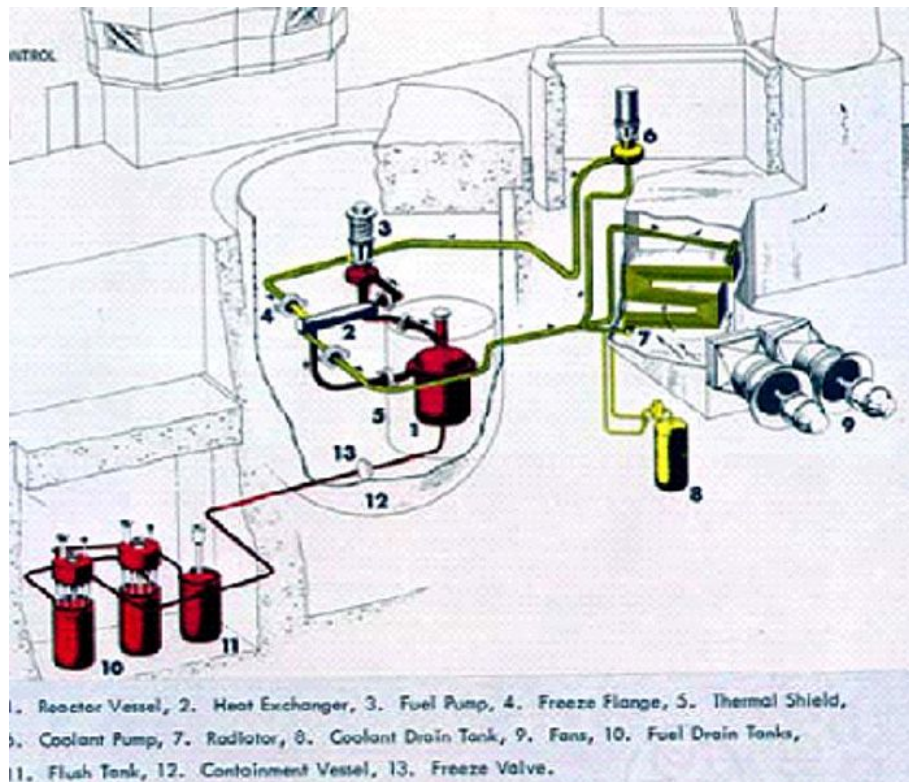


FIGURE 1.6: Représentation du MSRE

en ligne. Elle était découpée en deux parties bien distinctes : un bullage d'hélium en ligne pour extraire les produits de fission non-solubles dans le sel, et une extraction pyrochimique pour extraire les lanthanides [Gr-70]. Le retraitement prévoyait d'extraire le protactinium pour le laisser décroître hors flux et la qualité de l'uranium récupéré était excellente (hautement enrichi en U-233). L'unité de retraitement devait retraiter la totalité du sel combustible en une dizaine de jours. Nous verrons qu'aujourd'hui, le schéma de retraitement comporte toujours les deux systèmes d'extraction des produits de fission couplés, mais que le débit de retraitement a été considérablement diminué, ce qui rend sa faisabilité beaucoup plus probable.

### 1.2.1.2 Les études postérieures

Malgré l'arrêt des études en 1976 aux Etats Unis, la France continue son effort jusqu'à 1983 [Be-00]. Les Japonais développent une nouvelle géométrie de réacteur Thorim-NES, toujours à l'étude aujourd'hui. L'originalité du concept est fondée sur le découplage entre la production d'uranium 233 (réalisée dans des réacteurs à sels fondus assistés par accélérateur) et la production d'énergie [Fu-90]. Cette idée de réacteur sous-critique est reprise par le C.E.A. avec son concept TASSE. Le retraitement est considérablement ralenti et les pertes neutroniques imputées aux produits de fission sont compensées par l'apport de neutrons supplémentaires par spallation [Be-00]. Enfin, il faut citer le concept AMSTER (actinide molten salt transmuter) d'EDF [Le-02] qui reprend les avantages des sels fondus (d'un point de vue physico-chimique) pour en faire un incinérateur d'actinides.

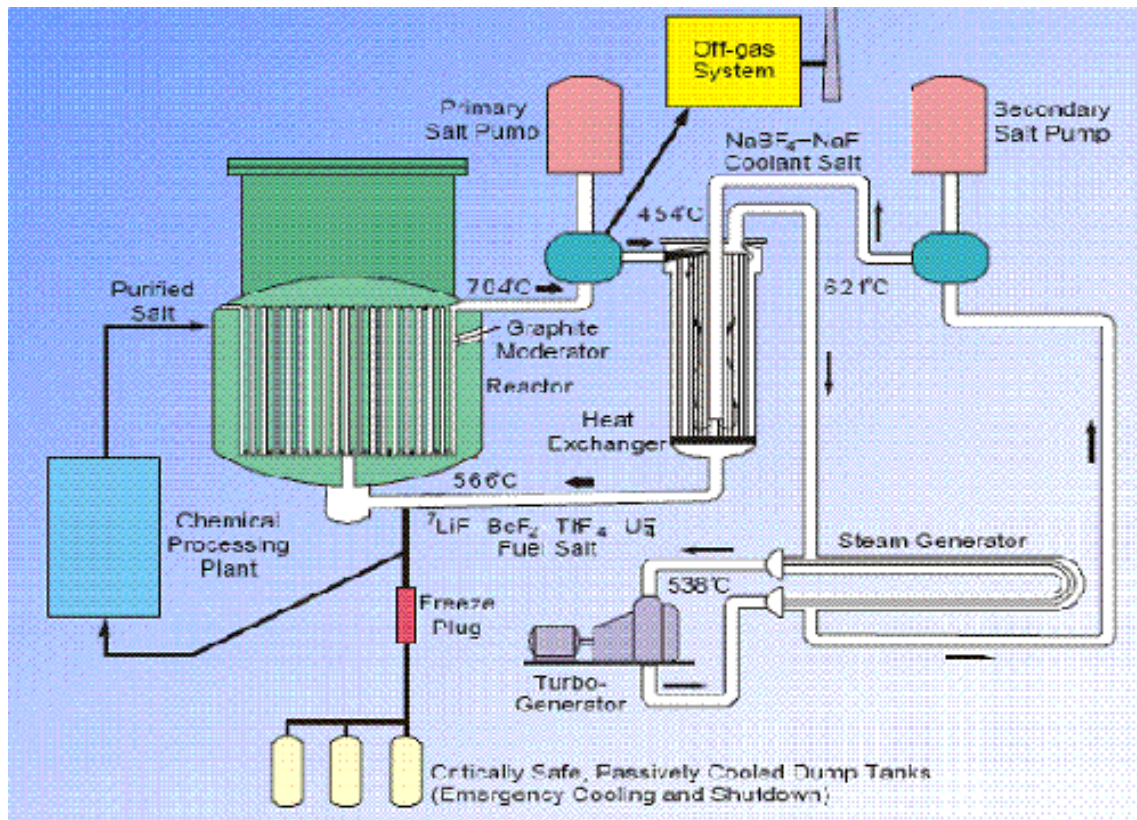


FIGURE 1.7: Schéma de principe du MSBR

### 1.2.2 Du MSBR au TMSR

Au CNRS, les études sur la réévaluation du MSBR ont débuté dans les années 2000. Plusieurs études successives ont montré les avantages que pouvaient avoir les RSF d'un point de vue production d'énergie [Me-08-1, Me-09-1]. L'idée de ces études était d'identifier les problèmes majeurs que pouvait rencontrer le MSBR et de voir comment on pouvait passer d'un cycle uranium à un cycle thorium.

Alexis Nuttin a montré dans sa thèse les problèmes de sûreté dus à la présence de graphite en cœur des RSF. Les coefficients de contre-réaction global étaient très faiblement négatifs (-0,9 pcm/K) et les coefficients de vide largement positifs (+0.8 pcm/K) [Nu-02]. La contribution du graphite était largement prépondérante, en plus d'introduire un risque d'incendie graphite. Le retraitement restait, dans cette étude, un problème clef essentiellement à cause de sa complexité et de sa nécessaire rapidité. Cependant l'étude a montré de réels intérêts du cycle thorium dans le cadre de scénarios de déploiement.

Par la suite, Ludovic Mathieu a montré dans sa thèse [Ma-05] que suivant la modulation des neutrons, et donc le spectre neutronique du réacteur, le comportement du réacteur n'était pas le même. Ludovic Mathieu est parti d'une configuration proche du MSBR - nommée Thorium Molten Salt Reactor ou TMSR - et a fait varier le rapport de modulation dans le cœur, en faisant varier la taille des canaux de graphite où circulait le sel combustible. Le sel combustible était retraité en un temps

considérablement plus long que le sel du MSBR (la totalité était retraitée en quelques mois). Une partie de ses résultats sont résumés dans la figure 1.8.

Sur cette figure, l'abscisse commune représente le rayon des canaux, tout en gardant le volume du sel combustible constant. Cet axe est donc inversement proportionnel au rapport de modération. Les coefficients de contre-réaction deviennent négatifs si l'on augmente le rayon des canaux de sels (ce qui a pour conséquence directe de durcir le spectre) et le taux de régénération augmente très fortement, mais en contre-partie, la durée de vie du graphite diminue grandement (dommages aux irradiations beaucoup plus fort dûs au spectre plus rapide et donc au flux neutronique plus élevé) et l'inventaire en matière fissile augmente. Notons que la géométrie du MSBR comporte des canaux de graphite de rayon d'environ 6,5 cm. La figure nous confirme que les coefficients de contre-réaction sont bien négatifs mais que le réacteur est très régénérateur. Toute géométrie comprenant des canaux dont le rayon se situerait entre 2 et 7 cm doit être exclu pour avoir une bonne sûreté passive du réacteur. Les configurations avec des canaux très petits peuvent être écartées pour deux raisons : le système n'est pas régénérateur et le volume de graphite à gérer est considérable. En effet, si les canaux sont petits, c'est qu'il y a une grande quantité de graphite dans le coeur du réacteur, et même si sa durée de vie est importante, les quantités de graphite à retraiter sont conséquentes ainsi que les problèmes associés (feu de graphite, production de chlore radioactifs etc...).

Une configuration particulière attire l'attention : celle où le rayon des canaux est de 13,5 cm. Ce rayon correspond au passage à la limite : le graphite est totalement absent du coeur et il n'y a plus de modérateur en coeur. Les coefficients de contre-réaction sont toujours largement négatifs, le taux de régénération est supérieur à 1,1 et la notion de durée de vie du graphite n'a plus de sens puisque celui-ci est absent des matériaux de composition du coeur. Le spectre neutronique dépend alors uniquement de la composition des sels. Cette configuration particulièrement satisfaisante a été nommée initialement Thorium Molten Salt Reactor - Non Modéré (ou TMSR-NM).

Une série d'études réalisées ensuite a montré qu'un sel de composition  $\text{LiF}(77,5\%)-\text{ThF}_4(22,5\%)$  se détachait [Me-08-2] d'un point de vue de déploiement, de plus sa composition chimique proche de l'eutectique permet un point de fusion relativement bas. Le spectre est alors très rapide et l'on peut retrouver les avantages des réacteurs à neutrons rapides (comme un empoisonnement des PF beaucoup plus faible, une régénération plus accessible) mais aussi leurs inconvénients (l'inventaire en coeur est plus élevé).

### 1.2.3 Le MSFR

Pour essayer de contrer ce désavantage, une étude sur la réduction de l'inventaire du TMSR-NM a été conduite [Me-08-1, Me-09-1, Me-09-2]. Le but de cette étude était de trouver une limite à la puissance spécifique du réacteur, pour minimiser la quantité de matière fissile dans le coeur. Les deux références montrent très bien que la principale limite provient des matériaux de structure. En effet, augmenter la puissance spécifique revient à augmenter le flux de neutrons, et donc les dommages aux matériaux. Ces dommages sont de trois types : les d.p.a. (déplacements par atome), la production d'hélium et la transmutation de ces matériaux. La composition envisagée pour ces



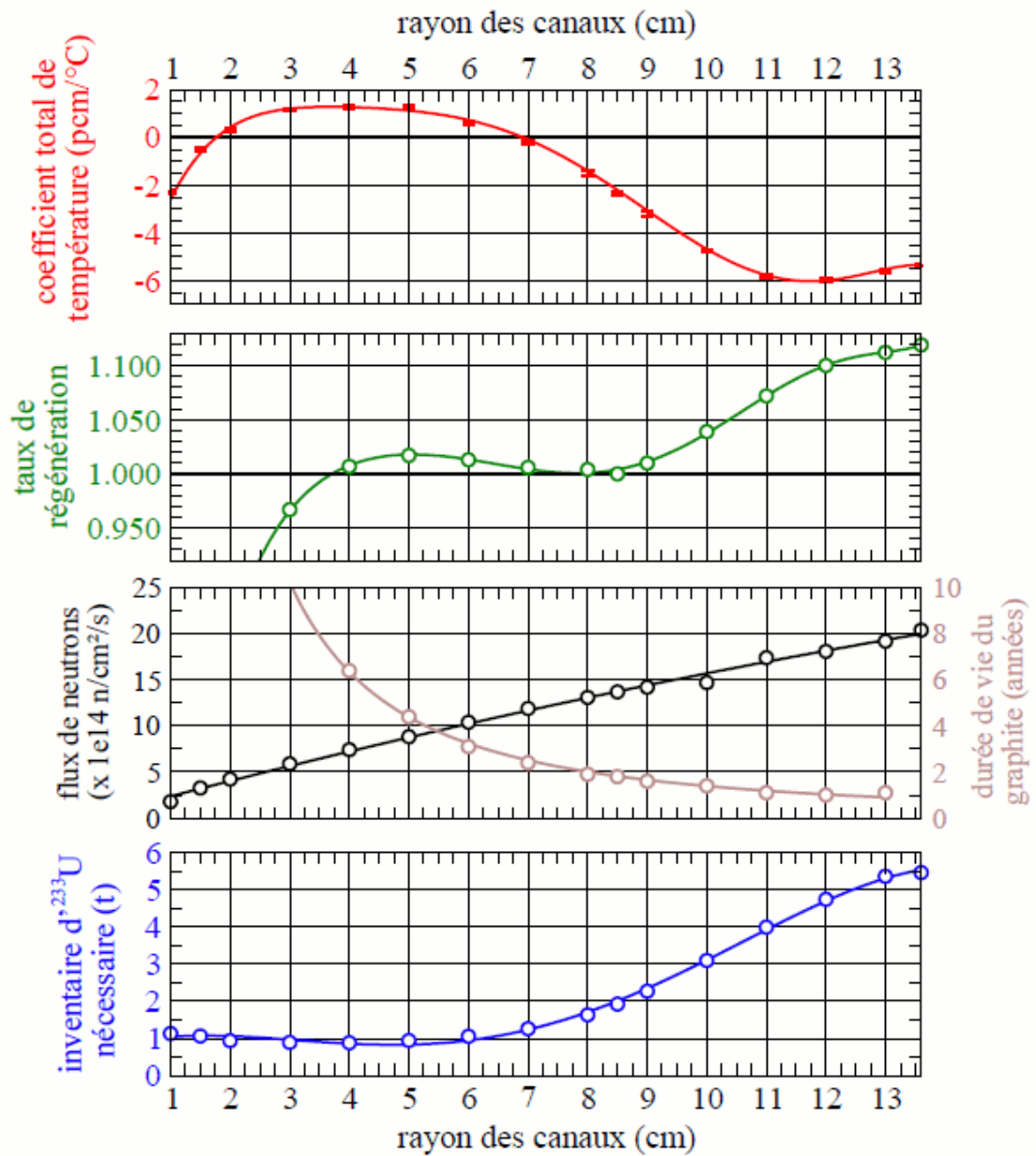


FIGURE 1.8: Principales caractéristiques du TMSR en fonction du rapport de modération

matériaux de structure contient beaucoup de nickel dont du nickel 58, qui possède une section efficace de réaction  $(n,\alpha)$  importante. Des noyaux d'hélium sont donc produits et vont probablement précipiter aux joints de grains et fragiliser l'ensemble. Il y a aussi une quantité non négligeable de tungstène qui se transmute en osmium au fur et à mesure du fonctionnement du réacteur. Les conséquences de cette transmutation ne sont pas connues. Notons que la limite évoquée dans les références est beaucoup plus importante que dans les réacteurs classiques puisqu'il n'y a pas de matériaux dans le coeur du réacteur, et ils ne subissent que peu de d.p.a - inférieur à 2 d.p.a. par an..

Le forum international GEN-IV, ayant décidé de continuer à soutenir le concept, une configuration de référence a été définie, et le nom arrêté : on parle maintenant de Molten Salt Fast Reactor ou MSFR. Ce paragraphe présente le réacteur et dans un deuxième temps son unité de retraitement associée.

### 1.2.3.1 Présentation du réacteur

#### La géométrie

La figure 1.9 présente une vision d'un quart du réacteur. Celui-ci est conçu pour produire 3 GW thermiques ou 1,5 GW électriques. La géométrie du coeur est très simple : c'est un cylindre orthocylindrique de 2,26 m de diamètre. Le volume total du sel combustible est fixé à  $18 m^3$  dont seulement la moitié est dans le coeur où a lieu la réaction en chaîne. L'autre moitié du sel circule dans les échangeurs de chaleur, les tuyaux et les pompes pour extraire la chaleur produite dans le coeur. Ce volume de sel "perdu" pour la réaction en chaîne doit être le plus faible possible, ce qui implique une certaine optimisation de l'espace autour du coeur du réacteur. Les structures externes sont protégées par un réflecteur de neutrons fait à l'aide d'un alliage base nickel, conçu pour absorber plus de 90% du flux de neutrons.

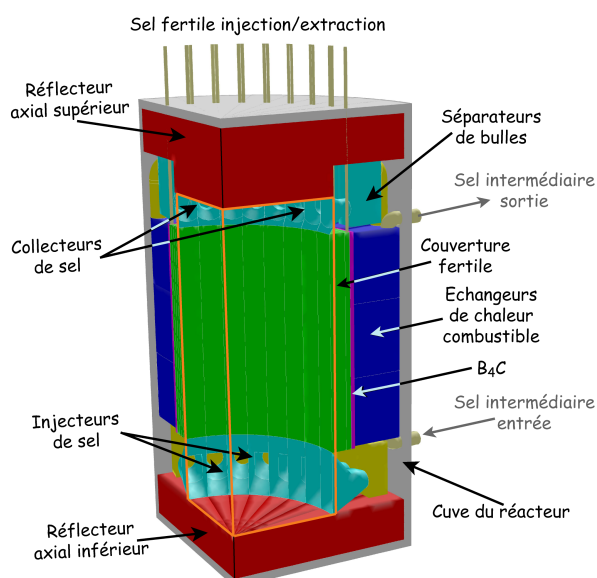


FIGURE 1.9: Représentation d'un quart de réacteur

Pour augmenter la régénération, une couverture fertile de 50 cm d'épaisseur entoure le coeur radialement, ce qui représente  $7,7 m^3$ . Cette couverture contient aussi un sel

fluorure fondu. Une couche de 10 cm de  $B_4C$  en face externe de la couverture protège les échangeurs de chaleur. Le sel combustible n'est pas représenté dans la figure 1.9, et se situe dans l'espace délimité par les traits oranges. Les parties en rouge sont les réflecteurs réalisés en alliage de nickel-chrome-tungstène (dont on donne la composition dans le tableau 1.2). La figure montre aussi où pourrait se situer le séparateur de bulle (qui joue un rôle primordial dans le retraitement) et les échangeurs de chaleur (en bleu sur la figure). Notons que la cuve comporte tout le circuit primaire, pour ne pas perdre les trois barrières de confinement, utiles dans les études de sûreté. En effectuant une analogie avec un réacteur à combustible solide, l'échangeur de chaleur joue le rôle de la gaine combustible.

Ni	W	Cr	Mo	Fe	Ti	C	Mn	Si	Al	B	P
79,432	9,976	8,014	0,736	0,632	0,295	0,294	0,257	0,252	0,052	0,033	0,023

TABLE 1.2: Composition de l'alliage constituant les réflecteurs axiaux et la structure de la couverture fertile, en mol% [Cu-07]

### Le sel combustible

Le sel combustible est un mélange de fluorure de lithium et de fluorure de noyaux lourds. La teneur en noyaux lourds est fixée à 22,5% ; la composition initiale comporte 2,5 % d' $UF_4$  et 20% de  $ThF_4$ . L'inventaire initial en uranium 233 est de 3,4 tonnes par GW électriques, ce qui représente une charge initiale de 5,1 tonnes pour le réacteur. La totalité du sel combustible est retraitée en 450 jours, ce qui représente un débit de sel de 40 litres par jour, mais nous montrerons dans le chapitre 3 que ce débit peut être fortement diminué. Les coefficients de température sont négatifs, ce qui assure une sûreté intrinsèque [Me-08-2]. Le procédé de retraitement présenté ci-dessous permet de n'extraire du système que les produits de fission, les actinides étant stockés dans le cœur pour y être incinérés. La composition du sel évolue donc pour laisser s'accumuler petit à petit les actinides plus lourds. La figure 1.10 montre l'évolution de la population de noyaux lourds dans le sel combustible.

### Masse critique initiale

Comme tout réacteur nucléaire, le MSFR a besoin d'une masse critique initiale, ce qui peut poser problème vu que l'uranium 233 n'existe plus dans la nature. Plusieurs modes de démarrage ont alors été étudiés : démarrer à l'uranium 233 qui aurait été produit dans d'autres réacteurs (ce qui revient à déplacer le problème vers un autre système), démarrer à l'uranium enrichi en U-235 (ce qui pourrait poser de sérieuses questions quant à la résistance à la prolifération), ou enfin démarrer en incinérant les éléments transuraniens issus des réacteurs actuels (cette façon permet d'incinérer nos déchets actuels), mais il y a quelques problèmes de solubilité de ces éléments dans le sel combustible [He-09]. En imaginant que le démarrage est effectué juste avec les transuraniens, l'apport en thorium et la conversion de ce thorium en uranium 233 ramène le système vers un état stationnaire, identique à celui atteint lorsque que le démarrage est effectué avec de l'uranium 233. Il faut en revanche près de 50 ans pour incinérer 90% du plutonium introduit. Pour l'américium et le curium, en revanche, il faudra attendre

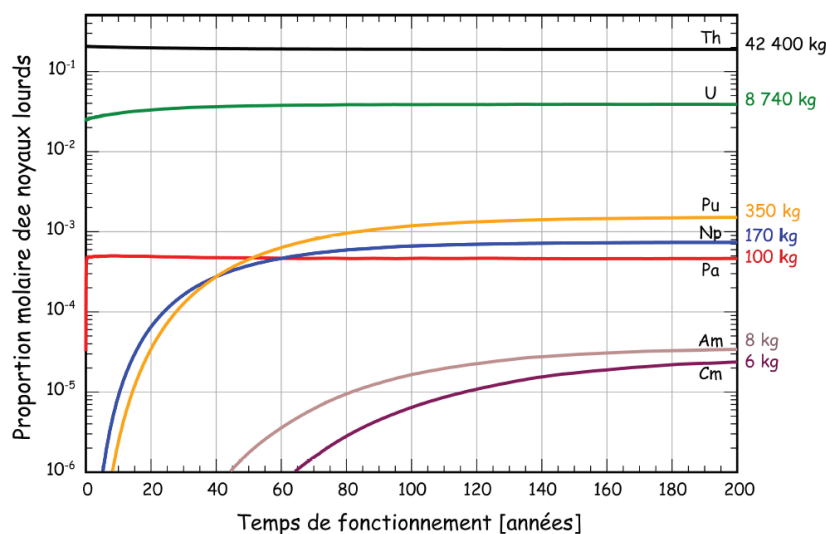


FIGURE 1.10: Evolution de la quantité de noyaux lourds dans le sel combustible au cours de l'évolution, en supposant un démarrage à l'uranium 233

un peu plus d'une centaine d'années. Le curium passe par un maximum de 390 kg vers 26 ans dont 265 kg de Cm-244. La proportion molaire du plutonium est d'environ 5,5% au démarrage (soit un peu plus de 13 tonnes), ce qui pourrait poser des problèmes de solubilité suivant la température de fonctionnement, puisque la solubilité du plutonium est estimée à 5% comme nous le verrons dans le chapitre 3.

Enfin notons que la production d'uranium 233 est de 95 kg par an, (grâce à la couverture fertile) ce qui représente un temps de doublement de 55 ans environ : c'est-à-dire que le système a produit les 5,1 tonnes d'uranium 233 nécessaire au démarrage d'un autre système en 55 ans.

## Matériaux

L'étude [Me-09-2] montre que la principale limite du fonctionnement du réacteur est le vieillissement sous flux neutronique des réflecteurs. En effet le tungstène se transmute en rhénium puis en osmium. D'autre part, ces mêmes matériaux vont être endommagés par la production d'hélium. En effet, presque 400 ppm d'hélium sont produits, essentiellement par réaction  $(n, \alpha)$  sur le nickel 58. Cet hélium risque de venir s'agglomérer aux joints de grains ce qui va fragiliser la structure. Les différentes limites des matériaux sont rappelés dans le tableau 1.3.

d.p.a.	production d'hélium	transmutation du tungstène
1,3 d.p.a. par an	31 ppm atomique par an	0,14% par an

TABLE 1.3: Limites des matériaux de structure du MSFR d'après [Me-09-2]

Les principales caractéristiques du concept sont rappelés dans le tableau 1.4.

Sel initial	77,5% LiF, 20% $ThF_4$ , 2,5% $UF_3$
Température de fonctionnement	700 à 850 °C
Charge initiale	5060 kg/réacteur ou 3370 kg/ $GW_{el}$
Puissance	3 $GW_{th}$ ou 1,5 $GW_{el}$
Retraitement	40l/j pour le coeur et la couverture
Dimension du coeur et des plénums	Diamètre : 2,6m ; hauteur : 2,6m
Epaisseur de la couverture	50cm
Sel de couverture initial	77,5% LiF, 22,5% $ThF_4$
Coefficient de température	de -5,3 à -4,8 pcm/K
Production d'uranium 233	95kg/an

TABLE 1.4: Principales caractéristiques du MSFR

### 1.2.3.2 Présentation de l'unité de retraitement associée

Pour retraiter le combustible, deux systèmes complémentaires ont été développés, grandement inspirés du projet MSBR de l'ORNL. L'ensemble du procédé de retraitement est présenté dans la figure 1.11. Ce procédé, toujours à l'étude, est un procédé de référence [EL-06]. On distingue un bullage d'hélium en ligne pour une extraction des éléments non solubles dans le sel comme les gaz rares et les métaux nobles. Ces éléments peuvent être des produits de fission, mais peuvent aussi être des produits de corrosion. La deuxième partie est une extraction effectuée en batch dont le but est d'extraire les produits de fission solubles.

#### Présentation du bullage

Le débit d'hélium en coeur pour le bullage est d'environ 4,5 litres par seconde. Avec un tel débit, nous espérons que le bullage sera assez efficace pour ne pas atteindre la solubilité des gaz dans le sel. Le dégazage sera alors contrôlé et non subi. A la sortie du réacteur, l'ensemble collecté serait un aérosol composé de métaux nobles et de gaz rares. Bien que le système d'extraction par bullage d'hélium n'avait pas été prévu à l'origine sur le MSRE - un dégazage naturel a toutefois été observé - il a été largement développé pour le projet du MSBR dans le but de laver le sel de nombreuses traces d'impuretés [Ro-71-1].

L'aérosol collecté est d'abord stocké dans une enceinte pendant une heure à 400°C sous pression atmosphérique. Du fait du débit de gaz, cette enceinte doit être d'un peu plus de 15  $m^3$ . Pendant ce stockage, l'aérosol est en permanence filtré par du plomb liquide dans le but d'extraire les métaux nobles et les fils de décroissance des gaz rares comme certains alcalins ou alcalino-terreux. La quasi totalité des gaz est renvoyée en coeur. On ne ponctionne que 0,1% des gaz (soit 4,5  $cm^3$  de gaz par seconde) pour extraire les xénon et les kryptons. Un stockage pendant trois mois sous 100 bars (ce qui représente 90 litres) permet d'attendre la décroissance des derniers krypton 88 et xénon 133.

Enfin, une séparation par cryogénie permet de séparer l'hélium (qui retourne en coeur), le krypton (à stocker pendant une centaine d'années à cause du krypton 85 qui a 3917 jours de période) et le xénon (que l'on peut rejeter, puisqu'il n'y a, à ce niveau, que des isotopes stables).

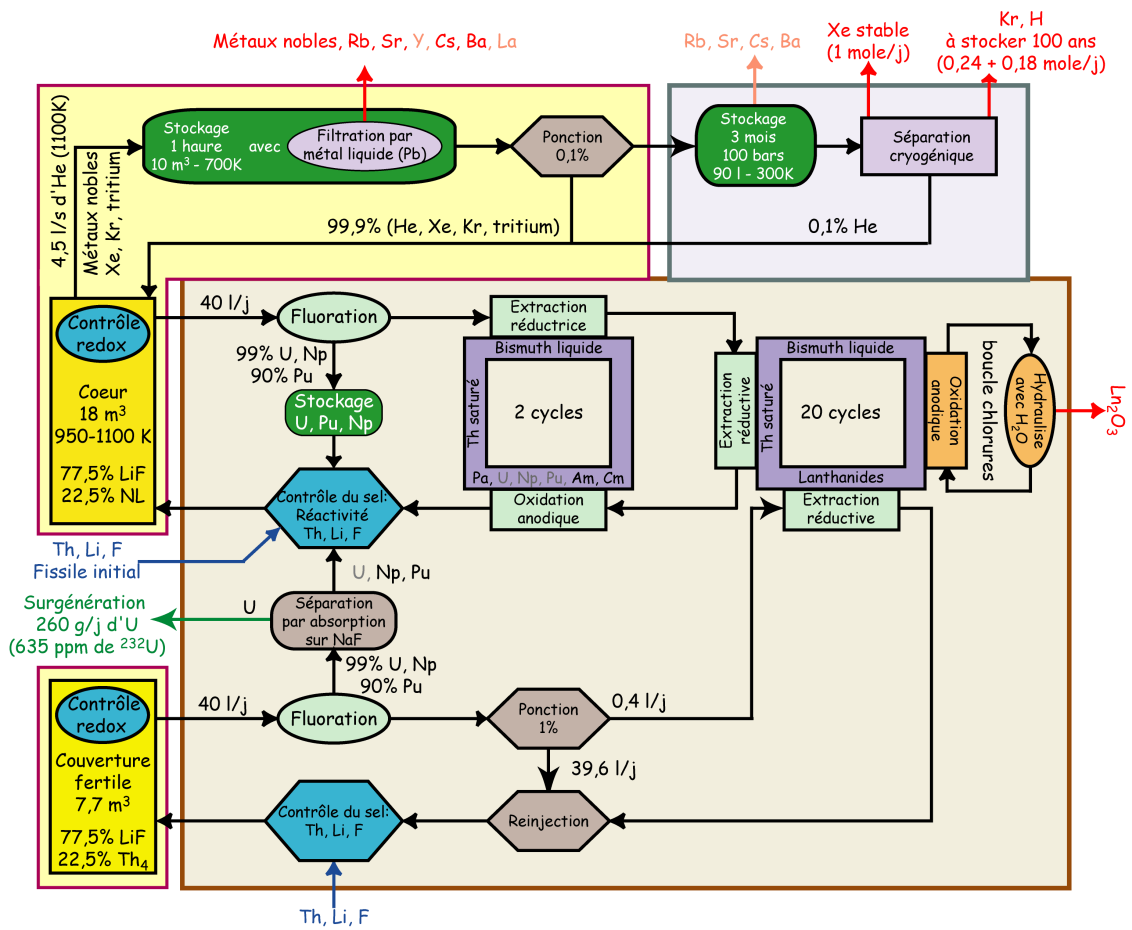


FIGURE 1.11: Schéma de l'ensemble du retraitement

Nous présentons dans le chapitre 3 une version légèrement modifiée de cette version de référence.

### Présentation de l'unité pyrochimique

Le retraitement pyrochimique est un peu plus complexe. L'idée est de prélever une petite partie de sel chaque jour (dans le cas nominal 40 litres) pour le retraiter. Le but du retraitement est d'extraire les produits de fission mais de laisser les actinides en coeur pour les incinérer et atteindre un état stationnaire.

Le procédé débute par une étape de fluoration qui permet d'extraire 99,9% de l'uranium et du neptunium, 90% du plutonium [Ma-68] et une bonne partie des éléments qui auraient dû être extraits par le bullage et qui sont en très faible proportion.

Le procédé se poursuit par une étape d'extraction des actinides du sel. Cette opération est indispensable puisqu'on ne peut extraire les produits de fission sans extraire les actinides pour des raisons électrochimiques. C'est une extraction réductrice sur nappe de bismuth saturée en thorium dont nous détaillerons les principes dans le chapitre 3. Le contact entre le sel et le bismuth permet d'établir un équilibre pour chaque espèce entre une forme fluorée et une forme métallique comme dans l'expression 1.1.



Pour les actinides, cet équilibre est déplacé vers la droite alors que pour les lanthanides, il est plutôt déplacé vers la gauche. C'est ce qui explique que l'on ne peut extraire les lanthanides sans extraire les actinides. Lors du premier contact entre le sel combustible et le métal, les actinides passent alors sous forme métallique, en solution dans le bismuth, alors que les lanthanides restent dans le sel. Ces actinides métalliques sont rechargés dans le sel par oxydation anodique une fois le sel nettoyé des produits de fission.

Enfin, la dernière opération est effectuée par extraction réductrice sur nappe de bismuth saturée en thorium (étape très similaire à l'extraction des actinides). Les produits de fission (principalement les lanthanides) sont alors extraits de la nappe de bismuth par une autre extraction réductrice sur un sel chloré. En effet, même si les lanthanides sont plus stables dans le sel que dans le métal, il est possible par deux contacts différents de faire passer les lanthanides du sel fluoré vers le bismuth puis du bismuth vers le sel chloré. Un premier équilibre s'établit entre le sel fluoré et le bismuth. Le bismuth se charge alors légèrement en lanthanide. Cette nappe métallique va alors être nettoyée (extraction des lanthanides) par un contact avec un sel chloré puisque les lanthanides se situent préférentiellement dans la nappe chlorure comme nous le verrons dans le chapitre 3. En recontactant le sel fluoré et le bismuth propre, un nouvel équilibre se produit. En répétant cette opération un certain nombre de fois, les lanthanides sont extraits. La viabilité du concept réside dans le fait qu'il est possible de purifier en permanence le sel chlorure des lanthanides. Cette opération est effectuée par hydrolyse pour extraire les produits de fission sous forme d'oxyde.

La couverture, comme le montre la figure 1.11 est retraitée sur un schéma similaire mais grandement simplifié : seul l'étape de fluoration est effectuée et les produits de fission sont extraits à un rythme beaucoup plus lent (environ 0,4 litres par jour).

L'étape d'extraction préalable des actinides n'est pas nécessaire puisque la production d'éléments plus lourds que le plutonium est très faible.

Les études thermodynamiques montrent que certains éléments, très solubles dans le sel, ne seront pas extraits par ce procédé. Il s'agit des alcalins, des alcalino-terreux, et de l'yttrium. Nous verrons dans le chapitre 3 consacré aux besoins en retraitement ce qu'il en est exactement.

### 1.2.3.3 Remarque sur ce procédé

Ce procédé reste très similaire à celui développé par l'ORNL pendant les travaux du MSBR. 4 différences majeures sont tout de même à relever. La première est le débit de retraitement. Le fait d'être en spectre neutronique rapide permet de ralentir considérablement le débit de retraitement vers une limite de 10 litres de sel retraité chaque jour comme on le montrera dans le chapitre 3 (rappelons que le débit de retraitement du MSBR était de 4 m<sup>3</sup> par jour).

La deuxième différence réside dans l'élément réducteur qui permet d'extraire les lanthanides et les actinides du sel combustible dans les étapes d'extraction réductrice. Dans le procédé retenu pour le MSBR, cet élément était du lithium. Puisque l'on doit charger le sel en thorium, nous avons choisi cet élément comme réducteur.

Le procédé de retraitement du sel combustible du MSBR était entièrement en ligne : une dérivation de l'écoulement du sel permettait d'extraire le flux nécessaire pour le retraitement. Dans le procédé du MSFR, seul la partie bullage est en ligne. La partie pyrochimie est physiquement découplée du cœur comme elle s'effectue en batch. De plus, nous verrons dans le chapitre 3 qu'un arrêt, même total, du retraitement ne provoque pas nécessairement l'arrêt du réacteur, et il est possible de démarrer sans que l'unité de retraitement soit complètement opérationnelle.

Enfin, la dernière différence vient du fait que le procédé de retraitement du MSFR n'impose pas d'extraire le protactinium 233. Il n'y a donc pas de réserve d'uranium 233 dans le procédé, ce qui est un avantage fort du point de vue de la résistance à la prolifération.

## Conclusion

Nous avons pu voir dans ce chapitre que la situation énergétique est déjà plutôt tendue, et va certainement se compliquer dans un futur proche. Il est donc urgent de développer toutes sources d'énergie, et notamment le nucléaire. Il n'existe que deux chaînes isotopiques qui permettent de produire de l'énergie de manière durable : le cycle uranium et le cycle thorium. Si, aujourd'hui, les réacteurs de génération IV ne sont pas au point, les réacteurs actuels nécessitent de bonnes améliorations pour offrir une énergie nucléaire durable. Les réacteurs du futur doivent être plus sûrs que les réacteurs actuels, leur gestion du combustible doit être optimisée en terme d'utilisation des ressources et de production de déchets, et enfin sont sensés apporter une résistance accrue à la prolifération.

Les précédentes études ont montré qu'une configuration particulière des réacteurs à sels fondus pouvaient vérifier tous ces critères et fait du MSFR un bon candidat pour les réacteurs du futur. Le concept fonctionne en spectre neutronique rapide, grâce à une



composition de sel fortement enrichi en noyaux lourds (22,5%). On a alors les avantages du spectre rapide (empoisonnement dû aux PF réduits, possibilités de transmutation) et ses inconvénients (inventaire fissile plus important). Une des particularités et avantages du concept par rapport aux autres réacteurs de GEN-IV est sans aucun doute les coefficients de contre-réaction fortement négatifs (densité et Doppler).



# Chapitre 2

## Méthodes et outils de calculs

### 2.1 Calcul neutronique

Les codes de simulation neutronique ont tous pour but de donner la population de neutrons à un instant donné, dans un système donné. On distingue deux grandes familles de codes de neutronique, les codes déterministes et les codes stochastiques. Les premiers résolvent l'équation de Boltzmann ou équation du transport [Co-08]. Pour résoudre cette équation, ces codes font appel à des approximations, notamment un découpage spatial de géométrie et un découpage énergétique pour gérer les sections efficaces. Le code déterministe de référence pour simuler les réacteurs à neutrons rapides est ERANOS [Ru-06]. Développé au CEA, il bénéficie du retour d'expérience de l'exploitation des réacteurs à neutrons rapides caloportés au sodium fondu. La référence [Do-09] montre que la simulation des réacteurs à sels fondus est possible avec ERANOS moyennant quelques adaptations plus ou moins lourdes pour prendre en compte le retraitement continu. Nous ne rentrerons pas ici dans les subtilités de telles études, cependant, nous verrons une application des codes déterministes pour évaluer la sensibilité aux données nucléaires du système, et ainsi confronter les sources d'incertitudes.

Les codes probabilistes visent, quant à eux, à reproduire le parcours d'un ensemble statistique de particules pour intégrer de manière stochastique l'équation du transport des neutrons. Le code enregistre l'histoire de ces particules pour en faire des histogrammes et sortir, à la demande, les grandeurs désirées. Ils demandent une puissance et un temps de calcul relativement élevés pour réaliser une simulation précise puisqu'il faut suivre un grand nombre de particules sources. Le code MCNP, développé à Los Alamos National Laboratory [Br-97] est capable de calculer la propagation de neutrons, photons ou d'électrons, ce qui fait que ce code est une référence très largement utilisée pour l'étude des réacteurs mais aussi dans le cas d'études de radioprotection, dosimétrie, imagerie médicale ou pour tout autre dimensionnement d'installation nucléaire

Du fait de l'expertise que possède le groupe de physique des réacteurs du LPSC, nous avons fait le choix d'utiliser MCNP pour cette étude, d'autant plus que ce code est très général, non dédié à un coeur, ni à un spectre neutronique. Ajoutons aussi que MCNP est un code plus ouvert que les codes dédiés.

### 2.1.1 MCNP

Comme il a été dit en introduction de ce paragraphe, le principe fondamental du code MCNP est de calculer le comportement d'un grand nombre de neutrons dans notre système pour en déduire le comportement global du réacteur. A partir d'un neutron source, le code calcule successivement la distance de la prochaine interaction, le noyau avec lequel le neutron interagira, et enfin le type d'interaction. On connaît donc l'histoire du neutron de sa création à sa disparition par absorption ou par fuite hors du système. Pour chaque neutron suivi, le code MCNP procède à trois étapes.

- 1 Il calcule dans un premier temps le libre parcours moyen,  $\lambda$ , à partir de sa définition 2.1 :

$$\lambda = \frac{1}{\Sigma_{tot}} \quad (2.1)$$

où  $\Sigma_{tot}$  est la section efficace macroscopique totale d'interaction du milieu. Le libre parcours moyen est alors l'inverse de la probabilité d'interaction du neutron par unité de longueur. Comme les sections efficaces,  $\lambda$  dépend de l'énergie du neutron suivi.

- 2 Dans un deuxième temps, MCNP effectue un tirage aléatoire pour calculer la distance parcourue par le neutron avant la prochaine interaction. Si on note  $p_1$  ce nombre (appartenant à l'intervalle  $[0, 1[$  et ayant une densité de probabilité uniforme sur cet intervalle), la longueur  $l$  parcourue s'exprime comme 2.2.

$$l = -\lambda \ln(1 - p_1) \quad (2.2)$$

Si une surface est traversée, le neutron est placé sur le point d'intersection de la trajectoire du neutron et de la surface, et le code repart à l'étape 1.

- 3 Le troisième et dernier point est de décider quelle réaction le neutron subit et sur quel noyau. On choisit le noyau  $k$  comme le noyau qui vérifie la condition 2.3 à partir d'un autre tirage aléatoire ( $p_2$ ).

$$\sum_{i=0}^{k-1} \Sigma_{tot,i} < p_2 \sum_{i=0}^N \Sigma_{tot,i} < \sum_{i=0}^k \Sigma_{tot,i} \quad (2.3)$$

avec  $N$  le nombre total de noyaux présents dans le matériau et  $\Sigma_{tot,i}$  la section efficace macroscopique totale du noyau  $i$ . De la même manière, le choix de la réaction  $r$  est déterminé grâce au test suivant 2.4 à l'aide d'un troisième tirage aléatoire ( $p_3$ ).

$$\sum_{j=0}^{r-1} \sigma_j < p_3 \sum_{j=0}^{n_{reaction}} \sigma_j < \sum_{j=0}^r \sigma_j \quad (2.4)$$

où  $\sigma_j$  est la section efficace de la réaction  $j$  du noyau précédemment choisi et  $n_{reaction}$  le nombre de réactions possibles pour ce noyau. S'il y a absorption du neutron, l'histoire s'arrête sur cette réaction. Un nouveau neutron

est alors suivi depuis la source définie par l'utilisateur. Dans le cas d'une réaction non-absorbante, l'énergie du neutron pour l'interaction suivante est tirée au hasard selon les lois dépendantes du type de la réaction  $r$  préalablement choisie. Pour des configurations proches de la criticité, on considère la fission comme une réaction absorbante (c'est-à-dire que l'histoire du neutron s'arrête après une fission) mais le site de la fission deviendra alors une source ponctuelle de neutrons à propager à la génération suivante. Dans le cas où l'on ne recherche pas la criticité, la fission n'est pas considérée comme une réaction absorbante.

MCNP a besoin de connaître la géométrie du système simulé, les matériaux mis en jeu ainsi que leur composition isotopique, et d'une source de neutron initiale. On intègre dans la description de la source le nombre d'histoires que l'on veut suivre. Ce nombre est découpé en différents cycles, qui peuvent être inactifs (propagation des fissions) ou actifs (les différentes données sont mémorisées). La définition de la source intègre donc le nombre de neutrons que l'on veut suivre pour chaque cycle, le nombre de cycles et la position initiale de cette source. L'utilisateur de MCNP doit donc s'assurer que les neutrons de la source balayeront convenablement tout l'espace défini par le système. Les cycles inactifs permettent, dans le cas de calcul proche de la criticité, de propager spatialement les sites de fission comme autant de sources ponctuelles, sans tenir compte de l'historique des neutrons suivis.

Ce type de calcul est probabiliste, il est donc nécessaire d'avoir un grand nombre d'histoires de neutrons pour avoir une bonne confiance dans le résultat. Si on note  $n_{cycle}$  le nombre de cycles actifs, et  $N$  le nombre de neutrons suivis par cycle, l'incertitude statistique sur le coefficient de multiplication peut être estimée grâce à 2.5.

$$\frac{\delta k}{k} \propto \frac{1}{\sqrt{n_{cycle} \cdot N}} \quad (2.5)$$

A cette incertitude, il faut ajouter les incertitudes dues aux données nucléaires qui peuvent être prédominantes. Ainsi, en changeant de base de données, on peut avoir des écarts de plusieurs centaines de pcm (1 pcm correspond à  $10^{-5}$ ) sur les valeurs de réactivité.

Que ce soit pour la distance d'interaction, le choix du noyau cible et le choix de l'interaction, MCNP a besoin de fichiers de sections efficaces qui représentent la probabilité d'interaction en fonction de l'énergie des neutrons. De nombreuses bases de sections efficaces sont disponibles et l'on choisit par défaut la base ENDF-B6 suite au retour que l'on a sur cette version de la base. Si certains éléments ne sont pas présents dans cette base, on les cherche dans les autres bases et on peut ainsi avoir recours à ces autres bases pour réaliser la simulation.

## 2.1.2 Les incertitudes en calcul statique

### 2.1.2.1 Sensibilité aux données nucléaires

Les incertitudes sur les résultats fournis par MCNP sont assez difficiles à estimer. Au-delà des incertitudes statistiques évoquées précédemment, il faut ajouter les

incertitudes sur les données nucléaires qui sont assez délicates à estimer. Malheureusement, MCNP n'est pas un code qui permet de calculer facilement la sensibilité de certaines grandeurs face aux données nucléaires. Les codes déterministes sont eux plus adaptés à de telles études. Ils résolvent l'équation de Boltzmann directement grâce à une série d'approximations et de discrétisations. Parmi eux, on peut retenir ERANOS et SCALE. Une étude réalisée au LPSC par Michiel Hoogemoed a montré que les solveurs n'influençaient pas les résultats de calcul de criticité, pas plus que la discrétisation en énergie des neutrons [Ho-10]. Par contre, le même calcul réalisé avec la base ENDF ou avec la base JEFF peut montrer plusieurs milliers de pcm d'écart. Les incertitudes liées aux données sur le coefficient de multiplication de neutrons peuvent monter jusqu'à quelques %. Devant de telles erreurs possibles nous ne nous focaliserons pas sur quelques centaines de pcm de fluctuation sur la réactivité. Les principales sensibilités du coefficient de multiplication effectif aux données nucléaires (base ENDF-BVI) sont résumées dans le tableau 2.1.

	(n, $\gamma$ )	(n,f)	(n,xn)	diffusion élastique	diffusion inélastique
U-233	-0,0541	0,5376	0	0,0015	-0,0002
Th-232	-0,4776	0,0091	0,0010	0,0144	-0,0030
F-19	-0,0167	0	0	0,0938	-0,0051
Li-7	-0,0003	0	0	0,0254	-0,0003

TABLE 2.1: Sensibilité du  $k_{eff}$  aux principales données nucléaires (%/%) d'après [Ho-10]

### 2.1.2.2 Sensibilité à la densité

La deuxième grande source d'erreur possible peut être celle liée à un manque de précision sur les concentrations isotopiques. En effet, comme on a, dans un réacteur à sels fondus, un couplage très fort entre le retraitement et la neutronique du coeur, une variation de la concentration d'un isotope peut provoquer une variation importante sur la réactivité. Pour évaluer cette incertitude on peut partir de la définition de la sensibilité à une grandeur  $G$  à la densité atomique comme dans la relation 2.6.

$$\frac{\Delta G}{G} = \sum_i S_N(i) \frac{\Delta N(i)}{N(i)} \quad (2.6)$$

où  $N(i)$  représente le nombre d'atomes par unité de volume de l'isotope  $i$  et  $S_N(i)$  le coefficient de sensibilité de la grandeur  $G$  à la concentration de l'isotope  $i$ . Notons ensuite qu'une perturbation sur la densité entraîne une perturbation sur la section efficace macroscopique comme le montre 2.7.

$$\Delta \Sigma_r(i) = \Delta N(i) \cdot \sigma_r(i) \quad (2.7)$$

où  $\Sigma_r(i)$  représente la section efficace macroscopique de la réaction  $r$  de l'isotope  $i$  et  $\sigma_r(i)$  la section efficace microscopique associée. En intégrant cette relation 2.7 dans la

définition de la sensibilité aux sections efficaces 2.8

$$\frac{\Delta G}{G} = \sum_i \sum_r S_{\Sigma_r(i)} \frac{\Delta \Sigma_r(i)}{\Sigma_r(i)} \quad (2.8)$$

on obtient 2.9

$$\frac{\Delta G}{G} = \sum_i \sum_r S_{\Sigma_r(i)} \frac{\Delta N(i) \sigma_r(i)}{N(i) \sigma_r(i)} \quad (2.9)$$

En comparant 2.9 et 2.6 on établit enfin 2.10

$$S_N(i) = \sum_r S_{\Sigma_r(i)} \quad (2.10)$$

En d'autre terme, la sensibilité à la concentration isotopique est égale à la somme des sensibilités aux sections efficaces. Comme la somme des sections efficaces n'est rien d'autre que la section efficace totale, et que les sections efficaces des différentes réactions sont indépendantes entre elles, on a 2.11 qui indique que faire varier la concentration atomique d'un élément revient à faire varier sa section efficace totale.

$$S_N(i) = S_{\Sigma_t(i)} \quad (2.11)$$

D'autre part, nous pouvons exprimer la densité atomique  $N(i)$  comme une fonction de la densité du sel  $\rho$  grâce à la relation 2.12

$$N(i) = \eta_i \frac{\rho}{M} N_a \quad (2.12)$$

où  $N_a$  représente le nombre d'Avogadro,  $M$  la masse molaire du sel, et  $\eta_i$  le coefficient stoechiométrique de l'élément  $i$ . On en déduit immédiatement 2.13.

$$\frac{\Delta N(i)}{N(i)} = \frac{\Delta \rho}{\rho} + \frac{\Delta \eta_i}{\eta_i} \quad (2.13)$$

Le but de ce raisonnement est d'observer les incertitudes du coeur liées aux incertitudes sur la densité et non pas sur la stoechiométrie de la composition du sel combustible. Nous supposons donc que  $\Delta \eta_i = 0$  dans la suite de notre raisonnement.

En intégrant 2.13 dans l'équation 2.6 on obtient l'expression 2.14.

$$\frac{\Delta G}{G} = \sum_i S_N(i) \frac{\Delta \rho}{\rho} \quad (2.14)$$

En identifiant cette dernière expression à la définition du coefficient de sensibilité de la densité 2.10, nous en déduisons l'expression 2.15.

$$S_\rho = \sum_i S_{\Sigma_t(i)} \quad (2.15)$$

Nous venons de montrer que le coefficient de sensibilité d'un élément à sa concentration atomique est égal au coefficient de sensibilité à la section efficace totale.

### 2.1.2.3 Cas pratique et incertitudes

Pour essayer de quantifier un effet global sur la densité, nous avons fait un calcul statique en augmentant de 10% la valeur de la densité du sel avec des caractéristiques MCNP identiques : 100 cycles actifs, et 10000 neutrons par cycle. Pour vérifier la relation 2.15, comparons les résultats que l'on peut obtenir avec ceux de [Ho-10]. La somme en valeur absolue des sensibilités du  $k_{eff}$  aux sections efficaces du tableau 2.1 donne  $1,245.10^{-1}$  comme coefficient de sensibilité à la densité. Les résultats des calculs MCNP directs donne un coefficient de sensibilité de  $1,244.10^{-1}$  avec une incertitude statistique sur ce coefficient de  $8.10^{-4}$ . Les valeurs sont résumées dans le tableau 2.2.

	ERANOS	MCNP
Coefficient de sensibilité à la densité (%/%)	0,1245	$0,1244 \pm 8.10^{-4}$

TABLE 2.2: Estimation des coefficients de sensibilité à la densité avec ERANOS et MCNP

La cohérence des deux valeurs est surprenante et nous indique que, si le  $k_{eff}$  n'est pas connu avec une grande précision, sa sensibilité est bien maîtrisée.

Dans [Ho-10], les valeurs des incertitudes sont répertoriées et il semble que l'incertitude obtenue sur le  $k_{eff}$  serait de quelques % et essentiellement due à la fission de l'uranium 233. Une erreur de 10% sur la densité n'implique quant à elle, qu'une incertitude d'à peine plus que 1%. Comme toutes les grandeurs physico-chimiques, la densité est une grandeur difficile à estimer du fait de la complexité du sel combustible. Les données trouvées dans la littérature pour la densité du mélange binaire LiF-ThF<sub>4</sub> varie de presque 20%, mais chaque mesure donne une incertitude de moins de 1%. Les calculs de dynamique moléculaire donnent aussi des erreurs comparables (moins de 1%) comme nous le verrons dans le chapitre 3. Les incertitudes liées aux données nucléaires ou à la densité sont donc du même ordre de grandeur, même si nous pouvons noter une part légèrement plus importante pour les données nucléaires si l'on a une grande confiance dans les mesures.

## 2.2 L'évolution

MCNP, est capable de simuler très précisément les irradiations et les propriétés neutroniques, mais tous les calculs sont effectués à un instant précis. Pour simuler l'évolution du réacteur sur des intervalles de temps, il faut effectuer des calculs statiques pour ensuite interpoler les résultats trouvés. Ce paragraphe a pour objectif d'explicitier les équations d'évolutions qui donnent les vecteurs isotopiques au cours du temps. La résolution numérique de ces équations est développée au paragraphe suivant ; nous ne présentons ici que les principes généraux et leur application aux sels fondus.

### 2.2.1 L'équation de Bateman

#### 2.2.1.1 Principe général

L'évolution de la concentration isotopique des noyaux peut s'exprimer sous la forme d'une série d'équations différentielles du premier ordre couplées entre elles. Ces



équations (2.16) sont appelées équations de Bateman .

$$\frac{dN_i}{dt} = \sum_j \langle \sigma_{j \rightarrow i} \phi \rangle N_j - \sum_j \langle \sigma_{i \rightarrow j} \phi \rangle N_i + \sum_j \lambda_{j \rightarrow i} N_j - \lambda_i N_i \quad (2.16)$$

avec :

- $\sigma_{i \rightarrow j}$  le produit de la section efficace du noyau  $j$  par le rapport d'embranchement de  $j$  vers  $i$  par réaction nucléaire sur l'isotope  $i$ ,
- $\phi$  le flux neutronique,
- $\lambda_i$  la constante de désintégration de l'isotope  $i$ ,
- $\lambda_{j \rightarrow i}$  le produit de la constante de décroissance de  $j$  par le rapport d'embranchement de  $j$  vers  $i$  par décroissance nucléaire,
- Les produits  $\langle \sigma \phi \rangle$  représentent les moyennes sur tout le spectre en énergie des neutrons.

Ces équations sont établies en effectuant un bilan de matière pendant le temps  $dt$ . En effet, les termes de création de l'isotope  $i$  pendant  $dt$  sont l'apparition par décroissance d'éléments parents et réactions nucléaires sur d'autres éléments conduisant à  $i$ . Les termes de disparition sont quant à eux, la disparition de cet élément par réaction neutronique et décroissance nucléaire.

Pour établir un tel système d'équations couplées, on a besoin de connaître tous les isotopes mis en jeu au cours de l'évolution. Ainsi, une des premières étapes de la simulation va être de réaliser l'arbre de l'évolution. Cet objet établit les liens de filiation entre les noyaux que ces liens soient de type réactionnel (capture neutronique) ou de type nucléaire (décroissance). Cet arbre est réalisé de proche en proche en listant, pour chaque noyau et grâce aux bases de données, les réactions possibles et donc, les noyaux fils. Dans notre étude, chaque produit de fission est traité indépendamment et non pas en sous-groupes de pseudo-PF comme cela peut être le cas dans d'autres codes. Pour diminuer le temps de calcul, il est possible de simplifier l'arbre d'évolution. En effet, tous les isotopes ayant une durée de vie inférieure à une limite décidée par l'utilisateur, peuvent ne pas être pris en compte. Le noyau en question est alors "court-circuité" pour lier directement les noyaux pères aux noyaux fils. Un extrait du schéma d'arbre de décroissance est représenté dans la figure 2.1.

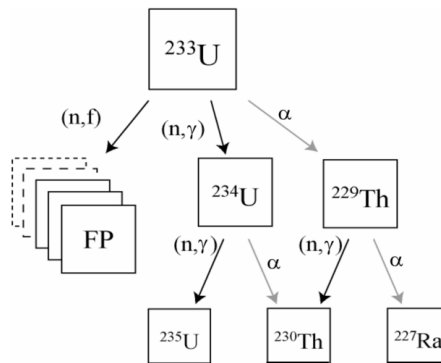


FIGURE 2.1: Extrait d'un schéma d'un arbre de décroissance, notons que les décroissances  $\alpha$  alimentent la production d'hélium

### 2.2.1.2 Modification pour les sels fondus

Les équations 2.16 sont établies pour l'évolution d'un coeur sans action extérieure. Si dans la plupart des études systèmes, ces équations sont adaptées (pas d'échange avec l'extérieur dans le cas d'un coeur solide), il nous faut modifier ces équations pour décrire correctement le fonctionnement d'un réacteur à sels fondus [Nu-02]. Les différences sont essentiellement de deux types : le coeur est sensé être alimenté en permanence pour ajuster la réactivité et on extrait en continu une partie du sel de coeur pour le retraitement. Nous allons détailler ces deux termes dans les deux sous parties suivantes.

#### Terme de retraitement

Le retraitement se décompose en deux parties distinctes : le bullage et l'extraction pyrochimique. Au premier ordre, le débit d'extraction d'un isotope est directement proportionnel à sa quantité en coeur. On établit alors la relation 2.17.

$$\frac{dN_i}{dt} = \lambda_i^{extraction} N_i \quad (2.17)$$

où  $N_i$  est la concentration atomique (notée  $N(i)$  dans la section précédente) de l'isotope  $i$  et  $\lambda_i^{extraction}$  la constante de proportionnalité évoquée précédemment. Cette constante dépend effectivement de l'isotope puisque certains sont extraits par le bullage d'un gaz neutre et d'autres sont extraits par un retraitement pyrochimique. On décompose donc  $\lambda_i^{extraction}$  comme la somme d'une composante liée au bullage  $\lambda_i^{bullage}$  et d'une composante d'extraction pour retraitement pyrochimique  $\lambda_i^{pyrochimique}$ .

Le retraitement pyrochimique est une opération que l'on effectue en batch, en marge du réacteur. Si on note  $T$  le temps nécessaire pour retraiter la totalité du coeur (en secondes), la probabilité  $p$  pour un isotope en solution dans le sel d'être extrait est donnée par la relation 2.18.

$$p = \frac{V}{T} \quad (2.18)$$

où  $V$  est le volume total de sel combustible. En normalisant à l'unité de volume, et en identifiant cette probabilité à la constante de proportionnalité de la relation 2.17 on obtient 2.19.

$$\lambda_i^{pyrochimique} = \frac{1}{T} \quad (2.19)$$

En ce qui concerne le bullage, le problème est bien différent. Le lecteur aura déjà noté que l'approximation du premier ordre est, bien sûr, éronnée. En effet, l'action du bullage a le but ambitieux d'extraire un élément gazeux sous sa limite de solubilité. Si un gaz se retrouve en quantité telle qu'il dépasse sa limite de solubilité, il apparait alors des bulles dans les sites de nucléation (parois), par conséquent la concentration atomique de cet isotope est limitée à sa solubilité ; le surplus, bullant, naturellement sera donc extrait. Pour des raisons de simplicité, nous considérons cependant que l'action du bullage

possède une cinétique du premier ordre. On a choisi la constante de proportionnalité comme étant le temps caractéristique qu'il fallait pour diminuer par deux la proportion d'un isotope gazeux grâce au bullage, comme exprimé dans l'expression 2.20.

$$\lambda_i^{bullage} = \frac{\ln(2)}{T_{bullage}} \quad (2.20)$$

où  $T_{bullage}$  est une image de l'efficacité du bullage. Ce temps caractéristique du bullage reste très délicat à estimer puisqu'il doit dépendre d'un grand nombre de paramètres. Le projet FFFER (Forced Fluoride Flow for Experimental Research) porté par Véronique Ghetta au LPSC a pour but de quantifier cette extraction par bullage. Dans nos simulations, on prendra un temps caractéristique de 30 secondes. Ce temps est tiré du retour sur expérience du MSRE où le bullage n'était pas prévu, mais subi au niveau des pompes[Gw-05].

### Terme d'alimentation

Au cours de son fonctionnement, le réacteur consomme de la matière qu'il faudra recharger au fur et à mesure. Dans le cas où le coeur du réacteur est régénérateur, il suffit d'ajuster la composition pour être critique et d'alimenter en thorium pour garder la proportion de noyaux lourds constante. Dans le cas, un peu plus complexe, où le coeur du réacteur est sous-générateur, il faut alors alimenter en fissile pour maintenir la criticité puis en thorium pour garder la proportion de noyaux lourds constante. Ce terme d'alimentation dépend donc de l'isotope considéré.

Notons que le précurseur de l'uranium 233 dans le cycle du thorium est le protactinium 233 qui a 27 jours de période. Au démarrage, il n'y a pas de protactinium 233 dans le sel combustible. Il y a donc un temps certain, au début de l'évolution, où les captures sur le thorium ne compensent pas la perte de réactivité due à la disparition de l'uranium 233. C'est l'effet protactinium. Il faut donc alimenter en matière fissile pendant les premiers mois du fonctionnement du réacteur, même si le coeur du réacteur est régénérateur.

### L'équation de Bateman modifiée

Finalement en intégrant les deux termes ci-dessus dans l'équation 2.16, on obtient l'équation 2.21 :

$$\begin{aligned} \frac{dN_i}{dt} = & \sum_j \langle \sigma_{j \rightarrow i} \phi \rangle N_j - \sum_j \langle \sigma_{i \rightarrow j} \phi \rangle N_i + \sum_j \lambda_{j \rightarrow i} N_j - \lambda_i N_i \\ & - \lambda_i^{retraitement} N_i + A_i \end{aligned} \quad (2.21)$$

qui peut s'exprimer sous forme matricielle 2.22 :

$$\frac{dN}{dt} = M(t).N(t) + S(t) \quad (2.22)$$

où  $S(t)$  est le vecteur source comprenant tous les termes d'alimentation et  $M(t)$  est la matrice d'évolution comprenant les termes neutroniques, les termes nucléaires et

les termes caractérisant l'extraction chimique. Celle-ci peut se décomposer comme la somme de la matrice de retraitement  $R$  (définie comme  $(R)_{i,j} = 0$  si  $i \neq j$  et  $(R)_{i,j} = -\lambda_i^{\text{retraitement}}$  sinon) et la matrice d'évolution  $E$  (définie comme  $(E)_{i,j} = \langle \sigma_{i \rightarrow j} \phi \rangle + \lambda_{i \rightarrow j}$  si  $i \neq j$  et  $(E)_{i,j} = -\langle \sigma_i \phi \rangle - \lambda_i$  sinon). L'extraction d'un isotope  $i$  peut conduire comme nous le verrons par la suite, à la formation d'un isotope  $j$ ; la grandeur  $\lambda_{i \rightarrow j}^{\text{retraitement}}$  représente donc la constante associée à la disparition par le retraitement de  $i$  multipliée par le rapport d'embranchement qui conduit à la formation de  $j$ .

## 2.2.2 Retraitement en batch, simulation continue

Le paragraphe précédent montre comment nous simulons le couplage entre le retraitement et la neutronique du coeur du MSFR. Cependant ce couplage est fondé sur une grosse approximation : nous supposons que ce retraitement est continu alors qu'il est explicitement réalisé en batch, typiquement journalier ou hebdomadaire. Cette approximation est valable tant que la proportion de sel extraite pour le retraitement est faible et que cette extraction reste négligeable devant le coeur. A titre d'illustration, une journée d'évolution représente moins de 40 pcm de perte de réactivité et 13,4 moles de noyaux lourds disparus, essentiellement par fission de l'uranium 233. Ces quantités sont bien évidemment négligeables devant les données du coeur puisque la quantité d'uranium totale présente en coeur est de 32700 moles et que la quantité de noyaux lourds est de 186000 moles environ. Mais si on envisage d'effectuer un retraitement plus important, tous les mois par exemple, alors l'approximation du retraitement continu peut s'avérer insuffisante.

Pour quantifier l'influence de cette approximation continue, calculons la perte de neutrons disponibles  $N_p$  pendant  $\delta t$  dans le cas où le retraitement de la totalité du coeur est continu et effectué sur un temps  $T_c$ , cette quantité s'exprimant grâce à la relation 2.33.

$$N_p = \int_{t=0}^{t=\delta t} N_{eq} \sigma \phi dt = N_{eq} \sigma \phi \delta t \quad (2.23)$$

où  $N_{eq}$  représente la quantité par unité de volume des produits de fission à l'équilibre,  $\sigma$  la section efficace moyenne de capture des produits de fission et  $\phi$  le flux neutronique.  $N_{eq}$  se calcule facilement en exprimant l'équilibre : la production des produits de fission est constante et reliée à la puissance du coeur, et la disparition est liée au terme de retraitement qui est l'inverse du temps nécessaire pour retraiter l'ensemble du coeur, comme nous venons de le décrire (sans oublier qu'une fission produit deux produits de fission). Il s'ensuit 2.24.

$$N_{eq} = 2.N_f \sigma_f \phi T_c \quad (2.24)$$

où  $N_f$  est la quantité par unité de volume des noyaux fissiles,  $\sigma_f$  la section efficace moyenne de fission. Par conséquent, le nombre de neutrons perdus pendant un temps  $T_c$  s'exprime comme 2.25

$$N_{eq} = 2.N_f\sigma_f\phi^2T_c^2 \quad (2.25)$$

Dans le cas où le retraitement est effectué en batch, c'est-à-dire que l'on retire l'ensemble du coeur en une seule fois, la concentration des produits de fission  $N_{PF}$  s'exprime comme 2.26.

$$N_{PF} = 2.N_f\sigma_f\phi t \quad (2.26)$$

où  $t$  représente le temps entre 0 et  $T_r$ ,  $T_r$  représentant le temps au bout duquel on retire le coeur. Le nombre de neutrons perdus par capture sur les produits de fission sur l'ensemble du fonctionnement du réacteur (entre  $t = 0$  et  $t = T_r$ ) s'exprime, dans ce cas, comme 2.27.

$$N_p = \int_{t=0}^{t=T_r} N_{PF}(t)\sigma\phi dt = \frac{2.N_f\sigma_f\phi^2T_r^2}{2} \quad (2.27)$$

Pour que l'on soit dans des configurations similaires, il suffit donc d'identifier les relations 2.25 et 2.27 pour trouver 2.28.

$$T_c^2 = \frac{T_r^2}{2} \quad (2.28)$$

On a finalement la relation entre le temps de retraitement continu et le temps de retraitement en batch comme 2.29.

$$T_r = \sqrt{2}T_c \quad (2.29)$$

Il devient clair que si le retraitement s'effectue en batch, il peut être plus long que s'il s'effectue de manière continue. L'approximation continue dans nos simulations est donc une approximation pénalisante en ce qui concerne la perte de neutrons due aux produits de fission.

Cette relation est vraie dans le cas où l'on retraiterait l'ensemble du combustible. Dans le cas, plus probable, où l'on ne retraiterait qu'une partie du combustible, le nombre de produits de fission ne s'exprime plus comme la relation 2.26. L'état stationnaire impose que le nombre de produits de fission formé pendant l'intervalle de temps considéré soit égal au nombre de produits de fission extrait par le retraitement. Notons  $\Delta T$  l'intervalle de temps entre deux opérations de retraitement, et  $\frac{1}{N}$  la fraction du volume retraitée à chaque  $\Delta T$ . Il faut donc  $N\Delta T$  pour retraiter l'ensemble du sel de coeur. Le retraitement extrait  $N_{PF}(\Delta T)/N$  produits de fission à chaque retraitement. L'expression de l'état stationnaire peut alors s'exprimer comme 2.30.

$$\frac{N_{PF}(\Delta T)}{N} = 2N_f\sigma_f\phi\Delta T \quad (2.30)$$

Comme de plus, on connaît la variation de la concentration des produits de fission comme 2.31,

$$\frac{dN_{PF}(t)}{dt} = 2N_f\sigma_f\phi \quad (2.31)$$

$N_{PF}(t)$  vérifie une équation de droite en fonction du temps ne passant pas par l'origine sur l'intervalle  $[0; \Delta T]$ . La résolution de cette équation différentielle conduit à 2.32.

$$N_{PF}(t) = 2N_f\sigma_f\phi(t + (N - 1)\Delta T) \quad (2.32)$$

Nous pouvons donc exprimer le nombre de neutrons perdus par capture sur les PF par l'intégrale de l'expression 2.33 comme

$$N_p = \int_{t=0}^{t=\Delta T} N_{PF}(t)\sigma\phi dt = 2N_f\sigma_f\phi^2 \left( \frac{(\Delta T)^2}{2} + (N - 1)(\Delta T)^2 \right) \quad (2.33)$$

L'identification des neutrons perdus par absorption sur les produits de fission conduit à 2.34.

$$T_c = \Delta T \cdot \sqrt{N - \frac{1}{2}} \quad (2.34)$$

Dans le cas où l'on retraite l'ensemble des PF en une seule fois ( $N = 1$ ), on retrouve le résultat précédent.

Pour quantifier l'erreur que l'on peut faire en supposant le retraitement continu, nous pouvons calculer le nombre de neutrons perdus par absorption des produits de fission sur l'intervalle  $\Delta T$  dans le cas de l'approximation continue (expression 2.35). Notons  $(N_p)^{approx}$  ce nombre.

$$(N_p)^{approx} = \int_0^{\Delta T} N_{eq}\sigma\phi dt = N_{eq}\sigma\phi\Delta T = 2N_f\sigma_f\phi^2\Delta T.T_c \quad (2.35)$$

Le rapport entre l'approximation et le cas réel peut s'exprimer comme la relation 2.36.

$$\frac{(N_p)^{approx}}{N_p} = \frac{T_c}{\Delta T \left[ N - \frac{1}{2} \right]} \quad (2.36)$$

Dans le cas nominal du retraitement, nous supposons retraiter un 450<sup>ème</sup> du coeur chaque jour ; nous simulons ce procédé de manière continue.  $T_c$  vaut donc 450 jours,  $\Delta T$  vaut 1 jour, et  $N$  450. L'erreur sur le nombre de neutrons perdus par absorption des produits de fission est complètement négligeable, et celle-ci le sera tant que  $N$  est très grand devant 1. Comme  $N\Delta T = T_c$ , nous pouvons exprimer le passage à la limite de 2.36 comme l'expression 2.37.

$$\frac{(N_p)^{approx}}{N_p} \sim 1 + \frac{1}{2N} \quad (2.37)$$

Lorsque l'on simule un retraitement journalier effectué en 450 jours par une approximation continue, nous faisons donc une erreur d'environ 0,1%. Cette erreur diminue avec l'allongement du temps de retraitement.

### 2.2.3 Les contraintes d'évolution

L'équation 2.21 nous donne l'évolution de la composition du sel combustible en fonction du temps d'exploitation. Cependant, il faut appliquer des restrictions pour trouver l'ensemble des solutions convenables : en effet, le réacteur doit être critique à chaque instant, et nous imposons une proportion de noyaux lourds constante pour que le point de fusion reste stable. D'autres contraintes de fonctionnement sont envisageables (par exemple la proportion de plutonium ne doit pas dépasser une certaine valeur). Nous présentons, dans cette section, le principe qui nous permet de piloter la simulation du réacteur (c'est-à-dire la résolution des équations de Bateman modifiées) tout en satisfaisant un ensemble de contraintes choisies par l'utilisateur.

#### 2.2.3.1 Contrainte de criticité

Le MSFR étant un réacteur critique, le coefficient de multiplication effectif ( $k_{eff}$ ) doit toujours rester égal à 1 quelle que soit la composition chimique du sel. La contrainte s'exprime donc comme 2.38.

$$k_{eff}(N(t)) = 1 \quad (2.38)$$

L'augmentation de réactivité due à l'ajout des noyaux externes doit compenser la perte de réactivité liée à l'évolution et au retrait du sel. La contrainte de réactivité spécifie donc que ces quantités doivent être égales à tout moment.

#### 2.2.3.2 La contrainte de la composition

La contrainte majeure sur la composition chimique du sel combustible reste celle sur les noyaux lourds. En effet, on cherche à maintenir leur proportion à 22,5% atomique dans le mélange fluorure de lithium - fluorure de thorium. Cette contrainte est nécessaire pour ne pas modifier de manière trop importante le comportement physico-chimique du sel.

En supposant que le procédé soit suffisamment puissant pour extraire la totalité des produits de fission, la masse de noyaux lourds reste constante au cours du fonctionnement. La manière la plus simple pour ajuster la composition en noyaux lourds serait alors de calculer le taux de fission total et de compenser. Les produits de fission seront quant à eux évacués au même rythme si un équilibre est atteignable.

Dans le cas, plus réaliste, où tous les produits de fission ne seraient pas extraits, l'ajustement est un peu plus complexe ; le taux d'extraction des noyaux légers doit en effet être connu pour garder, avec une alimentation, la proportion de noyaux lourds constante.

## 2.2.4 Les incertitudes en évolution

Le paragraphe 2.1.2 explique quelles sont les incertitudes auxquelles nous pouvons nous attendre lorsqu'on fait des calculs de neutronique sur le MSFR. Pour estimer la façon dont les erreurs statistiques sur les taux de réactions se propagent au cours de l'évolution, nous avons, sur un cas standard, effectué un grand nombre d'évolutions indépendantes pour voir la dispersion des valeurs obtenues. L'observable considérée est la différence entre les compositions en fin d'évolution et les compositions en début d'évolution pour les actinides. Pour la plupart des éléments considérés, la différence observée n'est rien d'autre que la valeur finale sauf dans le cas du thorium et de l'uranium. Nous avons fait deux séries de 30 évolutions ; pour chaque série, nous avons fait varier le nombre d'histoires de neutrons dans les calculs MCNP. Dans la première série, nous suivions 5000 neutrons par cycle pendant 50 cycles, alors que dans la deuxième série nous suivions 10000 neutrons par cycle pendant 100 cycles. Les figures 2.2 et 2.3 représentent le rapport de l'écart type sur la valeur moyenne de la différence préalablement définie.

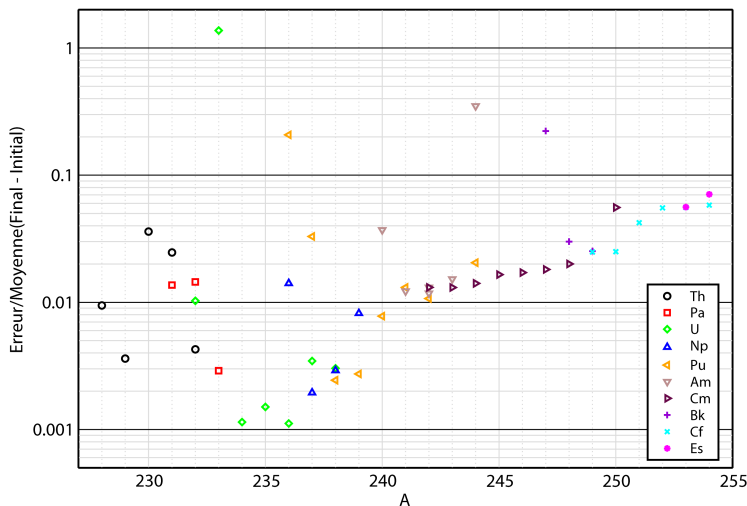


FIGURE 2.2: Erreur relative obtenue sur les compositions en actinides en fin d'évolution en suivant 5000 neutrons par cycle pendant 50 cycles actifs

La dispersion des valeurs, sauf dans le cas de l'uranium, est relativement faible. Le cas de l'uranium 233 est particulier puisque la quantité d'uranium n'évolue pratiquement pas pendant l'évolution. La différence entre la composition finale et la composition initiale est proche de 0, et par conséquent, le rapport de l'écart-type sur la différence



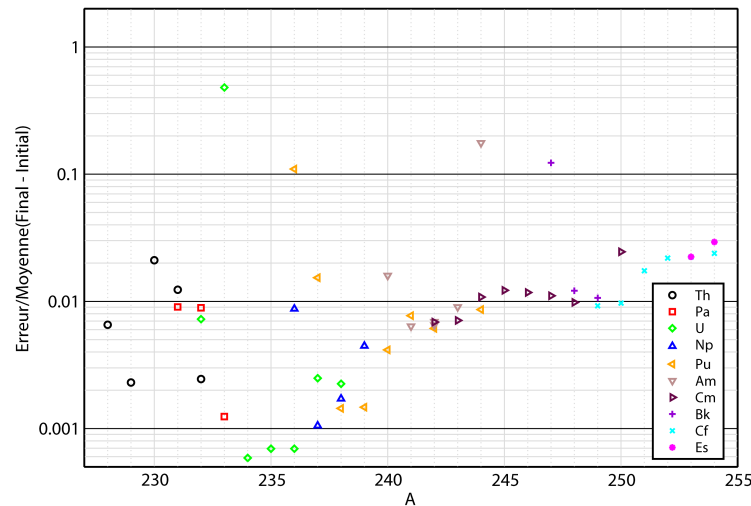


FIGURE 2.3: Erreur relative obtenue sur les compositions en actinides en fin d'évolution en suivant 10000 neutrons par cycle pendant 100 cycles actifs

tend à diverger. Nous voyons aussi qu'il y a une corrélation entre la dispersion et la localisation dans la chaîne d'évolution. Ainsi, si le chemin est long pour former un noyau, l'erreur commise sur sa composition en fin d'évolution sera plus élevée que pour un noyau dont la formation est rapide. Il faut rajouter que les noyaux profondément situés dans l'arbre d'évolution seront faiblement formés. Sur les figures 2.2 et 2.3, quelques éléments dont nous pouvons attendre une incertitude supérieure à 10% sont anecdotiques dans la composition du sel (ils représentent moins de  $10^{-7}$  des noyaux lourds soit moins d'un gramme noyé dans la totalité du sel combustible). Dans le but de représenter le gain de précision que l'on a lorsque l'on multiplie le nombre d'histoires de neutrons, nous avons tracé, dans la figure 2.4, le rapport des erreurs statistiques obtenues avec la série de calculs de grande précision sur les erreurs obtenues avec les calculs de précision moindre. On devrait s'attendre à une valeur de 1/2 puisque les erreurs relatives sur les taux de réaction sont calculées grâce à la relation 2.5. Or, les simulations montrent que le gain est très fluctuant : augmenter d'un facteur 4 le nombre d'histoire, n'implique donc pas une augmentation d'un facteur 2 sur la précision des quantités en fin d'évolution, surtout en ce qui concerne les noyaux qui sont situés profondément dans l'arbre d'évolution. Notons tout de même que les calculs MCNP sont 4 fois plus longs, puisque le temps de calcul varie proportionnellement avec le nombre d'histoires.

Le tableau 2.3 récapitule les incertitudes relatives attendues sur les variations de quantités entre la fin et le début de l'évolution avec des calculs MCNP standard (250 000 neutrons suivis) pour les actinides dignes d'intérêt (c'est-à-dire qu'ils représentent au moins 1% de la totalité des noyaux lourds en fin d'évolution ou qu'ils joueront un rôle dans la radiotoxicité à long terme d'après [Do-07]). Nous insistons sur le fait que si l'incertitude sur la variation de la quantité d'uranium 233 est énorme, l'incertitude relative sur la quantité elle-même est très faible puisque la quantité d'uranium 233 n'évolue que de 0,09 % entre le début et la fin de l'évolution. L'incertitude absolue sur cette quantité en fin d'évolution n'est que de 0,12 %. A la vue de ce tableau, nous pouvons donc conclure que la précision sur les concentrations isotopiques des actinides

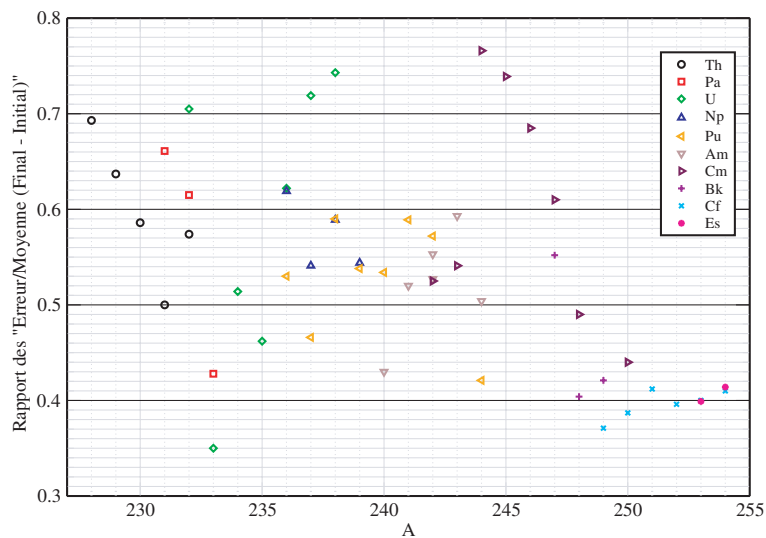


FIGURE 2.4: Rapport des erreurs : erreur statistique du calcul de grande précision sur celle du calcul de précision moindre

en fin d'évolution est très satisfaisante.

Isotope	Quantité dans le sel en fin d'évolution	Incertitude relative sur la variation
Th-232	80,7 %	~ 0,4 %
U-233	11,2 %	~ 134 %
U-234	4,10 %	~ 0,1 %
U-236	1,36 %	~ 0,1 %
U-235	1,22 %	~ 0,2 %
Pa-231	0,02 %	~ 1,2 %

TABLE 2.3: Récapitulatif des actinides dont l'incertitude relative est supérieure à 10%

Le même travail effectué sur les produits de fission nous montre que, si le retraitement est bien connu et défini, l'incertitude sur les produits de fission n'est pas plus importante que celle pour les actinides (moins de 1 %).

La sensibilité de ces compositions avec le retraitement est présentée dans les chapitres suivants, cependant la composition du sel peut changer en cours d'évolution. En effet celui-ci se charge en produits de fission au cours de l'évolution, et il est difficile (voire impossible) de connaître avec une précision satisfaisante la densité du sel combustible pendant l'évolution. Nous pouvons considérer deux cas enveloppes. La première hypothèse est de supposer la densité constante : en effet, les isotopes créés seraient en concentration trop faible pour avoir une réelle influence. La deuxième serait de supposer que tous les isotopes possèdent le même rayon ionique. Nous avons fait ce deuxième choix : corriger la densité par le rapport des masses des noyaux en présence, c'est-à-dire que le volume est fixé et la densité est calculée à chaque itération comme le rapport de la masse sur le volume. Dans le cas où le retraitement est efficace (peu d'accumulation de produits de fission car ils sont tous extraits), cette hypothèse entraîne un changement très faible de la densité et nous pouvons la considérer comme constante. Cette hypothèse devient vite limitante si un ou des produits de fission vient à s'ac-

cumuler dans le sel. Cependant, cette seconde hypothèse semble plus appropriée que la première puisqu'elle fait intervenir un changement de composition du sel. Dans le cas où ce changement de composition serait trop violent, la méthode correcte serait de corriger la densité en introduisant une autre valeur, mais malheureusement, les données de la littérature sont, le plus souvent inexistantes.

## 2.3 L'environnement DALI

### 2.3.1 Généralité

L'environnement DALI est une boîte à outils, développée en langage C. Ces outils sont regroupés sous forme de modules caractérisés par une fonctionnalité propre. Par analogie avec les langages objets, chaque module contient plusieurs classes et sous-classes (classe fille qui hérite des propriétés de la classe mère). Le langage C n'étant pas vraiment spécialisé dans la programmation orientée objet, l'environnement DALI possède aussi un ensemble de classes qui permet cette prouesse. Un langage dédié a été développé par Daniel Heuer pour gérer justement cet ensemble d'objets.

Les principaux modules appelés pour exécuter une simulation d'évolution sont les suivants :

- CGM : Constructeur de géométrie MCNP
- LFE : Lecture du format ENDF
- ACE : Mise au format ACE pour MCNP
- LTM : Lecture des tallies de MCNP
- IME : Intégration des matrices d'évolution
- REM : Réaliser une évolution avec MCNP
- SUR : Simuler une Unité de Retraitement

D'une manière générale, ces modules s'appellent entre eux. Un module principal, comme par exemple RSF ou plus récemment ERE, permet de définir la séquence d'appels spécifiques pour le calcul de l'évolution d'un réacteur à sels fondus par exemple.

### 2.3.2 Réaliser une évolution avec MCNP (le module REM)

#### 2.3.2.1 Principe général

REM est le module qui fixe les règles de l'évolution basée sur des calculs MCNP. Ce module est appelé par le module chargé de faire l'interface homme machine et qui fixe les paramètres du système. Au début d'évolution, REM crée un objet de la classe EVOLUTION qui reprend toutes les caractéristiques globales de l'évolution. La première étape est de déterminer la géométrie, les cellules d'évolution et les matériaux correspondant à ces cellules. Le programme liste alors tous les éléments qui interviendront pendant la simulation et crée l'arbre de décroissance défini au début de ce chapitre. Pour ce faire, REM doit appeler le module ACE qui gère les bibliothèques des sections efficaces. Une fois cette arbre réalisé (et simplifié grâce à l'élagage), nous pouvons alors commencer la simulation qui est une succession de calculs MCNP et d'intégrations du système d'équations 2.21. Pour cela, REM appelle successivement MCNP et IME : ce module réalise l'intégration des équations par méthode Runge et Kutta d'ordre 4. A

chaque itération, le programme crée un objet de la classe `INVENTAIRE`, sous-classe de `EVOLUTION`. Dans cette classe, l'ensemble des données de l'itération précédente est recopié (composition, cellules, alimentation etc...) avant de réaliser l'évolution sur le pas de temps délimitant l'itération. Par conséquent, nous disposons en fin de simulation d'un ensemble discret de données qui seront accessibles à posteriori par relecture. Les observables de l'évolution sont donc définies après la simulation complète. Une description plus poussée de REM est disponible dans les références [Nu-02] et [Ma-05].

Dans ce programme, chaque isotope est traité de manière indépendante et nous pouvons réaliser un couplage fort avec la chimie et le retraitement du sel combustible. Pour cela, REM appelle le module SUR en début d'évolution pour compléter l'arbre des décroissances comme cela sera développé dans le paragraphe dédié à SUR.

Un schéma de fonctionnement et des séquences d'appel est représenté dans la figure 2.5.

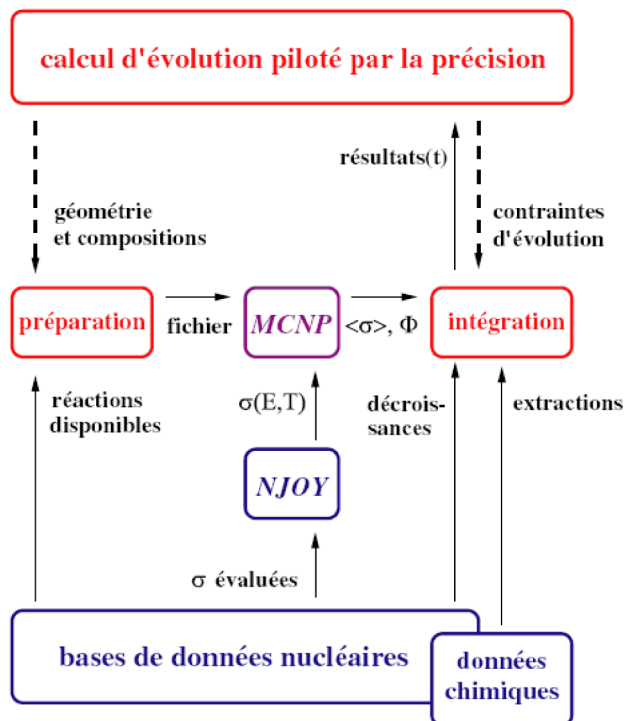


FIGURE 2.5: Schématisation de la séquence d'opérations effectuées par le code d'évolution

### 2.3.2.2 Un calcul piloté par la précision

Au premier pas d'évolution, le programme réalise un calcul MCNP qui fournit les valeurs de flux et de taux de réactions. Une première évolution est alors réalisée entre l'état initial ( $t_0$ ) et un temps ( $t_1$ ), défini par l'utilisateur ce qui donne un premier vecteur isotopique en  $t_1$ . A la fin de cette intégration, un deuxième calcul MCNP est effectué ce qui donne un autre jeu de valeurs de flux et de taux de réactions. Le programme réalise une deuxième évolution sur le même intervalle de temps pour donner un deuxième vecteur isotopique en  $t_1$ . Une comparaison de ces deux vecteurs par un test statistique

nous indique si la précision de l'évolution est suffisante ou non (précision définie par l'utilisateur au début de la simulation). De là, le programme a deux possibilités : soit la précision est satisfaisante et le programme lance alors le pas de calcul suivant en augmentant le pas de temps d'un facteur  $\sqrt{2}$ , soit la précision n'est pas satisfaisante et alors le programme recommence l'évolution entre  $t_0$  et  $t_1$ , en gardant le dernier jeu de valeurs de flux et de sections efficaces. De là, deux possibilités se présentent encore : soit la précision est, cette fois-ci, satisfaisante et le programme lance alors la prochaine évolution sans augmenter le pas de temps, soit la précision est toujours non satisfaisante et on recommence l'itération sur un intervalle de temps diminué d'un facteur  $\sqrt{2}$ . La représentation schématique de l'évolution est donnée figure 2.6.

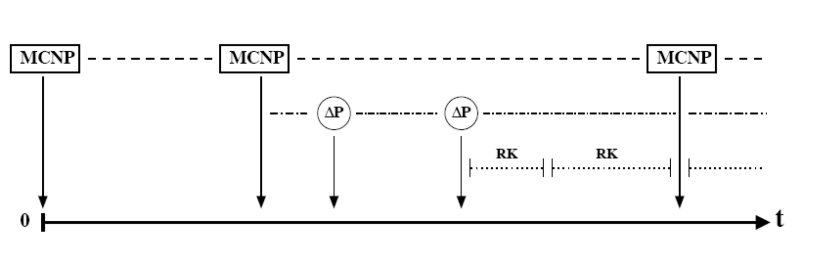


FIGURE 2.6: Schéma de calcul de l'évolution

Entre  $t_0$  et  $t_1$ , la composition des matériaux peut évoluer vers un état non satisfaisant de l'évolution. Par exemple, l'alimentation initiale définie par l'utilisateur n'est peut être pas adaptée et le système peut s'éloigner de la criticité. Le programme se charge alors de corriger les paramètres (notamment les alimentations) pour ramener le système vers un état satisfaisant toutes les contraintes d'évolution. C'est ce que l'on appelle les ajustements représentés par  $\Delta P$  dans la figure 2.6 et dont le concept est développé dans le paragraphe suivant. Entre deux ajustements, l'évolution est faite par méthode Runge et Kutta d'ordre 4 (RK4), ce qui nous donne au final trois pas de temps différents dans l'évolution : les pas MCNP, les pas d'ajustement et les pas RK4.

### 2.3.2.3 Les ajustements

Comme définies précédemment, les contraintes d'évolution évoluent librement entre deux pas d'ajustement. Pour revenir à ces valeurs de consigne, REM fait ce que l'on appelle des ajustements qui ne sont rien d'autres que des variations d'alimentation ou de débit de retraitement.

Pour ces deux contraintes, le programme doit en permanence comparer les valeurs des paramètres contraints par les valeurs de consigne. Pour certaines contraintes, comme la composition du sel par exemple, cette connaissance est directement une observable de l'évolution. Pour d'autres, comme la réactivité par exemple, on doit avoir recours à des estimateurs comme celui du  $k_{eff}$  défini dans l'équation 2.39 :

$$k_{eff} = \frac{\text{Nombre.neutrons.créés}}{\text{Nombre.neutrons.absorbés}} \quad (2.39)$$

Les procédures d'ajustement sont définies a priori et peuvent être différentes selon les paramètres à ajuster. Nous avons, pour le moment, deux procédures principales :

un ajustement d'alimentation ou un ajustement de débit d'alimentation ou d'extraction du sel de coeur. Ce point est détaillé dans un paragraphe ultérieur explicitant les fonctionnalités du module appelant qui réalise l'interface entre l'homme et REM : ERE.

Nous avons vérifié que notre estimateur de la réactivité était consistant comme le montre la figure 2.7 où l'estimateur est comparé aux valeurs de MCNP.

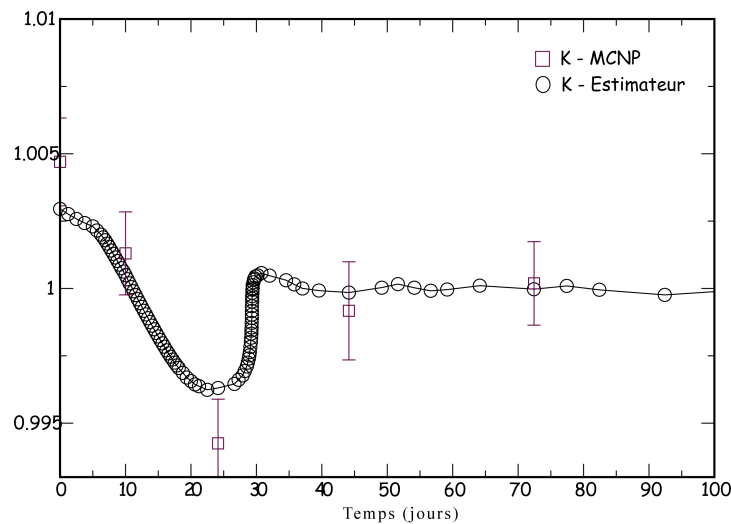


FIGURE 2.7: Comparaison de l'estimateur et de la valeur calculée par MCNP du coefficient de multiplication effectif

L'estimateur de la proportion de noyaux lourds est calculé de manière beaucoup plus simple : c'est le rapport du nombre d'atomes d'actinides sur le nombre de cations présents dans le sel comme exprimé par 2.40 où  $P_{NL}$  représente cette proportion. Malheureusement, comme nous ne connaissons pas exactement la forme chimique de tous les éléments, seul le fluor n'est pas considéré comme un cation.

$$P_{NL} = \frac{\sum_{i \geq 90} N_i}{\sum_{i \neq 9} N_i} \quad (2.40)$$

## 2.3.3 Simuler l'unité de retraitement (le module SUR)

### 2.3.3.1 Généralités

Un module existe pour suivre les isotopes hors du coeur et réaliser ainsi une étude couplée du réacteur et de son unité de retraitement associée. Dans l'unité de retraitement, les isotopes ne sont soumis à aucun flux neutronique. L'équation d'évolution d'un isotope dans l'unité de retraitement est donc similaire à 2.21 dans laquelle on aurait enlevé tous les termes représentant des réactions neutroniques. Pour suivre l'évolution de chaque isotope dans l'unité de retraitement, celle-ci est découpée en parties élémentaires caractérisées par des fonctions de transfert. Ces fonctions de transfert sont censées

représenter la cinétique de l'étape chimique élémentaire pour prendre en compte simplement et clairement la compétition entre les décroissances radioactives et la cinétique chimique.

Chaque noyau est caractérisé par un numéro atomique, un nombre de masse et un état isomérique. Les réactions nucléaires dans une même cellule remplacent un noyau par un autre. La prise en compte du retraitement chimique rajoute un paramètre pour décrire les noyaux : leur localisation dans le procédé. Nous avons donc défini des états virtuels qui caractérisent cette localisation. Ces états sont appelés des modes dans lesquels se trouvent les noyaux, un mode représentant simplement une zone dans le procédé de retraitement ; le mode 0, par exemple, correspond aux isotopes présents dans le coeur du réacteur.

Comme nous souhaitons quantifier la compétition entre les décroissances nucléaires et l'extraction chimique, chaque étape élémentaire est caractérisée par un temps de passage  $T$ . Si un isotope n'est pas affecté par une étape quelconque, il restera cependant dans cette étape le temps que l'opération soit effectuée. Pour rester homogène à une décroissance nucléaire, nous supposons que ce temps  $T$  est semblable à une demie vie. La population isotopique dans l'étape élémentaire est donc du type  $N_0 e^{-t \ln(2)/T}$ .

Dans le cas d'une étape de refroidissement où l'inventaire isotopique concerné attend un certain temps, l'approximation précédente peut être trop contraignante puisque la population présente dans l'étape concernée ne suit pas une loi temporelle du type exponentielle décroissante, mais une fonction marche dont la largeur représente le temps de résidence. Nous avons deux possibilités pour remédier à ce problème : associer des étapes en séries dont les caractéristiques seraient des exponentielles décroissantes, ou bien avoir recours à des transferts comme nous le présenterons dans la suite.

Les étapes du retraitement chimique peuvent conduire à une ou plusieurs autres étapes (extraction et fluoration proposent deux voies de sortie). Chaque voie de sortie  $i$  possède alors un temps caractéristique de passage  $T_i$ . Les isotopes présents dans cette étape ont alors plusieurs possibilités : la décroissance nucléaire (temps caractéristique associé :  $T_{1/2}$ ) et chacune des voies de sortie (temps caractéristique  $T_i$ ). Nous pouvons donc, à la manière des rapport d'embranchement en physique nucléaire, calculer chacun des  $T_i$  pour simuler l'efficacité de l'étape chimique. La figure 2.8 représente un schéma de principe du couplage entre le retraitement et la neutronique du coeur.

### 2.3.3.2 Rendement d'une étape chimique

Un isotope est caractérisé par 4 nombres fondamentaux : numéro atomique, numéro de masse, état isomérique et localisation dans l'unité de retraitement. L'inverse de la durée de vie d'un isotope est calculé comme la somme des inverses de la durée de vie nucléaire et la durée de vie dans l'étape du retraitement considéré. Il faut donc recalculer, pour chaque isotope l'ensemble des rapports d'embranchement. Soit  $\eta_{nuc}$  la part des décroissances nucléaires dans le terme de disparition des isotopes, et  $T$  la demi-vie effective de cet isotope, calculée grâce à 2.41.

$$\frac{1}{T} = \frac{1}{T_{1/2}} + \sum \frac{1}{T_i} \quad (2.41)$$

Comme dans le programme on associe à chaque noyau une demi-vie et une liste

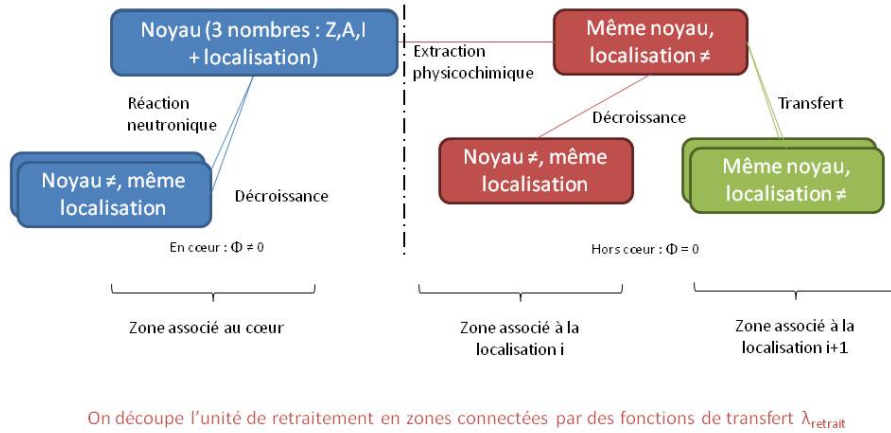


FIGURE 2.8: Schéma de principe du couplage retraitement/neutronique du cœur du réacteur

de rapports d'embranchement, il est nécessaire de recalculer la part des décroissances dans le terme de disparition. Comme la constante de désintégration nucléaire ne varie pas suivant la localisation des isotopes dans l'unité de retraitement,  $\eta_{nuc}/T$  doit rester une constante. Chaque temps caractéristique d'une étape élémentaire du retraitement peut être calculé suivant la relation 2.42 où  $\eta_i$  représente la part du passage de l'étape considérée vers l'étape  $i$ .

$$\frac{1}{T_i} = \frac{\eta_i}{T} \quad (2.42)$$

Le rendement du passage vers  $i$  s'exprime comme 2.43

$$\eta_i / \Sigma \eta_i \quad (2.43)$$

et, par conservation de la matière, nous pouvons écrire 2.44

$$\eta_{nuc} + \Sigma \eta_i = 1 \quad (2.44)$$

En pratique, l'utilisateur définit l'unité de retraitement par le nombre d'étapes élémentaires qui lui semble nécessaire. Il affecte à chaque transfert possible un temps caractéristique  $T_i$ , censé représenter une certaine efficacité de l'étape considérée. Le module SUR se charge de compléter l'arbre d'évolution, puis de le modifier : il recalcule la demi-vie de chaque noyau grâce à 2.41, puis il affecte les différents rapports de branchement en gardant la demi-vie nucléaire constante.



Un ensemble de classes, introduit pour représenter les étapes chimiques élémentaires, est implémenté dans le module. Parmi les plus importantes, on trouve les RESERVOIRS qui, comme le nom l'indique, permettent de stocker de manière temporaire les éléments, les PIEGES (qui permettent de simuler l'étape de fluoration par exemple), les STOCKAGES, qui permettent de continuer à simuler l'évolution des isotopes qui sont sortis du système, et les ECHANGEUR\_CCs (pour échangeurs contre-courant) que nous détaillerons au chapitre suivant.

### 2.3.3.3 Illustration par un exemple

Les différentes étapes du procédé de retraitement, ainsi que leur cinétique respective, seront développées dans le chapitre 3. Cependant, prenons l'exemple de la fluoration pour clarifier le procédé. L'uranium passe sous forme  $UF_6$  gazeux en 2-3 secondes. On peut donc définir un temps de demi-vie de l'uranium sous forme saline dans le mode correspondant à l'étape de la fluoration qui serait de 1-1,5 secondes. La figure 2.9 présente un schéma de la gestion de la chimie dans le module SUR.

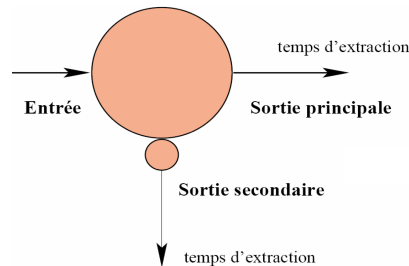


FIGURE 2.9: Exemple de gestion d'une étape chimique par le module SUR

Dans cet exemple, il faut définir les isotopes qui peuvent être concernés par une éventuelle extraction et une efficacité. L'élément est, quant à lui, défini par deux temps caractéristiques ( $T_1$  et  $T_2$ ); nous définissons les constantes de pseudo-décroissance  $\lambda_1$  et  $\lambda_2$  comme  $\ln(2)/T_1$  et  $\ln(2)/T_2$ , qui représentent les probabilités de passage. La proportion de passage est donc le rapport entre la probabilité considérée sur la somme des probabilités. Ainsi, pour avoir un rendement de fluoration de 99% pour l'uranium, on doit avoir un rapport entre les deux constantes caractéristiques  $\lambda_1$  et  $\lambda_2$  telles que  $\frac{\lambda_1}{\lambda_1 + \lambda_2} = 0,99$ .

## 2.3.4 Etudier l'évolution d'un réacteur (ERE)

Les paragraphes précédents présentent la manière dont la simulation de l'évolution est réalisée. Il reste à définir la géométrie du système, les alimentations en fertile et en fissile éventuellement, la manière dont l'évolution est contrôlée et l'unité de retraitement. Le but de ce paragraphe n'est pas d'établir un guide complet de l'utilisateur, mais, par le biais d'exemples bien choisis, d'illustrer comment fonctionne le code de simulation.

### 2.3.4.1 Motivation

Il existait, avant mon arrivée dans le groupe de physique des réacteurs du LPSC un module similaire développé par A.Nuttin pendant sa thèse : le module RSF [Nu-02]. Ce

module comportait toute les fonctionnalités de base pour la simulation des réacteurs à sels fondus (ajustement de la réactivité, alimentation en thorium) mais sa construction faisait que l'utilisation était assez contraignante. La géométrie - développée pour le MSBR et ses canaux - n'était pas variable, l'alimentation, ainsi que le retraitement étaient fixés en début de simulation, et ne pouvait évoluer. Pour réaliser un véritable couplage entre le retraitement et le coeur des RSF, il fallait avoir une rétro-action possible sur le retraitement et prendre en compte les flux de matière extraites pour les alimentations.

C'est dans ce but que ERE a été développé. Il est maintenant possible d'alimenter le coeur du réacteur en matière fissile avec l'uranium de couverture. De plus, la composition isotopique de celui-ci variant au cours du fonctionnement, il a fallu rendre adaptables les débits d'injection et d'extraction pendant la simulation.

Le développement de ERE s'est déroulé en deux phases distinctes : nous avons d'abord développé une interface qui permet à l'utilisateur de définir la géométrie simplement comme nous le verrons dans le paragraphe suivant. Nous avons ensuite développé les moyens de faire évoluer les constantes d'extraction et d'alimentation pendant le fonctionnement du réacteur.

#### 2.3.4.2 Définition de la géométrie

Le module CGM permet de définir des formes comme des cylindres, des sphères ou des parallélépipèdes rectangles. En agencant ces formes élémentaires, il est possible de réaliser des formes plus complexes à l'aide d'intersection ou de réunion. Pour faire le lien entre CGM et l'utilisateur, nous avons créé un type de classe appelée FORME qui reprend les principales caractéristiques des classes de CGM. L'utilisateur définit donc ces formes en indiquant un type (cylindre, sphère etc...) avec leurs positions associées, ainsi que leurs dimensions caractéristiques.

Il faut maintenant associer à ces formes une composition initiale. Dans le module ERE, nous avons créé une classe CELLULE. A chaque objet de la classe CELLULE correspond une forme, une température et un fichier de composition. Dans ce fichier sont répertoriés tous les isotopes et leur concentration initiale. Les différentes cellules peuvent en fait ne former qu'une seule entité physique : c'est le cas par exemple pour le sel combustible qui est défini en plusieurs cellules distinctes (coeur, plénums et échangeurs). Pour remédier à ce problème, il est possible de grouper les cellules en un objet de la classe GROUPE. A chaque calcul MCNP, le code dispose d'un jeu de taux de réaction pour chaque cellule du groupe qu'il faut moyenner avant de réaliser l'évolution. Un exemple de fichier décrivant la géométrie est illustré dans la figure 2.10 où est définie et décrite la forme dans le premier bloc, dans le deuxième bloc, on décrit le système que l'on souhaite simuler, et enfin, dans le dernier bloc, on définit les cellules présentes dans le système.

Une fois la géométrie définie, on peut lancer le calcul de l'évolution en appelant le module REM.

#### 2.3.4.3 Les contraintes de l'évolution

L'utilisateur doit aussi définir certains paramètres pour contrôler l'évolution (réactivité et proportion de noyaux lourds par exemple). Ces paramètres peuvent être une alimentation ou un débit de retraitement. Nous noterons par la suite  $P$  un paramètre de

```

geometrie.dat - /Ogpr/doligez/criticite/fluoration/
File Edit Search Preferences Shell Macro Windows Help
/Ogpr/doligez/criticite/fluoration/geometrie.dat 524 bytes L: 1 C: 0
FORME_COEUR
FORME_COEUR.Nom Forme_coeur
FORME_COEUR.Type ERE FORME_TypeSphere
FORME_COEUR.Dimension1 0.0
FORME_COEUR.Dimension2 0.205429
\
REACTEUR TMSR
TMSR.Nom FLi
\
TMSR.CELLULE COEUR
TMSR.COEUR_idf FORME_Forme_coeur
TMSR.COEUR.NomFicComposition ./compo
TMSR.COEUR.Nom_composition Sel_primaire
TMSR.COEUR.Nom_composition FLi22.5
TMSR.COEUR.Nom Coeur
TMSR.COEUR.Temperature 1100
TMSR.COEUR.Densite 6.69
TMSR.COEUR.POSITION Pos_coeur1
TMSR.COEUR.Pos_coeur1.X 0.0
TMSR.COEUR.Pos_coeur1.Y 0.0
TMSR.COEUR.Pos_coeur1.Z 0.0
    
```

FIGURE 2.10: Exemple de fichier décrivant la géométrie d'un réacteur (ici, une sphère)

l'évolution,  $C$  la valeur d'une contrainte, et  $C_0$  la valeur cible. La variation de  $C$  peut donc s'écrire comme 2.45.

$$\Delta C = \frac{\partial C}{\partial t} \Delta t + \frac{\partial C}{\partial P} \Delta P \quad (2.45)$$

Il faut donc calculer  $\Delta P$  pour compenser la variation de  $C$  pendant le temps  $\Delta t$ . Pour cela, on va distinguer les pas d'ajustement pairs et les pas impairs. Pour chaque pas d'ajustement pair, le programme force  $\Delta P$  à 0. La variation temporelle de  $C$  s'exprime alors comme 2.46.

$$\left( \frac{\partial C}{\partial t} \right)_P = \left( \frac{\Delta C}{\Delta t} \right)_{\text{pair}} \quad (2.46)$$

Le pas suivant, le programme calcule  $\Delta P$  pour ramener  $C$  à la valeur  $C_0$  en intégrant 2.46 dans 2.45 pour donner 2.47.

$$\Delta P = \left( C_0 - C - \left( \frac{\partial C}{\partial t} \right)_P \right) \frac{1}{\left( \frac{\partial C}{\partial P} \right)_t} \quad (2.47)$$

Pour estimer la variation du paramètre à appliquer, il faut donc estimer la variation de la contrainte avec le paramètre. En notant  $\Delta C = C_0 - C$ , nous pouvons calculer cette valeur à chaque pas de temps pair d'après 2.45 (avant d'appliquer  $\Delta P = 0$ ) comme indiqué en 2.48

$$\left( \frac{\partial C}{\partial t} \right)_t = \left( \Delta C - \left( \frac{\partial C}{\partial t} \right)_P dt \right) \cdot \frac{1}{\Delta P} \quad (2.48)$$

Pour réaliser cet algorithme, il est nécessaire de connaître la valeur initiale du paramètre ainsi que la variation initiale de la contrainte avec ce paramètre. Dans la définition des contraintes de l'évolution et des paramètres associés, l'utilisateur doit donc estimer les données à l'instant initial. Les variations physiques donnent une bonne approximation de ce que l'utilisateur doit attendre. Prenons l'exemple du cas d'une alimentation thorium pour contrôler la proportion de noyaux lourds : nous pouvons facilement estimer sa valeur initiale comme la perte de noyaux lourds due aux fissions, ainsi que la variation de la proportion de noyaux lourds associée à l'augmentation d'une mole de thorium.

La formule 2.48 est malheureusement insuffisante pour gérer des paramètres qui influent sur plusieurs contraintes. Prenons l'exemple d'un contrôle de la réactivité par une alimentation en uranium 233 et d'un contrôle de la proportion de noyaux lourds par une alimentation en thorium 232. Le paramètre de la contrainte de la réactivité (alimentation d'U-233) influe grandement sur le contrôle proportion de noyaux lourds. L'expression 2.45 devient alors 2.49 où  $P_1$  et  $P_2$  représentent les deux paramètres en question.

$$\Delta C = \frac{\partial C}{\partial t} \Delta t + \frac{\partial C}{\partial P_1} \Delta P_1 + \frac{\partial C}{\partial P_2} \Delta P_2 \quad (2.49)$$

Pour résoudre cette équation, il ne faut plus distinguer les pas pairs des pas impairs, mais découper les pas de temps en quatre pour calculer au premier pas, ainsi qu'au troisième la variation de  $C$  avec  $t$ , au deuxième la variation avec  $P_1$  et enfin au quatrième, la variation de  $C$  avec  $P_2$ . Pour avoir un ajustement complet, il faut donc découper le pas MCNP en deux fois plus de pas d'ajustement que si les paramètres n'étaient pas corrélés, ce qui aura un impact certain sur le temps de calcul.

Finalement, l'utilisateur définit les contraintes de l'évolution, puis les paramètres, pour maintenir ces contraintes à leur valeur de consigne (sans oublier de mentionner si les paramètres ont une influence sur plusieurs contrôles). Plusieurs paramètres peuvent servir à contrôler une même contrainte. La réactivité par exemple peut être contrôlée par le flux d'uranium sortant de la couverture vers le cœur, mais ce flux peut ne pas suffire. Il faut alors que l'utilisateur définisse un deuxième paramètre (comme une alimentation en fissile provenant d'une réserve par exemple) pour prendre le relais quand le premier paramètre viendrait à ne plus suffire. La figure 2.11 illustre le fonctionnement de l'ordre des paramètres : l'utilisateur définit un certain nombre de paramètres, dans un ordre précis, avec pour chacun une valeur minimum et une valeur maximum. Lorsque le programme calcule une variation qui conduirait le paramètre courant à une valeur trop forte, alors ce paramètre est bloqué à sa valeur maximum et l'on passe au paramètre suivant. A l'opposé, lorsque le programme calcule une valeur du paramètre courant qui serait inférieure à son minimum, le paramètre courant est bloqué à sa valeur minimale et l'on passe au paramètre précédent.

#### 2.3.4.4 Les transferts

Les matrices créées à partir des équations de Bateman modifiées pour les RSF sont a priori indépendantes les unes des autres. L'uranium 233 présent dans la couverture ne

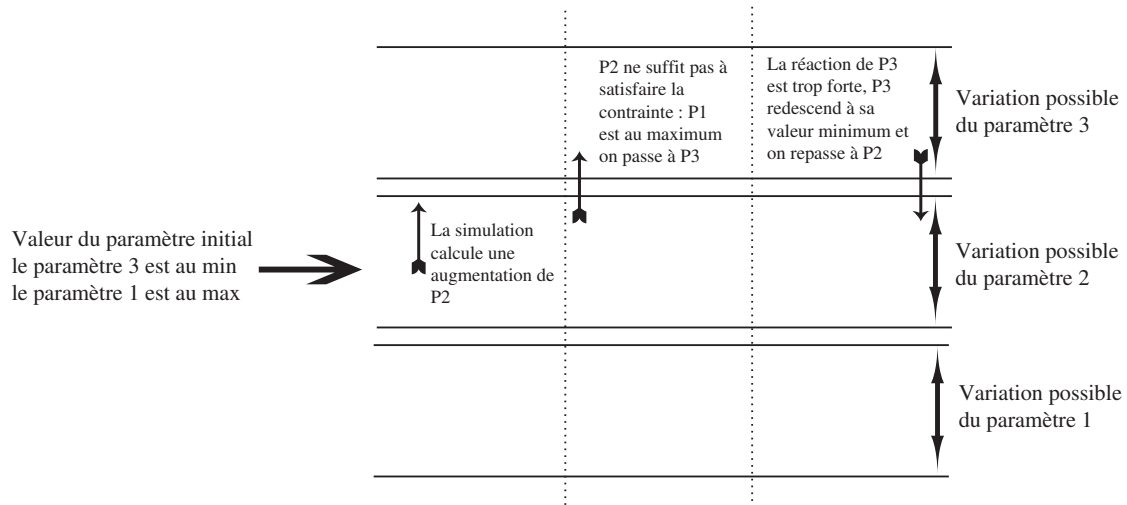


FIGURE 2.11: Illustration de la priorité des paramètres

vérifie pas la même équation que celui présent dans le sel combustible. Pour chacune de ces matrices, REM fait alors appel au module IME qui intègre les équations d'évolution par une méthode RK4. REM transmet alors l'arbre de l'évolution (contenant les termes de décroissance mais aussi les termes d'absorption neutronique pour les isotopes sous flux) ainsi que les différentes quantités au début de l'intervalle de temps.

Les fonctions de contrôle développées et explicitées dans la section précédente permettent de jouer sur les décroissances et les pseudo-décroissances liées aux transferts entre les étapes élémentaires de l'unité de retraitement. Cette modification des décroissances joue sur les taux d'apparition et de disparition des différents isotopes dans la même composition. c'est-à-dire que la modification des décroissances ne joue que sur les termes d'une même matrice d'évolution. Par conséquent, il est à priori impossible de modifier le flux de l'uranium de couverture vers le sel de coeur pour asservir la réactivité.

Nous avons développé une classe nommée TRANSFERT qui permet justement de pallier ce problème. Un objet de cette classe est défini par une cellule origine, une cellule cible ainsi qu'un taux de transfert. A chaque pas d'ajustement, le programme copie alors une fraction des quantités d'origine (cette fraction est représentée par le taux de transfert) pour les placer dans la cible. Bien sûr, les quantités d'origine sont corrigées des quantités transférées. Ainsi, dans le cas du flux d'uranium de couverture, le programme copie les quantités d'uranium produit dans un mode de la composition associée au sel de coeur. Le paramètre est alors le débit de ce mode cible vers le mode 0, mode lié au coeur et dont les compositions sont sous flux neutronique. Une représentation schématique du fonctionnement des transferts appliqués au contrôle de la réactivité est présenté dans la figure 2.12.

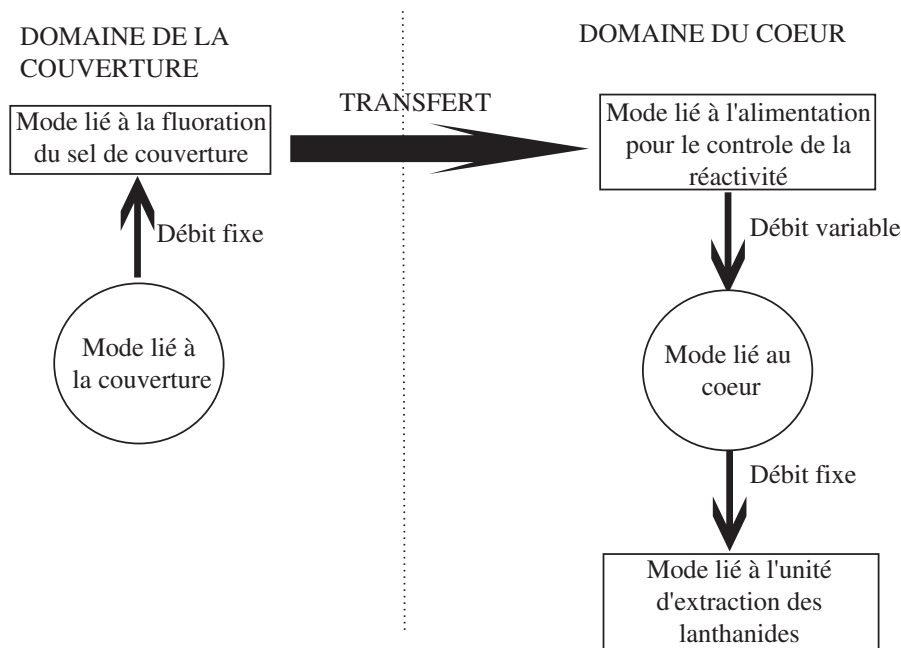


FIGURE 2.12: Représentation schématique des transferts

## 2.4 Bilan sur les outils de calcul

Ce chapitre montre qu'il est possible de calculer l'évolution d'un réacteur à sels fondus couplé à une ou plusieurs unités de retraitement. La totalité des calculs présentés dans les chapitres suivants est réalisé avec MCNP puisque le groupe de physique des réacteurs du LPSC possède un bon retour d'expérience sur ce code. L'environnement DALI permet de coupler MCNP à un code d'évolution réalisé en plusieurs modules élémentaires. Ces modules permettent de gérer l'unité de retraitement, et de prendre en compte les contraintes d'évolution de manière satisfaisante. L'ensemble du schéma de calcul et les codes associés ont été qualifiés dans les références [Nu-02] et [Pe-03].

La puissance de calcul dont on dispose aujourd'hui est suffisante pour pouvoir utiliser la méthode Monte-Carlo sans avoir de gros problème de temps de calcul tout en ayant une précision satisfaisante. Les calculs MCNP sont parallélisés alors que l'intégration des équations d'évolution ne l'est pas. La complexité de l'intégration dépend du niveau de raffinement avec lequel nous souhaitons réaliser la simulation. Si les contraintes d'évolutions sont nombreuses, avec plusieurs paramètres corrélés, alors les pas de temps doivent être assez fins, et le temps de calcul de l'intégration conséquent. De la même manière, comme nous voulons effectuer un couplage fort avec l'unité de retraitement, chaque isotope est suivi indépendamment, ce qui a une conséquence forte sur la taille des matrices d'évolution, et donc le temps d'intégration. De plus, nous verrons que l'unité de retraitement fait intervenir des transferts dont le temps caractéristique peut être inférieur à la minute. Comme la taille des pas RK4 est de l'ordre de la constante de temps la plus faible, le couplage entre le retraitement et le cœur du réacteur a pour effet de multiplier le nombre de pas RK4 entre deux pas d'ajustement, et contribue donc fortement à l'augmentation du temps de calcul.

Pour donner un ordre d'idée, une évolution typique où l'on suit l'ensemble des isotopes dans toute l'unité de retraitement nécessite un calcul de près de 3 semaines

sur 8 processeurs. Notons qu'il n'est pas nécessaire de détailler très fortement l'unité de retraitement dans la simulation si le but de celle-ci n'est pas de l'étudier. Le temps de calcul chute alors à environ 15 heures de calcul, toujours sur 8 processeurs. Comme l'intégration des équations de Bateman n'est pas parallélisée, le nombre de processeur n'influe que peu le temps de calcul global dès que le temps des calculs MCNP est petit devant le temps nécessaire pour réaliser l'intégration numérique.

Concernant les incertitudes, les paramètres d'entrée de MCNP que nous choisissons nous donnent une incertitude sur le  $k_{eff}$  de quelques centaines de pcm. La plus grande source d'incertitude vient sans aucun doute de la densité. En effet, les données neutroniques varient fortement avec celle-ci et nous en avons une très mauvaise estimation. En évolution, nous avons montré que si un isotope est placé profondément dans la chaîne d'évolution, la connaissance sur celui-ci peut être précise à quelques % au pire, ce qui reste une précision tout à fait satisfaisante devant les incertitudes que l'on peut avoir sur les rejets par perte au retraitement par exemple, comme nous le verrons dans le chapitre suivant.





# Chapitre 3

## Description détaillée de l'unité de retraitement

D'une manière générale, le cycle thorium ne possède pas tout le retour d'expérience dont peut bénéficier le cycle uranium en ce qui concerne l'aval du cycle du combustible. Les procédés actuellement proposés ne profitent pas du même développement et du même retour d'expérience que les procédés en cycle uranium. Toutefois, le procédé THOREX est un procédé hydrométallurgique qui n'a plus à montrer sa faisabilité. Une des problématiques fortes est la présence en quantité non négligeable d'uranium 232 qui, de par sa chaîne de décroissance, provoque de fortes radiations. Les procédés de retraitement des réacteurs du futur souffrent, pour la plupart, de problèmes de radiation et de radiolyse forte quand on parle de multi-recyclage d'américium et de curium.

Dans le cadre des réacteurs à sels fondus, la totalité du cycle est profondément modifiée : il n'y a pas de composé organique qui subisse des radiations bêta et gamma, les éléments sont complètement ioniques et on pourrait donc s'affranchir du temps de refroidissement du combustible utilisé. On parle alors de retraitement pyrochimique en faisant intervenir des solvants insensibles à la radiolyse : les sels fondus. Ce chapitre a pour but d'explicitier le procédé de retraitement dans son ensemble et de regarder les possibles questionnements à propos de ce procédé. La première partie est une exploration des besoins en retraitement dans le but de trouver le retraitement limite acceptable pour le bon fonctionnement du réacteur. Puis, nous définirons l'unité pyrochimique, son fonctionnement, ses contraintes et enfin, dans une troisième partie, nous présenterons l'unité de bullage.

### 3.1 Les besoins en retraitement

#### 3.1.1 Quels éléments pour quelles extractions ?

Comme nous l'avons vu dans le premier chapitre, le retraitement du sel combustible est en fait constitué de deux parties bien distinctes : le bullage et l'extraction pyrochimique. Pour connaître les performances de chaque moyen d'extraction, il faut connaître, entre autres, la forme chimique de chaque élément à partir de son degré d'oxydation. Pour chaque élément, nous pouvons écrire un équilibre (équation 3.1) entre une espèce oxydée et une espèce réduite.



Cet équilibre est caractérisé par la loi de Nernst (3.2).

$$E = E^\circ - \frac{RT}{nF} \ln\left(\frac{a_{red}}{a_{ox}}\right) \quad (3.2)$$

où  $E^\circ$  est le potentiel standard du couple  $ox/red$ ,  $a_i$  l'activité des espèces oxydées ou réduites,  $T$  la température et  $F$  la constante de Faraday (d'une valeur de 96485 C/mol). Connaissant le potentiel du sel  $E$ , nous pouvons calculer l'activité de chaque espèce en présence, et en déduire sa forme chimique. D'après les travaux de l'ORNL [Ro-73], ce potentiel est fixé par le couple  $U^{3+}/U^{4+}$  qui joue le rôle de tampon redox. Le rapport des concentrations des deux formes de l'uranium est maintenu à une valeur constante comprise entre 1 et  $\frac{1}{100}$ . Il est impossible d'introduire plus d' $U^{3+}$  que d' $U^{4+}$  puisqu'un équilibre se créerait alors entre  $U$  sous forme métallique (et donc non soluble) et  $U^{3+}$ . Un rapport supérieur à 1 impliquerait donc la présence de particules métalliques d'uranium, ce qui est à proscrire. Comme nous souhaitons que l'uranium joue le rôle de tampon, il faut que les activités, et par conséquent les concentrations, soient comparables, d'où la limite basse de  $\frac{1}{100}$ .

D'autre part, en supposant que l'on est en solution infiniment diluée pour toutes les autres espèces (sauf le lithium, le thorium et le fluor), les coefficients d'activités ne varient pas avec la composition. Nous supposons de plus que toutes les espèces en solution possède un coefficient d'activité voisin dans le sel, ce qui nous permet de supposer que les rapports des coefficients d'activités sont proches de 1. Il est donc possible de trouver un diagramme de prédominance qui détermine pour chaque élément quelle forme est la plus stable en fonction du potentiel. Nous représentons un extrait de ce diagramme pour quelques éléments dans la figure 3.1. Les calculs ont été effectués à 650°C et la base de données pour les potentiels standards provient du logiciel HSC[Ou-02]. La bande grisée matérialise l'ensemble des points de fonctionnement acceptable : c'est à dire l'ensemble où le rapport des concentrations en uranium :  $U^{3+}/U^{4+}$  est compris entre 1 et  $\frac{1}{100}$ . Cette zone acceptable de fonctionnement est calculée grâce à l'équilibre 3.3 et la relation 3.2 qui s'applique dans ce cas là



HSC [Ou-02] calcule la valeur  $E^\circ$  du couple  $U^{3+}/U^{4+}$  à -3,53 V en prenant le couple  $F_2/F^-$  comme référence. En supposant dans ce cas, que les activités sont égales à la concentration des espèces (on suppose en fait que les coefficients d'activité des deux formes de l'uranium sont identiques), la borne inférieure de cette zone de fonctionnement est l'application numérique de l'équation 3.2 lorsque le ratio est pris égal à 1, alors que la borne supérieure est calculée avec le ratio pris à 1/100.

Nous voyons sur cette figure que le manganèse, le gallium, le nobium, le molybdène et l'indium sont sous forme métallique par exemple. Par abus de langage, nous nommerons parfois "métaux" les produits de fission sous forme métallique dans la suite de ce manuscrit. Une liste exhaustive des éléments qui sont présents à l'état métallique est présentée dans la troisième partie de ce chapitre.

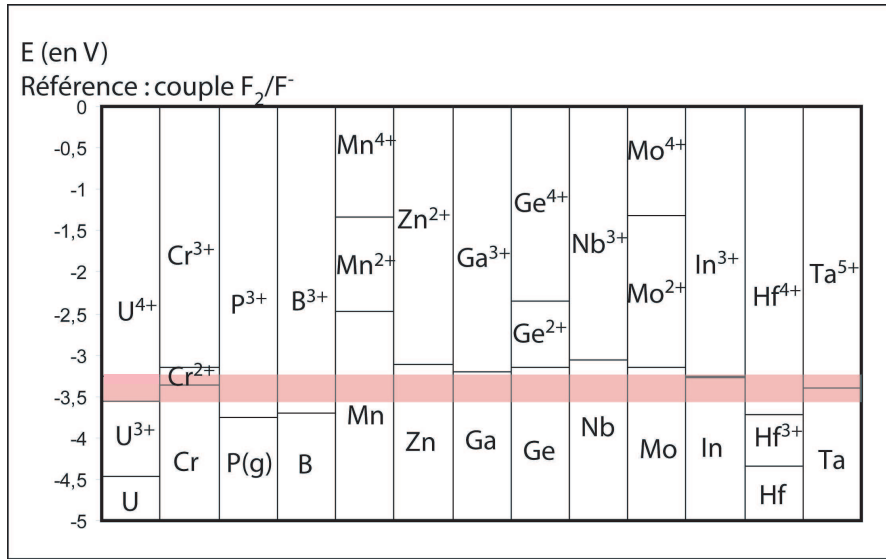


FIGURE 3.1: Extrait du diagramme de prédominance, calculé à l'aide de HSC

### 3.1.2 Bilan neutronique du cas de référence

Le retraitement a pour but d'extraire les produits de fission qui sont des poisons neutroniques, et qui sont donc préjudiciables au bon fonctionnement du réacteur. Dans le but d'avoir une première estimation des impératifs de l'unité de retraitement, ce paragraphe présente l'inventaire de la consommation et de la production des neutrons dans l'ensemble du réacteur. Le raisonnement est effectué à l'équilibre, et les chiffres présentés dans le tableau 3.1 sont normalisés à un neutron de fission pour un temps de retraitement standard soit 450 jours.

Elements	Absorption
Thorium	0,39
Uranium	0,48
Protactinium	0,01
Plutonium	0,1
Actinides mineurs	0,01
Total noyaux lourds	0,902
Produits de fission	0,007
Fluor	$4,3 \cdot 10^{-3}$
Lithium	$1,9 \cdot 10^{-4}$
Total	0,914

TABLE 3.1: Bilan des captures neutroniques par neutron de fission dans le sel de coeur à l'équilibre pour un temps de retraitement de 450 jours

Le rapport entre le nombre de neutrons créés et le nombre de neutrons absorbés donne le coefficient de multiplication infini ( $k_{\infty}$ ) qui est dans ce cas de 1,095. Cette valeur est très proche de 1 et signifie qu'il y a un taux de fuite faible (8,7%) vers les réflecteurs radiaux (sel fertile) et les réflecteurs axiaux (alliage de structure). Un calcul

de réactivité infini du sel combustible réalisé avec MCNP donne une valeur de  $k_\infty$  de  $1,081 \pm 150$  pcm.

Le nombre de produits de fission en solution dans le sel est donné par l'équation 3.4 où  $N_{PF}$  représente la concentration atomique des produits de fission,  $\tau_{fission}$  le taux de fission et  $\lambda_{retraitement}$  la constante de temps associée au retraitement. Cette équation découle de l'équation de Bateman présentée au paragraphe précédent où les termes de décroissance nucléaire n'apparaissent pas puisqu'un produit de fission décroît vers un autre produit de fission. La seule voie de disparition pour les PF est donc l'extraction par voie pyrochimique ou par entrainement via les bulles de gaz.

$$\frac{dN_{PF}}{dt} = 2 \cdot \tau_{fission} - \lambda_{retraitement} N_{PF} \quad (3.4)$$

En régime stationnaire, le membre de droite de l'équation 3.4 s'annule et on a alors 3.5 :

$$N_{PF} = \frac{2 \cdot \tau_{fission}}{\lambda_{retraitement}} = 2 \cdot \tau_{fission} T_{retraitement} \quad (3.5)$$

où  $T_{retraitement}$  représente le temps nécessaire pour retraiter la totalité du coeur par extraction pyrochimique comme expliqué dans le chapitre précédent.

Notons  $N_{abs}$  le nombre de neutrons absorbés, normalisé à un neutron de fission, par les produits de fission (et donc la perte de régénération), défini comme 3.6 :

$$N_{abs} = \frac{N_{PF} \langle \sigma \phi \rangle}{\nu} \quad (3.6)$$

où  $\sigma$  représente la section efficace moyenne de capture,  $\phi$  le flux neutronique et  $\nu$  le nombre de neutrons émis par fission. En couplant la relation 3.6 avec 3.5, nous montrons que le nombre de neutrons perdus par absorption sur les produits de fission est directement proportionnel au temps de retraitement. Le tableau 3.1 montre que cette part est complètement négligeable devant toutes les absorptions dues aux noyaux lourds (2 ordres de grandeur plus faible). Nous pouvons en déduire qu'un temps de retraitement 2 ou 3 fois plus long ne devrait pas apporter une perturbation suffisante pour voir un effet notable sur la réactivité ou sur la régénération. De la même manière, accélérer le retraitement ne devrait pas améliorer significativement le comportement du réacteur. Ce comportement (faible sensibilité au retraitement global) est essentiellement dû au spectre neutronique rapide du réacteur : en effet, dans ce cas, les taux de réaction des produits de fission chutent, en comparaison d'un spectre thermique, pour devenir négligeable devant les taux de réactions des noyaux lourds.

L'extraction des noyaux lourds n'est pas étudiée ici dans les détails puisque l'on souhaite une fermeture du cycle. Le concept doit donc être développé avec des pertes au retraitement en actinides les plus faibles possibles. Le chapitre 5 abordera la sensibilité du système au retraitement des noyaux lourds.

### 3.1.3 Les limites du retraitement

Nous avons toutefois effectué une série de calculs avec différents temps de retraitement pour voir quels pouvaient être les effets et vérifier qu'un temps de retraitement beaucoup plus long ne portait pas préjudice aux caractéristiques du coeur. Nous avons identifié 3 grands critères qui sont l'intégrité chimique du sel, la régénération et les coefficients de sûreté (coefficient de température et fraction de neutrons retardés).

Rappelons que le temps caractéristique associé au bullage représente le temps nécessaire pour diminuer d'un facteur 2 la concentration d'un isotope dans le sel et que le temps caractéristique en ce qui concerne le retraitement pyrochimique du sel est le temps nécessaire pour retraiter l'ensemble du coeur.

Les calculs présentés dans ce paragraphe concernent une version légèrement différente du MSFR de référence. En effet, dans cette partie, nous avons considéré l'ancienne version de référence des réacteurs à sels fondus en spectre rapide : le TMSR-NM [Me-08-2]. Le réacteur contient 20,5 m<sup>3</sup> de sel combustible (comme dans la thèse de L. Matthieu) au lieu de 18 dans le cas nominal. La puissance spécifique est donc légèrement modifiée mais le taux de fission total reste invariant vu que la puissance totale est restée constante. Le débit de retraitement est toutefois inchangé entre le cas nominal du MSFR et le TMSR-NM (40l/jour ou 100kg de noyaux lourds par jours) ce qui fait passer le temps de retraitement du coeur complet de 450 à 518 jours.

#### 3.1.3.1 L'intégrité chimique du sel

Il est bien évident que le sel doit rester homogène et liquide en tout point du réacteur et à tout moment. La problématique de ce paragraphe est celle de la solubilité de certains éléments et notamment celle du plutonium dans un mélange de fluorure. Des mesures faites au BARC en Inde, dans les années 75 [So-75] ont montré que, suivant la composition du sel et la température, la solubilité du plutonium peut monter jusqu'à presque 7%. On rappelle dans le tableau 3.2 ces valeurs mesurées. Il faut noter que le sel combustible comporte, en plus du plutonium, beaucoup d'autres éléments dont la solubilité n'est que très peu connue. De plus, il y a toutes les chances pour que tous ces éléments rentrent en compétition d'un point de vue de la solubilité : ajouter des lanthanides dans un mélange de  $LiF - ThF_4 - UF_4 - PuF_3$  va vraisemblablement faire baisser la solubilité du plutonium, élément de valence 3).

%ThF <sub>4</sub>	550 °C	650 °C	750 °C
35	2,11	4,12	7,08
30	2,69	4,91	7,61
25	2,75	4,79	7,31
20	2,85	4,97	7,71

TABLE 3.2: Résumé des valeurs de solubilité (en % molaire) du Pu dans LiF-ThF<sub>4</sub> mesurées par Snood et al. au BARC

Pour pallier ce problème, on assimile tous les éléments qui possèdent la même valence en fluorure. Les éléments de valence 3 seront considérés comme un seul élément dont la solubilité est d'environ 5%. Il s'agit essentiellement des lanthanides, et des

actinides plus lourds que le neptunium. La figure 3.2 représente la proportion de ces éléments dans le sel combustible en fonction du temps de retraitement. Lorsque le temps de retraitement est relativement court, la dépendance de cette proportion de valence 3 est monotone croissant avec le temps de retraitement, comportement clairement identifié grâce à la relation 3.5. Cette figure montre aussi que la limite de 5% est atteinte pour un temps plutôt long (plus de 10 000 jours).

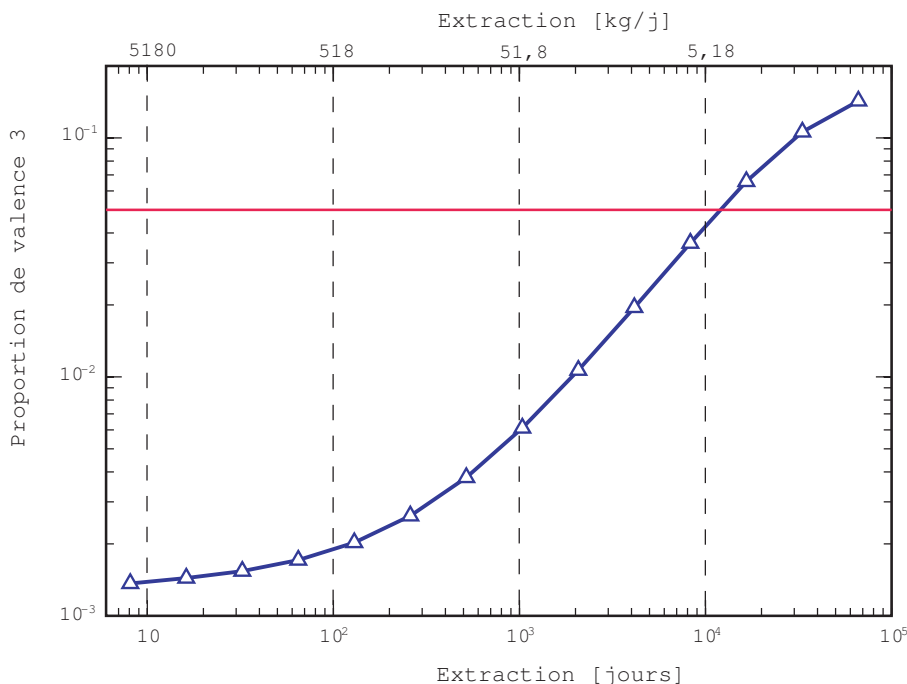


FIGURE 3.2: Proportion d'éléments de valence 3 dans le sel combustible en fonction du temps de retraitement

Cette courbe représente l'état stationnaire du sel combustible. Le cas d'un démarrage effectué à l'aide des transuraniens issus du parc actuel ne change pas cet état d'équilibre. Par contre, comme la proportion d'élément de valence 3 est proche de 5% au démarrage (5,5% de plutonium dans l'état initial), il est probable que cette limite impose un débit de retraitement limite le temps que le plutonium disparaisse.

### 3.1.3.2 La régénération

Nous définissons le taux de régénération instantané par l'équation 3.7. Ce taux de régénération peut se calculer dans le sel combustible ou dans le sel de couverture ; ainsi, pour connaître le taux de régénération de l'ensemble du système, il faut sommer les deux composantes.

$$BR = \frac{\tau_{capt}^{Th^{232}} - \tau_{capt}^{Pa^{231}}}{\tau_{abs}^{U^{233}}} \quad (3.7)$$

La figure 3.3 présente l'évolution de ce terme en fonction du temps de retraitement pour le sel de coeur (trait pointillé) et pour l'ensemble du système (trait plein). Comme

prévu au paragraphe précédent, de petites variations sur le temps de retraitement ne changent pas considérablement le gain de régénération, et il faut des temps très longs avant de le dégrader de manière significative. Dans la configuration nominale, le gain de régénération total du système est de 1,07. Notons que le coeur seul n'est jamais isogénérateur, ce qui semble favorable pour des raisons de sûreté du point de vue du couplage entre la neutronique et le retraitement. En effet, si le retraitement s'arrête pour des raisons diverses, la quantité de matière fissile dans le coeur diminue, ce qui conduira à l'arrêt du réacteur.

Le bilan neutronique n'est finalement pas tendu et on peut se permettre une grande flexibilité sur le retraitement global du sel combustible. La limite de la régénération est atteinte pour un temps de retraitement de plus de 7000 jours.

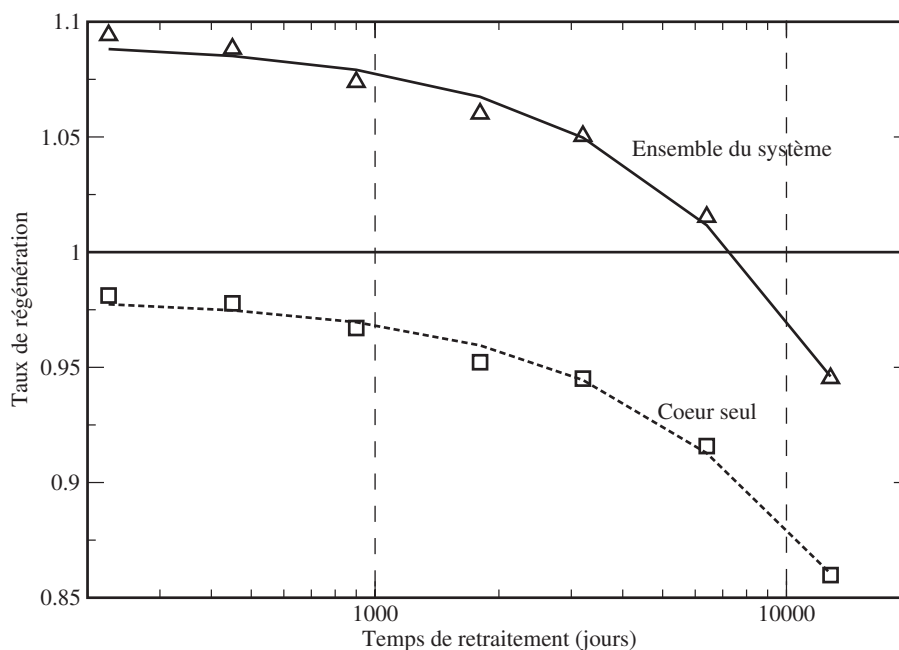


FIGURE 3.3: Evolution de la régénération en fonction du temps de retraitement

### 3.1.3.3 Les coefficients de sûreté

#### Les coefficients de température

Les coefficients de température donnent la variation du coefficient de multiplication effectif ( $k_{eff}$ ) en fonction d'une variation de température. L'évaluation des coefficients de température est la première étape dans les considérations de sûreté des réacteurs nucléaires. En effet, ce sont eux qui définiront la stabilité du réacteur en cas d'insertion de réactivité et donc d'élévation de la température. La sûreté est dite intrinsèque si la population de neutrons a tendance à baisser alors que la température augmente : les coefficients de température sont négatifs. Par habitude, deux composantes sont distinguées : le coefficient Doppler, qui quantifie la modification des données nucléaires en fonction de la température, et le coefficient de densité du sel, qui peut être assimilé à un coefficient de vide. La variation de ces coefficients en fonction du temps de retraitement est représentée dans la figure 3.4. De la même manière que la régénération,

il faut attendre des temps de retraitement très longs avant de pouvoir distinguer un effet. Notons que même avec un retraitement effectué en 10000 jours, les coefficients de contre-réactions sont toujours négatifs.

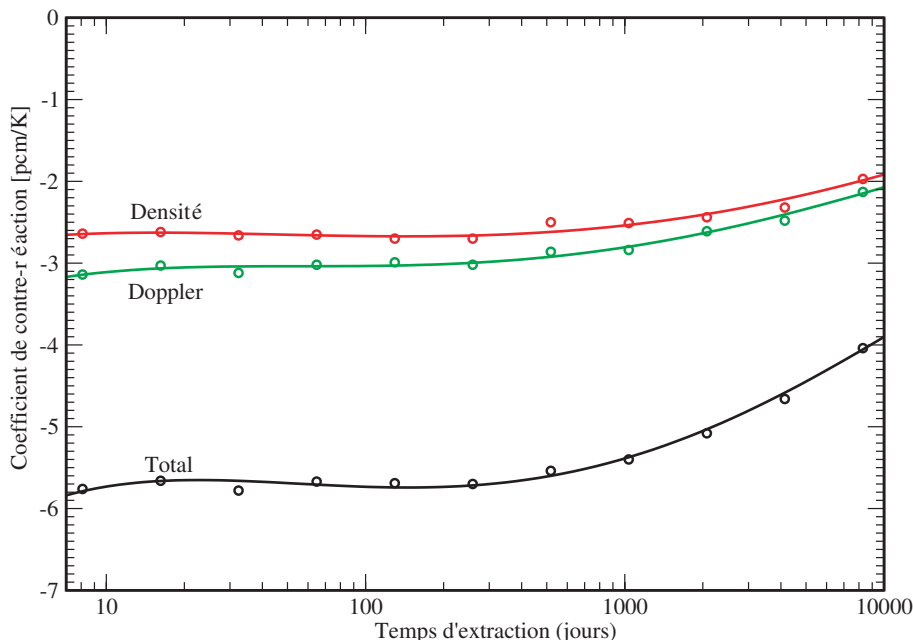


FIGURE 3.4: Coefficients de température, fonction du temps de retraitement

### La fraction de neutrons retardés

La fraction de neutrons retardés est la deuxième donnée fondamentale pour évaluer la sûreté du réacteur. C'est cette donnée qui va définir la nervosité du pilotage, et elle doit être la plus élevée possible pour que le pilotage du réacteur soit aisé. Dans le cas des RSF, et plus particulièrement dans notre configuration, l'évaluation de cette fraction effective de neutrons retardés est délicate. Une certaine partie des précurseurs sont extraits par bullage alors que d'autres vont décroître à l'extérieur du coeur (leur contribution au pilotage est donc nulle). Plusieurs travaux parlent du problème de l'entraînement des précurseurs par l'écoulement du sel [Du-04, Pe-03]. On s'attache dans ce paragraphe à regarder l'influence d'un bullage plus ou moins efficace sur l'extraction éventuelle de précurseurs de neutrons retardés.

Les grandes familles de précurseurs sont rappelées dans le tableau 3.3 [Ke-65]. Une part non négligeable de ces précurseurs est susceptible d'être extraite par un bullage performant. Le temps caractéristique du bullage dans le cas nominal est de 30 secondes, mais pourrait être plus faible comme nous le verrons dans la troisième section de ce chapitre.

Nous avons quantifié cette part de neutrons retardés perdus dans le bullage, représentée dans la figure 3.5 en considérant chaque isotope créé par la fission des différents isotopes fissionnants. Les éléments que nous avons identifiés comme pouvant être extraits par le bullage sont présentés dans le tableau 3.4 (seuls les éléments dont la demi-vie est supérieure à 1 seconde sont présentés dans ce tableau).

Un bullage très efficace (temps caractéristique d'extraction associée de 2s) implique



Type de précurseurs	$^{87}Br$	$^{137}I$	$^{88}Br$	$^{93}Rb$	$^{139}I$	$^{91}Br$	$^{96}Rb$
Demie vie	55,9 s	24,5 s	16,4 s	5,85 s	2,3 s	0,54 s	0,199 s
Abondance	0,0742	0,1679	0,1209	0,1915	0,3533	0,0684	0,0240

TABLE 3.3: Groupes de neutrons retardés [Ke-65]

une perte de 6%, des neutrons retardés ce qui est bien plus faible que les valeurs annoncées pour les décroissances hors du coeur (définies comme le ratio entre le volume du sel combustible dans le coeur sur le volume total). Pour un bullage dont le temps caractéristique serait de 30 secondes, la perte de précurseurs par bullage n'est que de 1%, ce qui est négligeable devant les pertes dues à l'écoulement du sel.

Elément	Période	Abondance (neutrons émis par fission)
Cu-75	1,22 s	$6,65 \cdot 10^{-7}$
Ga-79	2,85 s	$2,60 \cdot 10^{-7}$
Ga-80	1,69 s	$1,60 \cdot 10^{-6}$
Ga-81	1,22 s	$9,54 \cdot 10^{-6}$
As-84	4,02 s	$3,37 \cdot 10^{-6}$
As-85	2,04 s	$2,39 \cdot 10^{-4}$
Se-88	1,53 s	$1,13 \cdot 10^{-5}$
Nb-104	4,90 s	$9,33 \cdot 10^{-7}$
Nb-105	2,95 s	$2,38 \cdot 10^{-5}$
Mo-112	1,00 s	$2,99 \cdot 10^{-8}$
Ru-116	1,70 s	$1,82 \cdot 10^{-7}$
Ag-120	1,23 s	$2,16 \cdot 10^{-8}$
In-127m	3,67 s	$5,46 \cdot 10^{-6}$
Sn-134	1,12 s	$2,52 \cdot 10^{-6}$
Sb-134m	10,2 s	$6,62 \cdot 10^{-7}$
Sb-135	1,75 s	$4,07 \cdot 10^{-5}$
Te-137	2,49 s	$1,86 \cdot 10^{-5}$
Te-138	1,40 s	$7,12 \cdot 10^{-6}$
Xe-141	1,73 s	$1,25 \cdot 10^{-6}$
Xe-142	1,22 s	$2,66 \cdot 10^{-6}$

TABLE 3.4: Précurseurs de neutrons retardés pouvant être extraits par le bullage

### 3.1.3.4 Le potentiel électrochimique

Il est important de noter que le potentiel électrochimique du bain est piloté par le rapport  $\frac{UF_3}{UF_4}$  proche d'une valeur de 0,01, ce qui signifierait que l'on a 100 fois plus d' $UF_4$  que d' $UF_3$ . Malheureusement, la fission crée deux produits de fission qui ne sont pas des tétrafluorures. Le produit de fission moyen est de valence  $3/2$  (un PF est sous forme trifluorure, l'autre sous forme métallique ou gazeuse) comme on peut le voir dans le tableau 3.5 : un produit de fission est émis à une valence de 0 et un autre à une valence 3. Un décalage de l'équilibre en uranium est attendu et il va donc se produire

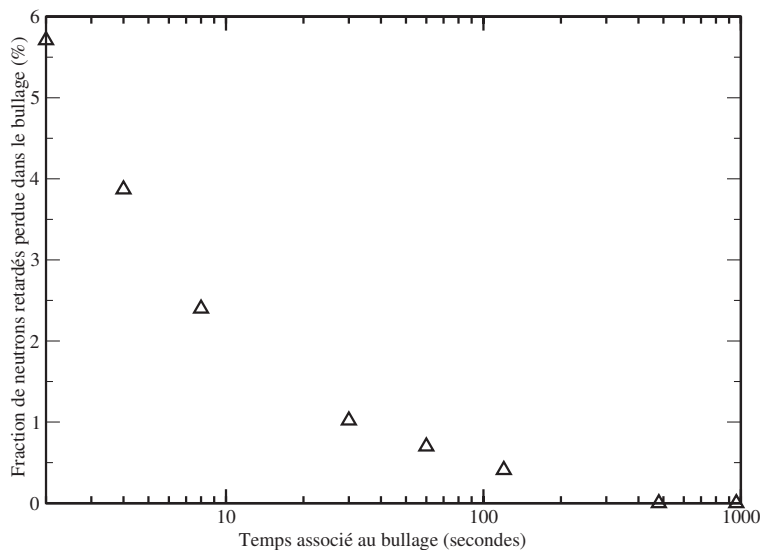
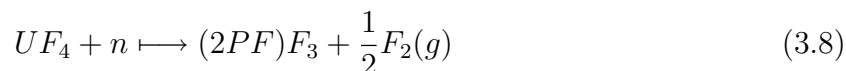


FIGURE 3.5: Proportion de neutrons retardés perdue en fonction du temps de bullage

un décalage du potentiel redox du sel combustible selon le mécanisme explicité par les réactions 3.8 et 3.9.



Les isotopes plus lourds que l'uranium sont aussi de valence 3, et nous pouvons supposer que chaque disparition d'uranium est en fait la disparition d'un uranium de valence 3 à cause du décalage de l'équilibre. Les simulations numériques indiquent que le taux de disparition de l'uranium est de 16,2 moles par jour, le potentiel électrochimique risque de dévier petit à petit lors du fonctionnement. Le décalage du potentiel, dans le cas nominal, est de 4,3 mV par jour calculé grâce à la relation de Nernst (le détail du calcul est explicité en annexe A).

Produit de fission	Rendement (Y)	Degré d'oxydation probable (Z)	Produit (Y.Z)
Br + I	0,015	-1	-0,015
Kr + Xe + métaux nobles	1.006	0	0
Rb + Cs	0,004	1	0,004
Sr + Ba	0,072	2	0,144
Lanthanides + Y	0,538	3	1,644
Zr	0,318	4	1,272
Total	1,953		3.049

TABLE 3.5: Valence des différents PF

Ce décalage du potentiel, loin d'être négligeable, est tout à fait tolérable si le retraitement est intégré dans le fonctionnement du réacteur. En effet, dans la première

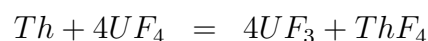
étape de fluoration du sel, l'uranium extrait sous forme  $UF_6$  peut être réinjecté sous forme  $UF_3$  ou sous forme  $UF_4$  selon les besoins. La limite est atteinte lorsque tout l'uranium extrait est réinjecté sous forme trifluorure. Le débit de retraitement (extraction et réinjection d'uranium) doit donc être supérieur au débit de disparition de l'uranium par absorption neutronique pour pouvoir compenser la conversion de  $U^{3+}$  en  $U^{4+}$ . Comme il y a environ 32750 moles d'uranium en coeur, le temps de retraitement limite, associé au décalage du potentiel dû à la fission du tampon redox, est de  $\frac{32750}{16.2}$  soit 2000 jours environ. Ce temps limite est bien plus faible que tous les temps précédemment calculés et liés à la neutronique.

Une autre solution pourrait être d'alimenter le réacteur à l'aide de thorium métallique pour compenser la disparition d'uranium de valence 3. Cette solution n'est pas étudiée plus en détail dans ce travail.

### 3.1.4 Bilan sur le comportement global du retraitement

Nous pouvons résumer de manière un peu plus concise les grandes tendances du retraitement lorsque il est considéré sous sa forme globale.

- Les produits de fission ont une contribution neutronique globale très faible, c'est-à-dire qu'ils absorbent très peu de neutrons en comparaison des noyaux lourds. Par conséquent, nous pouvons imaginer ralentir grandement le débit de retraitement sans perturber les bonnes caractéristiques neutroniques du MSFR
- Les simulations ont montré qu'un sel combustible retraité en 7000 jours permet au réacteur d'être toujours régénérateur et d'avoir des coefficients de contre-réaction négatifs. Ce temps est suffisamment court pour extraire les lanthanides sans voir le plutonium atteindre sa limite de solubilité.
- Le potentiel redox fixe est choisi grâce au couple de l'uranium  $U^{3+}/U^{4+}$ . Le rapport des concentrations peut varier de 1 à  $1/100$ , comme cela était préconisé dans les rapports de l'ORNL [Ro-73].
- Ce potentiel redox subit un certain décalage pendant le fonctionnement, décalage dû à la fission. En effet, si la forme majoritaire de l'uranium dans le sel est  $UF_4$  alors, les produits de fission (en moyenne) n'ont pas le même degré d'oxydation que l'uranium. De l'uranium est cependant réinjecté dans le réacteur après l'étape de fluoration du retraitement. L'opérateur a donc une certaine latitude pour compenser ce décalage du potentiel redox. La limite obtenue grâce à ces considérations est atteinte lorsque l'ensemble du sel combustible est retraité en un temps de 2000 jours environ. Cette limite est plus sévère que les limites neutroniques que nous avons identifiées auparavant.
- Il est possible de compenser ce décalage en alimentant avec du thorium métallique. L'équilibre opposé (sensé compenser l'effet dû à la fission) est :



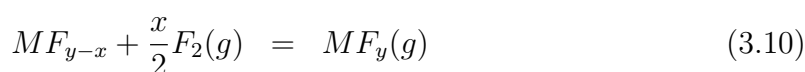
L'effet est donc beaucoup plus efficace que l'alimentation en  $UF_3$  ; cependant, il est possible que la réaction ne soit pas totale et qu'il subsiste un certain résidu de thorium métallique, c'est pourquoi cette solution doit être étudiée plus en détail.

## 3.2 L'unité pyrochimique

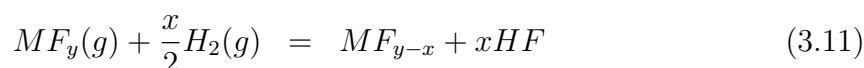
### 3.2.1 La fluoration

#### 3.2.1.1 Principe de base et besoin énergétique

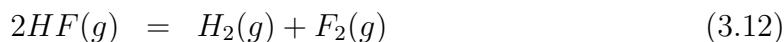
Cette étape a pour but d'extraire les éléments qui sont sous forme gazeuse quand ils sont à de haut degré d'oxydation. L'uranium, le neptunium et le plutonium en ce qui concerne les actinides, ou le nobium, le ruthénium, le tellure, le molybdène, le chrome ou encore le tchénetium en ce qui concerne les produits de fission sont de parfaits exemples. L'idée de la fluoration est de mettre en contact le sel avec du fluor gazeux pour favoriser la réaction 3.10.



où  $M$  représente l'élément à fluorer,  $y - x$  représentant la valence de  $M$  dans le sel. La réduction des éléments peut se faire par hydrogénation selon la réaction 3.11.



On peut alors équilibrer le processus en synthétisant le fluor et le dihydrogène par la décomposition électrochimique d'HF grâce à 3.12.



L'enthalpie libre ( $\Delta_r G^0$ ) de cette réaction dans le cas standard (calculé par HSC, logiciel basique de thermochimie) est de 550 kJ à 100°C (température approximative des procédés industriels de décomposition du HF). Cette valeur est positive, ce qui signifie qu'il faut fournir de l'énergie pour qu'elle se produise.

En utilisant la relation 3.13 qui lie le potentiel de pile dans l'état standard ( $E^\circ$ ) à l'enthalpie de réaction (en faisant intervenir le nombre d'électrons échangés  $n$ , 2 dans ce cas, et la constante de Faraday  $F$ ), la différence de potentiel à appliquer pour réaliser cette synthèse est donc de  $E^\circ = 2,88V$ .

$$\Delta_r G^0 = nFE^\circ \quad (3.13)$$

Comme toute constante de réaction, cette différence de potentiel dépend de la température ; ici, les chiffres sont donnés à titre indicatif à 700°C, ce qui paraît être un ordre de grandeur correct devant la température du sel combustible.

Dans le cas du retraitement dans le cas nominal (retraitement de la totalité du sel combustible en 450 jours), on extrait 40 litres de sel par jour ce qui correspond à environ 16,9 kg d'uranium, 320 g de neptunium et 670 g de plutonium. Les enthalpies libres de réaction de réduction avec l'hydrogène et d'oxydation avec le fluor sont représentées dans le tableau 3.6 et nous vérifions qu'elles sont toutes négatives.

Element	Oxydation avec le fluor	Réduction avec l'hydrogène
Uranium	$UF_4 + F_2(g) = UF_6(g)$ -242 429 J	$UF_6(g) + H_2(g) = UF_4(g) + 2HF(g)$ -199 629 J
Neptunium	$NpF_3 + F_2(g) = NpF_5(g)$ -328 773 J	$NpF_5(g) + H_2(g) = NpF_3 + 2HF(g)$ -227 907
Plutonium	$PuF_3 + \frac{3}{2}F_2(g) = PuF_6(g)$ -132 964 J	$PuF_6(g) + \frac{3}{2}H_2(g) = PuF_3(g) + 3HF(g)$ -505 618 J

TABLE 3.6: Enthalpie libre de réaction (à 700°C)

La seule étape qui demande un apport énergétique est donc la régénération des gaz. Pour extraire, et réinjecter les 16,9 kg d'uranium (soit 72,5 moles), il faut donc la même quantité (en mole) de fluor (sous forme  $F_2$  gazeux) et de dihydrogène. Il faut alors former 72,5 moles des deux gaz pour l'uranium. On peut faire le même raisonnement pour le plutonium et le neptunium et on trouve alors qu'il faut 78,1 moles de gaz pour extraire tous les actinides. Les produits de fission qui seront extraits par cette étape sont en quantité telle que nous négligeons les besoins en gaz pour les extraire (les concentrations de ces éléments sont inférieures au ppm, parce qu'ils sont extraits par le système de bullage). Pour assurer cette production de gaz journalière, il faut apporter 2 x 78,1 moles d'électrons sous une tension de 2,8V. Cette quantité de charge représente  $1,51 \cdot 10^7 C$  et si cette production se fait en une journée, elle nécessite un courant continu d'environ 100 A. L'étape de fluoration des actinides consomme donc 488 W en continu si la totalité du procédé (extraction et dés-extraction) est faite en 24 heures (ce qui est complètement négligeable devant les 1,5  $GW_e$  fournis par le système). L'énergie à fournir est d'environ 42 MJ. Cette énergie ne représente que le minimum à fournir et n'est en aucun cas un bilan des étapes oxydation par fluoration puis réduction par hydrofluoration. Elle donne toutefois une idée de l'ordre de grandeur des besoins énergétiques pour cette opération. Notons que les énergies récupérables dans le procédé par les réactions chimiques exothermiques ne sont pas mentionnées, puisqu'aucun dispositif de récupération d'énergie n'est encore prévu ni étudié.

### 3.2.1.2 Situation technologique

La fluoration est peut-être le procédé le mieux connu de l'ensemble du schéma de retraitement. Sa faisabilité n'est plus à démontrer puisque Areva NC, par le biais de la Comurhex, a produit, par exemple, 13 700 tonnes d'hexafluorure d'uranium naturel en 2007 sur le site de Tricastin pour alimenter l'unité Eurodif d'enrichissement [Fr-Nuc]. L'élément initial est de l'uranium sous forme de tétrafluorure d'uranium et la fluoration se fait dans un réacteur à flamme. Le débit nominal de fluoration est d'environ 43200 kg d'uranium gazeux produits par jour.

Même si l'environnement est très différent (hautes températures dues aux sels fondus et forte radiation), les débits de matière sont bien inférieurs. En effet, même dans la configuration nominale avec un retraitement du sel combustible en 450 jours, on ne fluore que 17 kg d'uranium par jour. Dans ces conditions, on peut tout à fait envisager un procédé du même type que celui développé par l'ORNL dans ses études sur le MSBR. L'idée était de faire tomber des gouttes de sel dans un flux montant de fluor [Ma-68]. Il ressort qu'en faisant tomber des gouttes de 100  $\mu m$  de diamètre sur une hauteur de 3.35 m à 650°C, on arrive à oxyder plus de 99,9% de l'uranium et 99% du plutonium. Les solvants n'étaient pas les mêmes (différents sels ont été utilisés : NaF-

ZrF<sub>4</sub>-UF<sub>4</sub>, NaF-LiF-ZrF<sub>4</sub> et LiF-BeF<sub>2</sub>) mais rien ne permet de dire que les résultats seront fondamentalement différents dans un sel de thorium. Les temps mentionnés dans [Ma-68] sont extrêmement courts : de l'ordre de la dizaine de secondes. Les quantités de matière à extraire sont certes faibles, mais il est tout à fait raisonnable d'envisager un procédé relativement rapide (quelques heures) pour extraire les 17 kg d'uranium et les 670 grammes de plutonium (dans le scénario où l'on retraiterait tout le coeur en 450 jours). Le schéma utilisé pour ces études est présenté dans la figure 3.6.

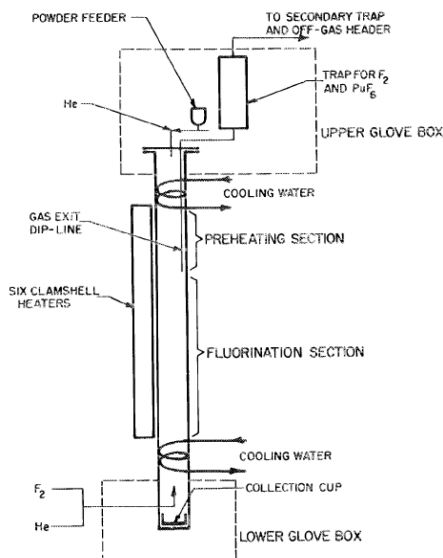


FIGURE 3.6: Schéma de fluoration

Des travaux plus récents sur la fluoration des combustibles usés des réacteurs à eau pressurisée [Uh-09] confirme l'efficacité d'extraction de l'uranium et du plutonium mais apporte un bémol sur les résultats de l'ORNL en ce qui concerne l'extraction du neptunium (ce travail mentionne une extraction du neptunium à 70% maximum alors que l'ORNL parle de 99%). L'ORNL insiste sur le fait que le protactinium ne peut être extrait par cette méthode (il resterait en solution) alors que plusieurs chimistes évoquent le contraire [Ig-10]. Les dernières manipulations montreraient que la cinétique de fluoration du protactinium serait telle (quelques % par heure) que le protactinium n'aurait pas le temps de passer en phase gazeuse dans les temps de la fluoration.

On supposera donc que l'étape de fluoration est assez rapide (~1 heure) mais que l'étape de décomposition du HF est plus lente (~20 heures) pour limiter le courant et consommer une puissance plus faible et plus répartie au court du temps. Le cas nominal de notre étude sous-entend une extraction par fluoration de 99% de l'uranium et du neptunium et de 90% du plutonium.

### 3.2.2 Les échangeurs chimiques

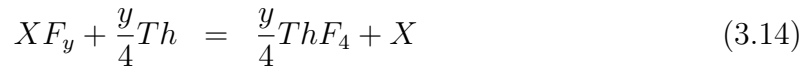
Les échangeurs contre-courant sont au nombre de trois dans le procédé de retraitement défini précédemment. Ils représentent un rôle essentiel puisque ce sont eux qui assurent la séparation des actinides avec les lanthanides. Deux de ces échangeurs ont des échanges entre une nappe de bismuth enrichi en thorium et le sel combustible, le

troisième est un échange avec un sel chlorure (typiquement un mélange LiCl-KCl) et la nappe de bismuth qui porte les lanthanides. Nous présentons dans ce paragraphe leurs principes de fonctionnement ainsi que la manière dont on simule ces éléments.

### 3.2.2.1 Principe de base

#### Considération générale

Le principe de base des échangeurs contre-courant repose sur un équilibre pour chaque élément entre une phase métal et une phase saline. L'idée développée à l'ORNL, et reprise plus tard par EDF [Ja-63] est de mettre en contact une nappe de bismuth enrichi en lithium et le sel combustible pour un échange. Le lithium dissous dans la phase métal passe alors dans la phase sel, et les éléments à extraire passent dans le métal. Une explication du principe de fonctionnement est accessible dans la thèse de L.Mathieu [Ma-05]. Le principe envisagé à présent reste le même, sauf que l'élément sur lequel est basé l'échange est le thorium, l'équation chimique peut donc s'écrire comme la relation 3.14 :



La constante de réaction s'écrit alors comme la relation 3.15.

$$K = \frac{a_X \cdot (a_{ThF_4})^{y/4}}{a_{XF_y} \cdot (a_{Th})^{y/4}} \quad (3.15)$$

où  $a_i$  est l'activité de l'élément  $i$  que l'on peut définir comme  $a_i = \gamma_i [i]$  ;  $[i]$  est la fraction molaire et  $\gamma_i$  est le coefficient d'activité. Nous pouvons donc récrire l'équation 3.15 comme l'expression 3.16.

$$K = \frac{\gamma_X \gamma_{ThF_4}^{y/4} [X] [ThF_4]^{y/4}}{\gamma_{XF_y} \gamma_{Th}^{y/4} [XF_y] [Th]^{y/4}} \quad (3.16)$$

Il est impossible de trouver dans la littérature les coefficients d'activités des différentes espèces dans le sel, par conséquent nous faisons l'hypothèse que le rapport des coefficients d'activité dans la phase sel ( $\frac{\gamma_{ThF_4}^{y/4}}{\gamma_{XF_y}}$ ) est proche de 1 [Bo-10]. En faisant intervenir la définition des coefficients de partage (3.17) :

$$D_X = \frac{[X]}{[XF_y]} \quad (3.17)$$

nous pouvons écrire la relation 3.15 en 3.18.

$$D_X = K \cdot D_{Th}^{y/4} \cdot \frac{\gamma_{Th}}{\gamma_X} \quad (3.18)$$

Ce qui peut s'écrire encore comme 3.19 :

$$\log(D_X) = \frac{y}{4} \log(D_{Th}) + \log\left(K \frac{\gamma_{Th}^{y/4}}{\gamma_X}\right) \quad (3.19)$$

ou comme 3.20, avec  $u = K \frac{\gamma_{Th}^{y/4}}{\gamma_X}$ .

$$D_X = 10^u D_{Th}^{y/4} \quad (3.20)$$

La concentration de thorium étant connue dans le sel et maîtrisée dans le bismuth,  $D_{Th}$  peut être fixé. Les valeurs des coefficients de partage se calculent alors en écrivant chaque équation chimique. Les valeurs des constantes de réaction sont données grâce au logiciel de thermodynamique chimique HSC et celles des coefficients d'activités dans le bismuth sont extraites des références [Le].

Pour vérifier la faisabilité du procédé, il faut s'assurer que séparer les actinides des lanthanides est une opération possible; pour cela, nous calculons les coefficients de partage en thorium qui sont représentés dans la figure 3.7 (les courbes pointillées correspondent aux actinides, et celles en trait plein aux lanthanides).

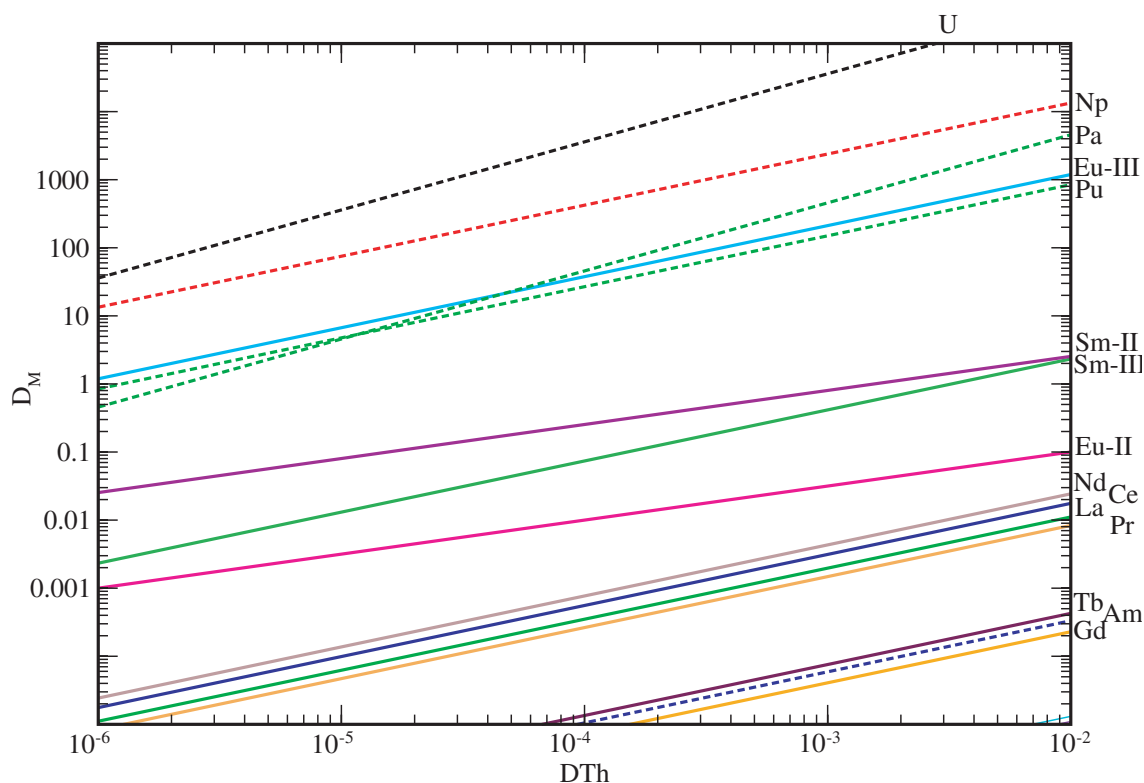


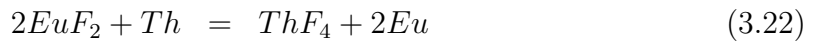
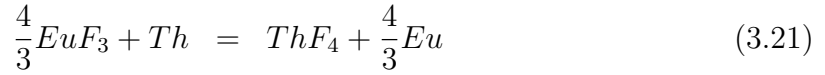
FIGURE 3.7: Représentation des coefficients de partage entre une nappe de bismuth liquide enrichi en thorium et un sel fluorure.

Nous pouvons déjà identifier deux éléments pour lesquels le comportement est curieux : l'américium et l'euporium. Pour l'américium, les calculs nous montrent qu'il est très stable dans le sel et que l'équilibre entre l' $AmF_3$  et  $Am$  est largement du côté de l' $AmF_3$ , ce qui implique que l'américium ne devrait pas être extrait du sel à la première extraction réductrice. Par conséquent, l'américium devrait suivre le flux des produits de fission et se retrouver au stockage. Les données trouvées dans la bibliographie [Le-92] ne confirment pas cette tendance comme nous le verrons dans le paragraphe suivant. Les données de HSC sont vraisemblablement erronées, comme peut le montrer les travaux de Rudy Konnings à l'ITU [Ko]. Nous présenterons cependant dans le chapitre

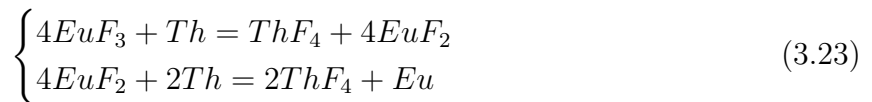


5 sur la sensibilité du réacteur au retraitement les conséquences d'une extraction de l'américium.

En ce qui concerne l'euporium, nous avons représenté sur ce graphique deux formes possibles de l'euporium, à deux degrés d'oxydation différents II et III. Les équilibres correspondants pour tracer ces courbes sont les équilibres 3.21 et 3.22.



Les calculs HSC montrent que l'équilibre 3.21 serait très déplacé vers la droite, alors que l'équilibre 3.22 est plutôt déplacé vers la gauche. Il subsiste un doute sur la forme chimique de l'euporium dans le sel (degré d'oxydation II ou III), mais il est probable que, si l'euporium est sous forme  $EuF_3$ , sa réduction se passe en deux étapes selon le schéma 3.23 [Gi-09] (voir aussi la référence [Fe-71] pour le cas d'un sel LiF-BeF<sub>2</sub>-ThF<sub>4</sub>) :



La courbe liée à l'euporium III de la figure 3.7 ne peut donc pas être directement exploitée. Cependant, la courbe représentant l'euporium II nous montre que celui-ci possède un comportement proche de celui des autres lanthanides. Il devrait suivre le flux classique des produits de fission.

### Validation de la démarche

Dans le but de valider le calcul des coefficients de partage du paragraphe précédent, nous avons essayé de retrouver les coefficients de partage donnés dans l'étude bibliographique présente dans la thèse de Florent Lemort [Le-92], dont les données sont tirées des travaux de Ferris [Fe-70]. L'échange, entre une nappe métallique et un sel LiF-BeF<sub>2</sub>-ThF<sub>4</sub> se faisait avec du lithium selon la réaction 3.24 :



Nous pouvons écrire une relation similaire à 3.19 en faisant apparaitre la grandeur  $D_{Li}$  coefficient de partage entre  $LiF$  dans le sel et  $Li$  dans le métal (équation 3.25).

$$\log(D_X) = y \log(D_{Li}) + \log(K'_X) \quad (3.25)$$

où  $K'_X$  représente le produit de la constante de la réaction 3.24 par le rapport des coefficients d'activité dans le métal. En appliquant l'équation 3.25 au thorium et la relation 3.19 au lithium, nous pouvons écrire le système d'équation 3.26.

$$\begin{cases} D_{Li} = K'_{Li} D_{Th}^{1/4} \\ D_{Th} = K_{Th} D_{Li}^4 \end{cases} \quad (3.26)$$

Pour des raisons de lisibilité dans le raisonnement, nous noterons  $K_{Th}$  la constante de réaction précédemment définie comme  $K$ . D'autre part, pour chaque élément  $X$ , les équilibres avec le thorium et le lithium s'expriment par le système d'équations 3.27.

$$\begin{cases} D_X = K_X D_{Th}^{y/4} \\ D_X = K'_X D_{Li}^y \end{cases} \quad (3.27)$$

En combinant les équations des deux systèmes, nous pouvons écrire l'expression 3.28

$$D_X = K_X (K'_{Th})^{y/4} D_{Li}^y \quad (3.28)$$

et en déduire 3.29

$$K'_X = (K'_{Th})^{y/4} K_X \quad (3.29)$$

Nous avons donc l'expression de la constante de réaction pour un échange basé sur le lithium ( $K'_X$ ) en fonction de la constante de réaction pour un échange basé sur le thorium ( $K_X$ ) comme métal réducteur. Les données présentes dans la thèse de F.Lemort et tirées d'études expérimentales permettent donc de calculer les constantes de réaction pour les quelques éléments considérés. La comparaison avec notre calcul est effectué dans le tableau 3.7.

Elément	Calcul	Donnée	Elément	Calcul	Donnée
Pa	$2.10^{13}$	$3.10^{12}$	Nd	$3.10^6$	$6.10^6$
Np	$4.10^{12}$	$6.10^{10}$	Sm	$2.10^5$	$3.10^7$
Pu	$3.10^{10}$	$1.10^{10}$	Eu	$6.10^{10}$	$7.10^7$
Am	$9.10^5$	$6.10^9$	La	$2.10^6$	$4.10^6$

TABLE 3.7: Comparaison des constantes de réactions avec le lithium ( $K'_X$ ) tirées des données de [Le-92] avec notre calcul

Cette comparaison a aussi été effectuée pour l'échange avec le sel chlorure. Les ions qui s'échangent sont alors des ions  $Cl^-$ , le principe restant identique. La comparaison est effectuée dans le tableau 3.8.

Elément	Calcul	Donnée	Elément	Calcul	Donnée
U	$9.10^{11}$	$2.10^{11}$	Nd	$2.10^9$	$4.10^8$
Pa	$3.10^{20}$	$6.10^{17}$	Ce	$9.10^8$	$3.10^8$
			La	$4.10^8$	$1.10^8$

TABLE 3.8: Comparaison des constantes de réaction entre une nappe métallique et un sel chlorure avec le lithium comme réducteur

Nous pouvons voir que les résultats de notre calcul ne sont pas en très bon accord avec les données de la littérature. Les tendances sont toutefois assez bien fidèles. La

figure 3.7 montre par exemple qu'une séparation quantitative lanthanides/actinides est possible. Comme nous le verrons dans le paragraphe suivant, l'incertitude de ces données impacte directement l'efficacité d'extraction. La confiance que nous avons dans ce calcul est donc faible et dans la suite, nous préférons utiliser les données bibliographiques lorsqu'elles existent. Pour les éléments dont nous avons trouvé un coefficient d'activité dans le bismuth dans la littérature, et pour lesquelles nous n'avons pas de données, nous choisirons le calcul thermodynamique. Et enfin, pour les autres éléments (Pm ( $Z=61$ ); Ho( $Z=67$ ); Tm( $Z=69$ ); Yb( $Z=70$ ) et Lu( $Z=71$ )) nous choisirons la valeur la plus pessimiste (celle qui donne l'efficacité d'extraction la plus faible). Nous présentons un exemple des données utilisées dans le tableau 3.9. Les valeurs de  $u$  correspondent à la relation 3.20, utilisée dans le programme d'évolution en référence à la relation 3.19.

Element (Actinides)	Valence	$u$	Element (Lanthanides)	Valence	$u$
Protactinium	1	3,4	Neodyme	0,75	-0,03
Uranium	1	7,6	Lanthane	0,75	-0,3
Neptunium	0,75	3,8	Samarium	0,65	-0,1
Plutonium	0,75	3,2	Europium	0,5	-0,7
Americium	0,75	3,0	Cerium	0,75	-0,3
Curium	0,75	2,3	Praséodyme	0,75	-0,6
			Gadolinium	0,75	-2,14
Element (autre PF)	Valence	Offset	Terbium	0,75	-3,5
Zirconium	1	5,6	Dysprosium	0,75	-1,9
Yttrium	0,75	-4,1	Holmium	0,75	-0,025
			Erbium	0,75	-3,4
			Autres (Pm, Ho, Yb et Lu)	0,75	-0,025

TABLE 3.9: Résumé des valences et des  $u$  pris en compte dans le programme d'évolution pour calculer les coefficients de partage entre une nappe de bismuth à saturation de thorium et le sel combustible (le terme valence représente une valence relative à celle du thorium)

### 3.2.2.2 Efficacité d'extraction

La figure 3.7 montre qu'il est facile d'extraire les actinides du sel combustible. En effet, la nappe de bismuth en contact avec le sel étant à saturation en thorium (concentration de celui-ci de  $2.10^{-3}$  [Po-74]), et la fraction de thorium dans le sel étant de 0,187, le coefficient de partage du thorium ( $D_{Th}$ ) est fixé à  $1,07.10^{-2}$ , ce qui signifie que les actinides sont très préférentiellement dans le métal. Dans le cas des lanthanides, l'équilibre est largement déplacé vers le domaine du sel. Il est donc possible de n'extraire qu'une faible proportion de ces éléments. Cependant, en répétant l'opération plusieurs fois, il est possible d'arriver à des rendements d'extraction satisfaisants.

Pour calculer l'efficacité d'extraction des lanthanides, raisonnons sur le cas imagé par la figure 3.8 pour un isotope donné.

Le sel contenant une fraction molaire  $x_0$  d'un élément considéré est tout d'abord mis en contact avec la nappe de bismuth. Un équilibre est atteint et, lorsque le contact est

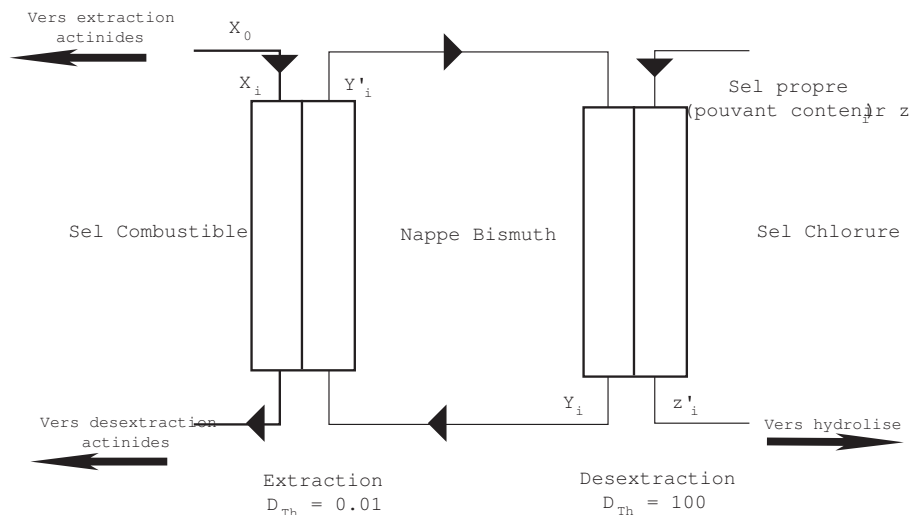


FIGURE 3.8: Image de l'extraction des lanthanides grâce à deux échangeurs couplés

rompu, il reste une fraction molaire  $x_1$  dans le sel. Notons  $(x_i)_{i \in \mathbb{N}}$  la suite des fractions molaires de l'espèce considérée dans le sel. Nous pouvons définir de la même manière la suite  $(y_i)_{i \in \mathbb{N}}$  la suite des fractions molaires dans le métal avant le contact et  $(y'_i)_{i \in \mathbb{N}}$  la suite des fractions molaires après contact avec le sel combustible. Enfin, nous pouvons définir  $(z_i)_{i \in \mathbb{N}}$  la suite des fractions molaires dans le sel chloré avant le contact entre ce sel et la nappe de bismuth, et la suite  $(z'_i)_{i \in \mathbb{N}}$  des fractions molaires dans le sel chloré, après le contact. Le fonctionnement peut donc s'exprimer par une suite d'opérations simples pour l'étape considérée :

- Contact entre le sel combustible qui contient  $x_i$  et la nappe de bismuth qui contient  $y_i$ .
- Après mise à l'équilibre, le contact entre le sel combustible et la nappe de bismuth est rompu ; il reste  $x_{i+1}$  dans le sel et on a  $y'_i$  dans le métal.
- La nappe de bismuth ( $y'_i$ ) est mise en contact avec la nappe de chlorure qui contient  $z_i$  à l'état initial. Généralement  $z_i \rightarrow 0$  puisqu'elle a été préalablement nettoyée par hydrolyse.
- Une fois l'équilibre atteint et le contact rompu, il reste  $y_{i+1}$  dans la nappe métallique et  $z'_i$  dans la nappe chlorure.  $z'_i$  devrait être extrait du système par hydrolyse du sel (donc avec une efficacité très grande, proche de 100%).

Si le procédé compte  $n$  cycles, la nappe de bismuth circule  $n$  fois alors que le sel combustible reste immobile. On compte aussi  $n$  opérations de desextraction des lanthanides vers le sel chlorure et  $n$  hydrolyses.

Les équations qui régissent chaque étape sont les expressions 3.30, 3.31, 3.32 et 3.33 où  $D^F$  (resp.  $D^C$ ) est le coefficient de partage de l'isotope considéré entre la nappe de bismuth et le sel combustible (resp. entre la nappe de bismuth et le sel chlorure) et  $N^F$ ,  $N^C$  et  $N^M$  représentent les quantités considérées (en mole) du sel combustible, du sel chloré et de la nappe de bismuth.

$$D^F = \frac{y'_i}{x_{i+1}} \quad (3.30)$$

$$D^C = \frac{y_{i+1}}{z'_i} \quad (3.31)$$

$$x_i N^F + y_i N^M = y'_i N^M + x_{i+1} N^F \quad (3.32)$$

$$y'_i N^M + z_i N^C = z'_i N^C + y_{i+1} N^M \quad (3.33)$$

Les équations 3.30 et 3.31 sont les expressions des équilibres alors que les équations 3.32 et 3.33 sont les expressions de la conservation des quantités de matière.

La résolution de ce système conduit à l'expression 3.34.

$$x_{i+1} = x_i \left[ 1 - \frac{N^M N^C D^F}{(N^C + N^M D^C)(N^F + N^M D^F)} \right] + z_{i-1} \left[ \frac{N^C N^M D^C}{(N^C + N^M D^C)(N^F + N^M D^F)} \right] \quad (3.34)$$

Dans la majorité des cas,  $z_i = 0$  puisque les lanthanides sont extraits par électrolyse : procédé dont nous supposons l'efficacité comme égale à 1.  $z_i$  peut être différent de 0 si on considère ces équations pour les éléments constitutifs du solvant. Cependant, ces équations sont fausses pour ces éléments puisque l'activité du solvant ne peut être considéré comme sa fraction molaire. En effectuant cette simplification dans la relation 3.34, on obtient 3.35.

$$x_i = x_0 \left[ 1 - \frac{N^M N^C D^F}{(N^C + N^M D^C)(N^F + N^M D^F)} \right]^i \quad (3.35)$$

Le lecteur pourra s'assurer que la fraction est toujours inférieure à 1 donc, le terme dans la parenthèse est aussi inférieur à 1 quels que soient les valeurs des volumes et des coefficients de partage. Par conséquent,  $x_i$  tend vers 0 si le nombre d'itérations tend vers l'infini. La quantité de PF extraits est finalement la somme des  $N^C z'_i$ . Cette somme peut être approximée, dans le cas où l'équilibre est atteint (et que les concentrations dans la nappe de bismuth sont stables) par  $(x_0 - x_i) N^F$ . Nous pouvons définir l'efficacité d'extraction  $\eta$  comme 3.36 :

$$\eta = \frac{x_0 - x_i}{x_0} = 1 - \frac{x_i}{x_0} \quad (3.36)$$

d'où  $\eta$  peut donc s'estimer grâce à la relation 3.37.

$$\eta = 1 - \left[ 1 - \frac{N^M N^C D^F}{(N^C + N^M D^C)(N^F + N^M D^F)} \right]^i \quad (3.37)$$

L'efficacité de l'extraction dépend donc du nombre de cycles, ainsi que des coefficients de partage en fluorure et en chlorure.

Si  $D^F$  est très grand (ce qui est le cas pour les actinides), alors on a :

$$\eta \rightarrow 1 - \left[ 1 - \frac{N^C}{N^C + N^M D^C} \right]^i$$

Et comme  $D^C$  dans le cas des actinides est aussi grand devant  $N^C/N^M$ , on a, au premier ordre :

$$\eta \sim i \frac{N^C}{N^M D^C}$$

Si  $D^C \ll N^C/N^M$  la fraction tend vers 0 et les actinides vont rester dans le sel fluorure.

Par contre si  $D^F$  est petit devant  $N^F/N^M$  (cas des lanthanides), on a :

$$\eta \rightarrow 1 - \left[ 1 - \frac{N^M N^C D^F}{(N^C + N^M D^C) N^F} \right]^i$$

et comme, pour les lanthanides  $D^C$  est aussi petit, on a :

$$\eta \rightarrow 1 - \left[ 1 - \frac{N^M}{N^F} D^F \right]^i$$

et comme  $D^F \ll N^F/N^M$ , on peut écrire au premier ordre :

$$\eta \sim i \frac{N^M}{N^F} D^F$$

Nous verrons dans le paragraphe suivant que le nombre de cycle nécessaire pour l'extraction des lanthanides est acceptable. Rappelons que les efficacités globales des actinides, à l'inverse que pour les lanthanides, doivent être les plus faibles possibles pour les laisser dans le sel combustible.

### 3.2.2.3 Volume mis en jeu

Comme nous venons de le voir, l'efficacité d'extraction des différents éléments est fonction des quantités de matière de sel et de bismuth mises en jeu. Nous voyons par exemple, que si la quantité de métal est plus importante que la quantité de sel combustible, alors l'extraction des lanthanides sera d'autant plus efficace. De la même manière, nous avons tout intérêt à ce que le volume de sel chloré soit important. Ceci s'explique en imaginant que les quantités de matière effectivement transmises seront d'autant plus importantes que la matrice réceptrice est grande. Plus la quantité de bismuth est importante, plus la quantité absolue de matière transférée du sel combustible vers le

métal est importante. De la même manière, plus le volume de sel chlorure est grand, plus la nappe de bismuth sera nettoyée des produits de fission.

Dans le cas nominal, nous retraits 40 l de sel par jour. Nous pouvons imaginer que pour retraiter ces 40 l de sel, nous disposons de 280 l de LiCl-KCl et de 280 l de bismuth ce qui représente 7 fois plus de métal et de chlorure que de sel combustible. Nous présentons un exemple de calcul des efficacités d'extraction de l'étape d'extraction des lanthanides (cas décrit au paragraphe précédent) pour différents éléments dans le tableau 3.10.

Elément	Coefficient de partage en fluorure ( $D_{Th}^F = 10^{-2}$ )	Coefficient de partage en chlorure ( $D_{Th}^C = 10^2$ )	rendement pour 20 cycles
U	$4.10^5$	100	0,18
Pa	25	$2.10^4$	$1.10^{-5}$
Np	200	42,7	0,37
Pu	50	0,813	1
La	0,016	$7,5.10^{-3}$	0,85
Ce	0,016	0,019	0,85
Nd	0,030	0,030	0,96
Sm	0,025	$5,62.10^{-5}$	0,95

TABLE 3.10: Efficacité de la deuxième extraction réductrices des actinides et des lanthanides

Nous supposons que le mécanisme de réduction de l'uranium s'effectue en deux étapes distinctes : la réduction de  $UF_4$  en  $UF_3$  puis en U métallique. Comme l'uranium est le tampon redox, nous assimilerons ces deux étapes à la dernière. Les coefficients de partage choisis sont donc ceux de l'uranium III.

Les valeurs obtenues montrent bien que l'extraction des lanthanides peut être possible avec des efficacités plutôt satisfaisantes. N'oublions pas qu'à ce stade, les actinides sont sensés être extraits, au préalable, du sel combustible par une fluoration pour U, Np et Pu et par une extraction réductrice pour tous. Les traces de protactinium présentes à ce stade ne seront pas extraites et stockées avec les lanthanides puisque l'efficacité d'extraction de cet élément est très faible. Par contre il y a de forte chance pour que les traces de plutonium restantes suivent les lanthanides.

#### 3.2.2.4 Prise en compte de la cinétique de réaction

Les calculs effectués au paragraphe précédent sont fondés sur l'hypothèse que l'équilibre thermodynamique chimique est atteint. Par ailleurs, nous ne prenons pas en compte la compétition entre les décroissances nucléaires et l'extraction chimique. Ce paragraphe a pour but d'expliquer comment nous prenons en compte la cinétique chimique dans la modélisation de notre procédé.

On représente schématiquement l'échange par la figure 3.9.

Cette figure est fondée sur une série d'hypothèses qui semblent raisonnables. Nous supposons, entre autres, que la mobilité des espèces dans le métal est beaucoup plus importante que celle du sel. La phase limitante est donc la diffusion des éléments dans la phase sel. Notons  $k$  la grandeur qui caractérise ce transfert, on a alors le flux d'atomes

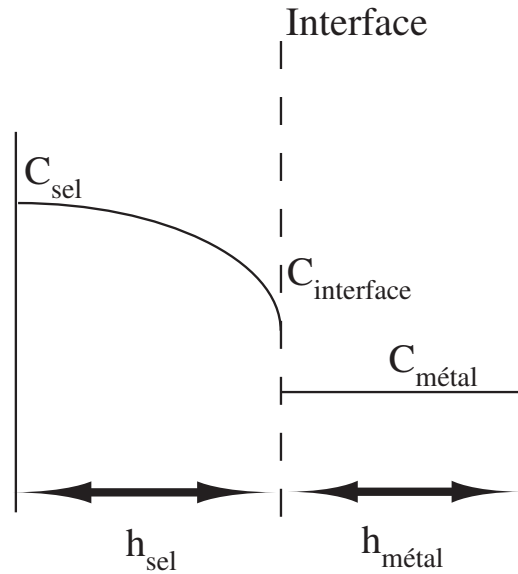


FIGURE 3.9: Représentation schématique des échangeurs contre-courant

$\phi$  (en atomes par unité de temps et de surface) du sel vers l'interface, donné par la relation 3.38 :

$$\phi = k.(C_{sel} - C_{interface}) \quad (3.38)$$

où  $C_{sel}$  et  $C_{interface}$  sont les concentrations des éléments dans le sel et à l'interface. L'équilibre est caractérisé par la constante  $D = \frac{C_{métal}}{C_{interface}}$ , qui n'est autre que le coefficient de partage de l'élément considéré, divisé par le rapport des quantités de métal et de sel. Nous pouvons relier le nombre d'atomes sortants de la phase sel à  $\phi$  par la relation 3.39.

$$\phi = k.(C_{sel} - \frac{C_{métal}}{D}) \quad (3.39)$$

Ces flux peuvent s'exprimer en utilisant les dimensions de l'échangeur ( $S$  la surface et  $h_S$ , resp.  $h_M$ , la hauteur de sel, resp. de métal) selon la relation 3.40.

$$\phi = \frac{k}{S} \cdot (\frac{N_S}{h_S} - \frac{N_M}{h_M D}) \quad (3.40)$$

La concentration s'exprime aussi comme le rapport du nombre d'atomes sur le volume de la phase considérée. On a donc, à l'aide de la relation 3.41

$$\phi = -\frac{1}{S} \frac{dN_S}{dt} \quad (3.41)$$

l'expression 3.42.

$$\frac{dN_S}{dt} = \frac{k}{h_M D} N_M - \frac{k}{h_S} N_S \quad (3.42)$$



En rappelant que le flux de matière dans l'échangeur est une somme d'un transfert de la phase sel vers la phase métal et d'un transfert inverse de la phase métal vers la phase sel, on peut, en identifiant les membres de cette équation, avoir la pseudo-décroissance du transfert du métal 3.43 vers le sel et celle du transfert du sel vers le métal 3.44.

$$\lambda_{\text{métal} \rightarrow \text{sel}} = \frac{k}{Dh_M} \quad (3.43)$$

$$\lambda_{\text{sel} \rightarrow \text{métal}} = \frac{k}{h_S} \quad (3.44)$$

Si l'on veut généraliser cette relation à tout type d'échangeur (goutte de métal chutant dans le sel) ou avec une agitation, l'expression des relations 3.43 et 3.44 n'est plus évidente. Il est toutefois possible de se ramener à un échangeur plan dont le coefficient de transfert  $k$  aurait été modifié. C'est de cette manière que le module SUR du code de calcul, présenté dans le chapitre 2, calcul les temps caractéristiques liés au échangeurs contre-courant.

Comme présenté au cours de ce paragraphe, nous pouvons tout à fait calculer de manière précise les quantités de matière transférées une fois qu'est connu :  $k$  le coefficient de transfert, qui caractérise la diffusion des éléments dans la phase saline, et  $D$  le coefficient de partage qui caractérise l'équilibre thermodynamique de l'échange. Les formules 3.43 et 3.44 nous donnent les pseudo-décroissances liées à ces transferts chimiques. Les deux paragraphes suivant détaillent la sensibilité des constantes cinétiques de mise à l'équilibre à  $k$  et  $D$ , les deux données clefs.

### Transfert du métal vers le sel

Le temps  $T$  caractéristique de ce transfert s'exprime comme la relation 3.45.

$$T \propto \frac{Dh_M}{k} \quad (3.45)$$

On a alors  $\frac{\partial T}{\partial D} \propto \frac{h_M}{k}$  qui peut prendre des valeurs entre 10 et  $10^5$  suivant les valeurs de  $k$  et de  $h_M$  [Ma-05]. On choisira donc des épaisseurs de nappe métallique faible dans nos simulations (du centimètre à la dizaine de centimètres) pour avoir des résultats les plus pertinents possible.

D'autre part,  $\frac{\partial T}{\partial k} \propto -Dh_M \frac{1}{k^2}$ . Comme  $k$  vaut  $10^{-4}$  à  $10^{-5}$  la sensibilité sera très forte, d'autant plus forte que la dimension caractéristique de l'échangeur côté métal sera grande. Cette sensibilité est plus grande pour les lanthanides ( $D \gg 1$ ) que pour certains actinides. Les données à préciser en priorité sont donc les coefficients de transfert des lanthanides.

### Transfert du sel vers le métal

Dans le cas de ce transfert, le raisonnement est un peu plus simple. En effet, le temps  $T$  caractéristique de ce transfert s'exprime comme 3.46.

$$T \propto \frac{h_s}{k} \quad (3.46)$$

La dépendance au coefficient de partage est nulle. Par contre, on a  $\frac{\partial T}{\partial k} \propto -h_s \frac{1}{k^2}$ . Et l'on peut tirer les mêmes conclusions que dans le paragraphe précédent : nous préconisons un échangeur ou l'épaisseur de sel est faible.

### 3.2.3 Bilan de la séparation actinides/lanthanides

La section précédente a montré la façon dont il est possible d'extraire les lanthanides du sel combustible avec une efficacité tout à fait acceptable, à partir de données présentes dans la littérature. Cette section, quant à elle, reprend les principes de la précédente pour essayer de tirer un bilan complet de la séparation actinides/lanthanides effectuée dans l'ensemble de l'unité pyrochimique. Nous supposons que l'équilibre thermochimique s'établit rapidement à chaque contact entre le sel et la nappe métallique. Par conséquent, les efficacités calculées dans cette section ne prennent pas en compte les effets de cinétique présentés précédemment.

#### 3.2.3.1 Efficacité de la séparation

La fluoration, comme nous l'avons dit plus tôt, extrait 99% de l'uranium et du neptunium ainsi que 90% du plutonium.

Le processus d'extraction des actinides fonctionne de manière tout à fait similaire à celui de l'extraction des lanthanides : deux échangeurs contre-courant couplés entre eux. Le premier est un échangeur sel combustible-nappe de bismuth saturée en thorium exactement comme le premier échangeur de l'extraction des lanthanides, le deuxième est un contact entre cette même nappe de bismuth, riche en actinides et un sel propre. Le transfert est effectué par voie électrochimique, mais nous pouvons, tout de même, associer un coefficient de partage fictif du thorium bien que le mécanisme d'échange mis en jeu soit différent. Dans ce cas, ce nouveau coefficient de partage du thorium est bien plus faible que le coefficient de partage lorsque le bismuth est saturé en Th pour favoriser le retour des actinides dans le sel combustible. Nous choisissons un coefficient de partage de  $10^{-4}$  pour le thorium dans cette étape. Un raisonnement tout à fait similaire que celui pour l'extraction des lanthanides permet de calculer les efficacités de passage entre le sel combustible chargé en lanthanides et le sel propre.

Le tableau présente l'efficacité de transfert comme le rapport de la quantité d'un élément présent avant l'étape d'extraction sur la quantité qui retourne en coeur suite à l'étape d'extraction/dés-extraction dans le cas nominal (soit 2 itérations pour la première opération réductrice avec autant de métal que de sel et 20 itérations pour la deuxième opération avec 7 fois plus de métal). Le reste (1 moins l'efficacité) suit le flux vers l'étape d'extraction des lanthanides. Nous voyons dans ce tableau que l'efficacité des actinides est inférieure à 0,1%, ce qui est très satisfaisant puisque nous souhaitons que les actinides restent dans le sel combustible pour retourner en coeur.

Elément	Efficacité (%)	Elément	Efficacité (%)
Pa	$1.10^{-4}\%$	La	86%
U	$9.10^{-20}\%$	Ce	87%
Np	$1.10^{-4}\%$	Nd	92%
Pu	$4.10^{-3}\%$	Sm	92%
Am	$1.10^{-2}\%$	Eu	91%
Cm	$1.10^{-2}\%$	Pr	87%

TABLE 3.11: Efficacité de transfert des différents éléments

### 3.2.3.2 Analyse des inconnues

Beaucoup de données sont inconnues ou incertaines dans le procédé. Nous avons, dans le but de connaître la marge de manoeuvre accessible, regardé la sensibilité des efficacités aux différentes inconnues. Celles-ci peuvent porter sur le fonctionnement du procédé, comme le nombre d'itération de chaque extraction réductrice par exemple, ou encore sur les quantités de métal mis en jeu par rapport aux quantités de sel. Ces inconnues peuvent aussi porter sur les coefficients de partage qui vont directement influencer les efficacités d'extraction respectives.

#### Nombre d'itérations

Nous avons regardé les efficacités d'extraction de différents éléments dans le cas de référence, c'est à dire autant de métal que de sel combustible dans la première opération d'extraction réductrice et 7 fois plus dans le cas de la deuxième opération. La figure 3.10 présente les résultats du calcul en fonction du nombre d'itérations de chaque extraction réductrice. Sur ces figures, il apparait clairement qu'il ne faut pas trop d'itérations pour la première extraction. En effet, deux itérations sont suffisantes pour atteindre une efficacité d'extraction du curium suffisamment faible (moins de 0,1%), sans pour autant trop dégrader l'efficacité d'extraction des lanthanides. Pour la deuxième extraction, la saturation des efficacités d'extraction des lanthanides fait que 100 itérations sont inutiles dans le procédé. Nous préconisons donc un nombre d'itérations compris entre 20 et 50.

Il faut noter que le nombre d'itérations est directement proportionnel au temps nécessaire pour réaliser le retraitement. B. Saadi a montré pendant sa thèse que l'équilibre pouvait s'atteindre en quelques dizaines de minutes à l'aide d'un brassage électromagnétique [Sa-06-3]. 22 itérations au total représentent donc un temps total de l'ordre de la dizaine d'heures pour atteindre l'équilibre auquel il faut rajouter les temps de transferts entre les différentes étapes. Nous ne pouvons donc pas accepter des procédés qui nécessiteraient des centaines d'itérations.

#### Volume de métal

Les courbes des efficacités en fonction du rapport quantité de métal sur quantité de sel sont représentées dans la figure 3.11. La courbe de gauche présente l'efficacité de l'extraction des lanthanides lorsque la quantité de métal de la première extraction réductrice augmente. Comme la quantité de lanthanides transférée est monotone croissante avec la quantité de métal, il est logique que l'efficacité diminue. Il en est de même

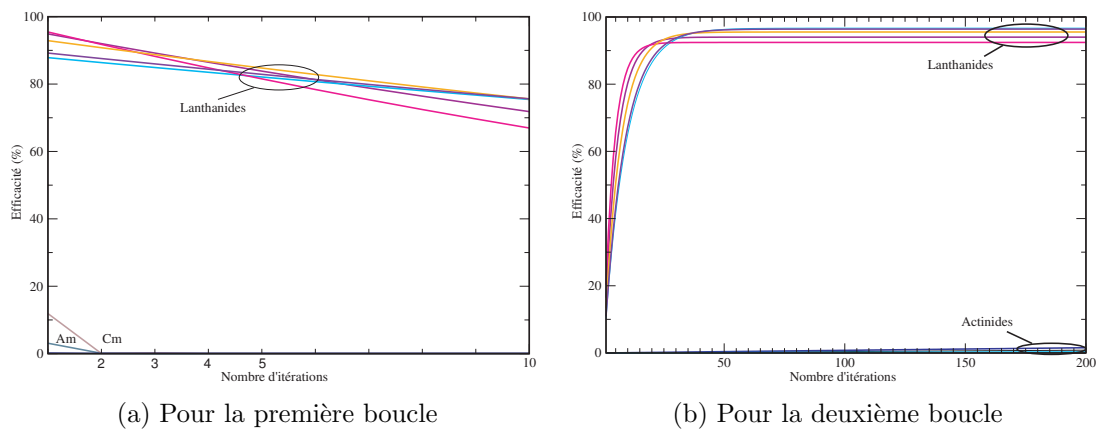


FIGURE 3.10: Efficacité d'extraction pour différents éléments en fonction du nombre d'itérations

pour les actinides qui ne sont pas représentés sur cette courbe puisque leur efficacité est déjà inférieure à 0,1% dans le cas où il y a autant de métal que de sel combustible dans le premier échangeur contre-courant. Nous préconisons donc une quantité de métal équivalente à la quantité de sel dans le premier échangeur contre-courant.

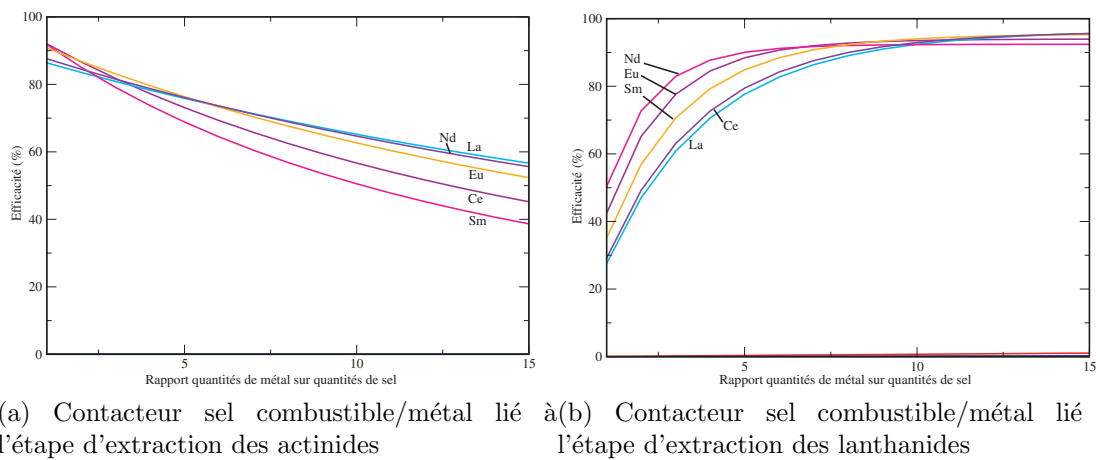


FIGURE 3.11: Efficacité en fonction du rapport quantité de métal sur quantité de sel pour les deux extractions réductrices dans le cas nominal (2 itérations pour la courbe de gauche et 20 itérations pour la courbe de droite)

Par contre, la figure de droite montre que l'efficacité d'extraction des lanthanides augmente grandement avec la quantité de métal dans le deuxième échangeur contre-courant, responsable de l'extraction des lanthanides. Notons que la quantité de sel chlorure est équivalente à la quantité de métal dans cette opération. Les courbes d'efficacité semblent saturées vers un rapport de volume de 7. Nous justifions donc le choix d'avoir 7 fois plus de métal que de sel combustible dans le deuxième échangeur contre-courant.

### Incertitude sur les coefficients de partage

Pour quantifier l'incertitude que nous devons attendre quant à nos efficacités d'extraction, nous avons tracé les efficacités des lanthanides et des actinides en fonction des coefficients de partage dans le sel fluorure (figure 3.12) et dans le sel chlorure (figure 3.13). Rappelons que nous cherchons une efficacité maximale pour les lanthanides et minimales pour les actinides. L'incertitude est matérialisée par une incertitude sur  $u$  de la relation 3.20, nous avons supposé que cette grandeur pouvait varier de plus ou moins 1 devant la valeur estimée. Cette variation peut paraître importante, mais au vu des écarts entre le calcul et les données de la littérature que nous observons parfois, elle nous a semblé appropriée. Appliquer +1 à  $u$  revient à augmenter d'un facteur 10 le coefficient de partage de l'élément considéré. Nous voyons que pour les lanthanides, il y a un optimum : si  $D^F$  est 10 fois plus petit, alors les lanthanides sont stabilisés dans le sel, ce qui rendrait leur extraction délicate puisqu'il ne passerait plus du tout dans la phase métal. Par contre, si  $D^F$  est 10 fois plus grand, cela favoriserait le passage des lanthanides dans le métal et donc ils seraient extrais pendant la première extraction réductrice.

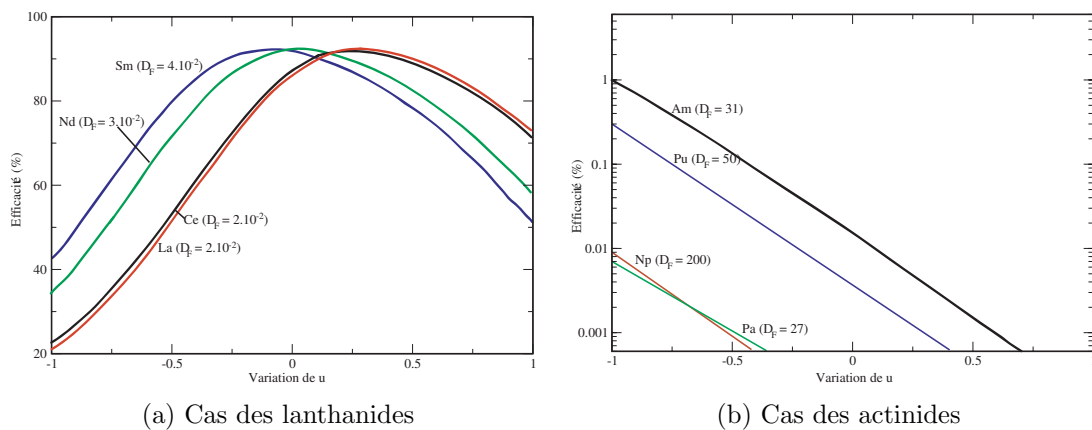


FIGURE 3.12: Efficacité en fonction de l'incertitude des coefficients de partage en milieu fluorure

### 3.2.4 Problème des alcalins et des alcalino-terreux

Au vu des potentiels électrochimiques des alcalins et des alcalino-terreux, il semblerait que les alcalins et les alcalino-terreux resteraient dans le sel combustible. En effet, une extraction réductrice ne peut s'envisager puisque le potentiel d'oxydo-réduction de ces éléments est plus bas que le potentiel du lithium dans le cas des extractions réductrices sur nappe de bismuth. On réduirait donc le lithium avant de réduire les alcalins et alcalino-terreux. Comme nous ne voulons pas rajouter des étapes au procédé de retraitement spécialement pour cette extraction, nous regardons dans cette section, dans quelle mesure ces éléments sont problématiques et quelle est la limite acceptable du retraitement de ces éléments.

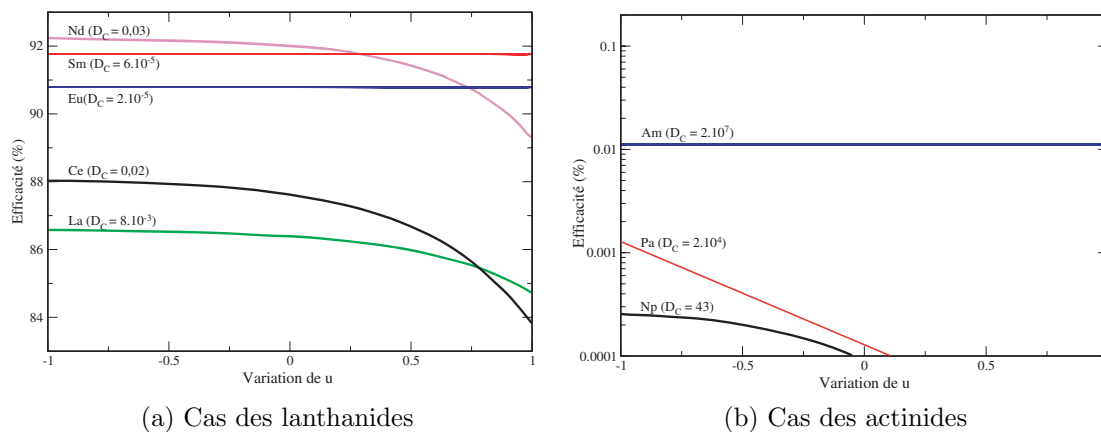


FIGURE 3.13: Efficacité en fonction de l'incertitude des coefficients de partage en milieu chlorure

### 3.2.4.1 Bilan neutronique détaillé

De la même manière que dans la section précédente, on s'attarde sur le bilan neutronique pour regarder quelles sont les espèces problématiques qu'il faut absolument extraire à l'aide du retraitement et celles pour lesquelles nous avons un peu plus de liberté et que nous pouvons laisser s'accumuler dans le coeur. Le détail du bilan neutronique est présenté dans le tableau 3.12. Les résultats sont normalisés à un neutron de fission.

Elément	Taux d'absorption (neutron par neutron de fission)
Rb	$1,56 \cdot 10^{-6}$
Cs	$2,16 \cdot 10^{-5}$
Total alcalins	$2,32 \cdot 10^{-5}$
Sr	$1,92 \cdot 10^{-5}$
Ba	$2,28 \cdot 10^{-5}$
Total alcalino-terreux	$4,20 \cdot 10^{-5}$
Zirconium	$1,05 \cdot 10^{-3}$
Total lanthanides	$5,89 \cdot 10^{-3}$
Total gaz rare + métaux	$1,38 \cdot 10^{-3}$

TABLE 3.12: Bilan neutronique détaillé de l'absorption des PF du sel coeur à l'équilibre dans le cas nominal (retraitement en 450 jours et temps caractéristique du bullage de 30 secondes)

On voit dans ce tableau que les alcalins et les alcalino-terreux représentent une contribution extrêmement faible dans le bilan neutronique (0,0001 neutron absorbé par neutron de fission). Suivant la relation 3.5, rappelons que le taux de capture est proportionnel au temps de retraitement. Avant d'avoir une contribution neutronique non négligeable devant le taux de capture du thorium (et donc devant le gain de régénération), on peut multiplier la contribution neutronique des alcalins et alcalino-terreux par un facteur 500, voire même un facteur 1000, ce qui représente un facteur

1000 dans le temps de retraitement associé à l'extraction des alcalins et alcalino-terreux. Un facteur 500 sur ce temps de retraitement représente un temps caractéristique d'extraction de plus de 600 ans, soit une marge de manoeuvre considérable. Les alcalins et alcalino-terreux du sel combustible n'ont donc vraisemblablement pas besoin d'être extraits du sel combustible.

### 3.2.4.2 Une évolution sans extraction des alcalins et alcalino-terreux

Dans ce paragraphe, nous envisageons un retraitement simplifié : les alcalins et alcalino-terreux ne sont pas extraits et s'accumulent dans le sel combustible. La composition du sel change donc constamment et aucun état stationnaire ne sera atteint puisqu'une partie des PF n'est pas extraite. La figure 3.14 présente l'évolution globale des PF au cours de 200 ans d'évolution, le retraitement des lanthanides restant celui de référence, c'est à dire 450 jours. Au bout de 200 ans d'évolution, le taux de capture des alcalins et des alcalino-terreux est équivalent à celui des lanthanides (environ 0,006 neutron absorbé par neutron de fission), et toujours très faible devant le taux de capture du thorium, comme illustré dans la figure 3.15, qui représente le taux de capture des différents groupes d'éléments au comportement similaire. Nous voyons donc que même 200 ans d'accumulation des alcalins et alcalino-terreux ne représentent pas une grande perturbation dans le bilan neutronique.

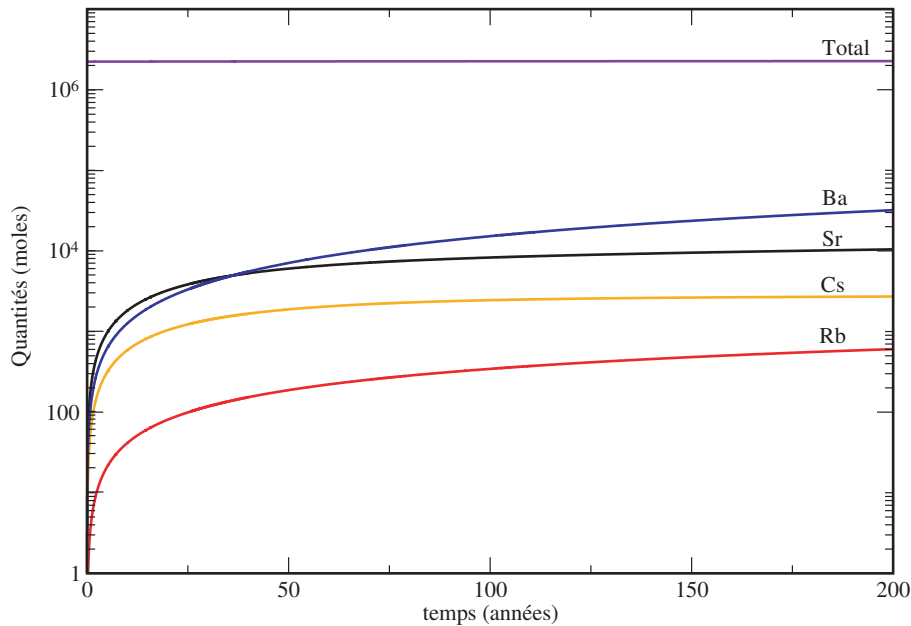


FIGURE 3.14: Evolution des quantités de produits de fission en coeur sans extraction des alcalins et alcalino-terreux

Le tableau 3.13 représente le bilan neutronique du sel combustible au bout de 200 ans d'évolution. Nous pouvons voir sur ce tableau que l'on est encore loin de la limite dans le bilan neutronique. La contribution des lanthanides peut encore être multipliée par 10 avant de voir une réelle perturbation. On peut imaginer un retraitement en 4500 jours pour les lanthanides et aucun retraitement pour les alcalins et alcalino-terreux :

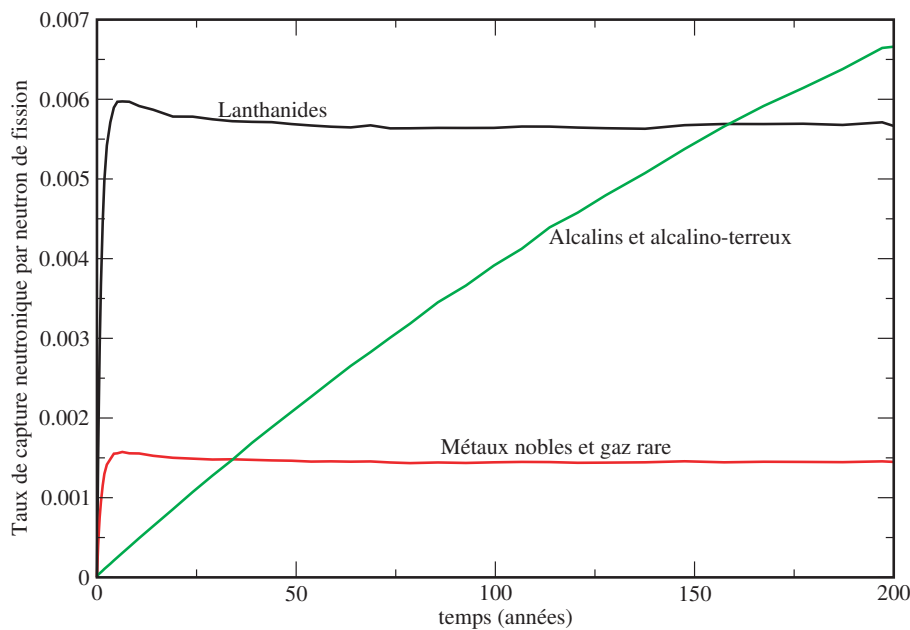


FIGURE 3.15: Evolution des taux de capture des différents groupes d'éléments

le système serait toujours régénérateur. La simulation numérique donne un taux de régénération en coeur de 0,987.

Eléments	Taux d'absorption (normalisé à un neutron de fission)
Total noyaux lourds	0,9
Alcalins et alcalino-terreux	0,0065
Métaux et gaz rares	0,0014
Lanthanides	0,0060
Total	0,92

TABLE 3.13: Bilan neutronique après 200 ans d'évolution dans le cas d'une extraction nulle des alcalins et alcalino-terreux.

### 3.2.4.3 Paramètres physico-chimiques d'un mélange $\text{LiF-ThF}_4\text{-(Rb-Cs)F-(Sr-Ba)F}_2$

Le non-retraitement des alcalins et des alcalino-terreux n'est pas un problème du point de vue neutronique mais pourrait l'être d'un point de vue physico-chimique. En effet, nous devons nous interroger sur le devenir de la viscosité, de la conductivité thermique et de la densité du sel combustible au cours de l'évolution. S'il est clair qu'à priori, l'ajout de ces éléments en quantité non-négligeable devrait faire descendre le point de fusion, l'évolution de la densité et d'autres paramètres physico-chimiques sont moins évidentes. C'est dans l'optique de vérifier qu'il n'y aurait pas de point noir, ou de blocage chimique, que nous avons fait appel à l'expertise de Mathieu Salanne et de Christian Simon de l'UPMC pour effectuer des calculs de dynamique moléculaire sur le sel combustible.



### Généralités sur la dynamique moléculaire

Les calculs de dynamique moléculaire ont pour but de simuler l'évolution d'un grand nombre d'atomes au cours du temps, c'est-à-dire que l'on cherche à déterminer la position et la vitesse de tous les atomes que l'on considère par résolution des équations de Newton établie pour chaque atome comme représenté dans l'équation 3.47 (où  $m_i$  représente la masse de l'atome  $i$ ,  $q_i$  son vecteur position et  $F_i$  la force agissant sur  $i$ ).

$$m_i \frac{d^2 \vec{q}_i}{dt^2} = \vec{F}_i \quad (3.47)$$

Trois options de calcul sont possibles : le système est isolé, il est en équilibre avec un thermostat ou il est en équilibre avec un thermostat et barostat. Dans le premier cas, l'énergie du système, le nombre de particules et le volume sont conservés : c'est le système micro-canonique ou "NVE" (nombre de particules, volume et énergie fixé). Dans le deuxième cas, on ne conserve plus l'énergie mais la température, le système est alors canonique ou "NVT" (nombre de particule, volume et température fixé). Enfin, dans le troisième cas, la pression et la température sont fixées et le volume est recalculé à chaque pas de temps. On parle alors de système "NPT" (nombre de particule, pression et température fixé).

La difficulté est d'estimer la force qui s'applique sur chaque atome grâce au potentiel de chacun. Dans le calcul du potentiel, on compte l'interaction charge-charge, une force de répulsion de très courte portée et une composante de dispersion qui prend en compte les interactions dipôle-dipôle et dipôle-quadrupôle. C'est ce terme de dispersion qui caractérise l'environnement de l'atome et les interactions à plusieurs corps [Sa-06-1]. Il est ajusté de manière empirique sur le corps pur à partir de [Ca-60].

### Calcul de la densité

Pour calculer la densité, un calcul en NPT sur un temps relativement court suffit. En effet, il suffit d'attendre que la boîte soit en équilibre avec le barostat et le thermostat pour calculer le volume et en conclure la densité du sel. Nous avons effectué quatre calculs pour quatre températures différentes. Les résultats sont rassemblés dans les tableaux 3.14a et 3.14b. Il y a, dans le premier cas 335 atomes de fluor, 45 atomes de thorium et 155 atomes de lithium soit une masse totale de  $2,97 \cdot 10^{-23}$  kg. Dans le deuxième cas, la boîte de simulation contient 341 atomes de fluor, 45 atomes de thorium, 149 atomes de lithium et 6 atomes de baryum pour une masse totale de  $3,12 \cdot 10^{-23}$  kg. Ces quantités représentent un nombre suffisant d'atomes pour retrouver les propriétés macroscopiques du sel, mais acceptable pour que le calcul ne nécessite pas un temps trop élevé.

La figure 3.16 représente la densité d'un mélange de sel de fluorure de lithium (à 77,5%) et de fluorure de thorium (à 22,5%) en fonction de la température, comparée au mélange ternaire fluorure de lithium, fluorure de baryum et fluorure de thorium. A titre de comparaison, nous avons rajouté sur ce graphique les données numériques que nous utilisons jusqu'à présent et qui sont tirées de [Sa-06-2]. Il est clair qu'un ajout de 3% de baryum (atteint au bout de 200 ans d'évolution) dans le sel augmente la densité, mais nous voyons surtout que la densité n'est modifiée que de 1,5% en moyenne. En conclusion, remplacer du fluorure de lithium par du fluorure de baryum n'apporte pas

température	taille de boîte (en unité atomique)	taille de boîte en m <sup>3</sup>	densité
923 K	47355 ± 80	7,01.10 <sup>-27</sup> ± 1,2.10 <sup>-29</sup>	4,23 ± 0,01
1023 K	48850 ± 150	7,24.10 <sup>-27</sup> ± 2,2.10 <sup>-29</sup>	4,10 ± 0,02
1123 K	49835 ± 250	7,38.10 <sup>-27</sup> ± 3,7.10 <sup>-29</sup>	4,02 ± 0,02
1223 K	51300 ± 300	7,60.10 <sup>-27</sup> ± 4,4.10 <sup>-29</sup>	3,91 ± 0,02

(a) Densité du mélange LiF-ThF<sub>4</sub>

température	taille de boîte (en unité atomique)	taille de boîte en m <sup>3</sup>	densité
923 K	49350 ± 150	7,31.10 <sup>-27</sup> ± 2,2.10 <sup>-29</sup>	4,27 ± 0,01
1023 K	50450 ± 150	7,47.10 <sup>-27</sup> ± 2,2.10 <sup>-29</sup>	4,17 ± 0,01
1123 K	51600 ± 200	7,64.10 <sup>-27</sup> ± 2,96.10 <sup>-29</sup>	4,08 ± 0,02

(b) Densité du mélange LiF-ThF<sub>4</sub>-BaF<sub>2</sub>

TABLE 3.14: Comparaison des densités de deux sels à 22,5% de noyaux lourds pour différentes températures

de changement sensible sur la densité puisque les données utilisées jusqu'à présent pour la densité du sel comporte des incertitudes de l'ordre de 20%.

A partir de cette figure, nous pouvons déterminer les coefficients d'expansion volumique comme la dérivée de la densité en fonction de la température. Ces coefficients jouent un rôle important dans l'établissement des coefficients de contre-réactions puisqu'ils caractérisent directement la dilatation du sel avec la température. Nous calculons qu'un sel LiF-ThF<sub>4</sub> possède un coefficient d'expansion volumique de  $-1,0 \cdot 10^{-3} \pm 1,5 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1}$  alors que celui du sel LiF-ThF<sub>4</sub>-BaF<sub>2</sub> est de  $-9,5 \cdot 10^{-4} \pm 1,5 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1}$ . L'écart des coefficient d'expansion volumique entre les deux sels n'est donc pas significatifs.

### Calcul de la capacité calorifique

La capacité calorifique est définie comme la dérivée de l'enthalpie en fonction de la température. Dans le cas d'un calcul NPT, l'enthalpie est donnée par le premier principe de la thermodynamique comme  $U + PV$ . L'énergie interne du système ainsi que son volume sont des données de sortie du code de calcul alors que la pression est fixée par l'utilisateur. La figure 3.17 présente les variations d'enthalpie en fonction de la température et donc les valeurs de capacité calorifique. Nous voyons que la capacité calorifique massique augmente de 1,3% lorsque l'on remplace 3% de fluorure de lithium par du fluorure de baryum, ce qui représente un changement assez faible, et ne devrait pas être déterminant dans le dimensionnement des échangeurs de chaleur. L'erreur sur la capacité calorifique est de 0,2% dans les deux cas.

### 3.2.5 Le problème du zirconium

Dans le tableau 3.12, nous constatons que la contribution du zirconium est loin d'être négligeable dans le bilan neutronique. Le zirconium est un produit de fission qui possède un grand rendement de fission et qui est stable dans le sel sous forme de tétrafluorure de zirconium. La production nette de zirconium est d'environ 4,3 moles par jour et les quantités produites sont beaucoup trop importantes pour le laisser

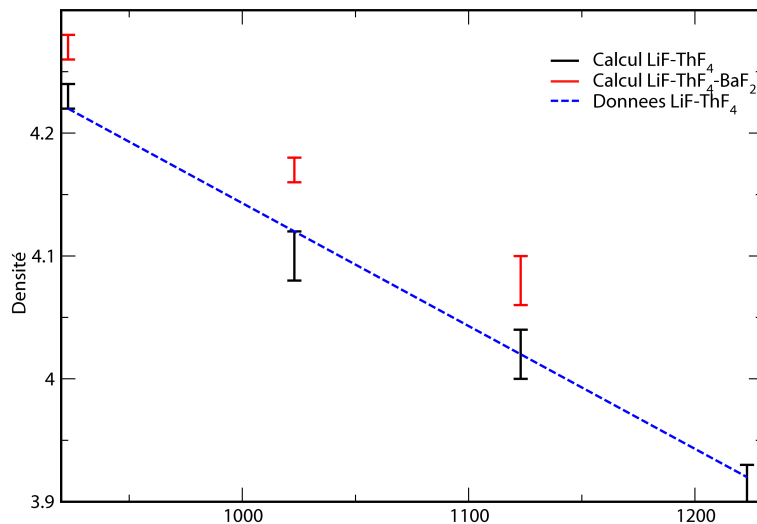


FIGURE 3.16: Comparaison des densités de LiF-ThF<sub>4</sub> et de LiF-ThF<sub>4</sub>-BaF<sub>2</sub> en fonction de la température

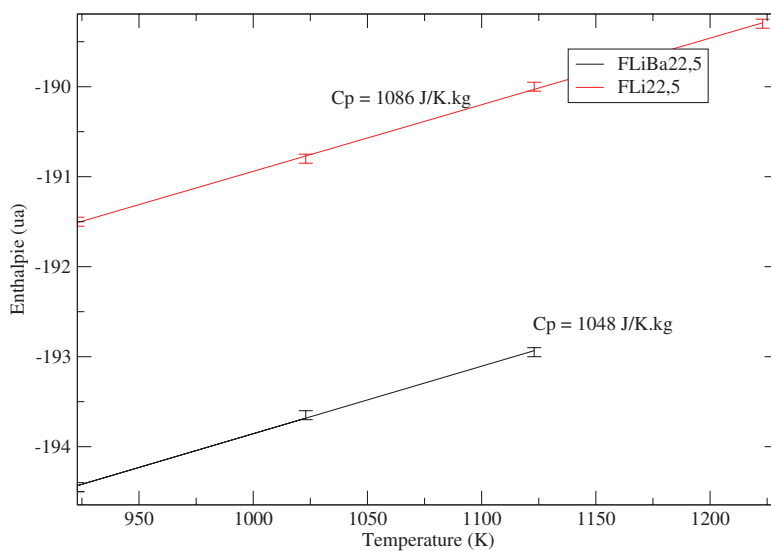


FIGURE 3.17: Enthalpie en fonction de la température pour les deux sels

s'accumuler. Nous avons longtemps pensé que le zirconium s'évacuerait avec le bullage tant le fluorure de zirconium paraissait volatile, cependant nous verrons que ce n'est pas le cas et nous proposons dans ce paragraphe une manière de l'évacuer par précipitation dans le bismuth. La figure 3.18 représente le diagramme ternaire LiF-ThF<sub>4</sub>-ZrF<sub>4</sub> à 650°C, l'explication de la lecture de ce type de graphique est accessible dans la ref [Al-09]. La proportion de thorium étant fixée à 22,5%, il faut environ 50% de zirconium pour atteindre la formation du composé (Th-Zr)F<sub>4</sub> en solution solide en équilibre avec un liquidus. Même si ce taux n'est pas atteint pour des raisons que nous verrons dans le paragraphe suivant, l'accumulation de zirconium ne pose pas de réel problème d'un point de vue de l'homogénéité du sel, celui-ci étant très soluble dans le sel (le zirconium est un simulant chimique du thorium, ce qui signifie qu'ils ont des comportements très similaires).

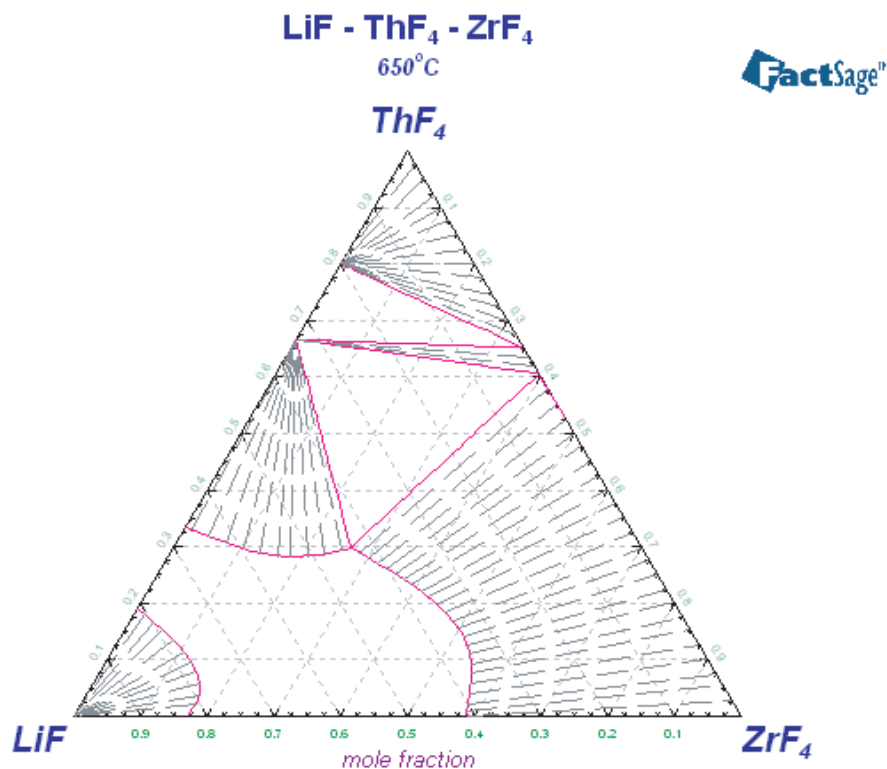


FIGURE 3.18: Diagramme ternaire LiF-ThF<sub>4</sub>-ZrF<sub>4</sub> à 650°C calculé par FactSage

Notons que le taux de formation du Zr (de 4,3 mol/j) correspond, dans le cas où celui-ci n'est pas extrait, à une augmentation de la proportion de Zr de 0,16% par an dans le sel combustible. L'effet sur la neutronique du coeur de l'accumulation du zirconium est étudié dans le chapitre 5.

### 3.2.5.1 Pression de vapeur saturante

Pour quantifier l'extraction du zirconium par évaporation, nous avons pris contact avec l'équipe de Rudy Konings à l'ITU de Karlsruhe. Ondrej Benes a alors créé la

base thermodynamique LiF-ThF<sub>4</sub>-ZrF<sub>4</sub> pour FactSage [FACT], utilisé au SIMAP à Grenoble. Comme la proportion de noyaux lourds est imposée dans le sel combustible, la proportion de thorium dans la suite de ce paragraphe est fixée à 22,5%. Pour effectuer ces calculs, nous avons supposé que le liquide était sous atmosphère inerte (plusieurs configurations ont été testées : des atmosphères d'hélium, d'argon de xénon ou même indéfinie donnent le même résultat). Le liquide se met alors en équilibre avec une phase gazeuse pour vérifier l'égalité des potentiels chimiques de chaque élément. Les phases gazeuses majoritaires sont LiF monomère et dimère et ZrF<sub>4</sub>. Les courbes 3.19 et 3.20 représentent les résultats des pressions partielles calculées, grâce à FactSage, à 650°C et à 800°C .

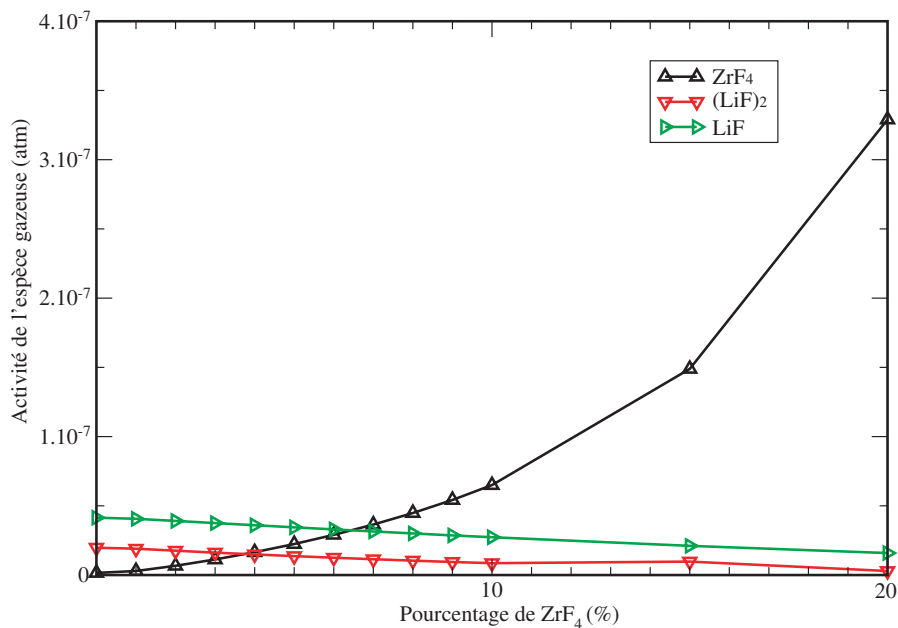


FIGURE 3.19: Activité des principales espèces de la phase gazeuse en équilibre avec LiF-ThF<sub>4</sub>-ZrF<sub>4</sub> en fonction de la proportion de zirconium (la proportion de thorium est fixée à 22,5%) à 650°C

Sachant que la production de zirconium est de 4,3 moles par jour, et que le bullage représente environ 10000 moles d'hélium par jour, il faudrait une pression partielle de ZrF<sub>4</sub> de  $4,3 \cdot 10^{-4}$  atmosphère pour évacuer le zirconium produit. Or, les résultats du calcul FactSage montrent que cette pression partielle n'excède pas  $10^{-5}$  à 800°C et avec 20% de zirconium dans le sel. Il faut en plus ajouter que LiF se volatilise de manière comparable à ZrF<sub>4</sub> (pression partielle du même ordre de grandeur). Pour ne pas perdre de quantité trop importante de lithium, il faut donc imaginer un système de condensation puis ajouter un système de séparation des gaz pour récupérer le lithium gazeux. Au vu de la géométrie du séparateur, il est plus probable que les vapeurs de fluorure se condensent sur les parois, puis retournent dans le sel par écoulement gravitaire (voire se solidifient sur ces parois puisque la température de fusion de LiF est de 850°C). Par conséquent, devant les faibles valeurs de pressions partielles, l'extraction du zirconium par volatilisation ne nous paraît pas raisonnable. Il faut donc trouver un autre mode opératoire pour cette extraction.

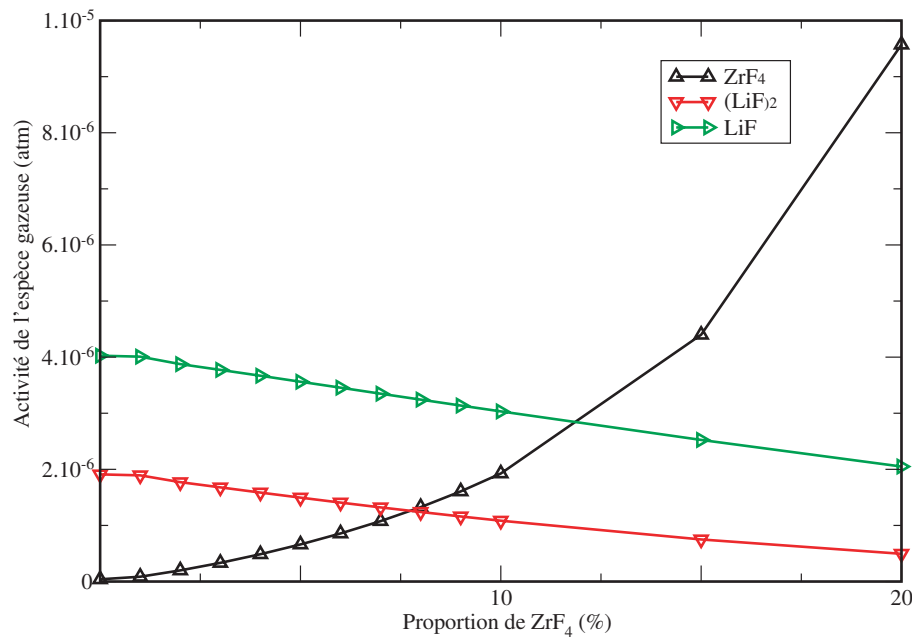


FIGURE 3.20: Activité des principales espèces de la phase gazeuse en équilibre avec  $LiF-ThF_4-ZrF_4$  en fonction de la proportion de zirconium (la proportion de thorium est fixée à 22,5%) à 800°C

### 3.2.5.2 La précipitation dans le bismuth

Selon les calculs effectués pour déterminer les coefficients de partage, le zirconium est l'élément qui se réduirait en premier dans le bismuth liquide, et de la même manière, c'est l'élément qui sera le dernier à être oxydé. Il devrait donc s'accumuler dans la nappe de bismuth. La figure 3.21 représente le diagramme binaire du mélange Bi-Zr tiré de [Br-92].

A 800°C, la solubilité du zirconium dans le bismuth n'est que de 7%, ce qui représente environ 335 moles de zirconium par tonne de bismuth. Une fois cette solubilité atteinte, il est probable qu'un film de Bi-Zr se forme à l'interface entre le sel et le métal dans l'échangeur contre-courant responsable de l'extraction réductrice des actinides, bloquant du coup le transfert. Une manière de résoudre le problème serait alors de baisser la température de la nappe de bismuth à une température légèrement supérieure à 715°C. Cette température est suffisamment haute pour ne pas former le solide  $Bi_2Zr$ , ce qui augmenterait le flux de bismuth envoyé aux déchets. La solubilité du zirconium n'est alors que de 4,5%, ce qui permettrait de récupérer un alliage de BiZr solide à envoyer aux déchets. Le flux de bismuth ne serait que de 330 kg perdus par an.

La température de refroidissement du bain de bismuth pourrait être beaucoup plus faible (entre 275°C qui est la température de fusion du bismuth et 715°C), mais le flux de bismuth serait exactement 2 fois supérieur. Le gain serait une opération plus facile à réaliser (ajustement moins contraignant de la température), et surtout moins fréquente puisque le zirconium est évacué de manière plus efficace.

Cette solution, qui semble assez simple, soulève quelques problèmes : le bismuth métallique n'est pas une matrice acceptable pour stocker les produits de fission, et donc a fortiori, le zirconium. Il faut envisager d'extraire le Zr du composé solide BiZr

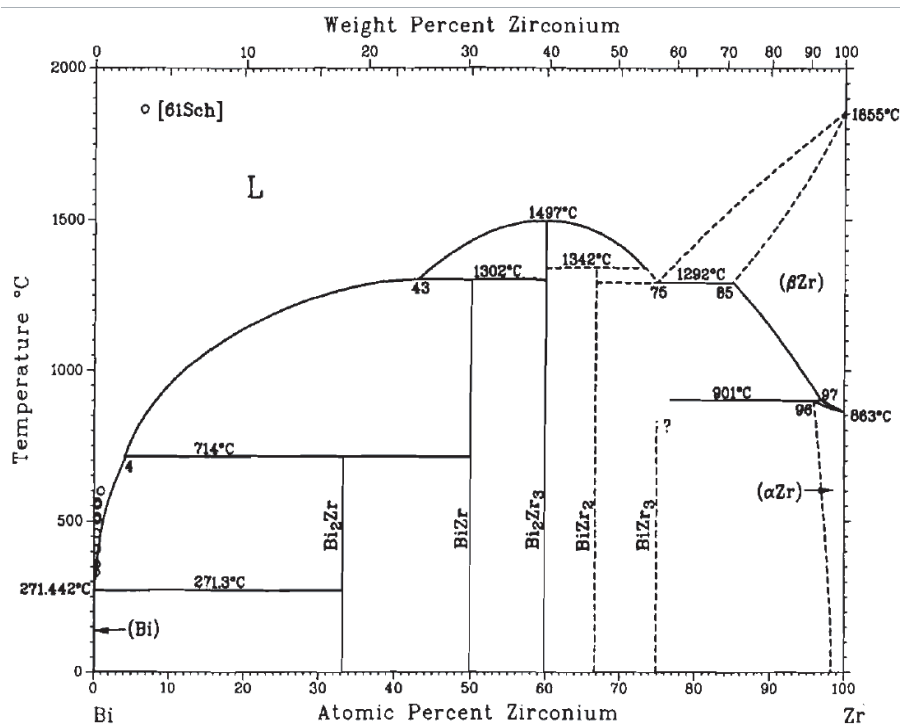


FIGURE 3.21: Diagramme binaire du mélange Bi-Zr

(voire  $\text{Bi}_2\text{Zr}$ ). Compte tenu de la grande stabilité de  $\text{ZrO}_2$  par rapport à l'oxyde  $\text{Bi}_2\text{O}_3$  il semble possible d'oxyder le Zr et le Bi à l'air puis de réduire sélectivement  $\text{Bi}_2\text{O}_3$  par dihydrogène pour récupérer Bi liquide.

D'autre part, nous avons vérifié que la solubilité des actinides est bien plus importante que celle du zirconium, visible sur la figure 3.22 [Le]. Il n'y a donc aucun risque que les actinides précipitent de manière spontanée, mais nous ne pouvons cependant pas exclure la possibilité qu'une précipitation du zirconium entraîne une précipitation des autres éléments comme le thorium puisque leurs solubilités sont comparables. Il reste donc à savoir si le thorium et le zirconium peuvent coprécipiter dans le bismuth lors d'un éventuel refroidissement.

### 3.2.6 Bilan sur l'unité d'extraction des lanthanides : choix effectués

Récapitulons les différentes propriétés de l'unité d'extraction pyrochimique :

- L'étape de fluoration est certainement l'étape du procédé la mieux maîtrisée au niveau industriel. Nous supposons que l'étape de fluoration extrait 99% de l'uranium et du neptunium et 90% du plutonium. Les efficacités choisies ici sont en-deçà de ce que l'on peut attendre d'après les travaux de l'ONRL. Ces mêmes travaux sous-entendent que cette étape est très rapide (une chute de billes dans un courant de fluor gazeux semble être suffisant). Le procédé envisagé pour l'étape d'hydrofluoruration n'étant pas connu, nous choisirons pour les simulations, un temps de 1 heure pour la fluoration et l'hydrofluoruration.
- Les étapes nécessitant un échangeur chimique sont simulées en prenant en compte

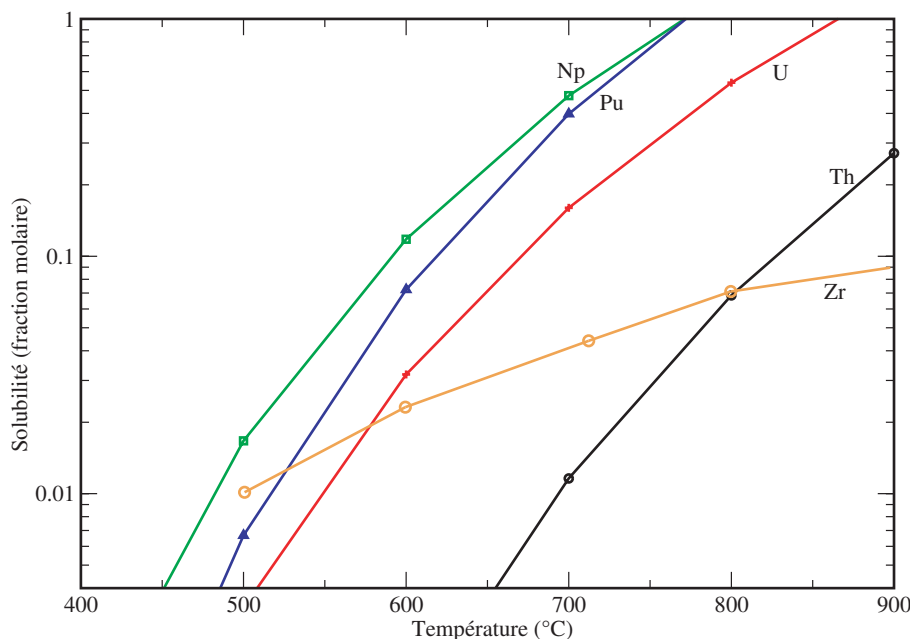


FIGURE 3.22: Solubilité de différents éléments dans le bismuth liquide

une cinétique du premier ordre, et, en supposant que l'étape limitante du procédé est la diffusion des éléments dans le sel. Les coefficients de partage pris en compte pour calculer les flux de matière de la phase sel vers la phase métal sont calculés à partir des données résumées dans le tableau 3.15. Les données, bien que très incertaines, permettent de valider le principe de l'extraction des produits de fission tout en laissant les actinides dans le sel combustible. Ces données reposent sur un travail bibliographique, sur des calculs de thermochimie, ou par analogie de comportement chimique. Les résultats présentés dans la suite de ce travail sont établis grâce à ce choix de données.

- Insistons aussi sur le fait que les choix technologiques ne sont pas arrêtés. Les cinétiques des procédés sont donc évaluées assez grossièrement mais permettent de vérifier que le code de simulation est performant, et de donner une première approximation de ce que l'on peut attendre comme inventaire dans l'unité de retraitement (chapitre IV).
- Le retraitement des alcalins et alcalino-terreux n'est pas nécessaire en cours de fonctionnement du réacteur. Il faudra peut être prévoir une extraction possible si le temps de vie du sel devient long (plusieurs centaines d'années). Nous considérons, dans nos simulations, que leur extraction est nulle, c'est à dire que l'on ne trouvera aucune trace de césium, baryum, rubidium ou de strontium dans les nappes métalliques ou dans le sel de chlorure. Au vu du potentiel chimique de l'yttrium, nous pourrions faire la même hypothèse. La simulation numérique ne signale aucune trace d'yttrium dans les nappes de bismuth, ce qui conforte la validité de l'hypothèse choisie pour les alcalins et alcalino-terreux.
- Le zirconium est extrait par précipitation dans le bismuth. Notons que le bismuth n'étant malheureusement pas une matrice acceptable pour le stockage, il faudra envisager des étapes supplémentaires pour la gestion de ce type de déchet (dissolution du BiZr dans les verres de confinement ou extraction du zirconium).



Elément	Valence (relatif au Th)	$u$ (sel fluorure)	$u$ (sel chlorure)
Pa	1	3,4	2,3
U (IV)	1	7,5	7,17
Np	0,75	3,8	0,13
Pu	0,75	3,2	-1,6
Am	0,75	3,0	-8,2
Cm, Bk, Cf	0,75	2,3	-8,2
Zr	1	5,6	-0,4
Y	0,75	-4,11	-2,25
La	0,75	-0,2	-3,6
Ce	0,75	-0,3	-3,2
Pr	0,75	-0,6	-3,8
Nd	0,75	-0,03	-3
Pm	0,75	-0,03	-0,4
Sm	0,75	-0,1	-4,8
Eu	0,5	-0,7	-5,5
Gd	0,75	-2,1	-1,4
Tb	0,75	-3,5	-1,5
Dy	0,75	-1,9	-0,4
Ho	0,75	-0,03	-0,4
Er	0,75	-3,4	-2,1
Tm, Yb, Lu	0,75	-0,03	-0,4
Hf	1	-0,03	-0,4

TABLE 3.15: Résumé des données nécessaires pour calculer les coefficients de partage

### 3.3 L'unité de bullage

Un bullage efficace paraît utile pour améliorer le fonctionnement du réacteur. L'extraction rapide des gaz permet de réduire la formation des fils de décroissance des isotopes gazeux, c'est-à-dire de minimiser la formation d'alcalins et d'alcalino-terreux dans le sel. Il permet aussi d'extraire les particules métalliques qui pourraient se déposer dans les points froids du réacteur et provoquer ainsi des risques de bouchage (les échangeurs de chaleur sont les éléments les plus sensibles). Historiquement, le bullage n'était pas prévu dans les expériences de l'ORNL mais était plus une contrainte du fonctionnement du MSRE (les pompes responsables de la circulation du sel nécessitaient une injection d'hélium dans le système, il s'en est suivi un entraînement de certains produits de fission). Dans la conception du MSBR, les ingénieurs ont essayé de tirer profit de ce phénomène et de développer une extraction par bullage d'hélium. Si le principe physique reste semblable, le système et la mise en oeuvre de l'entraînement des produits de fission non soluble par bullage d'hélium sont bien différents. Nous cherchons à présenter dans cette section les bases et les règles qui permettent de dimensionner ce système.

### 3.3.1 Les éléments extraits par le bullage

#### 3.3.1.1 Liste des éléments

Les éléments extraits par le bullage sont les gaz rares et les métaux non solubles. A l'aide de la relation de Nernst et du logiciel HSC, nous pouvons réaliser une représentation de la table périodique avec les éléments au degré d'oxydation 0 dans le sel combustible (figure 3.23). Les éléments de cette figure qui sont grisés seront donc normalement extraits par le bullage d'hélium.

1	2											10	11															
1	IA	H								VIII	He																	
2	3	4											5	6	7	8	9	10										
		IIA	Li	Be								IIIB	IVB	VB	VIB	VII B	Ne											
3	11	12											13	14	15	16	17	18										
			Na	Mg								Al	Si	P	S	Cl	Ar											
4	19	20	21	22	23	24	25	26	27	28	29	30	31	32	33	34	35	36										
			III A	IVA	VA	VIA	VII A	VIII A	IB	IIB																		
			K	Ca	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	Ge	As	Se	Br	Kr								
5	37	38	39	40	41	42	43	44	45	46	47	48	49	50	51	52	53	54										
			Rb	Sr	Y	Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag	Cd	In	Sn	Sb	Te	I	Xe								
6	55	56											72	73	74	75	76	77	78	79	80	81	82	83	84	85	86	
			Cs	Ba								Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au	Hg	Tl	Pb	Bi	Po	At	Rn		
7	87	88											104	105	106	107	108	109	110	111	112							
			Fr	Ra								Rf	Db	Sg	Bh	Hs	Mt	Uun	Uuu	Uub								
	57	58	59	60	61	62	63	64	65	66	67	68	69	70	71													
			La	Ce	Pr	Nd	Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu											
	89	90	91	92	93	94	95	96	97	98	99	100	101	102	103													
			Ac	Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	Md	No	Lr											

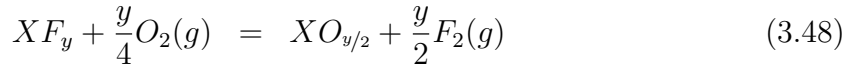
FIGURE 3.23: Elements extraits par le bullage

#### 3.3.1.2 La question de l'oxygène et de l'azote

Notons la présence de l'oxygène et de l'azote dans la figure 3.23 . Ces éléments ne sont pas produits par fission, mais par réaction neutronique sur le fluor. La production d'azote est d'environ 0,1 mole par jour et celle d'oxygène est d'environ 0,3 mole par jour. Ces éléments, très faiblement produits, ne posent pas de problème particulier d'un point de vue neutronique. En effet, nous avons effectué des simulations qui ne prenaient pas en compte leur retraitement et nous avons vérifié que le bilan neutronique n'était pas affecté. Cependant, il y a une forte probabilité que ces éléments (azote et oxygène) soient extraits par le bullage puisqu'ils devraient former des nitrures ou des oxydes non solubles et donc extractibles par le bullage.

Il est difficile de prédire à l'heure actuelle quels seraient les éléments qui pourraient s'allier avec l'oxygène ou avec l'azote. En effet, les données existantes sont peu fiables en ce qui concerne les fluorures et inexistantes en ce qui concerne les oxy-fluorures.

Pour estimer la formation des oxydes à l'aide des bases de données, il faut comparer les enthalpies de réaction du type de la relation 3.48.



Les réactions bilan, ainsi que leur enthalpie calculées grâce à HSC, sont résumées dans le tableau 3.16.

Réaction bilan	Enthalpie (à 800°C) (kJ)
$ZrF_4 + O_2(g) = ZrO_2 + 2F_2(g)$	665
$UF_4 + O_2(g) = UO_2 + 2F_2(g)$	707
$ThF_4 + O_2(g) = ThO_2 + 2F_2(g)$	747
$LaF_3 + \frac{3}{4}O_2(g) = \frac{1}{2}La_2O_3 + \frac{3}{2}F_2(g)$	693
$CeF_3 + \frac{3}{4}O_2(g) = \frac{1}{2}Ce_2O_3 + \frac{3}{2}F_2(g)$	676
$BaF_2 + \frac{1}{2}O_2(g) = BaO + F_2(g)$	580

TABLE 3.16: Enthalpies des réactions bilan de chaque oxydation

La réaction la plus favorable serait alors la formation d'oxyde de zirconium : l'enthalpie de réaction normalisée à la disparition d'une mole d' $O_2$  est effectivement la plus faible. Cependant le thorium est un élément constitutif du solvant, et l'uranium est présent en quantité non négligeable, alors que les autres éléments ne sont présents qu'en solution, il est donc difficile de conclure avec certitude que 0,3 mole d'oxygène produite par jour conduira à l'extraction de 0,15 mole par jour de  $ZrO_2$ .

Beaucoup d'informations sur le comportement des oxydes dans les sels fluorure sont présentes dans les travaux de l'ORNL, et peuvent confirmer ces tendances. On trouve notamment dans [Br-63] le résumé d'une expérience présentant un sel LiF- $BeF_2$  dans lequel ont été introduites des billes d'oxyde  $UO_2$ . Du  $ZrF_4$  a été introduit dans ce mélange et il a été observé la disparition complète de l' $UO_2$  pour se voir former de l'oxyde de zirconium. L'ORNL préconisait même d'introduire du zirconium comme moyen de protection contre la formation d'oxyde d'uranium. Nous devons pondérer cette tendance par le fait que, lorsque le rapport des concentrations devenait trop en faveur de l'uranium, les deux espèces étaient présentes sous forme d'oxyde. L'oxyde de thorium n'est jamais mentionné.

Sous réserve du fait que les comportements des oxydes soient similaires dans LiF- $BeF_2$  et dans LiF- $ThF_4$ , le cas de l'oxygène pourrait devenir perturbant puisqu'une fois le zirconium oxydé, il est fort possible que l'uranium se trouve à son tour sous forme  $UO_2$ . Devant les taux de production respectifs (4,3 mol/j pour le Zr et 0,3 mol/j pour l'oxygène), nous supposons par la suite que l'oxygène et le zirconium forment du  $ZrO_2$  insoluble, et supposé extrait par le bullage. Nous considérerons que l'uranium, quant à lui, ne s'oxyde pas.

Le comportement de l'azote est, quant à lui, très incertain, cependant les quantités en jeu peuvent être considérées comme négligeables dans le sel combustible. Si cet élément n'est pas extrait par le bullage, alors les caractéristiques neutroniques du réacteur ne sont pas affectées.

### 3.3.1.3 Le séparateur de bulles

Le séparateur de bulles, tel qu'il est conçu aujourd'hui, est illustré schématiquement dans la figure 3.24. Ce séparateur fonctionne sur la base d'un cyclone : le liquide chargé en bulles pénètre dans un cylindre tangentiuellement. Les bulles sont alors rassemblées au centre et on observe l'apparition d'une colonne où les bulles coalescent. Les éléments non-solubles se retrouvent alors dans cette colonne et sont rassemblés en haut du séparateur, où un flux gazeux est sensé entraîner ces particules. Si cela ne pose pas de problème pour les gaz, le sort des particules métalliques est moins certain. Si elle sont suffisamment petites, les particules devraient être entraînées par le flux d'hélium gazeux pour former un aérosol de gaz et de particules en suspension. Si, par contre, les particules ont grossi, le flux gazeux pourrait ne pas réussir à les entraîner. Il est alors probable qu'elles se rassemblent pour former une pellicule solide qu'il faudra alors extraire mécaniquement. Il est aussi probable qu'elles se déposent sur les parois.

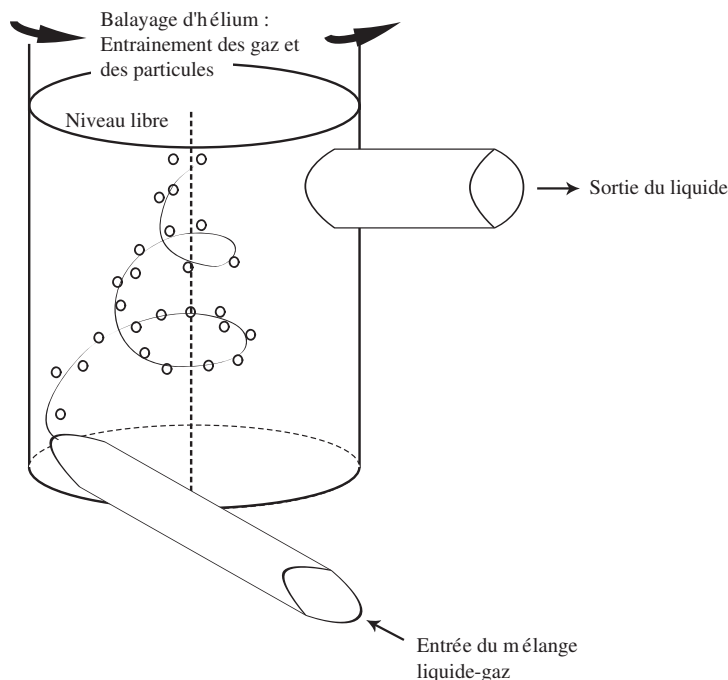


FIGURE 3.24: Version schématique du séparateur conçu pour FFFER [Gh-10]

### 3.3.2 Principe théorique

Si un des buts du bullage est d'effectuer une extraction rapide des produits de fission, on cherche aussi à contrôler le dégazage des gaz rares. La solubilité des gaz n'est pas connue dans le sel combustible, ni même dans le binaire le plus proche ( $\text{Li-ThF}_4$ ), par conséquent nous prendrons les valeurs, trouvées dans la bibliographie, que nous estimons les plus pertinentes. Il s'agit d'un sel  $\text{NaF-ZrF}_4$ , pour lesquelles les solubilités de différents éléments approchent quelques  $10^{-8}$  mole par  $\text{cm}^3$  de sel [Gr-58]. Il faut toutefois rappeler qu'il y a de fortes possibilités pour que la présence d'un des gaz nuise à la solubilité des autres. Pour compenser cet effet, nous supposons que la solubilité effective dans le sel est en fait la solubilité divisée par le nombre d'espèces en présence

(3 dans ce cas : He, Kr et Xe). Par ailleurs, la solubilité d'une espèce est proportionnelle à la pression, qui est estimée à 5 bars dans le coeur (essentiellement due aux pertes de charges dans le circuit combustible). Les solubilités de [Gr-58], ainsi que celles que nous utilisons, sont résumées dans le tableau 3.17.

Elément	Solubilité mesurée (NaF-ZrF <sub>4</sub> , 1 atm, 800°C)	Solubilité estimée (LiF-ThF <sub>4</sub> , 5 atm, 800°C)
He	$5 \cdot 10^{-7}$ mol/cm <sup>3</sup>	$8,3 \cdot 10^{-7}$ mol/cm <sup>3</sup>
Kr	$7 \cdot 10^{-8}$ mol/cm <sup>3</sup>	$1,2 \cdot 10^{-7}$ mol/cm <sup>3</sup>
Xe	$5 \cdot 10^{-8}$ mol/cm <sup>3</sup>	$8,3 \cdot 10^{-8}$ mol/cm <sup>3</sup>

TABLE 3.17: Solubilités mesurées et solubilités effectives

Comme il y a environ 18 m<sup>3</sup> de sel combustible, les valeurs de solubilité permettent de calculer des quantités dissoutes dans le sel pour l'hélium, le krypton et le xénon respectivement de 15, 2,1 et de 1,5 moles, ce qui représente un volume de 328 l sous 5 atmosphères et 800°C. L'injection de gaz neutre permet d'extraire les produits de fission. Comme nous l'avons présenté précédemment, nous pouvons associer une constante  $\lambda^{bullage}$ , homogène à l'inverse d'un temps pour caractériser l'extraction. Pour chaque isotope dans le sel, dont la quantité serait représentée par la grandeur  $S_i$ , nous pouvons écrire l'équation d'évolution comme l'équation 3.49 :

$$\frac{dS_i}{dt} = \tau_i^s - \lambda S_i - \lambda^{bullage}(S_i - S_i^0) \quad (3.49)$$

où  $\lambda$  représente la constante de désintégration nucléaire de l'isotope  $S_i$ , et  $\tau_i^s$  le taux de production, par fission ou par décroissance d'éventuels éléments pères. La grandeur  $S_i^0$  représente la quantité de  $S_i$  solubilisée, seule la partie  $S_i - S_i^0$  est extractible par le bullage. Rappelons que  $\lambda^{bullage}$  peut être calculée comme  $\frac{\ln(2)}{T}$  où T représente le temps nécessaire pour diviser d'un facteur 2 la quantité de PF gazeux contenus dans le sel combustible grâce au bullage.

La première étape après l'extraction du coeur est un réservoir temporaire pour laisser décroître une partie de la radioactivité. Notons  $R_i$  la quantité de l'isotope  $i$  présente dans le réservoir. Les gaz restant dans le réservoir sont en quasi-totalité renvoyés comme gaz de bullage. Notons  $\lambda_r$  la constante associée au temps de vidange du réservoir et  $\eta$  la proportion des gaz sortant du reservoir qui partent vers le coeur, le reste allant vers une deuxième étape que nous développerons dans la suite. Il faut alors modifier l'équation 3.49 en ajoutant un terme d'apparition pour obtenir l'équation 3.50 :

$$\frac{dS_i}{dt} = \tau_i^s - \lambda S_i - \lambda^{bullage}(S_i - S_i^0) + \lambda_r \eta R_i \quad (3.50)$$

L'équation régissant la quantité  $R_i$  est écrite comme 3.51.

$$\frac{dR_i}{dt} = \tau_i^R + \lambda^{bullage}(S_i - S_i^0) - \lambda_r R_i - \lambda R_i \quad (3.51)$$

où  $\tau_i^R$  est le taux d'apparition par décroissance d'éventuels éléments pères présents dans le circuit de bullage. En effet, les éléments comme le tellure ou le sélénium sont extraits par le bullage et peuvent décroître en halogénure, qui eux-mêmes peuvent décroître en gaz rare. C'est ainsi que l'on a une production de xénon et de krypton à l'extérieur du coeur.

La partie du flux sortant du réservoir qui ne part pas vers le coeur est extraite dans des bouteilles pour un stockage temporaire plus long. L'idée est de laisser décroître les éléments qui ont quelques minutes à quelques jours de période radioactive comme notamment le Xe-133 qui possède 5,2 jours de demi-vie. En notant  $B_i$  la quantité considérée dans les bouteilles, et  $\lambda_B$  la constante associée au temps caractéristique du séjour des isotopes dans les bouteilles, nous pouvons écrire l'équation 3.52 .

$$\frac{dB_i}{dt} = (1 - \eta)\lambda_r R_i - \lambda B_i - \lambda_B B_i \quad (3.52)$$

Notons qu'il ne peut y avoir de production dans les bouteilles puisque seuls les gaz sont extraits du réservoir vers les bouteilles. Les métaux sont, en effet, piégés dans le premier réservoir temporaire.

Les équations 3.50, 3.51 et 3.52 sont donc les équations régissant l'évolution des compositions dans l'ensemble du système de bullage. A ces équations, nous pouvons ajouter une équation de conservation de la matière : en effet, la somme de toutes les quantités présentes dans le sel ( $S = \sum_{\text{isotopes}} S_i$ ) représente la quantité de gaz présente dans le sel. Cette quantité est connue puisque c'est la somme des quantités solubilisées et des quantités présentes dans les bulles. La quantité de bulle est caractérisée par la fraction volumique de bulle ( $f_b$ ), soit le rapport entre le volume des bulles sur le volume de sel combustible (cette fraction de bulle est choisie à 0,1%). Nous pouvons donc écrire l'équation 3.53 :

$$\frac{P f_b V_{tot}}{RT} + \sum_{\text{isotopes}} S_i^0 = \sum_{\text{isotopes}} S_i \quad (3.53)$$

où  $P$  représente la pression dans le sel de coeur (estimée à 5 atmosphères),  $V_{tot}$  le volume total de sel (18 m<sup>3</sup>),  $T$  la température du système (800°C) et  $R$  la constante des gaz parfaits (8,31 J/mol.K).

C'est donc à partir de 3.50, 3.51, 3.52 et 3.53 que nous allons essayer de trouver les caractéristiques du circuit de bullage.

### 3.3.2.1 Estimation des taux de production

Pour estimer les taux de production dans le sel et dans les réservoirs, nous avons réalisé une simulation en prenant en compte une unité de bullage très simplifiée. En effet, nous avons considéré que les isotopes qui devaient être extraits par le bullage l'étaient en 30 secondes. L'extraction conduisait directement vers un stockage définitif pour calculer les différents taux de production. Les équations établies au paragraphe précédent peuvent alors être simplifiées en 3.54 et 3.55.

$$\frac{dS_i}{dt} = \tau_i^S - \lambda S_i - \lambda^{bullage} S_i \quad (3.54)$$

$$\frac{dR_i}{dt} = \tau_i^R - \lambda R_i + \lambda^{bullage} S_i \quad (3.55)$$

Le temps caractéristique de 30 secondes est tiré des observations réalisées sur le MSRE où le bullage n'était pas, au départ, volontaire [Gw-05]; par conséquent, nous avons calculé  $\lambda^{bullage} = \ln(2)/30$ . Une fois l'équilibre atteint, nous pouvons effectuer l'égalité entre les sources d'apparition et les sources de disparition (décroissances radioactives et extraction pour les quantités présentes dans le sel et décroissance pour les isotopes présents à l'extérieur) pour calculer les taux de production. Dans le cas des isotopes stables dans le circuit de bullage, l'accroissement des quantités est linéaire et le coefficient de proportionnalité, diminué du flux venant du coeur, nous donne le taux de production dans le circuit de bullage. Ces taux sont résumés dans le tableau 3.18. Tous les taux de production sont exprimés en moles par jour dans ce tableau.

Krypton				Xénon			
Isotope	Periode	Production dans le sel	Production dans le reservoir	Isotope	Periode	Production dans le sel	Production dans le reservoir
Kr-80	stable	$3,16.10^{-6}$	$\sim 0$	Xe-126	stable	$7,83.10^{-7}$	$\sim 0$
Kr-81	$2,3.10^5$ ans	$1,16.10^{-7}$	$\sim 0$	Xe-128	stable	$5,20.10^{-5}$	$\sim 0$
Kr-82	stable	$6,67.10^{-4}$	$1,09.10^{-5}$	Xe-129	stable	$5,81.10^{-7}$	$1,56.10^{-6}$
Kr-83	stable	$1,64.10^{-4}$	$1,2.10^{-1}$	Xe-129m	8,89 j	$5,81.10^{-7}$	$\sim 0$
Kr-83m	1,83 h	0,018	$8,43.10^{-2}$	Xe-130	stable	$2,51.10^{-3}$	$4,42.10^{-6}$
Kr-84	stable	0,052	$1,39.10^{-1}$	Xe-131	stable	0,018	$4,02.10^{-1}$
Kr-85m	4,48 h	0,526	$2,07.10^{-2}$	Xe-131m	11,9 j	$3,78.10^{-4}$	$4,29.10^{-3}$
Kr-85	3917 j	0,009	$1,73.10^{-1}$	Xe-132	stable	0,051	$4,68.10^{-1}$
Kr-86	stable	0,265	$3,67.10^{-2}$	Xe-133m	2,19 j	0,013	$3,96.10^{-4}$
Kr-87	76,3 min	0,390	$6,59.10^{-3}$	Xe-133	5,243 j	0,139	$4,85.10^{-1}$
Kr-88	2,84 h	0,487	$7,65.10^{-4}$	Xe-134	stable	0,297	$3,70.10^{-1}$
Kr-89	3,15 min	0,492	$3,85.10^{-5}$	Xe-135m	15,29 min	$9,22.10^{-3}$	$1,64.10^{-3}$
Kr-90	32,32 s	0,402	$5,48.10^{-6}$	Xe-135	9,14 h	0,418	$2,42.10^{-1}$
Kr-91	8,57 s	0,207	$2,77.10^{-7}$	Xe-136	stable	0,667	$2,31.10^{-2}$
Kr-92	1,840 s	0,082	$\sim 0$	Xe-137	3,818 min	0,592	$6,86.10^{-4}$
Kr-93	1,286 s	0,018	$\sim 0$	Xe-138	14,08 min	0,493	$9,35.10^{-5}$
				Xe-139	39,68 s	0,299	$3,47.10^{-6}$
				Xe-140	13,6 s	0,152	$7,00.10^{-7}$
				Xe-141	1,73 s	0,042	$\sim 0$
He-4	stable	0,511	0	Xe-142	1,25 s	0,012	$\sim 0$
He-3	stable	$7,28.10^{-9}$	0	Xe-144	1,15 s	$7,15.10^{-4}$	$\sim 0$

TABLE 3.18: Résumé des taux de production des différents produits de fission gazeux (en mol/j)

### Lien avec les constantes caractéristiques d'extraction

Les taux de production dans le coeur sont en fait la somme du taux de production par fission et du taux de production par décroissance alors que dans le réservoir, le taux de production est exclusivement dû aux décroissances des éventuels éléments pères. Puisque le spectre neutronique est rapide dans le coeur, les sections efficaces des produits de fission sont très faibles et nous pouvons donc négliger le taux de disparition par capture neutronique dans un premier temps. Sous cette hypothèse, la somme des taux de production est constante, puisque le seul terme de disparition est la décroissance nucléaire dans un cas comme dans l'autre.

Le taux de production par fission des différents produits de fission dans le coeur reste constant quelles que soient les caractéristiques d'extraction. Par contre le taux d'apparition par décroissance d'éventuels métaux dépend très fortement du temps nécessaire pour extraire les métaux. Comme les durées de vie des différents éléments pères peuvent varier entre quelques secondes et quelques dizaines de secondes, il est difficile d'estimer les taux de production dans le coeur dû aux décroissances dans un temps plus court. Notre modèle n'est donc valable que si les métaux sont extraits avec un temps caractéristique proche de 30 secondes. Notons que la solubilité des métaux est une grandeur fondamentale et absolument inconnue. Nous avons considéré cette solubilité comme infiniment faible, mais si celle-ci devrait prendre une valeur non négligeable, il y aurait un équilibre entre les métaux sous forme solubilisée et ceux sous forme de particule. Cet équilibre rallongerait alors le temps d'extraction, de la même manière que la quantité de gaz solubilisé a un impact fort sur le temps d'extraction de ceux ci, comme nous le verrons dans le paragraphe suivant.

#### 3.3.2.2 Importance de la solubilité

Pendant la phase de résolution des équations, il est apparu que la solubilité des gaz jouait un rôle fondamental dans le concept. En effet, le terme d'extraction par le bullage, que nous avons quantifié comme  $\lambda^{bullage}(S_i - S_i^0)$ , fait apparaître très clairement la solubilité. Pour estimer la quantité de chaque isotope gazeux, nous faisons l'hypothèse qu'un équilibre s'établit entre les gaz dans les bulles et les gaz solubilisés. Le paragraphe suivant est dédié à la validation de cette hypothèse, puis nous verrons pourquoi une mesure de confirmation de la solubilité de ces gaz est fondamentale.

#### Equilibre entre les quantités solubilisées et présentes dans les bulles

Nous supposons que le volume des bulles représente 0,1% du volume du sel combustible et que le rayon des bulles est de l'ordre du millimètre, la surface d'échange est alors d'environ 54 m<sup>2</sup> (la surface d'une bulle serait de 1,26.10<sup>-5</sup>m<sup>2</sup> avec 4,3.10<sup>6</sup> bulles). Puisque que les bulles sont uniformément réparties, cette quantité de gaz représente une bulle tous les 4,2 cm<sup>3</sup>.

Les gaz sont formés par fission et donc de manière isolée les uns des autres. Nous ne pouvons cependant pas utiliser la théorie cinétique des gaz parfaits pour les atomes de krypton, de xénon ou d'hélium présents sous forme solubilisée, puisque l'interaction avec le solvant doit être importante (prépondérante devant les interactions des ions solubilisés). Cependant la référence [Di-01] démontre que l'énergie cinétique moyenne d'une particule est de l'ordre de kT. Par conséquent, la vitesse d'un atome isolé se-



rait de plusieurs centaines de m/s. Au vu des dimensions du système et de la vitesse d'écoulement du sel combustible (que nous verrons ultérieurement), nous pouvons donc supposer qu'un atome isolé devrait traverser plusieurs fois l'interface liquide/gaz avant que les bulles ne soient extraites.

### Estimation des performances d'extraction

A l'aide de cette hypothèse, nous pouvons écrire la quantité dans le sel de coeur, pour chaque élément comme l'expression 3.56.

$$\frac{S_i^0}{\sum S_i^0} = \frac{S_i}{\sum S_i} \quad (3.56)$$

Où  $\sum S_i^0 = S^0$  représente la solubilité de l'élément correspondant à  $S_i$  (c'est en fait la grandeur estimée), nous pouvons donc écrire 3.56 indépendamment pour les kryptons, pour les xénon et pour l'hélium. Il s'en suit l'expression 3.57 :

$$S_i^0 = S^0 \frac{S_i}{S} = S^0 \frac{S_i}{S^0 + S^b} \quad (3.57)$$

où  $S^b$  représente la quantité (en moles) d'éléments considérés dans la fraction de bulle dans le sel de coeur (c'est un certain pourcentage de la quantité de matière présente dans les bulles). Nous pouvons alors récrire le terme de disparition par bullage comme 3.58.

$$\lambda^{bullage}(S_i - S_i^0) = \lambda^{bullage} S_i \left( 1 - \frac{1}{1 + \frac{S^b}{S^0}} \right) \quad (3.58)$$

Grâce à cette expression, nous voyons clairement que la quantité de gaz présente dans le sel sous forme solubilisée et celle présente dans les bulles sont en compétition. Si la solubilité est en fait deux fois plus grande qu'estimée, il faudra alors multiplier par deux la fraction de bulle pour avoir une extraction équivalente.

Rappelons que les solubilités dans le sel de coeur ne sont pas connues, et que nous les avons estimées à partir de données valables pour un sel NaF-ZrF<sub>4</sub>. Insistons donc sur l'importance de la mesure de la solubilité des gaz dans le sel pour quantifier correctement les performances de l'extraction par le bullage.

### 3.3.2.3 Calcul du temps caractéristique de l'extraction du sel

Le débit de circulation du sel ( $\dot{m}$ ) est donné par la relation 3.59 (avec  $P$  la puissance totale à évacuer,  $c_p$  la capacité calorifique et  $\Delta T$  la différence de température entre l'entrée et la sortie du coeur) :

$$\dot{m} = \frac{P}{c_p \Delta T} \quad (3.59)$$

L'application numérique donne un débit volumique d'environ 7 m<sup>3</sup> par seconde ( $\rho \sim 4,14 \text{ g.cm}^{-3}$ ;  $c_p \sim 1045 \text{ J.K}^{-1}.\text{kg}^{-1}$ ; et  $\Delta T = 100^\circ\text{C}$  et  $P = 3000 \text{ MW}$  en

supposant que toute la puissance est déposée dans le sel combustible), soit un temps d'environ 2,57 secondes pour parcourir le circuit combustible.

Au vu des récents travaux effectués à Grenoble par Véronique Ghetta [Gh-09] sur la séparation entre un liquide et les bulles, il est raisonnable de supposer que l'efficacité d'extraction est proche de 100%. Malheureusement, pour des raisons mécaniques, il semble impossible de faire passer l'ensemble du sel combustible dans le séparateur sel/bulles, seule une proportion  $\epsilon$  du débit de sel sera traitée. Le temps de vie des bulles dans le sel serait alors le temps nécessaire pour aller de l'injection à l'extraction  $t$  multiplié par la probabilité d'extraction, qui serait de  $\epsilon$  si les bulles étaient uniformément réparties dans le sel combustible. Pour diminuer le temps de vie des bulles dans le sel, et donc améliorer les performances de l'extraction par le bullage, nous pouvons imaginer un système qui concentrerait les bulles : une mise en rotation radiale du sel dans les collecteurs supérieurs par exemple. Ainsi, en notant  $\gamma$  le facteur de concentration des bulles, le temps de vie de la bulle peut alors s'exprimer comme  $\frac{t}{\gamma\epsilon}$ . D'une manière plus intuitive, si les bulles sont émises au temps  $T_0$ , elles peuvent être extraites au premier passage avec une efficacité d'extraction  $\epsilon\gamma$ . Les bulles seront alors restées  $t/2$  secondes dans le coeur.  $1 - \epsilon\gamma$  bulles ne sont pas extraites, et une proportion  $\epsilon\gamma$  d'entre elles seront extraites après un tour et demi soit  $3t/2$ . La durée de vie des bulles dans le sel peut donc s'exprimer comme la somme 3.60.

$$T = \gamma\epsilon\frac{t}{2} + (1 - \gamma\epsilon)\gamma\epsilon\frac{3}{2}t + (1 - \gamma\epsilon)^2\gamma\epsilon\frac{5}{2}t + \dots = \sum_{i=0}^{\infty} \gamma\epsilon(1 - \gamma\epsilon)^i \frac{2i + 1}{2}t \quad (3.60)$$

Le développement de la série conduit à l'expression 3.61.

$$T = \frac{2 - \gamma\epsilon}{2\gamma\epsilon}t \quad (3.61)$$

Comme  $t$  vaut 2,57 secondes, que le design du coeur permettrait de traiter un 35<sup>ème</sup> du débit de sel et que la concentration des bulles dans la fraction circulant dans le séparateur peut être 30 fois supérieur à la concentration dans le reste du sel, le temps de vie des bulles est d'environ 2 secondes. A partir du moment où un atome est piégé dans les bulles, son extraction est donc extrêmement rapide.

Cependant, une grande quantité de gaz est présente dans le sel sous forme solubilisée. En effet, si l'on a 0,1% du volume total de sel comme volume de bullage, la loi des gaz parfaits nous indique que cela ne représente qu'une mole environ. Cette valeur est à comparer aux valeurs de solubilité estimées qui sont très supérieures. Il y a donc plus d'atomes de gaz solubilisé dans le sel que dans les bulles. Le temps caractéristique d'extraction des gaz peut donc s'exprimer comme l'expression 3.62.

$$T_{effectif} = T_{bulle} \frac{S^b}{S^0 + S^b} \quad (3.62)$$

où  $T_{bulle}$  représente le temps de vie des bulles calculé précédemment.  $S^b$ , comme nous l'avons précédemment défini est la quantité de l'élément considéré présente dans les

bulles. Comme le gaz d'injection des bulles provient directement du réservoir, la proportion de krypton (resp. xénon et hélium) dans les bulles est la même que la proportion de krypton (resp. xénon et hélium) dans le réservoir. A partir de ces quantités  $R$  calculées, nous pouvons alors estimer les quantités  $S^b$  et donc les différents temps effectifs des xénon, kryptons et hélium. Cette démarche impose un schéma de calcul récursif dont nous présentons les résultats dans le paragraphe suivant.

### 3.3.2.4 Recherche d'un point de fonctionnement

Les différentes équations qui régissent le bullage (3.50, 3.51, 3.52 et 3.53) lient 4 paramètres à 4 équations. A l'aide d'un tableur, nous pouvons écrire les équations correspondantes pour trouver un ensemble de solutions acceptables du point de vue du dimensionnement. Dans nos équations, puisque les quantités interviennent de manière absolue et non pas de manière volumique, la fraction de gaz à retraiter (celle qui ne retourne pas en coeur) est fortement liée au temps de résidence des gaz dans le réservoir. En effet, le flux de gaz de sortie du réservoir, et par conséquent la quantité de gaz présent, ne dépend que du temps de séjour global dans ce réservoir. Le flux entrant dans le sel (flux des bulles) dépend par contre de  $\eta$  et de  $\lambda_r$ . Nous pouvons donc trouver, pour chaque temps de résidence, une fraction à extraire qui permet de maintenir la quantité de gaz (dissout et dans les bulles) constante, à la valeur voulue (solubilité et fraction de bulle). Notons que la proportion  $\eta$  du flux de gaz qui est déviée vers les bouteilles est liée à la fraction de bulle dans le coeur. Les autres paramètres n'influencent que très peu cette proportion. Nous avons donc choisi de travailler avec un volume de bulles de 0,1%, ce qui semble raisonnable au vu des débits envisagés (environ  $7\text{m}^3/\text{s}$  pour le sel combustible et donc  $7\text{l/s}$  de gaz).

Nous avons calculé le volume du réservoir extérieur ainsi que le pourcentage des décroissances perdues dans le sel, en fonction du temps de résidence des gaz dans ce réservoir, constitutif du premier étage. Les résultats sont présentés dans la figure 3.25.

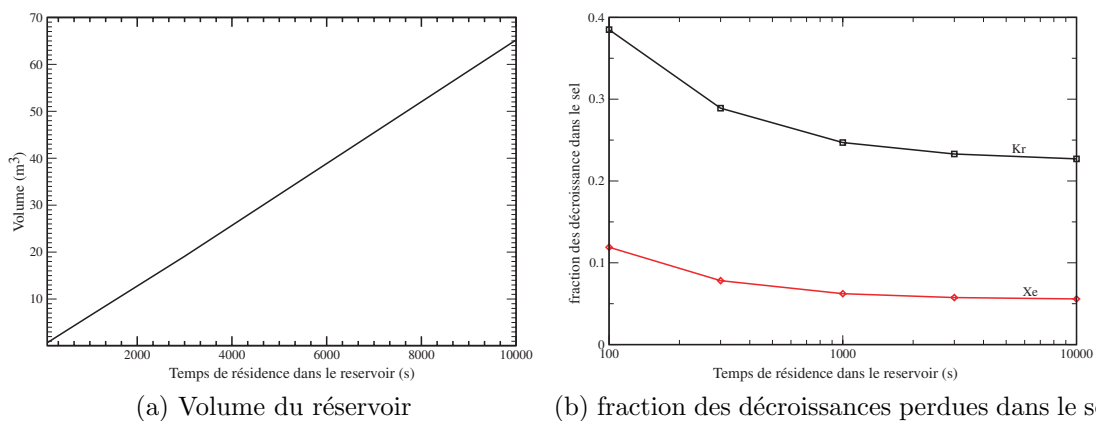


FIGURE 3.25: Dimensionnement du système de bullage en fonction des performances souhaitées

En sortie de séparateur, les gaz sous pression impactent une nappe d'un liquide (sel type LiF-NaF-KF, ou un métal fondu). L'impact permet de séparer le gaz des différentes particules métalliques qui pourraient être entraînées par le flux gazeux. Le temps de

séjour dans ce premier réservoir devrait être assez long (quelques 90% du temps passé à l'extérieur). Une injection permettrait d'extraire ce gaz pour réaliser un deuxième impact sur une nappe du même type, dans le but de nettoyer le gaz des différentes impuretés métalliques présentes sous forme d'aérosol, produites par décroissance dans le premier réservoir. Ce sont donc essentiellement des alcalins et alcalino-terreux. Le temps de séjour dans ce deuxième réservoir devrait, par conséquent, être beaucoup plus court (soit de l'ordre de quelques secondes).

A la sortie du second réservoir, nous pratiquons alors la ponction qui permet d'extraire la production journalière. L'étape suivante est un refroidissement pendant 6 mois, puis une séparation cryogénique qui permet de séparer les kryptons des xénon. Ce deuxième étage du bullage est discuté dans la section suivante. Le schéma de l'ensemble est présenté dans la figure 3.26.

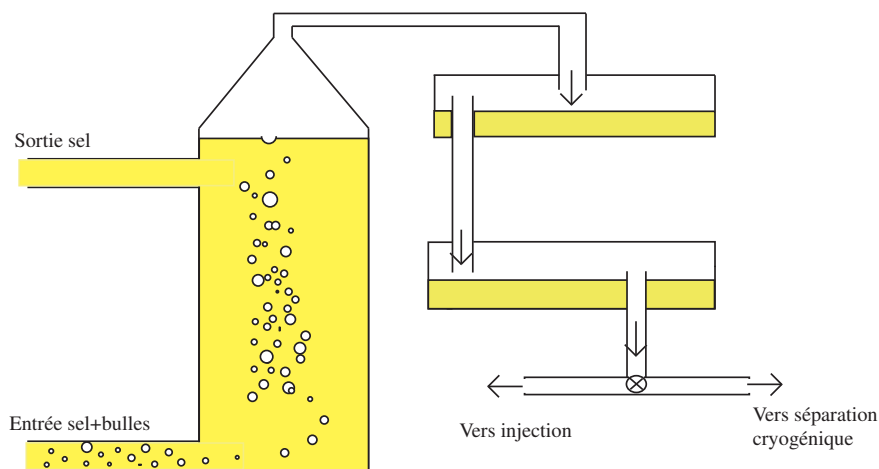


FIGURE 3.26: schéma du dispositif de bullage

Nous insistons sur le fait que le volume de ces réservoirs est directement lié au temps que les gaz passent à l'extérieur du coeur. Il y a donc un compromis à trouver entre le volume total et les performances, suivant le design du réacteur. Une étude en cours, portée par la société A3I et commanditée par le LPSC, permettra de trancher sur le volume maximum acceptable du système de bullage pour que celui-ci reste localisé dans la cuve du réacteur.

### 3.3.3 Le deuxième étage du bullage

#### 3.3.3.1 Quantités en jeu

Comme nous venons de le voir, ce deuxième étage a pour but d'extraire du système la production journalière de gaz. Les calculs précédents permettent de trouver le volume de gaz à extraire effectivement vers les bouteilles. Pour un volume de bulles de 0,1% du volume de coeur, la proportion à extraire est constante quel que soit le temps de résidence des gaz dans les réservoirs du premier étage à une valeur d'environ 0,017%. Ce mélange gazeux, contient une certaine proportion d'isotopes encore radioactifs (Xe-133 par exemple), et nous devons attendre un certain temps avant de séparer les kryptons - contenant du Kr-85 - des xénon - tous stables. Les décroissances de ces gaz présents

dans les bouteilles vont, a priori, se déposer sur les parois, réduisant petit à petit le volume de ces bouteilles. Pour limiter leur volume, nous supposons qu'elles sont sous une pression de 100 bars. Une limite de la durée de vie peut être estimée lorsque celles-ci ont perdu 10% de leur volume. Notons que pour faire ces calculs nous avons supposé une densité moyenne des fils de décroissance de  $2\text{g/cm}^3$  (les fils de décroissance sont exclusivement des alcalins et alcalino-terreux dont les densités du strontium, rubidium, césium et baryum sont respectivement de 1,5, 2,6, 1,9 et 3,6). Les résultats des calculs sont présentés dans la figure 3.27.

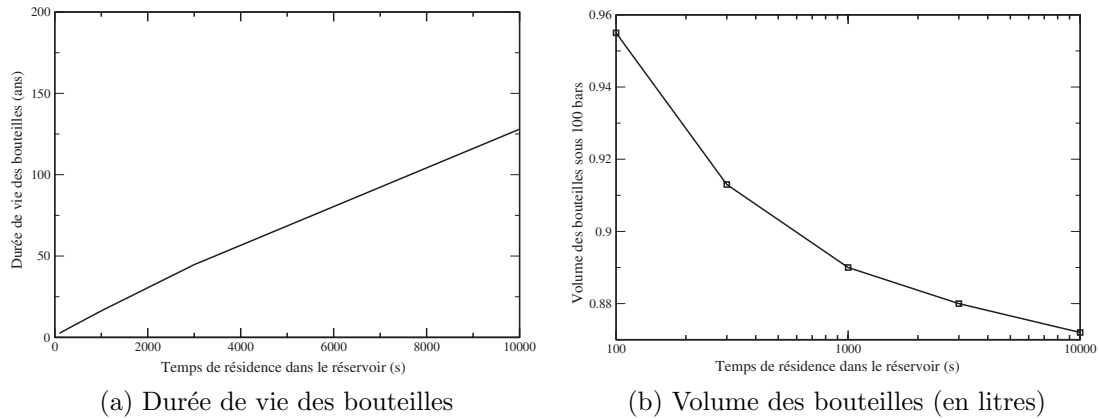


FIGURE 3.27: Caractéristiques des bouteilles en fonction de l'extraction

Notons que le volume des bouteilles est proportionnel à la pression. Si le choix se porte sur des bouteilles à pression ambiante pour des raisons de fiabilité par exemple, alors le volume de celles-ci sera multiplié par 100. Par conséquent, le nombre de décroissances n'évoluant pas, le volume perdu par dépôt sera identique et donc, la durée de vie des bouteilles sera 100 fois plus élevée.

Pour trouver un point de fonctionnement acceptable, il faut mettre en parallèle les courbes 3.27 et 3.25 : le seul inconvénient d'allonger le temps de résidence serait d'augmenter le volume des réservoirs. En effet, lorsque le temps de séjour dans le premier étage de l'unité de bullage est grand, la fraction des décroissances perdues diminue, le volume des bouteilles diminue et leur durée de vie augmente (ce qui implique moins de déchets technologiques ou de recyclage de celles-ci). Les études initiées pour dimensionner le système montrent que l'on pourrait envisager un volume de plusieurs  $\text{m}^3$  pour ces réservoirs sans que ceux-ci fussent être déportés à l'extérieur de la cuve du réacteur. Un temps de résidence de 1000 secondes dans le premier étage implique un volume d'environ  $6,5 \text{ m}^3$ , et semble être un bon compromis. En effet, si l'on imagine augmenter ce temps jusqu'à 1 heure, alors le volume passe à  $23 \text{ m}^3$  et le gain semble faible : la proportion de décroissances perdues dans le sel passe de 0,25 à 0,23 pour les kryptons, le volume des bouteilles descend de  $10 \text{ cm}^3$  (0,88L contre 0,89L), par contre leur durée de vie augmente de 36,4 ans (16,3 ans dans le cas d'une rétention de 1000 secondes contre 52,7 ans si les gaz restent une heure à l'extérieur).

Après 1000 secondes, la courbe 3.25 (b) montre qu'il n'y a plus d'amélioration significative quant aux performances de l'extraction par le bullage. En effet, le taux de perte de décroissance dans le sel n'évolue plus, pas plus que la formation d'alcalins et d'alcalino-terreux dans le sel. Un temps de résidence de 1000 secondes à l'extérieur du

coeur pour le gaz de bullage paraît suffisant pour limiter au maximum cette production d'éléments indésirables.

Dans ces conditions (1000 secondes de temps de rétention), les quantités d'alcalins déposées dans les bouteilles (normalisées à un jour de production) sont présentées dans le tableau 3.19. Chaque jour, une bouteille doit être retraitée après 6 mois d'attente. Pendant ces 6 mois, il y aura presque 0,5g de Cs-135 qui se sera déposé sur les parois des bouteilles.

Elément père	Elément fils	Dépot pendant 6 mois (mol)	Dépot pendant 6 mois (g)
Kr-85	Rb-85 (stable)	$2,83.10^{-3}$	0,241
Kr-87	Rb-87 ( $5,0.10^{10}$ ans)	$2,98.10^{-4}$	0,026
Kr-88	Sr-88 (stable)	$8,18.10^{-4}$	0,072
Xe-133	Cs-133 (stable)	0,044	5,88
Xe-135	Cs-135 ( $2,3.10^6$ ans)	$3,64.10^{-3}$	0,492
Xe-138	Ba-138 (stable)	$6,96.10^{-5}$	$9,6.10^{-3}$
Total		0,053	6,53

TABLE 3.19: Estimation des dépôts dans les bouteilles de stockage

Après les 6 mois de repos, il reste alors 0,79 mole de Kr et 2,3 moles de Xe qu'il faut séparer par cryogénie puisque tous les isotopes du xénon sont stables alors qu'il reste une part non négligeable de Kr-85 qu'il faut stocker pendant une centaine d'années. Notons qu'aujourd'hui, l'usine de retraitement de la Hague, qui retraite 1600 tonnes de combustible de réacteur à eau pressurisée, rejette dans la biosphère les gaz rares qu'elle extrait du combustible solide, après un stockage de plus de 5 ans.

### 3.3.4 Le bullage dans la couverture

Ce paragraphe cherche à répondre à la question suivante : faut-il mettre en place un dispositif de bullage dans la couverture ? Une injection de gaz dans le sel de couverture et un système de récupération du gaz compliqueraient grandement le design de l'ensemble du système. Cependant, un peu moins de 9 MW sont dégagés dans la couverture, suite aux quelques fissions provoquées par l'uranium 233 présent dans la couverture, ce qui correspond à un taux de fission de 0,04 mole par jour. La présence d'une surface libre permettrait un dégazage des produits de fission gazeux, et les produits de fission métalliques pourraient se déposer sur les parois sans extraction forcée.

Pour vérifier si ce bullage est nécessaire, nous avons réalisé une simulation où les métaux ne seraient pas extraits. Le taux de production des différents métaux est répertorié dans le tableau 3.20.

En supposant que la densité des métaux est d'environ 8 (cas défavorable), le volume produit par an de métaux est donc de  $83,5 \text{ cm}^3$ . La section de la couverture représente une surface d'environ  $0,785 \text{ m}^2$ . Si nous supposons que les métaux coulent au fond du volume de la couverture pour s'agglomérer en une sorte de galette, le taux d'accroissement de celle-ci est d'environ  $0,1 \text{ mm}$  par an.

Le bullage forcé n'est donc pas nécessaire dans la couverture pour extraire les métaux. Concernant les gaz, le taux de production est d'environ  $8,2.10^{-3}$  mole par

Elément	Production (mol/an)	Production (g/an)
Mo	2,23	220
Ru	1,12	114
Te	0,64	83
Sn	0,50	61
Pd	0,49	52
Tc	0,4	40
Cd	0,4	45
Se	0,17	14
Rh	0,16	16
Sb	0,11	13
Ag	0,05	6
In	0,03	4
Total	6,3	668

TABLE 3.20: Taux de production des métaux dans la couverture (sans bullage)

jour pour les xénon et  $2,4 \cdot 10^{-3}$  mole pour les kryptons. Ce taux représente un volume d'environ 0,04 l par jour (en supposant que le sel de couverture est sous une atmosphère puisqu'il ne circule pas). Nous pouvons supposer la présence de 1 cm de gaz au-dessus de la couverture, ce qui représente un volume de  $7,85 \cdot 10^{-2}$  m<sup>3</sup>. L'élévation de pression globale serait donc de 0,12 bar par jour. Comme le débit de retraitement de la couverture est de 40l/j, nous pouvons profiter de l'extraction d'une partie du sel de couverture pour évacuer cette production de gaz. Un traitement similaire à celui du sel combustible peut être envisagé : stockage pendant 6 mois dans des bouteilles sous 100 bars, puis séparation cryogénique. Nous imaginons aussi envoyer ces gaz dans le système de bullage du sel de coeur puisque la production journalière des gaz dans la couverture ne représente que 0,1% de la production dans le coeur.

L'injection de gaz dans le sel de couverture n'est donc d'aucune utilité vu les taux de formation des différents métaux et des gaz. Les métaux couleront vraisemblablement au fond du réservoir du sel de couverture, et les gaz s'échapperont vers le haut. Le système de collection de ces gaz peut être simple et complètement intégré au système de ponction du sel de couverture. Les gaz extraits peuvent alors subir le même traitement que les gaz issus du coeur. Nous pouvons imaginer un système indépendant, ou même intégrer la production journalière de gaz dans le flux de gaz sortant de l'unité consacrée au sel de coeur (les taux de production dans la couverture étant négligeables devant les taux de production dans le coeur).

### 3.3.5 La question du tritium

Les rapports de l'ORNL mentionnent des problèmes spécifiques au tritium dans les réacteurs à sels fondus [Ro-71-2] : l'emploi du lithium favorise sa production et la haute température favorise grandement sa diffusion. Le système produit 0,18 mole par jour de tritium qu'il faut évacuer. Les données de solubilité du tritium ne sont pas accessibles, et, si une grande part du tritium devrait suivre le flux de gaz, nous supposons qu'une autre part, non négligeable, va diffuser dans les métaux de structure,

voire dans le sel intermédiaire sensé évacuer la chaleur produite dans le coeur. Faute de pouvoir prédire correctement le comportement de la diffusion du tritium, nous ne nous attarderons pas plus sur son cas. Dans le cas favorable où le tritium suivrait le flux de gaz, nous envisageons un barbotage dans de l'eau pour former de l'eau tritiée, qu'il faudra stocker pendant une centaine d'année.

### 3.3.6 Bilan sur l'unité de bullage : choix effectués

Récapitulons les procédés et les choix effectués sur le système d'extraction des gaz rares et des métaux nobles par bullage d'hélium :

- Le bullage peut potentiellement enlever une grande partie des produits de fission (à part les lanthanides, le zirconium, l'yttrium, les alcalins, les alcalino-terreux et les halogènes). Un système de bullage efficace permet donc d'alléger l'unité pyrochimique.
- Ce système de bullage est grandement simplifié par rapport au système envisagé pour le MSBR. En effet, un premier étage dont le volume devrait être compris dans la cuve du réacteur, est constitué d'un système d'injection de bulles dans le sel combustible, d'un système de séparation et de récupération des bulles et d'un réservoir de rétention. Nous imaginons un bullage à 0,1% en volume. Dans le réservoir, le gaz est nettoyé des particules métalliques par un jet impactant sur un métal ou un sel liquide. Les gaz sont alors réinjectés en coeur tel quel, seule une très faible partie est détournée vers un second étage pour extraire la production journalière.
- Le débit d'entrée du deuxième étage dépend de la nature du bullage, ainsi que du volume des réservoirs envisagés. Si le stockage est possible sous 100 bars, alors la taille serait d'environ 1l. Le nettoyage de ces bouteilles peut être indispensable suivant la taille du réservoir du premier étage, et il y a un compromis à trouver entre la complexité du système de bullage et la durée de vie des bouteilles constituant ce deuxième étage.
- Un volume de 6,5m<sup>3</sup> paraît raisonnable pour que le premier étage du bullage soit complètement intégré dans la cuve du réacteur. Dans ce cas, le temps de résidence des gaz hors du coeur est d'environ 1000 secondes et la durée de vie des bouteilles de 16,3 ans. S'il y a la place pour un volume de 20m<sup>3</sup> pour ces réservoirs dans la cuve, alors le temps de résidence des gaz hors du coeur peut passer à 1 heure, ce qui réduirait considérablement le taux de recyclage des bouteilles puisque la durée de vie dépasserait les 50 ans. Un temps de résidence plus long n'est pas nécessaire pour prévenir la formation d'alcalins et d'alcalino-terreux.
- Enfin, le bullage dans la couverture n'est pas nécessaire. Il suffit de prévoir un niveau libre et un système de collecte des gaz pour laisser le sel de couverture dégazer naturellement. Les produits de fission non-solubles se déposent alors sur les parois ou sur le fond du réacteur, sans conséquence prévisibles.
- En ce qui concerne les métaux, il est fort possible que ceux-ci se déposent sur les parois du séparateur de bulle. Les quantités à extraire ainsi que les grandeurs caractéristiques sont présentés dans le chapitre suivant. Le procédé de nettoyage du séparateur de bulle n'est toutefois pas pensé ni présenté puisqu'il dépend très fortement de la géométrie finale du procédé de séparation des bulles.



## Chapitre 4

# Prédimensionnement de l'unité de retraitement

Le chapitre précédent présente les étapes de base de l'unité de retraitement. Cette unité de retraitement, même si elle n'est pas parfaitement définie à l'heure actuelle, devrait traiter un certain nombre de radio-isotopes par jour, et donc subir des radiations qu'il faut estimer. Dans ce chapitre, nous allons quantifier les flux de matière, de chaleur et les radiations, dans le but d'avoir une première idée sur les besoins en radioprotection ou en installations annexes comme les installations de refroidissement. L'étude s'effectue ici dans la configuration nominale du MSFR, c'est à dire un réacteur de 18m<sup>3</sup> et un nettoyage de 40 litres de sel combustible par jour (soit un temps de 450 jours pour retraiter l'ensemble du coeur). Nous avons montré dans le chapitre précédent que le débit du sel pouvait largement être diminué (au moins d'un facteur 4) sans que cela ne pose de grave question dans la gestion du réacteur ; cependant nous avons choisi cette valeur en estimant que le coeur ne serait vraisemblablement pas retraité plus rapidement. Les résultats de ce chapitre présentent donc certainement une borne supérieure en ce qui concerne les radiations ou les flux de chaleur dégagée. Comme nous le verrons dans ce chapitre, la majorité des grandeurs que l'on exprimera ici est extensive, c'est à dire que ces grandeurs sont dépendantes de la quantité de matière mise en jeu. Rappelons que le retraitement, dans l'état stationnaire, extrait la production journalière de produits de fission. Si le retraitement est 2 fois plus lent que dans le cas nominal, le sel combustible contient 2 fois plus de produits de fission, mais la quantité d'actinides présente dans le sel reste inchangée. Par conséquent, si les grandeurs sont extensives (c'est à dire dépendante de la quantité de matière considérée), les débits de chaleur et de radiations sont constant quel que soit le débit de retraitement en supposant que ceux-ci sont imputés aux produits de fission.

La première partie de ce chapitre se focalisera sur les choix que nous avons dû faire pour l'étude du système de référence. La deuxième partie est dédiée à un inventaire des flux de chaleur, des radiations et des flux de matière. Cette partie est découpée en deux sous-sections : l'une dédiée au retraitement pyrochimique et l'autre à l'unité de bullage. Une troisième sous-section abordera la question du stockage et de la gestion à plus long terme des déchets produits pendant le fonctionnement du réacteur.

## 4.1 Généralités et méthodes de calcul

Cette partie a pour but de rappeler les grandeurs et les choix effectués sur l'installation de retraitement du sel combustible. Elle concerne principalement l'installation de bullage et l'installation d'extraction des lanthanides. Il peut être utile de rappeler que les choix effectués ne sont pas toujours justifiés d'un point de vue scientifique, mais nous avons toujours cherché à maintenir la cohérence de l'ensemble de l'étude. Dans le cas où certaines données physico-chimiques se révélerait clairement fausses, il faudrait alors reprendre l'étude avec l'expertise que nous avons acquise et la méthodologie que nous avons développé. Nous montrons dans ce chapitre que les outils de calculs sont développés et disponibles.

Dans un second temps, nous présenterons les différentes grandeurs physiques qui peuvent être pertinentes dans une étude de dimensionnement de l'unité de retraitement ou de radioprotection, pour voir s'il n'y a pas de point bloquant, ou d'impossibilité technologique. Ces grandeurs seront calculées et répertoriées dans la partie suivante.

### 4.1.1 Rappel sur le système

#### 4.1.1.1 Installation pyrochimique

Dans le cas nominal, nous estimons un débit de 40 litres de sel par jour dans l'unité de retraitement.

En ce qui concerne les performances de la fluoration, nous avons supposé que l'uranium et le neptunium seraient extraits à 99% et le plutonium à 90%. Nous avons considéré que le protactinium ne passait pas sous forme fluorure gazeux pendant le temps de la fluoration, malgré les remarques évoquées dans le chapitre 3. Du point de vue des produits de fission, nous avons vérifié que ceux qui pouvaient se volatiliser grâce à la fluoration se trouvent sous forme métallique dans le sel combustible (molybdène, tchénetium, nobium, tellure ou ruthénium). Comme ces éléments sont extraits par le bullage, nous avons considéré dans nos simulations que l'efficacité de l'extraction par fluoration de ces éléments était nulle, ce qui est une erreur manifeste, mais sans conséquence puisque extrêmement peu de particules métalliques ne devraient se trouver dans l'installation de fluoration.

Dans les deux étapes d'extraction réductrice, nous considérons une nappe de bismuth à saturation en thorium. Au vu de la composition du sel, nous avons considéré que le  $D_{Th}$  est de  $10^{-2}$  pour les échanges entre la nappe métallique et le sel fluorure et fixé à 100 pour les échanges entre le métal et le sel chlorure. Les coefficients de partage de chaque élément, calculés grâce à une valence (normalisée à celle du thorium) et à une grandeur définie dans l'équation 3.18, sont répertoriés dans le tableau 3.15 du chapitre 3. Comme expliqué dans le chapitre précédent, nous avons préféré les données bibliographiques lorsque celles-ci étaient accessibles. Lorsque ces données sont absentes mais que des données thermodynamiques sont accessibles dans la base du logiciel HSC, nous avons utilisé les données du calcul. Enfin, dans le cas le plus défavorable ou rien n'a été trouvé, nous avons pris, par analogie de comportement chimique, le cas le plus défavorable. Ainsi, pour les actinides très lourds (plus lourds que le curium), nous avons utilisé les coefficients de partage de l'élément chimique le plus proche qui provoquait le plus de rejet. Pour les lanthanides Pm, Ho, Tm, Yb et Lu, les données sont identifiées

à l'élément qui à le comportement le plus pessimiste.

Nous supposons enfin que l'hydrolyse extrait tous les produits en solution dans le sel chlorure. Cette option apporte plusieurs avantages dont la sortie des produits de fission sous forme oxyde qui est une forme chimique acceptable pour les verres d'enfouissement. Les oxydes pourront être de plus séparés par simple décantation du sel. Nous supposons que cette étape est idéale.

Le sel de couverture est, lui, simplement fluoré à un rythme de 40 litres par jour dans le but d'extraire les uraniums, neptuniums et plutoniums. Seul 0,4 litre par jour de sel de couverture est retraité de manière plus poussé pour extraire les quelques produits de fission présents dans ce sel de couverture. L'étape envisagée est la même que pour l'extraction des lanthanides du sel de coeur. Il n'y a pas d'étape préalable pour l'extraction des actinides du sel de couverture. Nous avons montré dans le chapitre précédent que l'efficacité d'extraction du protactinium dans l'étape dédiée aux lanthanides était plutôt faible ( $\sim 10^{-5}$ ) et l'étape de fluoration extrait l'uranium et le neptunium. Par conséquent, l'étape pour l'extraction des actinides n'est pas nécessaire puisqu'il n'y a pas d'élément plus lourd que le neptunium dans le sel combustible.

#### 4.1.1.2 Installation de bullage

En ce qui concerne l'installation de bullage, même si nous avons vu qu'un temps d'extraction de quelques secondes pouvait être envisageable, nous avons préféré rester sur la configuration imaginée pour le MSBR et tirée du retour d'expérience du MSRE. Nous avons donc supposé que la moitié des éléments non solubles était extraite en 30 secondes. Nous verrons dans le chapitre suivant les influences que peuvent avoir un temps d'extraction par le bullage plus ou moins long ; cependant, nous pouvons, dès à présent, affirmer que ce temps ne modifie pas fondamentalement les caractéristiques neutroniques. Les gaz et les métaux nobles sont considérés comme extractibles et sont extraits du circuit combustible. Même si le procédé technologique pour extraire les particules solides n'est pas encore défini, nous supposons que ces particules se retrouvent dans le premier réservoir du bullage pour y être lavées par le métal ou le sel fondu. La chaleur résiduelle de cette zone de l'unité de retraitement sera alors majorée.

Le bullage dans la couverture n'est pas nécessaire, comme nous avons pu le montrer au chapitre précédent. Seul un système pour extraire les gaz nobles est envisagé, ce qui peut se faire à l'aide d'un niveau libre ou d'un système de type soupape. Par analogie avec le coeur, nous supposons que les gaz sont extraits avec un temps caractéristique de 30 secondes. Ce temps peut paraître très ambitieux pour un dégazage uniquement naturel, mais les quantités mises en jeu sont si faibles que l'approximation paraît satisfaisante et, de toute façon, sans conséquences.

#### 4.1.1.3 Dénomination des étapes de l'unité de retraitement

Dans les sections suivantes, nous évaluerons plusieurs grandeurs dans l'unité de retraitement via différentes dénominations. La figure 4.1 reprend le schéma de l'unité de retraitement en définissant chacune des différentes zones par un nom qui sera repris dans la suite de ce chapitre.

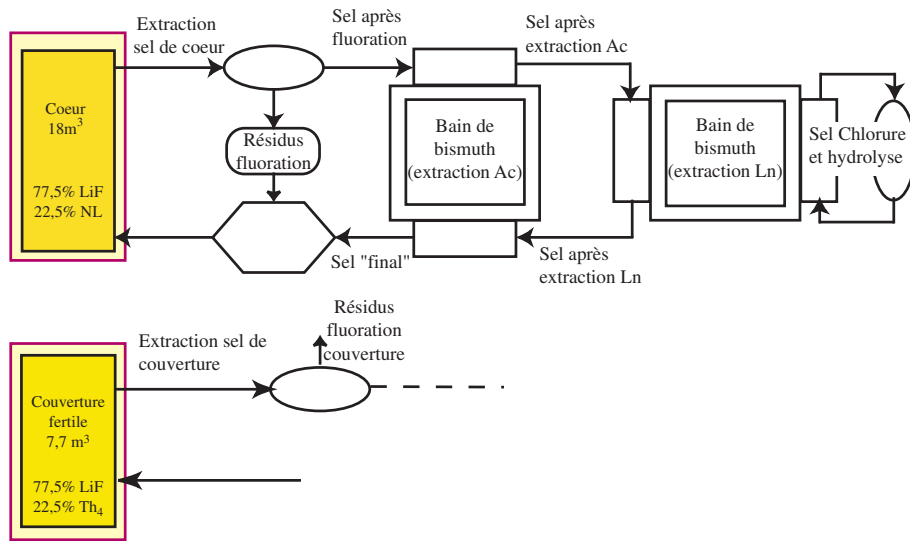


FIGURE 4.1: Dénomination de chaque zone de l'unité de retraitement

### 4.1.2 Méthodologie de calcul des grandeurs de l'aval du cycle

Le fonctionnement de l'unité de retraitement est continu. Passé un certain temps de transition où l'équilibre s'établit, les inventaires dans l'unité de retraitement n'évoluent plus. Ce temps dépendant du temps caractéristique le plus long est de l'ordre d'une petite dizaine d'année dans le cas nominal. Les résultats liés au procédé de retraitement seront donc donnés en valeur absolue, dans l'état stationnaire. Ils ne dépendent que du débit de retraitement (au premier ordre, un retraitement deux fois plus rapide conduira à des inventaires deux fois plus importants), et la prise en compte de l'équilibre représente une majoration du cas étudié puisque les quantités présentes dans les différentes étapes sont monotones croissantes avec le temps (jusqu'à l'équilibre où elles deviennent stationnaires). Par contre, lorsque nous étudierons le stockage et son dimensionnement, les résultats seront normalisés à la quantité d'électricité produite. En effet, si le système fonctionne deux fois plus longtemps, il y aura deux fois plus de déchets ultimes produits, mais l'énergie fournie sera également deux fois plus importante.

#### 4.1.2.1 Inventaire

Le premier indicateur du retraitement et de son dimensionnement est l'inventaire mis en jeu et son évolution dans le temps. Pour évaluer cette évolution, il faut résoudre les équations d'évolution hors flux neutronique qui sont rappelées dans 4.1 - voir équation 2.21 pour laquelle le flux de neutrons est nul.

$$\frac{dN_i}{dt} = \sum_j \lambda_{j \rightarrow i} N_j - \lambda_i N_i \quad (4.1)$$

Il existe une solution analytique à cette équation que l'on résout numériquement par un code d'évolution que nous avons créé pour le calcul de toutes les grandeurs de l'aval du cycle. Les constantes de décroissance sont prises dans la base JEFF3.

#### 4.1.2.2 Radiations gamma

Pour calculer le flux gamma émis par un inventaire considéré, il faut connaître les schémas de décroissance de chacun des isotopes considérés. Ces schémas, disponibles dans les bases de données (notamment via le module NuDat du site nuclear data center [NNDC]), ont été récupérés pour être intégrés dans le code. En notant  $E_r^i$  l'énergie des gamma dégagées par désintégration du noyau  $i$  pour le rayonnement  $r$  et  $\eta_i(E_r^i)$  le rapport d'embranchement de cette énergie, nous sommes capables de déterminer le flux gamma grâce à la relation 4.2 où  $I_r$  représente le nombre d'événements par seconde pour l'énergie  $E$ .

$$I_r(E) = \sum_{i,r} \lambda_i N_i \eta_i(E_r^i) \delta(E, E_r^i) \quad (4.2)$$

La fonction  $\delta$  représente la fonction de dirac. Cette expression n'est rien d'autre que la somme du nombre de coups par seconde, émis par chaque noyau, pour une énergie donnée.

En couplant 4.2 avec 4.1, nous sommes alors capables de calculer l'évolution du flux gamma en fonction du temps de refroidissement.

#### 4.1.2.3 Flux de neutrons

Il paraît important de connaître l'irradiation neutron, en plus du risque de criticité. Pour quantifier le risque de criticité, nous calculerons les coefficients de multiplication effectifs dans des configurations simples à l'aide du code MCNP. L'irradiation neutron est quantifiée quant à elle comme le nombre de particule émis par seconde en distinguant la contribution due aux fissions spontanées et celle due aux décroissances des produits de fission. Cette dernière composante est négligeable devant le taux de fission spontanée. En effet, nous ne comptons que quelques particules par seconde au moment de l'extraction du sel combustible contre près de  $10^8$  neutrons par seconde imputés aux fissions spontanées. Nous ne tiendrons donc compte que de cette composante dans la suite de ce chapitre.

#### 4.1.2.4 Flux de chaleur

La puissance résiduelle est une donnée fondamentale autant pour la sûreté que pour le dimensionnement de l'unité de retraitement. Est-il nécessaire de chauffer le sel pour que celui-ci reste liquide ou au contraire doit-on extraire la chaleur ? La puissance résiduelle est due à la désintégration de tous les produits de fission encore radioactifs ainsi que la désintégration des actinides. Les particules chargées effectuant un parcours assez faible dans la matière, nous pouvons supposer que l'énergie est déposée localement. Ce raisonnement est, bien sûr, erroné en ce qui concerne les rayonnements gamma et neutrons. Cependant, nous supposerons que cette énergie sera déposée dans le volume de sel ou son contenant qui aura pour rôle d'arrêter l'essentiel de ces radiations. Par conséquent, la puissance résiduelle est l'ensemble des radiations de l'ensemble des atomes présents dans le volume considéré. Cette puissance  $Q$  est calculée grâce à la relation 4.3. Pour simplifier les notations, nous noterons  $\eta_{i,r}$ , la grandeur  $\eta_i(E_r)$ , soit le rapport d'embranchement d'une radiation de  $i$  et  $E_r$  l'énergie de cette radiation.

$$Q = \sum_i \lambda_i N_i \eta_{i,r} E_r^i \quad (4.3)$$

#### 4.1.2.5 Radiotoxicité

La radiotoxicité cherche à quantifier l'influence du rayonnement sur le corps humain. Le risque radiologique peut se manifester de trois manières : l'irradiation externe due à l'émission de rayonnement X ou gamma, la contamination externe due à la fixation de produits radioactifs à la surface de la peau et enfin la contamination interne, due à l'incorporation de produits radioactifs dans l'organisme humain. La radiotoxicité représente en fait le danger potentiel des rayonnements ionisants. Dans notre étude, nous distinguons deux types de radiotoxicité : à court terme et à long terme.

La radiotoxicité à long terme cherche à quantifier l'impact que pourrait avoir un rejet de radioisotope dans la biosphère sur des temps allant jusqu'à 1 million d'années. Il est admis que la possibilité la plus probable d'une fuite de radioisotope dans un centre de stockage serait la contamination d'une nappe phréatique et donc la pollution d'eau potable. Lorsque nous citerons les calculs de radiotoxicité à long terme, il sera donc sous-entendu que nous parlerons de contamination interne par ingestion. Il faut toutefois noter que les grandeurs relatives aux gaz rares sont inexistantes des bases de donnée (loi française). Les calculs présentés considèrent donc que les kryptons (et notamment le Kr-85) ne sont responsables d'aucune radiotoxicité. Nous pouvons justifier ce fait par le fait que les gaz rares ne sont pas solubles dans l'eau, et qu'il est donc impossible pour eux de polluer de manière sensible une nappe phréatique.

Par opposition, la radiotoxicité à court terme mesure l'impact que peut avoir un rayonnement gamma sur toute personne pouvant être irradiée. Pour prendre en compte l'accessibilité de l'unité de retraitement, nous calculons la radiotoxicité externe à un mètre de distance du sel combustible, en considérant celui-ci comme ponctuel. Du fait que le sel n'est jamais à l'air libre, nous supposons que les particules alpha et bêta sont arrêtées dans les parois du contenant du sel. Par conséquent, les activités volumiques alpha et bêta sont volontairement omises dans les calculs de radiotoxicités externes. Par contre, nous considérerons qu'il n'y a aucune atténuation, ni de protection pour les rayons gamma -sauf mention contraire. Les valeurs que nous donnons sont donc sur-évaluées, mais constituent un premier repère en ce qui concerne la dangerosité des échantillons considérés. Le débit de dose absorbée à 1 mètre de distance d'une source ponctuelle est donné par la formule empirique 4.4 où  $\frac{dD}{dt}$  représente le débit d'équivalent de dose [Am-10].

$$\frac{dD}{dt} = 1,3 \cdot 10^{-13} \cdot \sum_{i,r} \lambda_i N_i \cdot E_r \eta_{i,r} \quad (4.4)$$

Notons toutefois que cette formule empirique n'est qu'une estimation du débit d'équivalent de dose et que l'on doit s'attendre à des erreurs de l'ordre de 10%. Si cette erreur paraît élevée, elle est satisfaisante à ce stade de l'étude puisque le but, à l'heure actuelle, n'est pas de dimensionner une protection adéquate des installations de l'unité de retraitement. Au vu de la précision de la définition de l'unité de retraitement, cette erreur

n'est certainement pas majoritaire, et par conséquent, nous nous contenterons d'une telle précision dans nos estimations. Augmenter la précision des débits d'équivalent de dose impliquerait de connaître beaucoup plus précisément la géométrie de chaque procédé employé, et de réaliser, pour chacune des étapes envisagées, des simulations beaucoup plus précises, ce qui est inenvisageable pour le moment.

Notons que le calcul d'équivalent de dose ne comporte pas la composante de la dose neutron. La prise en compte de ce type de rayonnement demande une série d'étude réalisées avec des codes dédiés. Ce type d'études semble prématuré au vu de la description du système.

Les valeurs de débit d'équivalent de dose obtenues seront comparées aux classifications des zones E.P.R. qui sont résumées dans le tableau 4.1

Classification de zone EPR	Débit de dose ambiant min	Débit de dose ambiant max
Vert	$7,5\mu Sv/h$	$25\mu Sv/h$
Jaune	$25\mu Sv/h$	$2mSv/h$
Orange	$2mSv/h$	$100mSv/h$
Rouge	$100mSv/h$	$1Sv/h$

TABLE 4.1: Classification des zones EPR d'après [EPR]

Dans les deux cas, la radiotoxicité est calculée comme 4.5 où  $K_i$  représente le facteur de dose interne (respectivement externe) si l'on parle de radiotoxicité interne (respectivement externe).

$$R = \sum_i \lambda_i N_i K_i \quad (4.5)$$

Dans le cas d'une exposition externe, comme  $R = \frac{dD}{dt}$ , la relation 4.5 et la relation 4.4 sont reliées grâce à 4.6. La somme dans le membre de droite de cette équation représente l'ensemble des radiations gamma possibles pour le noyau  $i$ .

$$K_i = \sum_r 1,3 \cdot 10^{-13} E_r^i \eta_{i,r} \quad (4.6)$$

## 4.2 Radiation, bilan matière et flux de chaleur dans le cas de référence

### 4.2.1 Unité de retraitement pyrochimique

#### 4.2.1.1 Risque de criticité

Le but de ce paragraphe est de montrer qu'en fonctionnement nominal, aucune des étapes du retraitement ne présente de risque de criticité. Nous montrerons, dans un deuxième temps, les conditions qui permettent d'arriver à la criticité dans certains cas.

### Cas nominal

Pour évaluer le risque de criticité, nous avons choisi la géométrie la plus défavorable : la sphère. Le rayon de la sphère nue est facilement calculable : en effet, connaissant la densité et la masse de matière dans chaque étape du retraitement, nous pouvons en déduire les dimensions caractéristiques. Dans l'étude de la criticité, trois étapes du retraitement peuvent poser problème :

- l'extraction du sel de coeur (où la composition du sel est identique à celle du sel combustible),
- les résidus de la fluoration,
- et enfin, l'étape où l'on extrait l'uranium du sel de couverture par fluoration.

En effet, si la portion de sel de coeur prélevée pour le retraitement ne révèle pas de risque de criticité, celui-ci sera exclu dans toutes les étapes liées à ce sel combustible lors du retraitement. Pour majorer le risque de criticité, nous avons considéré, dans les deux dernières étapes, la forme la plus compacte. Ainsi, après la fluoration, les uraniums, plutoniums et neptunium sont sous forme gazeuse. Ces fluorures doivent être réduits sous forme saline avant d'être réintroduits dans le système. Pour les risques de criticité, nous considérons donc l'ensemble des noyaux fluorés (uranium, neptunium et plutonium) à l'état salin. Cela se résume principalement à de l' $UF_4$ . Pour les valeurs de densité nécessaires dans nos calculs, nous assimilerons celle du sel considéré à celle du tétrafluorure d'uranium.

Les résultats des calculs sont présentés dans le tableau 4.2.

Etape	Masse considérée pour 40l de sel	Rayon de la sphère nue	Densité	$k_{eff}$ sphère nue
Extraction du sel de coeur	166 kg	21,2 cm	4,14	0,19821±0,00034
Résidus de fluoration	28 kg	10 cm	6,69 [Ca-61]	0,57552±0,00088
Résidus de fluoration couverture	0,33 kg	2,28 cm	6,69 [Ca-61]	0,13023±0,00019

TABLE 4.2: Criticité de trois étapes clefs du retraitement dans le cas nominal à 1100K

Nous voyons dans ce tableau que 40 litres de sel combustible sont largement sous-critique et que l'étape qui pourrait présenter le risque de criticité le plus important est le stockage de l'uranium issu de la fluoration.

### Perturbation

Le sel ne sera jamais à l'air, mais toujours contenu dans différents containers, le calcul type sphère nue représente donc une approximation qui peut paraître forte. Pour prendre en compte la perturbation de cet apport de matière, qui peut être considéré comme un réflecteur de neutrons, nous complétons les calculs type "sphère nue" pour le sel de coeur par des calculs de criticité d'une sphère enveloppée de 25 cm de graphite. Le graphite est choisi, dans cette étude de risque de criticité, car c'est un matériau qui est facilement accessible, supporte le milieu sels fondus et est un bon réflecteur de neutrons.

Une autre perturbation peut être une variation brutale de la température suite à un incident de refroidissement. Comme la variation du coefficient de multiplication de neutron est négative avec la température ( $\frac{dk}{dT} < 0$ ), nous considérerons un refroidissement



du sel. Nous avons donc effectué un calcul de criticité à une température légèrement supérieure au point de fusion du sel (600°C) pour le sel de coeur, ainsi que pour les résidus de la fluoration (matière qui représente le risque de criticité le plus important comme le montre le tableau 4.2). Le coefficient de dilatation du sel combustible est pris à  $-9,5.10^{-4}$  alors que celui des résidus de la fluoration est assimilé à celui de l'UF<sub>4</sub> pur soit  $-9,9.10^{-4}$  [Ca-61].

Enfin, dans un troisième cas, nous cherchons à quantifier l'impact d'un retraitement deux fois plus important que le cas nominal. Cette situation pourrait devenir le cas nominal si le retraitement est effectué à un rythme de 80l tous les deux jours au lieu de retraiter 40l chaque jour.

Les résultats de ces calculs sont présentés dans le tableau 4.3. Nous voyons que la température, ou l'ajout d'un réflecteur de neutrons, n'influence pas grandement le risque de criticité. Par contre, un retraitement deux fois plus important provoque une réelle augmentation du risque de criticité. Dans ce cas, le risque de criticité ne devient plus négligeable en ce qui concerne les résidus de la fluoration. Nous voyons aussi que l'étape de réduction des gaz formés par fluoration est l'étape cruciale en ce qui concerne les risques de criticité. Dans le cas nominal (totalité du coeur retraité en 450 jours), le risque de criticité n'est pas prépondérant, mais laisse peu de marge quant au fonctionnement, sachant que le cas avec les 25cm de graphite présente déjà un risque de criticité trop important. Une quantité plus importante de sel fluoré augmenterait de manière conséquente les risques : les résidus de la fluoration d'une extraction double, entourés d'un réflecteur sont en quantités largement sur-critique. Par conséquent, si l'on souhaite augmenter la quantité de sel à fluorer, nous préconisons d'augmenter le nombre d'installations nécessaires plutôt que d'augmenter leur capacité.

Cas considéré	$k_{eff}$
Sel de coeur + refroidissement à 600°C	0,1970±0,0004
Sel de coeur + 25cm de graphite	0,198±0,001
Extraction deux fois plus importante (80l de sel)	0,533±0,001
Résidus de fluoration + refroidissement à 600°C	0,579±0,001
Résidus fluoration issus d'une extraction double	0,728±0,001
Résidus fluoration + 25 cm de graphite	0,968±0,002
Résidus fluoration issue d'une extraction double + 25 cm de graphite	1,682±0,002

TABLE 4.3: Influence de différents paramètres sur le calcul de criticité du sel combustible

#### 4.2.1.2 Puissance résiduelle

Il faut rappeler qu'une bonne partie des produits de fission sont extraits très rapidement par le bullage continu d'hélium et nous devons nous attendre à ce que la puissance résiduelle soit plus faible que celle des réacteurs à eau pressurisée par exemple. Nous verrons, dans le paragraphe sur l'unité de bullage, que la chaleur entraînée à l'extérieur du coeur est loin d'être négligeable, ce qui est un avantage du côté de la sûreté (moins

de dégagement de chaleur après l'arrêt du réacteur) mais qui est un inconvénient d'un point de vue dimensionnement du circuit de bullage.

La figure 4.2 présente l'évolution de la puissance résiduelle de 40 litres de sel combustible à partir de l'instant où débute l'opération d'extraction. La puissance du sel, à la première seconde est de 262 kW, mais la chaleur dégagée diminue pour atteindre 82 kW au bout d'une heure (l'énergie totale dégagée est de  $4 \cdot 10^8$  joules). Au bout d'une journée, la puissance résiduelle est de 49 kW et après deux jours de refroidissement de 44 kW. Il semble donc qu'une journée de refroidissement, sans opération de retraitement permettrait alors de baisser fortement la chaleur dégagée par l'échantillon de sel. La contre-partie est de doubler l'inventaire du sel à l'extérieur du cœur, puisqu'il y a alors un volume de sel combustible en refroidissement et un volume au retraitement. Notons que ces quantités de matières sont toujours négligeable devant les quantités en cœur.

Laisser refroidir deux jours le sel avant traitement permettrait certes de diminuer un peu plus la puissance résiduelle (le flux de chaleur dégagée passe de 49 kW à 44 kW) mais le gain semble trop faible devant le fait que l'on a triplé l'inventaire du sel combustible hors du cœur. Attendre que la puissance résiduelle chute encore d'un facteur 2 est exclu puisqu'il faut 30 jours de refroidissement pour atteindre une puissance résiduelle de 20 kW et les quantités à gérer ( $1,2 \text{ m}^3$ ) hors cœur deviennent trop importantes.

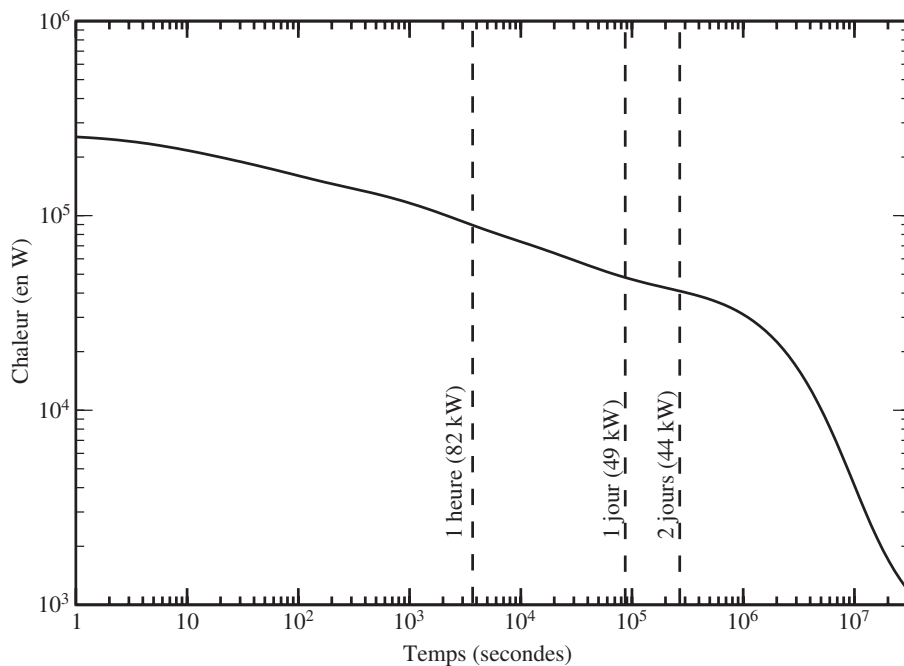


FIGURE 4.2: Evolution de la puissance résiduelle du sel de cœur, pour 40L de sel

Le bon compromis entre la chaleur dégagée et l'inventaire à l'extérieur du cœur semble donc être un jour. L'énergie totale dégagée pendant cette journée est de  $5,2 \cdot 10^9$  joules, ce qui représente tout de même une élévation de  $10^\circ\text{C}$  pour  $250\text{m}^3$  d'eau.

La chaleur dégagée au moment de l'extraction est de  $6,5\text{W}\cdot\text{cm}^{-3}$ . Rappelons que l'évolution de la température en fonction du temps d'un milieu avec une source de chaleur interne est donnée par la relation 4.7 où  $T$  représente la température,  $t$  le temps,  $D$  le coefficient de diffusivité thermique,  $\rho$  la masse volumique,  $c_p$  la capacité calorifique et enfin  $P$  la puissance dégagée et  $\Delta$  l'opérateur laplacien.

$$\frac{\partial T}{\partial t} = D\Delta T + \frac{P}{\rho c_p} \quad (4.7)$$

Dans le cas où on suppose que la température est homogène, on peut simplifier cette relation en 4.8.

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \frac{P}{\rho c_p} \quad (4.8)$$

Cette équation représente la variation de température du sel, après extraction du réacteur, sans échange de chaleur avec l'extérieur. La capacité calorifique du sel étant d'environ  $1200\text{J}\cdot\text{K}^{-1}\cdot\text{kg}^{-1}$  et sa densité d'environ 4,3, la température du sel combustible grimpe alors jusqu'à son point d'ébullition ( $\sim 1600\text{K}$ ) en 2 heures environ. Il est donc nécessaire de prévoir un système d'extraction efficace de la chaleur au moment de l'extraction. Ce système devra être dimensionné lorsque l'on aura plus de précision sur la méthode d'extraction et donc sur le design du réacteur.

Nous avons représenté les débits de chaleur dans chaque partie de l'unité pyrochimique dans la figure 4.3. Une légende couleur allant du bleu pour les dégagements de chaleur les moins élevés jusqu'au rouge est utilisée. Les valeurs fournies sont calculées pour un retraitement nominal de 40 l de sel par jour. Un retraitement deux fois moins important donnera des valeurs deux fois plus faibles. Nous voyons donc que l'extraction de 40 l de sel combustible s'accompagne d'un dégagement de chaleur de 82 kW. L'élément le moins chaud de l'unité de retraitement est la collecte des résidus de la fluoration du sel de couverture. En effet, l'échantillon récupéré dégage un peu plus de 1W. L'explication est immédiate : le vecteur isotopique est essentiellement constitué d'uranium 233. Il n'y a que très peu de neptunium et plutonium qui sont responsables de la majorité du dégagement de chaleur.

Nous pouvons aussi remarquer sur cette figure que l'énergie ne semble pas être conservée. En effet, les calculs effectués prennent en compte le temps nécessaire à chaque opération. La puissance résiduelle évolue donc en fonction des étapes du retraitement, ce qui fait que la puissance dégagée dans l'étape d'extraction des actinides est beaucoup plus faible que la puissance dégagée dans l'étape d'extraction/dés-extraction des actinides puisque cette première est longue à s'établir (plus de 10 heures).

#### 4.2.1.3 Débit d'équivalent de dose ambiant

L'étape dans l'unité de retraitement la plus radioactive est bien entendu l'extraction du sel combustible avant d'entrer dans l'unité de retraitement. La figure 4.4 représente l'évolution du débit d'équivalent de dose ambiant à 1 mètre de l'échantillon de sel combustible pour différentes étapes du procédé de retraitement. Rappelons que pour ce calcul, nous ne considérons pas les rayonnements alpha ni bêta, mais seuls les rayonnements gamma. Dans cette figure, l'origine des temps de chaque courbe désigne l'instant

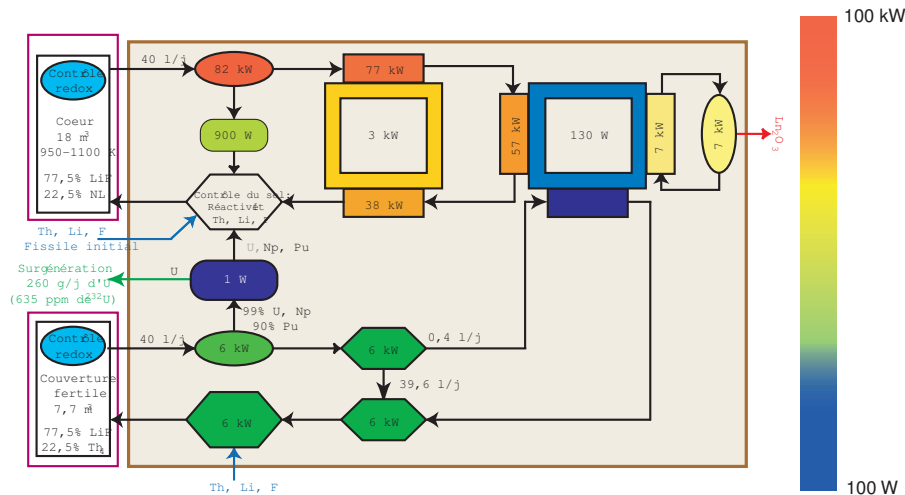


FIGURE 4.3: Représentation des dégagelements de chaleur dans l'unité de retraitement pyrochimique

où débute l'étape proprement dite. Par conséquent, l'origine de la courbe représentant le sel de coeur est l'instant de l'extraction du sel, l'origine de la courbe représentant le sel après l'extraction des actinides présente donc un décalage de 2 heures. L'origine de la courbe représentant le sel après l'extraction des lanthanides est quant à elle décalée de 20 heures. Sur ces courbes, nous n'avons représenté que le cas où il n'y aurait pas de refroidissement du sel combustible comme préconisé dans le paragraphe précédent. L'influence du refroidissement est présenté dans la suite.

Sur la figure 4.4, nous n'avons pas représenté le sel après fluoration puisque la courbe correspondante est quasiment confondue avec la courbe représentant le sel d'extraction. Nous voyons que les lanthanides sont les éléments responsables de la majorité du débit d'équivalent de dose ambiant. Nous nous attendons donc à un débit de dose important dans la nappe de bismuth chargée d'extraire les lanthanides ainsi que dans la nappe de chlorure.

Rappelons que les courbes de la figure 4.4 sont normalisées à 1 cm<sup>3</sup> de sel, or nous avons vu au début de ce chapitre que le débit d'équivalent de dose est proportionnel à l'irradiation gamma et donc à la quantité de matière. Dans le cas nominal, il est prévu de retraiter environ 40l de sel par jour. Comme le débit d'équivalent de dose ambiant est proportionnel à la quantité de matière, il faut multiplier par 40 000 les résultats de la courbe 4.4 pour avoir le débit d'équivalent de dose ambiant pour l'ensemble de la quantité de sel pour le retraitement. Cependant l'auto-protection due au volume de sel devrait réduire ce facteur : une partie du rayonnement de basse énergie est absorbée par le sel lui-même s'il se présente sous une forme assez compacte. Un calcul exact demanderait de connaître la géométrie précise de chaque étape de l'unité de retraitement

Nous avons calculé le spectre gamma d'1 cm<sup>3</sup> de sel combustible avec ou sans refroidissement. Les spectres sont représentés dans la figure 4.5.

Sur la figure 4.5, nous voyons que le gain, dû à 1 jour de refroidissement, semble être important sur les installations de radioprotection puisque le nombre de coups par

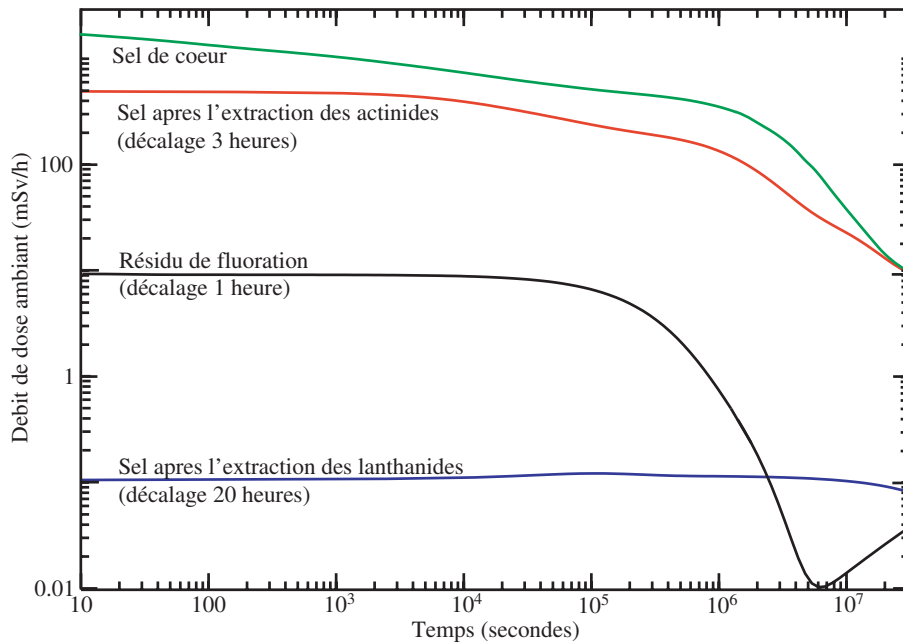
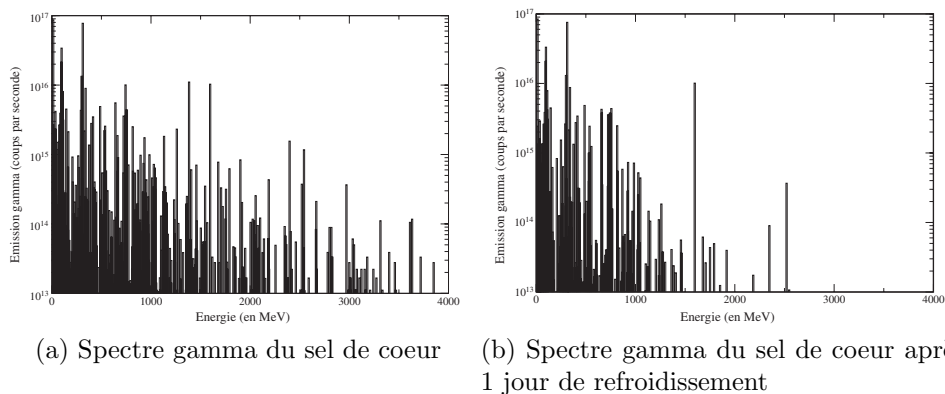


FIGURE 4.4: Evolution du débit de dose ambiant à proximité de  $1 \text{ cm}^3$  de sel, chaque origine des temps correspond au temps d'arrivée du sel dans l'étape considérée.



(a) Spectre gamma du sel de coeur

(b) Spectre gamma du sel de coeur après 1 jour de refroidissement

FIGURE 4.5: Influence d'un court refroidissement sur l'émission gamma du sel de coeur

seconde de gamma d'énergie supérieure à 2,5 MeV chute drastiquement après un jour de refroidissement. Nous résumons les valeurs obtenues dans le cas d'un calcul à 1 mètre de distance avec ou sans écran de protection constitué de 15 cm de plomb dans le tableau 4.4 pour 40 litres de sel combustible dans les différentes étapes de l'unité de retraitement. Les résultats présentés dans ce tableau montre que le débit d'équivalent de dose ambiant reste comparable au zonage EPR grâce à un écrantage des rayonnements gamma tout à fait raisonnable. Il n'y a en effet dans ce tableau (colonne correspondant à la protection) aucun débit d'équivalent de dose ambiant supérieur à 100 mSv/h grâce aux 15cm de plomb de protection. Nous voyons aussi sur ce tableau que le gain du refroidissement est important et qu'il paraît judicieux de laisser l'inventaire à retraiter se refroidir pendant une journée avant de le retraiter. Si nous traitons 40l de sel par jour, il y a alors au total 80l à l'extérieur du coeur : 40 qui sont effectivement dans l'unité de retraitement et 40 autres qui attendent pour laisser la radioactivité diminuer quelque peu.

Emplacement dans l'unité de retraitement	Sans refroidissement (mSv/h)		Après 1 jour de refroidissement	
	Sans protection	15cm de Pb	Sans protection	15cm de Pb
Extraction du sel de coeur	$3,6 \cdot 10^7$	84	$2,2 \cdot 10^7$	39
Résidu fluoration du sel de coeur	$3,7 \cdot 10^5$	0,20	$2,8 \cdot 10^5$	0,16
Sel après la fluoration	$3,5 \cdot 10^7$	84	$2,1 \cdot 10^7$	38
Bain de bismuth (extraction Ac)	$2,1 \cdot 10^6$	11	$2,0 \cdot 10^6$	11
Sel après l'extraction des Ac	$3,2 \cdot 10^7$	73	$1,9 \cdot 10^7$	28
Bain de bismuth (extraction des Ln)	$1,5 \cdot 10^5$	0,28	$5,2 \cdot 10^4$	$4,2 \cdot 10^{-2}$
Sel Chlorure et hydrolyse	$1,1 \cdot 10^7$	20	$3,5 \cdot 10^6$	2,4
Sel "final"	$2,2 \cdot 10^7$	53	$1,6 \cdot 10^7$	25
Extraction sel de couverture	$2,6 \cdot 10^6$	5,0	$2,4 \cdot 10^6$	4,6

TABLE 4.4: Débit d'équivalent de dose à un mètre des inventaires sans et avec protection. Les débits de dose sont exprimés en mSv/h pour un retraitement en 450 jours du coeur (soit 40l de sel)

Lorsque ces 40 litres de sel sont dépourvus des actinides et des lanthanides, le thorium 231 présent dans le sel est responsable d'un débit d'équivalent de dose ambiant de 1,76 Sv/h à un mètre de distance si on considère le sel nu et ponctuel. Par contre, si on considère ce même sel, contenu dans une enceinte de 15 cm en plomb, on trouve alors un débit d'équivalent de dose ambiant de  $4 \mu\text{Sv/h}$ , ce qui correspond à un zonage vert d'après la classification EPR. Ces débits d'équivalent de doses représentent la dose minimale puisque le retraitement chimique ne permet pas d'extraire le Th-231 du sel combustible.

Nous voyons, au vu de ces valeurs, que seules les deux premières étapes du retraitement seraient classées en zone orange selon la classification de zonage E.P.R. La quasi-totalité du reste de l'unité de retraitement serait classée en zone verte. En rajoutant les protections adéquates (quelques centimètres de plomb), les radiations sont alors plutôt faibles.

Insistons sur le fait que les débits d'équivalent de dose calculés ne correspondent qu'à l'inventaire présent dans les différentes parties du retraitement et qu'ils ne prennent

pas en compte toutes les perturbations (produits d'activation par exemple). Cependant, nous voyons que les débits ne sont certainement pas rédhibitoires, et que les protections nécessaires ne sont pas démesurées.

#### 4.2.1.4 Flux de matière

Pendant ce retraitement, une grande quantité de radioisotopes est extraite du sel combustible. Dans les échangeurs contre-courant, lors de l'extraction des actinides et des lanthanides, le sel se recharge en thorium. Nous présentons dans le tableau 4.5 les différents bilans de matière de chaque opération en identifiant les quantités d'entrée de chaque isotope et la matière perdue pendant l'opération du point de vue du sel combustible. Si cette quantité est positive, alors il s'agit d'un gain de matière, comme par exemple le thorium à chaque extraction réductrice. Pour alléger le tableau, seuls les éléments qui peuvent être extraits par l'étape considérée sont présentés. Les quantités sont exprimées en masse par jour.

Etape	Elément	Quantité en entrée	Bilan de matière
Fluoration	U	16,9 kg	-16,8 kg
	Np	326 g	-322 g
	Pu	686 g	-617 g
Extraction Actinides	Actinides 3+	98 g	-98 g
	Actinides 4+	427 g	-426 g
	Zirconium 4+	172 g	-172 g
	Thorium	77,6 kg	+1,5 kg
Extraction Lanthanides	Lanthanides 3+	763 g	-690 g
	Actinides	1g	-1g
	Thorium	79,1 kg	+1,12 kg

TABLE 4.5: Bilan de matière dans différentes étapes du retraitement

Finalement, pendant toutes les étapes d'extraction, 11,29 moles de thorium 232 sont chargées dans le sel combustible sur les 13,97 moles de thorium qui disparaissent par jour dans le coeur du réacteur (comme nous le verrons dans le chapitre 5). Pendant l'opération de réduction des actinides, (opération de dés-extraction des actinides de la nappe de bismuth) le comportement du thorium est incertain. Il est possible que des échanges avec le lithium aient lieu pendant cette opération. Il faut toutefois ajuster l'alimentation en Th-232 après l'ensemble du procédé du retraitement. Par conséquent, il faut que celle-ci soit positive pour que l'opération soit possible ce qui est effectivement le cas dans le procédé de référence.

#### 4.2.1.5 Emission de neutrons

L'émission de neutrons due à la décroissance des produits de fission est négligeable une fois que l'échantillon de sel combustible à retraiter a passé une journée en refroidissement. Il ne reste plus que la composante due aux fissions spontanées qui est représentée dans le tableau 4.6. Les valeurs présentées sont les émissions de neutrons

Elément	Emission de neutrons
Total U	100
Total Np	920
Pu-238	$1,1 \cdot 10^6$
Pu-240	$1,6 \cdot 10^5$
Total Pu	$1,3 \cdot 10^6$
Am-244	$1,7 \cdot 10^5$
Total Am	$1,8 \cdot 10^5$
Cm-242	$1,0 \cdot 10^7$
Cm-244	$7,4 \cdot 10^7$
Cm-246	$1,3 \cdot 10^7$
Total Cm	$1,0 \cdot 10^8$
Cf-250	$1,0 \cdot 10^8$
Cf-252	$5 \cdot 10^8$
Total Cf	$6,1 \cdot 10^8$
Total	$7,12 \cdot 10^8$

TABLE 4.6: Emissions de neutrons (en particules par seconde) du sel combustible

après un jour de refroidissement, soit l'instant précédent la fluoration, pour chaque élément.

Dans ce tableau, il apparait clairement que les noyaux de curium et de californium, même s'ils sont en très faible quantité dans le sel combustible, sont responsables de l'émission de neutrons. Notons de plus que le comportement du californium n'est pas connu dans les étapes d'extraction réductrice et que nous l'avons assimilé, par similitude de comportement chimique au curium. Notons aussi que les Cf-250 et Cf-252 ont respectivement des demi-vies de 13,08 et 2,65 ans, ce qui signifie que le refroidissement ne changera rien sur l'émission de neutrons suite aux fissions spontanées et que cette émission sera caractéristique du flux de curium et de californium dans l'unité de retraitement.

Les isotopes de l'uranium et du neptunium sont très peu émetteurs de neutrons. Par contre, le plutonium émet plus d'un million de neutrons par seconde, auxquels il faudrait rajouter la composante des réactions ( $\alpha, n$ ) qui sont difficiles à estimer. L'installation de fluoration devra aussi être protégée de l'irradiation neutron. L'irradiation en jeu est tout de même 100 fois plus faible dans l'installation de fluoration que dans la première extraction réductrice, bien que les quantités de matière à récupérer qui sont 1000 fois supérieures (il y a 17 kg d'uranium et 10g de curium dans les 40 litres de sel à traiter par jour).

## 4.2.2 Unité de bullage

L'unité de bullage peut se décomposer en deux parties distinctes : une partie localisée dans la cuve du réacteur (le premier étage constitué d'un réservoir et d'un système de filtration) et l'autre à l'extérieur (deuxième étage composé des bouteilles et d'une séparation cryogénique).

Nous avons évoqué dans le chapitre précédent le fonctionnement global du bullage.



Nous nous plaçons ici dans le cas nominal, c'est-à-dire que les métaux et les gaz sont extraits avec un temps caractéristique de 30 secondes. Ce premier étage de bullage est censé récupérer une majorité des produits de fission. Ces produits de fission étant extraits du sel combustible en un temps de l'ordre de 30 secondes, on s'attend donc à trouver ici des isotopes qui ont une durée de vie de l'ordre de la dizaine de secondes, ce qui impliquera une radioactivité très forte. L'ensemble est collecté dans un réservoir qui contient un liquide à haute température (sel ou métal) pour garder les éléments solides pendant 1000 secondes. Seuls les gaz retournent en coeur. Une fraction de ces gaz (environ 0,02%) est extraite pour un retraitement plus poussé : stockage de 6 mois dans des bouteilles puis séparation cryogénique. La grandeur prépondérante ici est le dégagement de chaleur : en effet, on cherche à savoir combien de chaleur il faut évacuer et si cette évacuation aura un impact sur le design du coeur du réacteur.

#### 4.2.2.1 Puissance résiduelle

##### Dans le premier étage

Dans le premier étage du bullage, la quantité de gaz est constante en fonction du temps alors que les métaux s'accumulent dans le liquide qui sert de filtre pour l'aérosol. Les éléments insolubles sont entraînés par les bulles dans le séparateur. Il faut un certain temps (inférieur à quelques secondes) pour que les particules métalliques aillent dans le liquide filtrant. La quantité de chaleur dégagée dans l'aérosol est constante puisque l'inventaire arrive à un état stationnaire. Comme représentée dans la figure 4.6, la chaleur dégagée dans l'aérosol est de 32 MW qu'il faudra évacuer par refroidissement du système de bullage dans la cuve du réacteur. Cette courbe peut être assimilée à l'évolution de la chaleur des gaz lorsque l'injection des gaz s'arrête et que les gaz ne sont plus lavés par le liquide filtrant.

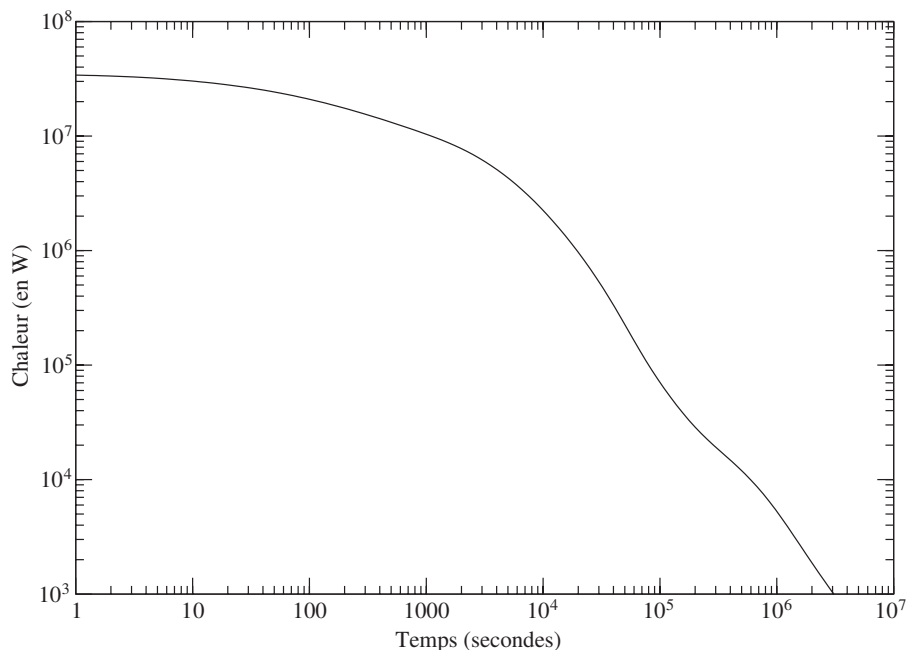


FIGURE 4.6: Evolution de la chaleur après l'arrêt du système de bullage

Considérant l'évolution de la chaleur dans le liquide filtrant, celle-ci augmentera en fonction du temps de fonctionnement. Nous n'avons pas de critère objectif sur la durée de vie de cet élément fondamental du système de bullage. Le taux d'apparition des produits de fission dans le liquide est de 906 g par jour. Parmi ces éléments, on trouve des métaux mais aussi les alcalins et alcalino-terreux issus de la décroissance des gaz rares.

La chaleur dégagée pendant le fonctionnement est cependant constante car elle est dominée par les produits de fission à vie courte. 11,4 MW sont dégagés dans le liquide. L'évolution de la chaleur dégagée par les métaux une fois extraits de la nappe filtrante est représentée dans la figure 4.7 pour différents temps de vie de ce filtre. Nous avons représenté sur cette figure un nettoyage du liquide tous les 10, 30 et 100 ans. La valeur à l'origine de la courbe représente donc le dégagement de chaleur pendant le fonctionnement ; une fois la durée de vie du liquide filtrant atteinte, il faut l'extraire de la cuve du réacteur pour le recycler. Les courbes représentent alors le dégagement de la chaleur une fois le système déconnecté du circuit de bullage pour différentes durées de fonctionnement. Nous voyons qu'une durée de vie du filtre importante impose une gestion à long terme difficile. Un filtre qui serait resté en place pendant 100 ans (toute la vie du réacteur) dégage encore 1MW après 100 ans de refroidissement.

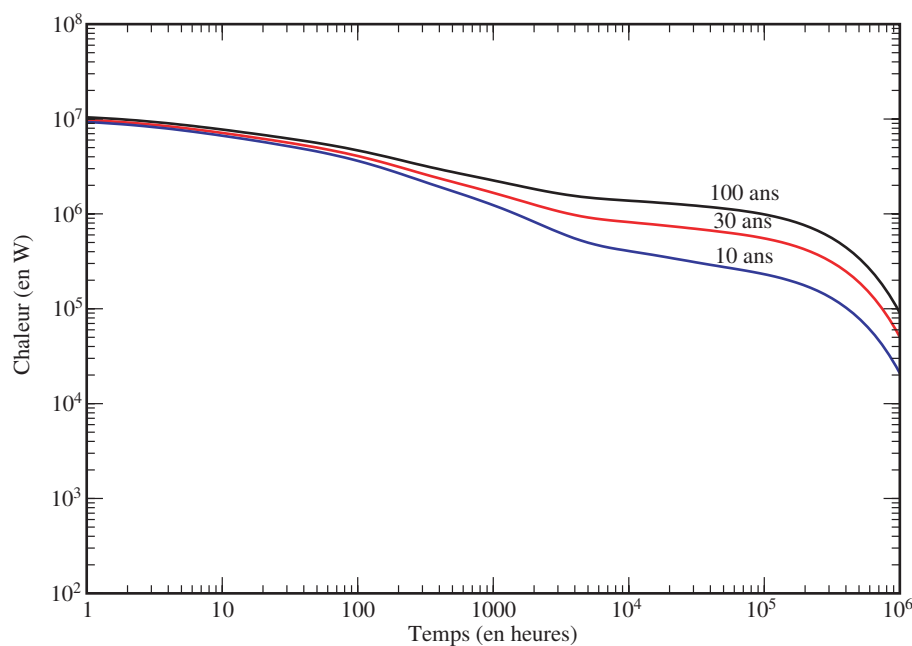


FIGURE 4.7: Chaleur des métaux après extraction de la nappe filtrante

### Dans le deuxième étage

Dans le deuxième étage du bullage, le flux de chaleur émis par les gaz ponctionnés doit être extrait pour que la température des bouteilles n'augmente pas de manière trop importante. Nous rappelons ici que chaque bouteille possède un volume d'environ 1l sous 100 bars à 20°C. La courbe 4.8 représente l'évolution du flux de chaleur dans la bouteille. L'origine des temps représente l'instant où le remplissage débute. Nous voyons donc sur cette courbe que le refroidissement de chaque bouteille doit encaisser

un peu plus de 80kW dans les premiers instants du stockage. Cependant, nous voyons que cette chaleur émise chute assez rapidement durant les premiers jours du stockage (la chaleur dégagée après un jour de stockage est de 1,9kW). Au bout de 6 mois, la chaleur dégagée est d'environ 25W, principalement due au Kr-85 présent dans les bouteilles. L'énergie totale dégagée pendant les 6 mois de stockage est de  $1,9 \cdot 10^9$  joules, ce qui est du même ordre de grandeur que le refroidissement d'une journée des 40 litres de sel du retraitement pyrochimique.

Notons que le système de refroidissement des bouteilles ne doit pas faillir puisque la variation relative de la température est la même que la variation relative de la pression. Ainsi, si on passe de 20°C à 100°C, on multiplie par 5 la pression dans les bouteilles pour augmenter à 500 bars !

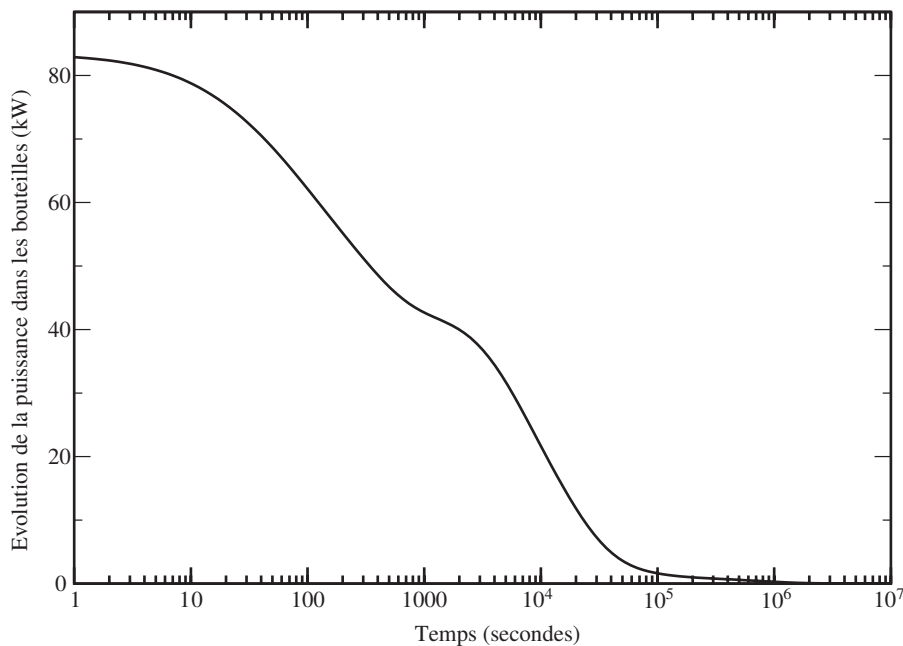


FIGURE 4.8: Evolution de la chaleur dans une bouteille

#### 4.2.2.2 Radiations dans les bouteilles

Les radiations gamma et la radioprotection du premier étage du système de bullage n'est pas réellement un problème puisque l'ensemble du système est localisé dans la cuve du réacteur. On ne se pose donc pas de question de radioprotection dans ce premier étage. Par contre, le deuxième étage du bullage est, quant à lui, complètement à l'extérieur. Comme pour l'unité pyrochimique, le but est de savoir si les protections nécessaires pour cette installation sont un point clef du dessin du réacteur.

Les courbes 4.9 représentent le débit d'équivalent de dose à 1 mètre d'une de ces bouteilles. L'origine des temps étant l'instant du remplissage des bouteilles, l'inventaire responsable de ce débit de dose ne devrait pas rester plus de 6 mois, soit 180 jours. Nous voyons sur ces courbes que 100 jours représentent le début du plateau où le débit d'équivalent de dose ne varie plus, le prochain palier étant la décroissance totale du Kr-85 qui possède 3916 jours de période. Un temps d'attente plus long est donc inutile.

Nous remarquons que les valeurs de débit d'équivalent de dose sont très élevées puisque la valeur correspondante à l'inventaire isotopique d'une bouteille sans protection après entreposage de près de 10 Sv/h. Il y a en effet près de 0,2 mole de krypton 85 en fin de vie des bouteilles responsable de ce débit d'équivalent de dose. Il semble donc que l'entreposage soit indispensable avant de pouvoir rejeter l'ensemble des gaz rares.

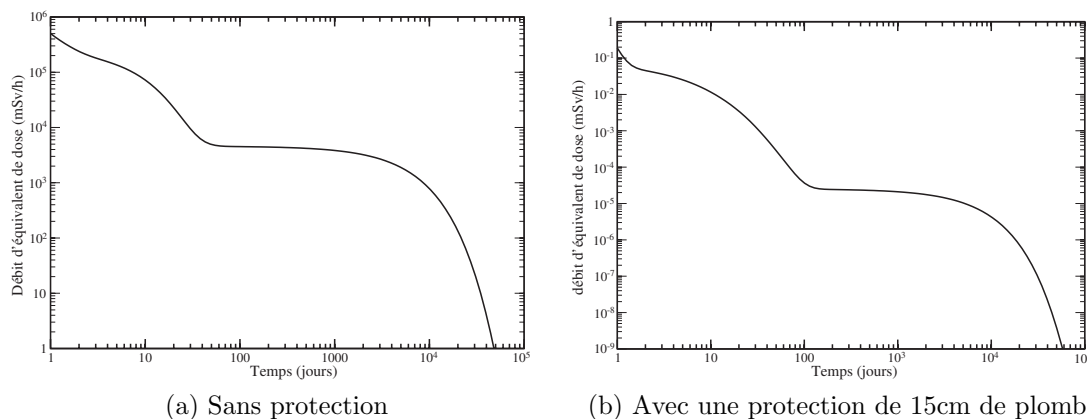


FIGURE 4.9: Evolution du débit de dose ambiant d'une bouteille

## 4.2.3 Prédimensionnement du stockage

### 4.2.3.1 Stockage

Ce paragraphe a pour but d'explicitier les flux de matière et de chaleur dans le site de stockage pendant le fonctionnement du réacteur. Comme nous l'avons présenté précédemment, les déchets produits par l'ensemble du cycle permettant au MSFR de fonctionner ne peuvent provenir que de deux sources : sous forme métallique grâce à l'extraction par bullage ou sous forme oxyde, par extraction de la nappe chlorure grâce à une hydrolyse. Nous pouvons éventuellement ajouter une troisième source qui serait l'alliage Bi-Zr qui se forme pendant la phase d'extraction du zirconium. Le bismuth n'étant pas une matrice acceptable pour le confinement, nous envisageons une étape d'extraction du zirconium et donc un recyclage du bismuth, en supposant que le zirconium sera oxydé pour sortir du système sous forme  $ZrO_2$ .

La recherche pour le stockage des déchets en couche géologique profonde a conduit à la conception des colis de déchets vitrifiés dits "CSD-V", ou Colis Standard de Déchets Vitrifiés [De-06]. Ces colis sont, aujourd'hui, les plus aboutis pour le stockage en profondeur des déchets à vie longue. Même si l'avènement de la quatrième génération de réacteur doit être accompagné par une importante R&D des sites de stockage, et donc des matrices de confinement, nous avons, dans la suite de ce travail, utilisé ce type de colis pour calculer les volumes mis en jeu. La caractéristique principale de ces colis est qu'ils peuvent contenir un vecteur isotopique dégageant 2 kW de puissance au moment de la fabrication, le taux des produits de fission introduits étant de 18% maximum (le colis pèse 400 kg l'unité)[As-10]. Notons que les colis de type CSD-C (Colis Standard de Déchets Compactés), très ressemblant aux CSD-V et qui servent au confinement des

déchets technologiques, n'interviennent pas ici puisque nous ne pouvons pas quantifier, pour le moment, les volumes de déchets technologiques qui seront produits dans ce procédé. Nous omettrons donc par la suite ce type de déchets.

Il y a deux types de stratégie possible pour la vitrification des déchets à vie longue. Nous pouvons imaginer un stockage sur site pendant le fonctionnement du réacteur, puis lors de la fermeture du site, un conditionnement de l'ensemble des déchets qui auraient des âges différents. D'un autre point de vue, nous pouvons imaginer un conditionnement des déchets au fur et à mesure du fonctionnement du réacteur : les déchets seraient stockés une trentaine d'années avant d'être conditionnés dans les verres de stockage. Les éléments d'un même colis auraient alors tous le même âge. Comme la quantité de produits de fission produite sera la même dans les deux cas, il ne devrait pas y avoir de différence sensible. f

**Premier cas : gestion des déchets en fin de vie du réacteur**

L'unité pyrochimique extrait environ 1,18 kg (9,88 moles) de PF par jour alors que le système du bullage en extrait 1,82 kg (16,99 moles). Les quantités de chaleur dégagées par l'ensemble des quantités stockées à différents temps du fonctionnement sont représentées dans le tableau 4.7, après un an de refroidissement. Ainsi, chaque case représente la chaleur de l'ensemble des produits de fission considérés accumulés dans le site de stockage, que l'on aurait sortis du site (pour arrêter l'accumulation) et que l'on aurait coulés dans les verres un an après. Nous insistons sur le fait que ces quantités ne sont pas normalisées à la quantité d'énergie produite. Cette normalisation est nécessairement erronée à partir de l'instant où le site de stockage n'est pas fermé. Dans le cas où l'on attend 80 ans avant de traiter les oxydes, on a accumulé 80 ans de production : certains produits de fission ont refroidi pendant 81 ans et d'autres pendant moins d'un an.

Temps de fonctionnement	1 ans	10 ans	50 ans	80 ans
Chaleur des PF issue du bullage	0,092 MW	0,44 MW	1,13 MW	1,35 MW
Chaleur des PF issue de la pyrochimie	0,048 MW	0,17 MW	0,17 MW	0,17 MW

TABLE 4.7: Chaleur dégagée par les PF pour différents temps de fonctionnement du MSFR, après un an de refroidissement

Le refroidissement de ces différents colis est illustré dans la figure 4.10, pour différents temps de fonctionnement. Les courbes en trait plein représentent les produits de fission extraits dans l'unité de bullage alors que celles en pointillées correspondent aux produits de fission extraits grâce au processus pyrochimique. La majorité de la radioactivité est extraite par le système de bullage. Nous voyons aussi que les produits de fission accumulés pendant 30 ou pendant 100 ans de fonctionnement produisent des quantités de chaleur tout à fait comparables. Ceci n'est pas très surprenant puisque le système se rapproche de l'équilibre et que la quantité de radioactivité tend à se stabiliser. Ce constat nous force à admettre que plus le temps de refroidissement est long, plus la concentration dans les conteneurs peut être élevée et donc le volume de déchets plus faible.

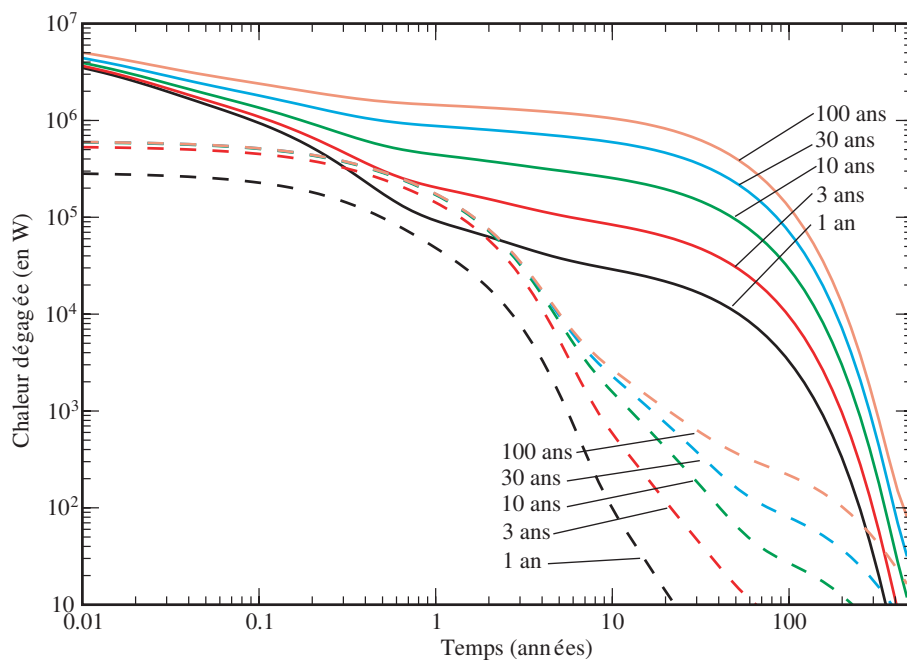


FIGURE 4.10: Evolution de la chaleur dégagée dans le stockage après différents temps de fonctionnement, les courbes pointillées représentent les déchets sous forme oxyde, issus du retraitement pyrochimique et les courbes en trait plein représentent les déchets sous forme métallique, issus du système de bullage.

Au bout de 80 ans de fonctionnement, on a donc un inventaire en produits de fission qui dégage 1,52 MW. La quantité de déchets accumulés est de 34 tonnes par le procédé d'extraction des lanthanides et 53 tonnes par le bullage (soit 87 tonnes au total). Puisque chaque colis pèse 400 kg et que les produits de fission ne doivent être présents qu'à 18% au maximum, la masse de déchets par colis est de 72 kg au maximum. Il faut donc réaliser, après 80 ans de fonctionnement, 1210 colis environ, qui dégageront chacun 1260 W ce qui est bien inférieur au 2 kW maximum.

Pour déterminer le volume d'un colis associé à son environnement, nous pouvons nous référer au le modèle de l'ANDRA, 40 ans de fonctionnement du parc actuel devraient produire 42470 colis de déchets vitrifiés soit un volume total de 7410 m<sup>3</sup>. Nos 1210 conteners devraient occuper un volume d'environ 210 m<sup>3</sup>. Notons que la différence vient du fait que dans le MSFR, l'ensemble des actinides est renvoyé en coeur et que le procédé permet de laisser décroître les produits de fission pendant 80 ans avant de les couler dans les verres.

### Deuxième cas : gestion des déchets en continu

Nous devons comparer le cas précédent au cas où l'unité de mise en conditionnement des verres serait présente sur site, et qu'il serait possible de couler les verres pendant le fonctionnement du réacteur. La masse de déchets extraite pendant 1 an par la pyrochimie est d'environ 430 kg alors que celle extraite par le système de bullage est d'environ 664 kg. Les caractéristiques sont résumées dans le tableau 4.8.

Dans ce tableau, nous voyons que la production est de 16 colis par an de fonctionnement du réacteur, ce qui revient à 1280 colis après 80 ans de fonctionnement.

	Déchets produit par voie pyrochimique	Déchets produit par le bullage
Quantité	430 kg	664 kg
Chaleur dégagée après 1 ans de refroidissement	45 kW	90 kW
Chaleur dégagée après 30 ans de refroidissement	4 kW	16 kW
Nombre de colis après 30 ans de refroidissement	6	10
Chaleur par colis après 30 ans de refroidissement	670 W	1730 W

TABLE 4.8: Caractéristiques des déchets produits pendant 1 an de fonctionnement

La différence avec le cas où le conditionnement est réalisé en fin de durée de vie du réacteur est exclusivement due à des arrondis de calcul, essentiellement parce que la limite n'est pas due à la radioactivité mais à la quantité de matière. Notons toutefois que les colis les plus chauds de la seconde stratégie dégagent plus de chaleur que dans le cas où tous les colis seraient créés en fin de vie du réacteur. Cependant, la différence n'est pas suffisamment significative pour favoriser une voie par rapport à l'autre. Nous pouvons toutefois supposer que l'exploitant d'un tel système de production choisirait la deuxième solution comme le conditionnement des déchets s'effectue au fur et à mesure de l'exploitation.

#### 4.2.3.2 Radiotoxicité

La radiotoxicité induite par les déchets nucléaires provient de deux sources différentes :

- les produits de fission qui dominent la radiotoxicité à court terme et à très long terme,
- les actinides qui sont responsables de la radiotoxicité à moyen et à long terme

Du côté des produits de fission, on trouve des radio-isotopes d'une durée de vie d'environ 30 ans comme le césium 137 et le strontium 90. Ces isotopes doivent être stockés pendant plus de 3 siècles pour les laisser décroître. A cause de leur durée de vie relativement courte, leurs activités, et par conséquent leur radiotoxicité, est malheureusement forte.

Les courbes représentant la radiotoxicité des déchets produits dans le site de stockage au bout de 200 ans de fonctionnement sont présentés dans la figure 4.11, ces courbes représentent donc l'accumulation de 200 ans de produits de fission : certains ont eu le temps de refroidir et une fraction est encore très radioactive. Dans cette figure, nous avons distingué les déchets issus de l'unité de bullage (en trait plein) de ceux extraits par la pyrochimie (en pointillés). Les éléments qui dominent très largement la radiotoxicité sont alors le césium 137 et le strontium 90 comme prévu. Seuls les éléments prépondérants sont répertoriés dans cette figure. Les inventaires en jeu correspondent aux inventaires obtenus après 200 ans de fonctionnement d'un réacteur. Ce temps de fonctionnement (qui ne correspond certainement pas à la vie du réacteur) représente le temps d'évolution nécessaire pour l'ensemble des isotopes soit dans un

état stationnaire.

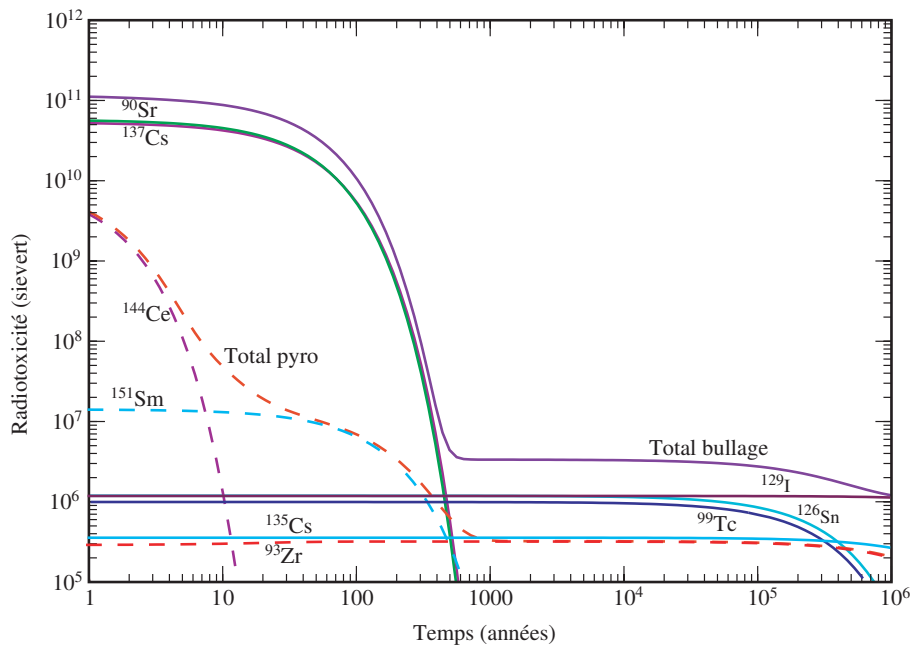


FIGURE 4.11: Evolution de la radiotoxicité à long terme dans le stockage de différents isotopes. L'origine des temps est située deux cents ans après le début du fonctionnement du réacteur.

Comme la radiotoxicité des produits de fission est largement dominée par quelques éléments qui possèdent une période d'environ 30 ans, la radiotoxicité induite pendant les 300 premières années environ n'est pas dépendante de l'énergie produite, si le système est à l'équilibre. En effet, la quantité de Cs-137 et de Sr-90 dans le site de stockage ne dépend pas de l'énergie produite puisque l'équilibre est atteint au bout de 150 ans environ pour ces deux éléments (la disparition par désintégration nucléaire compense la production par extraction des quantités dans le sel de coeur). Pendant les 150 premières années, la radiotoxicité induite sera donc une fonction monotone croissante de l'énergie produite mais ensuite, celle-ci sera stable au niveau indiqué dans la figure 4.11 ; c'est pourquoi il est difficile de ramener cette radiotoxicité à une quantité d'énergie produite. Par contre, à long terme, la radiotoxicité des produits de fission est dominé par des radio-isotopes à vie longue (quelques millions d'années environ). Les radiotoxicités induites par les produits de fission après un temps long devant la période de fonctionnement (soit environ après 1000 ans) sont donc directement proportionnelles à la quantité d'énergie produite.

D'un autre côté, le fonctionnement du réacteur conduit à la formation d'actinides lourds, déchets à durée de vie beaucoup plus longue et qui domine donc la radiotoxicité à moyen terme (de 1000 ans à 1 million d'années). Le procédé de retraitement défini ici permet de recycler les actinides avec un taux de rejet très faible (quelques  $10^{-3}$  voire moins suivant les éléments). Si le temps de retraitement est de 450 jours, il faudrait donc plus de 450 000 jours (soit plus de 1230 ans) pour obtenir des quantités de matière



comparables d'actinides dans le sel de coeur et dans le site de stockage. Rappelons que les actinides mineurs présents dans le sel combustible ne sont pas considérés comme des déchets tant que le sel peut être considéré comme matière valorisable. A partir de l'instant où la matière fissile présente dans le sel ne peut plus être considérée comme telle (probablement lorsque le nucléaire de fission ne sera plus d'actualité), l'inventaire en actinides, qu'il faut traiter pour un stockage, devient alors très largement prépondérant devant les quantités présentes dans le site de stockage, en supposant que la durée de vie du sel est très faible devant 450 000 jours. Ce raisonnement n'est pas propre au MSFR et se généralise dès que l'on parle de multi-recyclage de l'ensemble des actinides mineurs (ce qui devrait être le cas pour l'ensemble des réacteurs de quatrième génération).

Les courbes de radiotoxicité des actinides présents dans le sel de coeur, à l'équilibre, sont présentées dans la figure 4.12. Comme nous pouvons le voir en comparant cette figure avec la figure 4.11, les actinides présents dans le coeur sont très largement responsables de la radiotoxicité à long terme (la courbe correspondant aux actinides présents dans le site de stockage est située plus de trois ordres de grandeur en dessous de celle représentant le total dans le coeur). Notons aussi que les produits de fission sont loin en-deçà ( $10^6$  Sv).

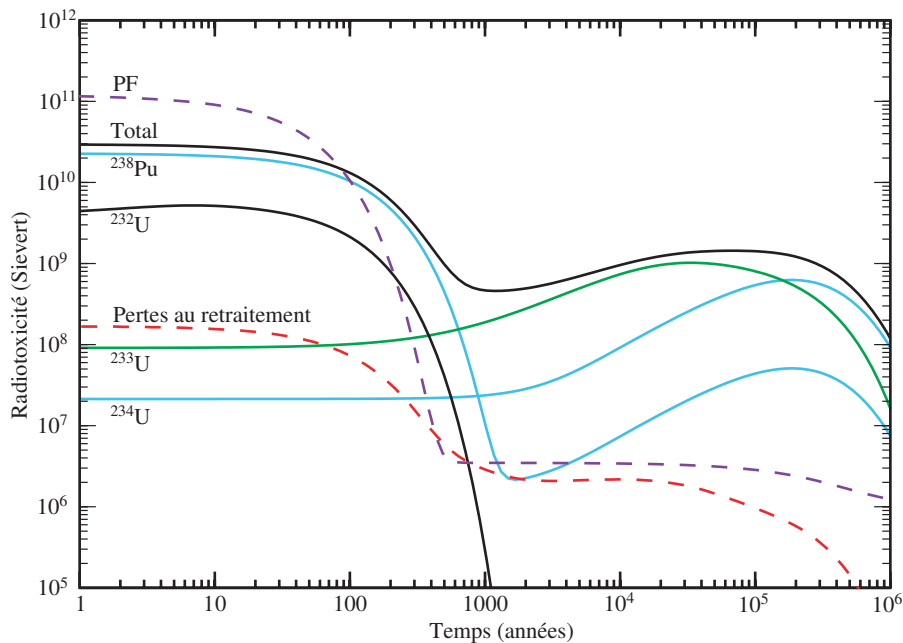


FIGURE 4.12: Radiotoxicité des actinides présents dans le sel de coeur à l'équilibre, comparée aux pertes au retraitement et aux produits de fission pour 200 ans de fonctionnement

Sur cette figure, nous voyons aussi que l'uranium 233 joue un rôle important dans la radiotoxicité à long terme. Comme c'est un noyau fissile, des simulations ont été réalisées pour voir si une incinération de l'inventaire en coeur n'était pas envisageable. L'étude complète est présentée dans [Do-08] et dans [He-09]. L'idée est de retirer le thorium du sel combustible et de le remplacer par l'ensemble des actinides présents dans d'autres réacteurs du même type. Ainsi de 9 réacteurs producteurs d'énergie et

de matière fissile, on passe à 1 réacteur incinérateur d'actinides. Pour durcir un peu le spectre, et surtout pour atteindre un point de fusion acceptable, la composition du sel est légèrement modifiée vers un LiF-NaF-KF (le point de fusion de l'eutectique LiF-NaF-KF est de 450°C). Le gain en radiotoxicité est d'environ 2 pendant le début du stockage, mais on arrive à diminuer d'un ordre de grandeur la remontée due à l'uranium 233. Celui-ci domine la radiotoxicité entre 1000 ans et 500 000 ans, ce qui représente l'intervalle de temps le plus critique du point de vue du stockage. En effet, les études sur le stockage garantissent l'intégrité des conteneurs pendant 4000 ans [Da-07]. Gagner un ordre de grandeur sur la radiotoxicité sur des temps supérieurs à cette date représente donc une grande avancée du point du risque de radiotoxicité.

Le gain se situe aussi du point de vue de la dégradation de la matière fissile. En effet, les éléments qui dominent, après incinération, sont alors le Pu-238, le Pu-240, l'U-234 et enfin le Np-237 : le vecteur isotopique en actinides a alors été très fortement dégradé pendant l'incinération pour ne pas qu'il soit possible de le détourner en tant que combustible nucléaire.

### 4.3 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons cherché à calculer les flux de chaleur et les flux de matière dans le but de connaître les grandeurs fondamentales pour le dimensionnement des installations de l'unité de retraitement. Cette unité, fondée sur un procédé étudié au chapitre précédent, reste une unité dite de référence. L'important ici n'est pas de dimensionner à proprement parler les installations, mais de vérifier qu'il n'y a pas des installations de radioprotection démesurées par rapport à ce que l'on pourrait attendre. Puisque beaucoup de paramètres ne sont pas encore fixés, il nous est impossible de dimensionner le système d'une manière plus précise pour le moment. Nous pensons notamment à la géométrie des échangeurs contre-courant qui permettent d'effectuer la séparation actinides/lanthanides.

Nous avons vu, dans ce chapitre, que les flux de chaleur peuvent être conséquents (jusqu'à 32MW dans l'unité de bullage) et ceci aura certainement un impact sur un refroidissement qui s'avère indispensable. Nous préconisons aussi de laisser refroidir la fraction de sel à retraiter pendant une journée. Ainsi, le gros du système de refroidissement sera découplé des systèmes d'extraction. La conséquence première est qu'il faut alors deux portions de sel à l'extérieur à gérer. Dans le cas nominal, cette portion est de 40 litres, par conséquent, doubler cette portion ne devrait pas avoir d'influence sur les quantités de matière en jeu.

Le risque de criticité dans l'unité de retraitement semble acceptable puisque toutes les étapes nécessaires à l'extraction des produits de fission sont largement sous-critiques. Une attention particulière devra toutefois être accordée dans l'unité de fluoration et surtout dans la phase de préparation du sel. Les débits de dose, quant à eux, semblent largement acceptables avec une protection de 15 cm de plomb. La protection des installations semble donc tout à fait accessible sans pour autant modifier drastiquement le dessin de l'unité de retraitement.

Concernant la problématique du stockage à long terme des déchets produits par le système, nous avons vu que l'incinération des actinides permet de diminuer la radiotoxicité induite et la quantité de conteneurs à entreposer. L'incinération permet

surtout de découpler la production d'actinides de la production d'énergie. L'inventaire doit être utilisé le plus longtemps possible pour rentabiliser le stockage. Nous avons aussi montré que si l'entreposage des produits de fission est suffisamment long, alors les technologies actuelles de colis de déchets vitrifiés sont acceptable et la limite ne vient pas de la chaleur dégagée par chaque colis, mais de la proportion de produit de fission dans les verres.



# Chapitre 5

## Sensibilité du réacteur au retraitement

L'unité de retraitement définie au chapitre 1 a été étudiée dans le chapitre 3. Nous avons vu, dans ce chapitre, que si une bonne partie du procédé était maîtrisée, il restait encore des indéterminations qu'il est difficile de lever dans l'état actuel de nos connaissances. En effet, il faudra encore de nombreux développements pour connaître le devenir de certains isotopes dans l'unité de retraitement. Les questions principales portent sur le zirconium et l'iode en ce qui concerne les produits de fission. En ce qui concerne l'américium, s'il paraît clair que les données de HSC sont fausses, nous prendrons toutefois son exemple pour mettre en oeuvre un moyen d'étudier la sensibilité du réacteur à l'extraction d'un élément sans pour autant refaire la totalité des simulations numériques.

Pour les produits de fission, nous avons voulu voir ce que pouvait provoquer une accumulation intempestive de certains éléments. Nous avons donc regardé ce que pouvait provoquer l'incinération de certains éléments : l'iode, les alcalins et les alcalino-terreux. Toujours motivé par les mêmes raisons, nous présentons ensuite, l'effet de l'accumulation du zirconium dans le sel, et la marge de manoeuvre que nous pouvons attendre en ce qui concerne son extraction.

Dans une deuxième partie, nous avons voulu regarder l'influence que pouvait provoquer l'extraction de certains actinides sur le comportement du réacteur. Pour ne pas avoir à effectuer autant de simulations que de cas à étudier, nous avons repris une méthode basée sur une méthode probabiliste développées par Salvatores [Sa-96]. Cette méthode sera illustrée par deux exemples : l'extraction de l'américium et l'extraction du protactinium.

### 5.1 Retraitement des produits de fission

#### 5.1.1 Considérations générales

Il y a deux moyens d'extraire les produits de fission suivant leur nature : l'entraînement par le bullage ou l'extraction par voie pyrochimique. En ce qui concerne l'extraction pyrochimique, nous avons vu, dans le chapitre 3, que si l'efficacité d'extraction de certains lanthanides n'approchait pas les 100%, une faible extraction de ces

éléments est toujours possible.

Dans le chapitre 2, nous avons montré, que si l'extraction de la totalité du sel combustible se faisait en 450 jours et que l'efficacité d'extraction était de 1, alors la constante de disparition du sel combustible, due au retraitement était de 1 sur 450. Dans le cas où l'efficacité d'extraction n'était pas proche de 1, comme c'est le cas pour certains lanthanides, alors cela revient à rallonger le temps caractéristique d'extraction. Imaginons un instant que cette efficacité soit de 50%, alors le temps caractéristique de l'extraction serait, non plus de 450 jours mais de 900 jours, ce qui reviendrait à multiplier la constante d'extraction chimique par un facteur 2. Cette multiplication par l'inverse de l'efficacité conduit naturellement à l'augmentation de la concentration atomique de l'élément considéré dans le sel de coeur, et donc aussi à l'augmentation de son taux de capture. Comme nous avons vu que le taux de capture des produits de fission était très faible (à cause du spectre neutronique rapide), l'impact d'une petite variation de la quantité d'un produit de fission ne devrait pas changer le comportement du réacteur en terme neutronique. Par conséquent, nous pouvons affirmer que le réacteur n'est pas vraiment sensible au retraitement des produits de fission par voie pyrochimique.

La définition du système de bullage, quant à elle, devrait être plus critique. En effet, des grandeurs physiques et chimiques sont assez sensibles au système d'extraction des gaz. La puissance résiduelle dans le coeur est, par exemple, très dépendante du temps de séjour des gaz dans le sel combustible. Ce temps dépend de beaucoup de paramètres mal connus aujourd'hui comme la géométrie du séparateur de bulle par exemple, ou le système d'extraction des particules métalliques. De plus, de ce système d'extraction dépend la modification de la chimie du sel combustible. En effet, si les gaz rares très radioactifs décroissent hors du coeur, cela devrait diminuer considérablement la production des alcalins et alcalino-terreux, éléments difficiles à gérer sur le long terme.

## 5.1.2 La question des alcalins et alcalino-terreux

### 5.1.2.1 Taux de production

L'idée est de voir si une extraction par bullage très efficace peut empêcher la formation des alcalins et alcalino-terreux. En effet, il est raisonnable de supposer que les isotopes stables (ou possédant une durée de vie longue) sont formés par décroissance de gaz rares ; en ce qui concerne les alcalins ou alcalino-terreux très actifs, ils devraient décroître sur des lanthanides ou sur des métaux nobles, deux sortes d'éléments que l'on sait extraire. Finalement, avec un bullage très efficace, les seuls éléments qui resteront dans le sel sont les éléments stables qui ne sont pas produits par décroissance d'un krypton ou d'un xénon, c'est à dire les éléments qui sont produits directement par fission. Le tableau 5.1 répertorie les rendements de fission des alcalins et alcalino-terreux stables. Les données entre parenthèses correspondent à la production directe par fission du noyau père qui doit s'ajouter puisque ces pères sont inextractibles. Ce tableau montre que quelque soit l'efficacité du bullage, il y aura toujours un taux de formation pour chacun de ces éléments puisque des isotopes stables sont produits par fission. Nous voyons dans ce tableau qu'il y a beaucoup d'isotopes stables présents et que les rendements de fission, même s'ils ne sont pas majoritaires, sont loin d'être

négligeables.

Elément	rendement de fission (par fission)
Rb-85	$6,57.10^{-6}$
Rb-87	$6,97.10^{-4}$
Sr-84	0
Sr-86	$2,39.10^{-4}$ ( $6,81.10^{-5}$ pour Rb-86)
Sr-87	$7,96.10^{-7}$
Sr-88	$4,94.10^{-5}$ ( $3,22.10^{-3}$ pour Rb-88)
Cs-133	$1,13.10^{-5}$
Cs-135 (2,3.10 <sup>6</sup> ans)	$6,00.10^{-4}$
Ba-130	0
Ba-132	0 ( $7,65.10^{-7}$ pour Cs-132)
Ba-134	0 ( $9,68.10^{-5}$ pour Cs-134)
Ba-135	$5,62.10^{-6}$
Ba-136	$6,36.10^{-3}$ ( $2,54.10^{-3}$ pour Cs-136)
Ba-137	$3,09.10^{-4}$ ( $8,44.10^{-3}$ pour Cs-137)
Ba-138	$1,84.10^{-3}$ ( $1,78.10^{-2}$ pour Cs-138)

TABLE 5.1: Chemins de formation et rendement de fission des isotopes tenant un rôle dans la formation des alcalins

Comme il y a 13,41 moles de matière fissionnées par jour, nous pouvons calculer aisément les quantités produites par jour dans le cas où le bullage serait très efficace :  $9,43.10^{-3}$  mol/j pour Rb,  $4,80.10^{-2}$  mol/j pour Sr,  $8,20.10^{-3}$  mol/j pour Cs et enfin  $5,02.10^{-1}$  mol/j pour Ba. Au bout de 100 ans de fonctionnement du sel, la quantité de baryum accumulée est proche de 18000 moles. En comparant aux 35000 moles d'uranium présentes dans le sel, nous voyons que même un bullage infiniment efficace ne permet pas de négliger la production de ces éléments. Nous pouvons considérer le bullage comme infiniment efficace à partir du moment où la production des alcalins et alcalino-terreux par décroissance de gaz rares radioactifs est négligeable devant la production directe par fission c'est-à-dire, que dès qu'un gaz est produit dans le coeur, il est immédiatement extrait du système.

Nous avons donc effectué une série de simulations en fonction de l'efficacité du bullage pour quantifier son impact sur la production de ces éléments. Les résultats sont résumés dans le tableau 5.2 qui présente la proportion de baryum dans le sel combustible après 50 ans de fonctionnement. Les chiffres de ce tableau montrent que, si le bullage ne peut certainement pas empêcher la formation des éléments indésirables dans le sel, il joue toutefois un rôle important dans leur accumulation. On aura donc tout intérêt à optimiser le circuit d'extraction des gaz pour ne pas avoir à gérer cette accumulation.

### 5.1.2.2 Une incinération est-elle possible ?

Parmi les alcalins et alcalino-terreux formés par fission, on trouve deux des éléments les plus pénalisants pour la gestion à moyen terme des déchets : le Sr-90 et le Cs-137

Temps caractéristique de bullage (s)	500	100	30
Proportion de Ba	1,40%	0,97%	0,82%

TABLE 5.2: Proportion de baryum dans le sel combustible après 50 ans de fonctionnement en fonction du temps caractéristique du bullage

qui ont environ 30 ans de période. Ces éléments doivent être stockés pendant près de 300 ans avant de pouvoir être rejetés dans la biosphère. A l'heure actuelle, ils sont gérés comme les actinides mineurs et sont coulés dans les verres de confinement. Comme ils ont une période beaucoup plus courte que les actinides, ils sont plus chauds, et sont donc les éléments qui déterminent le dimensionnement du site de stockage. On peut se poser la question de savoir si une gestion comme les actinides n'est pas possible : à savoir une réinjection dans le coeur dans le but d'espérer les incinérer. Comme nous n'imaginons pas une séparation poussée entre les différents alcalins et alcalino-terreux, nous pensons réinjecter l'ensemble de ces éléments. Seule l'incinération du strontium et du césium serait bénéfique, mais les difficultés pour séparer ces éléments semblent trop complexes pour l'envisager.

Le dispositif de séparation des bulles du sel combustible, tel qu'il est pensé à l'heure actuelle, laisse sous-entendre que les gaz et les métaux sont séparés dès le début du séparateur. Les gaz décroissent dans un bain de métal fondu pour former les césiums, strontiums, rubidioms et baryums. Supposons qu'un moyen de séparation simple permette d'extraire ces éléments du métal fondu dans lequel on fait barboter le gaz ; on peut alors facilement réintroduire ces éléments dans le coeur.

La grandeur caractéristique des éléments sous flux neutronique est l'inverse du produit de la section efficace par le flux. Cette grandeur, appelée temps d'incinération, est à comparer à la constante de désintégration nucléaire. Si ce temps d'incinération est inférieur ou équivalent à la demi-vie d'un élément, alors sa disparition sera accélérée : c'est la transmutation. Dans le cas du Sr-90, le temps d'incinération correspondant à la configuration nominale est de 1186 ans, et celui du Cs-137 est de 493 ans. Il ne faut donc pas espérer transmuter ces éléments dans un MSFR.

Nous avons toutefois réalisé la simulation numérique correspondante au cas décrit ci-dessus. Les proportions atomiques de chaque isotope dans le sel combustible sont résumées dans la figure 5.1.

Les quantités observées dans le sel combustible et dans le site de stockage sont présentées dans le tableau 5.3. Comme on peut le voir dans ce tableau, les différences de quantités de matière totale sont très faibles et l'incinération n'est donc pas efficace. Le fait de réinjecter les alcalins et alcalino-terreux dans le sel de coeur permet de soulager grandement le site de stockage d'un point de vue de dégagement de chaleur, mais, comme pour le recyclage des actinides, repousse le problème à la fin de vie du sel combustible.

Nous avons vu, dans le chapitre 3, que 3% de baryum ne devait pas fondamentalement changer les caractéristiques physico-chimiques du sel. Les alcalins et alcalino-terreux ne sont pas non plus pénalisants du point de vue de la neutronique. On peut alors penser que 6 % de baryum (atteignable si l'on renvoie le baryum en coeur) ne devrait pas poser de problème sur le comportement du sel. Il faut relativiser cette affirmation par le fait que les effets sur l'électrochimie du sel sont par contre bien mal



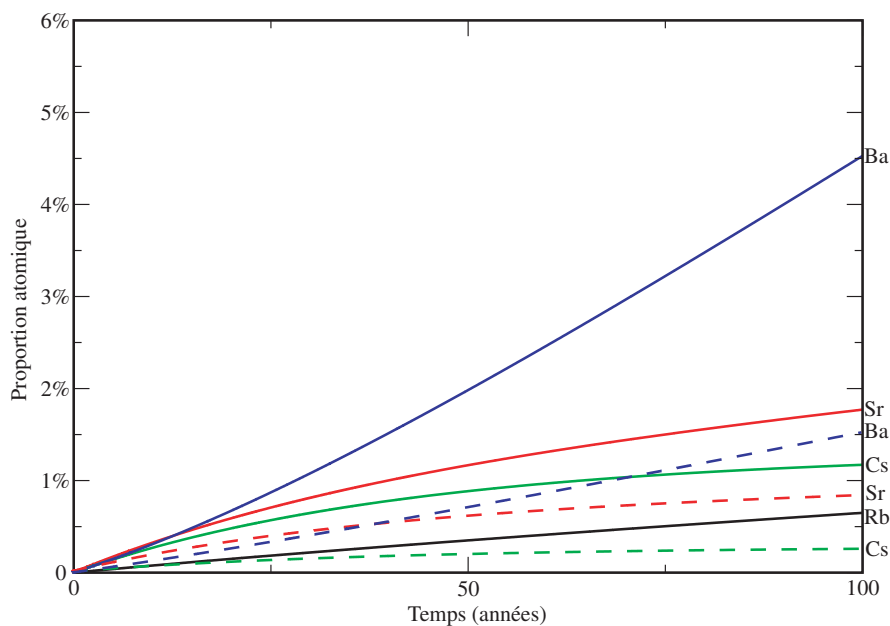


FIGURE 5.1: Evolution de la proportion atomique des alcalins et alcalino-terreux, dans le cas où l'on réinjecte les éléments fils des gaz de fission (trait plein) et dans le cas contraire-cas nominal (trait pointillé).

	Quantités (sel combustible)	Quantités (stockage)	Total
Cs-137 extrait	310 kg	1280 kg	1590 kg
Cs-137 recyclé	1420 kg	100 kg	1520 kg
Sr-90 extrait	599 kg	368 kg	967 kg
Sr-90 recyclé	957 kg	3 kg	960 kg

TABLE 5.3: Quantités de Cs-137 et de Sr-90 dans le sel combustible et dans le site de stockage suivant la gestion des gaz, après 100 ans d'évolution

connus : l'ajout d'élément de valence 2 peut modifier sensiblement la solubilité des valences 3 comme le plutonium, par exemple. Les effets sur la corrosion sont aussi mal connus. Par conséquent, nous garderons à l'esprit que, si l'accumulation de ces éléments n'est sans doute pas problématique, nous ne pouvons dire qu'elle est souhaitable.

### 5.1.3 La question de l'iode et du tchénetium

#### 5.1.3.1 L'iode

Le comportement de l'iode est très incertain dans l'unité de retraitement. Il n'est pas évident de savoir théoriquement si l'iode devrait être extrait par le bullage dans le coeur ou s'il est extrait par fluoration dans l'unité de retraitement pyrochimique. Notons aussi que l'iode possède un isotope à vie longue (I-129 : demi-vie de  $1,57 \cdot 10^7$  ans) qui possède une composante forte dans la radiotoxicité à long terme.

Dans le cas où l'iode serait alors extrait par fluoration, nous pourrions avoir le choix de l'incinérer dans le coeur du réacteur, à l'image des actinides. Comme dans le cas des alcalins et des alcalino-terreux, il faut connaître les temps d'incinération des différents

éléments. Le tableau 5.4 présente les caractéristiques des isotopes de l'iode.

Elément	Période	Section efficace moyenne	Temps d'incinération
I-127	stable	1,46 barns	13,7 ans
I-129	$1,57 \cdot 10^7$ ans	0,75 barn	26,8 ans
I-131	8 jours	0,36 barn	55,7 ans

TABLE 5.4: Caractéristiques des différents isotopes de l'iode

Il apparait clairement que l'incinération de l'iode semble plus plausible que celle des alcalins ou des alcalino-terreux. Laisser l'iode sous flux neutronique permettrait d'augmenter grandement le taux de disparition de l'iode 129. En effet, dans le cas d'une extraction du sel combustible, la disparition de l'iode 129 par capture neutronique en xénon 129 est négligeable devant le terme de disparition par extraction (450 jours dans le cas nominal). Dans ce cas, le flux d'iode 129 vers le stockage des déchets est de 230 mg/jour alors que la quantité d'iode en coeur est de 0,8 mole soit 103 grammes.

S'il est possible de séparer l'iode et donc d'incinérer l'I-129, la quantité à l'équilibre dans le coeur est alors de 17,36 moles (soit 4 kg), mais le flux de sortie est nul. Il faut donc environ 47 ans pour que les quantités accumulées dans le coeur et dans le site de stockage soit équivalentes. Nous gagnons un facteur 7,6 sur la radiotoxicité induite de l'I-129 après 200 ans de fonctionnement comme montré dans le tableau 5.5.

	Incinération	Extraction
Quantités en coeur d'I-129	17,36 moles	0,80 mole
Quantités en coeur d'I-127	0,55 moles	0,05 moles
Flux de sortie d'I-129	0	$1,8 \cdot 10^{-3}$ mole/j
Taux d'absorption total de l'iode normalisé à un neutron de fission	$5,9 \cdot 10^{-5}$	$3,0 \cdot 10^{-6}$
Quantités totales au bout de 200 ans	17,36 moles	132,2 moles
Radiotoxicité induite au bout de 200 ans	1607 Sv	12220 Sv

TABLE 5.5: Résumé des performances de l'incinération de l'iode

Il apparait donc très clairement que l'incinération de l'iode est une opération bénéfique du point de vue de la gestion des déchets à long terme. En effet, la quantité d'I-29 est stabilisée au bout de quelques dizaines d'années et le gain peut s'avérer important du point de vue de la radiotoxicité des déchets à long terme. Il serait donc préjudiciable de ne pas profiter d'une extraction facile de l'iode si tel est le cas pour renvoyer cet élément dans le sel combustible. Devant les faibles quantités en présence (17,3 moles lorsque l'état stationnaire est atteint), il semblerait qu'il n'y ait pas de problème de solubilité ni de comportement chimique (nous rappelons qu'il y a 641000 moles de lithium dans le sel combustible). Au vu des taux d'absorption l'effet de l'incinération sur le taux de régénération n'est pas visible.

### 5.1.3.2 Le tchénetium 99 et l'étain 126

Le Tc-99 et le Sn-126 sont aussi des éléments connus comme produits de fission à vie longue problématiques dans la gestion des stockages de déchets. Le temps ca-

ractéristique d'incinération du Tc-99 dans le MSFR est de 15,5 ans, ce qui permettrait d'envisager une incinération. Par contre celui de l'étain 126 est de 3000 ans, ce qui signifie que, comme les alcalins, son incinération ne sera pas efficace.

Nous avons déterminé dans le chapitre 3 de ce manuscrit que le Tc-99 se présente sous forme métallique dans le sel combustible. Il est donc extrait par le système de bullage de gaz en coeur. Il est localisé dans les bains de liquide filtrant du premier étage, et son extraction paraît délicate. De la même manière, sa réinsertion dans le sel combustible ne semble pas possible puisqu'il sera ré-extrait par les bulles d'hélium. Il faudrait, comme dans [Nu-02], l'insérer aux matériaux de structure pour envisager son incinération. Cette option nous semblant trop complexe pour la mettre en oeuvre, nous ne préconisons pas l'incinération du Tc-99.

## 5.1.4 La question du zirconium

### 5.1.4.1 Caractéristiques des isotopes

Dans le chapitre 3 nous avons montré que l'extraction du zirconium par le bullage était impossible, et nous avons proposé un moyen d'extraction du zirconium par solidification dans une nappe de bismuth. Cependant la faisabilité de l'opération n'est pas établie, et devant cette interrogation, nous avons cherché à quantifier la flexibilité que laissait le réacteur devant la problématique du zirconium. Le tableau 5.6 présente les sections efficaces moyennes des différents isotopes de zirconium, ainsi que leur taux de capture et leur quantité dans le cas nominal.

Isotope	Zr-90	Zr-91	Zr-92	Zr-93	Zr-94	Zr-96	Li-7
Section efficace de capture (barns)	0,02	0,2	0,07	0,2	0,04	0,1	$6,6 \cdot 10^{-5}$
Taux de capture (cas nominal en mol/j)	$6,3 \cdot 10^{-4}$	$7,1 \cdot 10^{-3}$	$3,6 \cdot 10^{-3}$	$1,2 \cdot 10^{-2}$	$1,9 \cdot 10^{-3}$	$4,5 \cdot 10^{-3}$	$5,6 \cdot 10^{-3}$
Quantités dans le sel combustible (en moles)	210	276	365	377	374	326	$6,4 \cdot 10^5$

TABLE 5.6: Caractéristiques des différents isotopes du Zr présent dans le sel combustible, comparé au lithium 7

Ce tableau montre que les différentes sections efficaces du zirconium sont quelques ordres de grandeurs supérieures à celle du Li-7. Il est donc impensable de laisser s'accumuler le zirconium comme nous le proposons pour les alcalins et alcalino-terreux. Réaliser un sel combustible à base de zirconium devrait avoir un impact considérable sur la régénération puisque le solvant capturerait alors 1000 fois plus.

Dans le cas où le zirconium n'est pas extrait, celui-ci s'accumule à hauteur de 0,17% par an. Au bout de 60 ans sans extraction, la proportion en zirconium a atteint 10% (la proportion de zirconium dans le cas nominal est de 0,2%). Comme dans le cas nominal, où nous laissons les alcalins et alcalino-terreux s'accumuler, la quantité de sel combustible augmente. Cependant, les quantités en jeu sont si importantes que la quantité de  $ZrF_4$  produite pendant ce temps de fonctionnement est de 13,6 tonnes (sur

les 200 tonnes de sel combustible de l'état initial). Le taux d'absorption du zirconium augmente alors pour atteindre 0,03 neutron absorbé par neutron de fission, soit près de 5 fois plus que les lanthanides dans le cas nominal. Le taux de régénération diminue pendant le fonctionnement, et le réacteur est vite très sous-générateur puisqu'au bout de 60 ans de fonctionnement, le taux de régénération en coeur est de 0,95.

#### 5.1.4.2 Etape de substitution

Comme nous venons de le montrer, il faut absolument une extraction du zirconium pour garder les bonnes propriétés du concept MSFR. Si l'étape du retraitement de référence n'est pas envisageable, il faut alors penser à une étape de substitution. Nous envisageons deux raisons qui invalideraient l'étape de référence :

- La première est la co-précipitation d'actinides avec le bismuth entraînant alors des complications dans la gestion des flux de matière. Il n'est pas impossible, par exemple, que le zirconium se dépose sur le thorium métallique à saturation dans le bismuth. Il faudrait alors réaliser plusieurs étapes d'extraction et de nettoyage en aval.
- La deuxième raison vient du moyen de desextraction des actinides. Il n'est pas impossible que celui-ci entraîne un flux de zirconium hors de la nappe de bismuth, rendant impossible sa précipitation.

Il nous semble impossible de trancher dans l'état actuel du projet et avec les données accessibles. Les diagrammes de phase comprenant du bismuth, du zirconium et des actinides n'existent pas, et nous ne pouvons pas prédire, de manière théorique, le comportement des oxydations. L'expérimentation semble alors la seule voie de sortie pour affirmer si l'étape du retraitement de référence est envisageable.

Dans la négative, nous pensons que jouer sur les cinétiques de réaction permettrait d'apporter un élément de réponse. L'idée serait de prévoir une étape d'extraction réductrice supplémentaire (juste en aval de la fluoration) pour laquelle l'équilibre thermodynamique n'est pas atteint. Les différences de cinétiques de transfert pourraient être suffisantes pour réaliser une séparation quantitative zirconium/actinides. Une fois encore, le manque de données nous empêche de valider cette hypothèse, mais si celle-ci peut être envisageable, il est nécessaire que le zirconium soit en quantité suffisante dans le sel combustible (de l'ordre de 10%) pour imposer une cinétique de transfert du zirconium réellement supérieure à celle des actinides.

Nous avons donc cherché un point de fonctionnement acceptable à partir d'un ternaire  $\text{LiF-ThF}_4\text{-ZrF}_4$ , avec 10% de zirconium. Nous avons gardé la proportion de noyaux lourds à 22,5%, dans le but de quantifier la perturbation apporté par l'ajout de Zr. Cependant nous pourrions imaginer une autre proportion de noyaux lourds puisqu'ajouter un troisième élément devrait faire baisser le point de fusion. L'argument du point eutectique n'est donc plus valable dans ce cas. Puisque le zirconium capture d'avantage, l'enrichissement initial doit être plus important pour assurer la criticité et le taux de régénération est donc diminué. La comparaison avec le cas nominal est présentée dans le tableau 5.7. Le vecteur isotopique du zirconium est celui de l'état stationnaire du cas nominal : il y a donc du Zr-90, Zr-91, Zr-92, Zr-93, Zr-94 et du Zr-96 dans les proportions du tableau 5.6.

A la lecture de ce tableau, nous concluons que la question du zirconium est une question cruciale qui pourrait remettre en question les très bonnes caractéristiques du

	Cas nominal	Sel comportant 10% de ZrF <sub>4</sub>
Enrichissement initial ( $[U_{F4}]/[Th_{F4}]$ )	12,6%	13,9%
Charge initial en uranium	4789 kg	4855 kg
Taux de régénération en coeur	0,99	0,94
Taux d'absorption sur le Zr (neutron/neutron de fission)	$3,5 \cdot 10^{-2}$	$1,05 \cdot 10^{-3}$

TABLE 5.7: Comparaison entre un sel combustible LiF-NLF<sub>4</sub>(22,5%)-ZrF<sub>4</sub>(10%) et le cas nominal

concept. En effet, le taux de régénération devient trop faible avec 10% de zirconium dans le sel combustible. Une autre simulation avec un sel contenant 2% de zirconium donne un taux de régénération légèrement inférieur à 0,98, ce qui représente une dégradation du taux de régénération du cas nominal.

L'étape d'extraction du zirconium, qui consiste à travailler hors équilibre, paraît être une idée satisfaisante pour extraire la production journalière de zirconium. Mais pour ne pas accumuler trop de zirconium et quantifier cette extraction, il faudrait alors connaître précisément les cinétiques de transferts mis en jeu, ce qui semble impossible à estimer théoriquement.

## 5.2 Retraitement des noyaux lourds

### 5.2.1 Considérations générales

Comme tout réacteur de quatrième génération, le MSFR devrait diminuer la production de déchets et donc incinérer, si possible, les noyaux lourds qu'il produit. Cependant, comme nous l'avons vu au chapitre 3, le schéma de retraitement comporte des incertitudes quant aux performances du retraitement de certains actinides. Prenons le cas de l'américium comme exemple illustratif : les données tirées de la thèse de F. Lemort [Le-92] indiquent que, lors d'un contact entre une nappe de bismuth et le sel combustible, l'américium se situerait plutôt dans le métal puisque le coefficient de partage est d'environ 30 dans les conditions de fonctionnement. Cependant, les calculs thermodynamiques effectués à l'aide de HSC nous donnent un coefficient de partage beaucoup plus faible ( $<10^{-2}$ ). Ces incertitudes dans les coefficients de partage, ou dans tout autre grandeur thermochimique, peuvent impliquer de grosses conséquences sur les performances globales du procédé. Dans l'exemple de l'américium, si l'on en croit les données de Lemort, l'américium est recyclé dans le réacteur. Par contre, si l'on en croit le calcul, l'américium est complètement extrait du système et suit le flux de lanthanides jusque dans les verres de stockage géologique. Insistons sur le caractère illustratif de l'américium ; la communauté pyrochimique s'accorde pour dénoncer les données d'HSC concernant l'américium comme erronées, cependant ce cas nous sert de prétexte pour développer une méthode d'analyse de sensibilité à l'extraction d'un élément en particulier.

Il faut essayer de quantifier l'effet du retraitement éventuel de tel ou tel élément sur le comportement neutronique du coeur et sur l'influence de la composition du sel. Pour cela, nous avons repris le formalisme développé par Adrien Bidaud dans sa thèse [Bi-05] concernant l'équilibre des noyaux lourds. Ce formalisme, développé au départ par Salvatores et al [Sa-96], permet de retrouver les propriétés des systèmes par calcul de probabilité. Du point de vue de la neutronique, l'idée est de compter le nombre de neutrons nécessaires pour faire disparaître un élément lourd (ou l'un de ses descendants) par fission. C'est ce que l'on définira comme la contribution neutronique  $D_i$ . Si ce nombre est positif, alors chaque disparition de  $i$  fournit  $D_i$  neutron, alors que s'il est négatif, il faut fournir  $-D_i$  neutron pour faire fissionner  $i$  ou un de ses descendants. Ce calcul, comme nous le verrons dans la suite, nécessite de connaître les différentes probabilités d'apparition normalisées aux disparitions de quelques noyaux principaux du cycle. Nous verrons la façon dont nous pouvons utiliser ces probabilités pour quantifier l'influence du retraitement sur la composition en noyaux lourds du sel combustible.

La suite de cette section posera donc les bases d'un calcul théorique effectué à l'équilibre. Dans la section suivante, nous chercherons à vérifier le bien fondé d'un tel calcul par deux exemples : l'extraction de l'américium et celle du protactinium.

## 5.2.2 Contribution neutronique et probabilités d'apparition

### 5.2.2.1 Définition

Comme nous l'avons défini au paragraphe précédent, la contribution neutronique d'un isotope  $i$  est le nombre de neutrons produits pour faire disparaître  $i$  soit par fission de  $i$ , soit par la fission de l'un de ses descendants.

Le taux de disparition de ce noyau peut être défini comme 5.1

$$\tau_{disparition} = \sigma_{abs}\phi + \lambda + \lambda_{extraction} \quad (5.1)$$

ou  $\sigma_{abs}$  représente la section efficace d'absorption neutronique du noyau  $i$ ,  $\phi$  le flux neutronique,  $\lambda$  la constante de désintégration nucléaire de  $i$  et enfin  $\lambda_{extraction}$  représente la constante associée à l'extraction comme définie dans les chapitres précédents.  $\sigma_{abs}$  est la somme  $\sigma_{abs} = \sigma_{fiss} + \sigma_{capt} + \sigma_{(n,2n)}$ . Dans notre cas, nous pouvons faire l'approximation que  $\sigma_{(n,xn)} \ll \sigma_{abs}$  (avec  $x > 2$ ), et c'est pourquoi nous négligeons les sections efficaces de réaction  $(n,xn)$ , ainsi que les autres réactions neutroniques  $(n,p)$ ,  $(n,d)$ , etc...

Notons que  $\lambda_{extraction}$  représente la constante associée aux pertes du retraitement. En effet, devant les volumes mis en jeu dans l'unité de retraitement, nous pouvons négliger le court laps de temps que les isotopes passent dans le procédé de retraitement et considérer cette opération comme nulle sur le bilan de chaque isotope. Le seul isotope dont on pourrait remettre en cause cette hypothèse est le Pa-233 qui possède 27 jours de période. Nous négligerons donc les pertes liées aux deux jours passés à l'extérieur du coeur pour le retraitement, qui concerne 0,2% du Pa-233.

En d'autres termes, le retraitement en lui-même n'est pas un terme de disparition alors que les pertes en retraitement le sont. La grandeur  $\lambda_{extraction}$  peut donc être exprimée, dans cette section, comme le produit de l'efficacité d'extraction par l'inverse du temps nécessaire pour retraiter l'ensemble du sel combustible. Ce terme de disparition est le terme diagonal de la matrice d'évolution  $M$  définie au chapitre 2.

L'isotope  $i$  forme  $\frac{\nu\sigma_f\phi+2\sigma_{(n,2n)}\phi}{\sigma_{abs}\phi+\lambda+\lambda_{extraction}}$  neutrons par disparition. De la même manière, il en consomme  $\frac{\sigma_f\phi+\sigma_{(n,2n)}\phi+\sigma_{capt}\phi}{\sigma_{abs}\phi+\lambda+\lambda_{extraction}}$ . La contribution neutronique de  $i$  peut s'exprimer comme 5.2 :

$$D_i = \frac{\nu\sigma_f\phi + \sigma_{(n,2n)}\phi - (\sigma_f + \sigma_{capt})\phi}{\sigma_{abs}\phi + \lambda + \lambda_{extraction}} + \sum_j D_j \cdot P_j^i \quad (5.2)$$

où la somme sur  $j$  représente la somme des contributions neutroniques des fils multipliée par la probabilité qu'une disparition de  $i$  forme un noyau  $j$  ( $P_j^i$ ). La suite des isotopes  $j$  est donc la suite des noyaux formés par décroissance et captures neutroniques successives de  $i$ .

### 5.2.2.2 Calcul des probabilités d'apparition ( $P_j^i$ )

Une des grandeurs clefs est donc la probabilité qu'un noyau  $i$  forme un noyau  $j$  à l'équilibre. Comme toute probabilité, c'est un nombre réel qui est compris entre 0 et 1. Si  $P_j^i$  est nulle, c'est que la disparition de  $i$  ne conduira jamais à la formation de  $j$ , quelque soit le nombre de décroissances ou de captures neutroniques. Si au contraire, cette probabilité vaut 1, c'est que chaque disparition de  $i$  conduit à la formation de  $j$ .

L'arbre de décroissance lie les éléments entre eux de manière à connaître les taux de transition du premier ordre normalisés à un atome. En effet, chaque noeud de cet arbre représente un atome et chaque branche représente le rythme auquel ces transitions apparaissent. Pour connaître la probabilité de former  $j$  à partir de  $i$ , il suffit de sommer, sur l'ensemble des chemins possibles, les produits de probabilité conditionnelle de formation de chaque élément à partir de  $i$ . Le lien entre l'évolution du combustible et l'arbre de décroissance est l'équation d'évolution (équation de Bateman) présentée dans le chapitre 2 sous sa forme matricielle dans l'équation 2.22. La matrice  $M_{i,j}$  de cette équation représente les taux d'apparition de  $i$  à partir de  $j$  (par réaction neutronique ou par décroissance nucléaire) et les termes diagonaux représentent les taux de disparition.

Supposons que  $j$  soit le premier fils de  $i$ . La probabilité d'apparition  $P_j^i$  est alors le ratio entre le terme source (capture neutronique ou décroissance multipliée par le rapport d'embranchement adéquat) sur le terme de disparition. Nous pouvons alors faire le lien avec la matrice d'évolution grâce à la relation 5.3 :

$$P_j^i = - \frac{M_{j,i}}{M_{i,i}} \quad (5.3)$$

en rappelant que  $M_{j,i}$  est le terme de la  $j^{\text{ème}}$  ligne et  $i^{\text{ème}}$  colonne donnant le taux d'apparition de  $j$  à partir de  $i$  normalisé à un atome. Le dénominateur de cette équation représente le taux de disparition de l'isotope  $i$ .

Nous pouvons alors très facilement construire une matrice que nous nommerons  $A$  et définie comme 5.4 :

$$(A)_{j,i} = - \frac{(M)_{j,i}}{(M)_{i,i}} \quad (5.4)$$

Chaque case  $(j, i)$  représente la probabilité que  $i$  disparaisse pour donner  $j$  après une transition (capture neutronique ou décroissance). Les colonnes représentent alors les

noyaux pères et les lignes l'indice des noyaux fils. Si  $A$  représente une telle matrice, alors il est facile de montrer que  $A^2$  représente la matrice des probabilités de transition au deuxième ordre (après deux transitions). En effet, si  $(A)_{j,i}$  représente la probabilité de former  $j$  à partir de  $i$ , alors on peut calculer chaque terme de cette matrice au carré comme 5.5.

$$(A^2)_{j,i} = \sum_k (A)_{j,k} (A)_{k,i} \quad (5.5)$$

Chaque terme de cette matrice peut donc s'écrire comme la somme sur  $k$  des produits des probabilités de former  $j$  à partir de  $k$  par la probabilité de former  $k$  à partir de  $i$ . Un simple raisonnement par récurrence permet d'affirmer que  $A^n$  représente la matrice des probabilités de formation au bout de  $n$  transitions. Par conséquent, la matrice des  $P_j^i$  dans le cas général peut s'écrire comme 5.6.

$$P_j^i = \sum_n (A^n)_{j,i} = \sum_n \left( \frac{M_{j,i}}{M_{i,i}} \right)^n \quad (5.6)$$

La  $i^{\text{ème}}$  colonne de la  $j^{\text{ème}}$  ligne représente donc la probabilité de former  $j$  à chaque fois que  $i$  disparaît, que ce soit par désintégration ou par capture neutronique ou même par extraction chimique. Insistons sur le fait que ce raisonnement n'est valable que dans l'état stationnaire. D'autre part, la matrice ne lie que les différents isotopes d'une même cellule entre eux. Nous nous focaliserons par la suite à la cellule représentant le sel combustible qui possède un  $k_\infty$  de 1,1.

### 5.2.2.3 Application numérique

En partant de 5.6, il est facile de calculer numériquement les probabilités de formation de chaque noyau lourd normalisé à une disparition d'uranium 233 ou à une disparition de thorium 232. En injectant ces probabilités dans la relation 5.2, nous connaissons alors la contribution neutronique de chacun des noyaux lourds. Nous avons effectué ces calculs dans le cas d'équilibre à partir de la matrice d'évolution calculée par REM. Dans le cas nominal, le retraitement est effectué en 450 jours et nous supposons que les pertes dues au retraitement sont de 1 pour 1000. Le temps caractéristique de l'extraction des noyaux lourds est donc de 450 000 jours. Il a fallu vérifier que la somme des  $A^n$  était bien convergente. Un critère numérique a été utilisé : en rajoutant un ordre, la variation de tous les coefficients  $P_j^i$  doit être inférieure à 0,1%.

Les contributions neutroniques de chacun des isotopes ainsi que leurs probabilités de formation à partir d'une disparition de thorium 232 sont données dans le tableau 5.8. Seul les actinides qui ont une probabilité d'apparition, par disparition du thorium, supérieure à  $5.10^{-5}$  sont représentés dans ce tableau.

Dans ce tableau, nous voyons que l'uranium 236 possède une contribution neutronique nulle : c'est à dire que faire disparaître un uranium 236 (ou un de ses descendant) est invisible dans le bilan neutronique. Une fois que les U-234 et U-235 sont à l'équilibre (quelques dizaines d'années environ [Ma-05]), nous pouvons donc considérer que les performances du cycle thorium sont à l'équilibre, puisque l'apparition d'U-236 et de ses descendants ne changera pas le bilan neutronique.



Elément	Probabilité de formation (par disparition de Th232)	Contribution neutronique (neutrons/disparition)
Th-232	-	0,23
Pa-231	$2,74.10^{-3}$	0,53
Pa-233	$9,55.10^{-1}$	1,22
U-232	$2,77.10^{-3}$	1,50
U-233	$9,43.10^{-1}$	1,24
U-234	$1,12.10^{-1}$	0,12
U-235	$9,03.10^{-2}$	0,80
U-236	$2,34.10^{-2}$	0,03
Np-237	$2,04.10^{-2}$	0,83
Np-238	$1,87.10^{-2}$	0,93
Pu-238	$1,85.10^{-2}$	0,93
Pu-239	$9,39.10^{-3}$	1,13
Pu-240	$3,15.10^{-3}$	0,59
Pu-241	$2,36.10^{-3}$	1,15
Pu-242	$4,19.10^{-4}$	-0,01
Pu-243	$2,86.10^{-4}$	0,48
Am-241	$4,08.10^{-4}$	-0,02
Am-243	$2,80.10^{-4}$	-0,48
Cm-242	$3,09.10^{-4}$	0,94

TABLE 5.8: Bilan neutronique des différents actinides présents dans le sel combustible

Il faut noter que, puisque la composition en noyaux lourds est constante pendant le fonctionnement du réacteur, chaque noyau lourd extrait par le retraitement est remplacé par un noyau de thorium. Chaque élément qui possède une contribution neutronique inférieure à 0,23 (contribution neutronique du Th-232) devrait donc avoir un impact négatif sur la régénération.

Grâce aux probabilités de formation  $P_j^i$ , nous pouvons alors prédire le comportement du réacteur en fonction des perturbations envisagées. Nous verrons par la suite comment l'extraction d'un élément peut modifier les propriétés du système en recalculant les  $P_j^i$  suivant les perturbations. Nous serons alors en mesure de calculer un grand nombre de grandeurs sans refaire une simulation au complet, ce qui devrait être un gain de temps de calcul précieux. Nous supposons, dans ce raisonnement, qu'une variation des performances du retraitement n'affecte pas les autres modes de disparition, c'est-à-dire que nous supposons que le spectre neutronique, et donc les sections efficaces moyennes, ne sont pas modifiés si l'on modifie les performances du retraitement. Rappelons que la composition en noyaux lourds est imposée à 22,5%. Par conséquent, si le retraitement extrait malencontreusement des actinides mineurs par exemple, ceux-ci seront remplacés par des noyaux de thorium pour garder la composition chimique proche d'une composition eutectique. L'hypothèse de la non-variation du spectre neutronique avec le retraitement n'est donc pas une hypothèse très forte puisque la modération est dominée par la proportion de noyaux légers (lithium et fluor).

#### 5.2.2.4 Lien avec les grandeurs intégrales

Les probabilités de formation  $P_j^i$  permettent de lier les comportements des noyaux fils aux disparitions de quelques noyaux importants. Ici, on s'intéressera au Th-232 et à l'U-233 qui sont les deux noyaux les plus importants du cycle. Comme nous l'avons explicité dans le chapitre 2, le réacteur doit satisfaire un certain nombre de contraintes lors de son évolution. La puissance notamment est connue et le réacteur doit rester critique pendant le fonctionnement. Rappelons aussi que nous supposons l'équilibre atteint.

Nous essayons de montrer ici comment retrouver les taux de disparition de ces deux noyaux (qui sont donc nos inconnus) à l'aide de grandeurs intégrales : la puissance et le  $k_\infty$ .

Supposons un instant que le réacteur soit régénérateur. La seule alimentation est une alimentation en Th-232, et nous pouvons tout exprimer en fonction du taux de disparition du Th-232, notamment le taux de fission total,  $\tau_{fission}$ , du système qui peut s'exprimer comme 5.7.

$$\tau_{fission} = \tau_{disparition}^{Th^{232}} \cdot \left( \sum_j P_j^{Th^{232}} p_j^{fission} + p_{Th^{232}}^{fission} \right) \quad (5.7)$$

où  $p_j^{fission}$  représente la probabilité que  $j$  disparaisse par fission. Comme le taux de fission total est fixé par la puissance du coeur, nous pouvons calculer le taux de disparition du Th-232 dans le cas où le réacteur est régénérateur. L'application numérique de la parenthèse donne une probabilité totale de fission pour le thorium ou l'un de ses

descendants de 96,8%. Les 3,2% restants correspondent à des pertes au retraitement ou à la formation de noyaux lourds non fissionnants (comme le plomb ou le bismuth).

Le taux de fission total est de 13,41 moles par jour. Le taux de disparition du thorium, dans le cas où le réacteur est régénérateur est donc de 13,86 moles par jour. Le taux de production de l'U-233 peut se calculer comme le taux de disparition du Th-232 multiplié par la probabilité de former un noyau d'U-233 qui est de 94,3%. De plus, comme on est à l'équilibre, le taux de disparition est égal au taux de production soit 13,07 moles par jour.

Revenons au cas général où le réacteur n'est pas régénérateur. L'équilibre des compositions impose toujours que la production soit égale à la disparition, a fortiori pour l'U-233. La production peut être décomposée en deux termes : la capture sur le thorium qui peut s'écrire  $\tau_{disparition}^{Th^{232}} \cdot P_{U^{233}}^{Th^{232}}$  et l'alimentation que l'on notera  $\alpha$ . Dans ces conditions, le taux de fission total peut alors s'écrire comme 5.8.

$$\begin{aligned} \tau_{fission} = & \tau_{disparition}^{Th^{232}} \cdot \left( \sum_j P_j^{Th^{232}} p_j^{fission} + p_{Th^{232}}^{fission} \right) \\ & + \alpha \left( \sum_j P_j^{U^{233}} p_j^{fission} + p_{U^{233}}^{fission} \right) \end{aligned} \quad (5.8)$$

Nous avons donc maintenant deux inconnues ( $\tau_{disparition}^{Th^{232}}$  et  $\alpha$ ) et une seule équation. Nous cherchons la deuxième équation dans l'expression du coefficient de multiplication effectif  $k_\infty$ , comme le ratio du nombre de neutrons produits  $n_p$  sur le nombre de neutrons absorbés  $n_{abs}$ . Nous avons vu, dans le chapitre 3, que le nombre de neutrons absorbés par les produits de fission était négligeable devant l'absorption des noyaux lourds. Nous pouvons donc écrire  $n_{abs}$  comme 5.9 où  $p_j^{absorption}$  représente la probabilité que  $j$  disparaisse par absorption.

$$\begin{aligned} n_{abs} = & \tau_{disparition}^{Th^{232}} \cdot \left( \sum_j P_j^{Th^{232}} p_j^{absorption} + p_{Th^{232}}^{absorption} \right) \\ & + \alpha \left( \sum_j P_j^{U^{233}} p_j^{absorption} + p_{U^{233}}^{absorption} \right) \end{aligned} \quad (5.9)$$

Le nombre de neutrons produits  $n_p$ , peut lui s'écrire comme 5.10 - les neutrons émis par réactions (n,2n) sont, ici, négligés.

$$\begin{aligned} n_p = & \tau_{disparition}^{Th^{232}} \cdot \left( \sum_j \nu_j P_j^{Th^{232}} p_j^{fission} + \nu_{Th^{232}} p_{Th^{232}}^{fission} \right) \\ & + \alpha \left( \sum_j \nu_j P_j^{U^{233}} p_j^{fission} + \nu_{U^{233}} p_{U^{233}}^{fission} \right) \end{aligned} \quad (5.10)$$

Rappelons que  $k_\infty$  dans notre cas vaut 1,1, ce qui nous donne la deuxième équation qui lie le taux de disparition du Th-232 au taux de disparition de l'U-233. La résolution

numérique de ce système conduit à un taux de disparition du Th-232 de 13,79 moles par jour et une alimentation en U-233 de  $6,4 \cdot 10^{-2}$  mole par jour. A partir du taux de disparition du Th-232, on peut calculer la production d'U-233 qui vaut alors 13,01 moles par jour et on en déduit directement le taux de régénération de 0,995.

La simulation du réacteur dans sa configuration nominale donne un taux de régénération de  $0,99 \pm 4 \cdot 10^{-2}$ . Le taux de disparition total du Th-232 est calculé à 13,8 moles par jour, et celui de l'U-233 est de 13,07 moles par jour. Nous pouvons donc conclure que l'accord entre le modèle et la simulation est très satisfaisant, et nous essayerons d'utiliser les valeurs du modèle autant que possible dans la suite de notre raisonnement.

### 5.2.2.5 Formation des TRans-Uraniens

Du point de vue de la production des descendants de l'uranium 233, nous pouvons calculer les probabilités d'apparition normalisées à une disparition de Th-232 ou à une disparition d'U-233. Ces probabilités, définies comme le taux de disparition de l'uranium 233 (resp. Th-232) multiplié par la probabilité d'apparition de l'isotope considéré, sont rappelées dans le tableau 5.9.

Elément	Production calculée à partir du Th-232	Production calculée à partir de l'U233
U-234	1,55	1,39
U-235	1,24	1,12
U-236	0,32	0,29
Np-237	0,28	0,25
Np-238	0,26	0,23
Pu-238	0,26	0,23
Pu-239	0,13	0,11
Pu-240	$4,4 \cdot 10^{-2}$	$3,9 \cdot 10^{-2}$
Pu-241	$3,3 \cdot 10^{-2}$	$3,0 \cdot 10^{-2}$

TABLE 5.9: Formation de différents isotopes lourds (en mol/j)

Notons que les calculs fait à partir de l'uranium 233 et ceux effectués à partir du thorium 232 ne correspondent pas entre eux. L'erreur vient certainement du fait que le réacteur n'est pas tout à fait régénérateur (en coeur) : il faut alors alimenter en thorium mais aussi en uranium (venant de la couverture) pour maintenir le réacteur critique. L'uranium 233 n'apparaît donc pas uniquement comme le produit de la disparition du thorium 232 par la probabilité adéquate. Il y a donc un biais que nous allons essayer de formaliser dans le paragraphe suivant.

### 5.2.2.6 Influence de la régénération et découplage des chaînes

Si le réacteur était parfaitement régénérateur, les résultats du tableau 5.9 seraient parfaitement concordants entre eux, et avec la simulation. Rappelons que, dans ce travail, le taux de régénération est défini comme le ratio entre la production sur la disparition du fissile. La production d'U-233 peut être calculée comme le produit du taux de disparition du Th-232 par la probabilité de former un noyau d'U-233 normalisée

à une disparition de Th-232. Dans notre cas, ce taux de formation vaut 13,01 moles par jour. Le taux de disparition de l'uranium 233 est de 13,07 moles par jour, et le coefficient de régénération vaut 0,99.

La définition du coefficient de régénération en faisant intervenir les  $P_j^i$  conduit à la relation 5.11.

$$BR = \frac{\tau_{disparition}^{Th^{232}} \cdot P_{U^{233}}^{Th^{232}}}{\tau_{disparition}^{U^{233}}} \quad (5.11)$$

Nous pouvons donc relier le taux de formation des différents éléments à partir du Th-232 et de l'U-233 en faisant intervenir  $BR$  comme dans l'équation 5.12.

$$\tau_{production}^j = \tau_{disparition}^{U^{233}} \cdot P_j^{U^{233}} = \frac{\tau_{disparition}^{Th^{232}} \cdot P_{U^{233}}^{Th^{232}}}{BR} \cdot P_j^{U^{233}} \quad (5.12)$$

C'est cette dernière formule qui permet d'expliquer les disparités dans le tableau 5.9. Notons que le produit  $P_{U^{233}}^{Th^{232}} P_j^{U^{233}}$  n'est pas égal à la quantité  $P_j^{U^{233}}$ . Cette différence s'explique par le fait qu'il peut exister des chemins de formation de  $j$  à partir du Th-232 qui ne passe pas par l'U-233. Si on veut être complet, il faut alors exprimer le taux de production de  $j$  comme 5.13.

$$\tau_{production}^j = \tau_{disparition}^{U^{233}} \cdot P_j^{U^{233}} + (\tau_{disparition}^{Th^{232}} - \tau_{disparition}^{U^{233}}) \cdot P_j^{Th^{232}} \quad (5.13)$$

L'application numérique est résumée pour les noyaux lourds dans le tableau 5.10.

Élément	Production calculée	Résultat de la simulation
U-234	1,5	1,6
U-235	1,2	1,3
U-236	0,31	0,32
Np-237	0,27	0,28
Np-238	0,24	0,25
Pu-238	0,24	0,25
Pu-239	0,12	0,13
Pu-240	$4,2 \cdot 10^{-2}$	$4,2 \cdot 10^{-2}$
Pu-241	$3,1 \cdot 10^{-2}$	$3,1 \cdot 10^{-2}$

TABLE 5.10: Calcul des taux de production (en mol/j) de différents éléments comparé à la simulation

La correction du taux de régénération donne des résultats plus cohérents avec la simulation que précédemment et nous pouvons alors essayer de trouver les influences d'une variation sur le retraitement des noyaux lourds.

### 5.2.3 Cas de l'extraction de l'américium

Nous avons supposé dans le chapitre précédent que l'américium n'était pas extrait et suivait donc le flux global des actinides. Nous cherchons ici à quantifier les effets que peuvent provoquer son extraction du sel combustible, et nous comparons les résultats avec une simulation où les noyaux d'américium seraient extraits comme les lanthanides, soit en les 450 jours.

#### 5.2.3.1 Flux de matière

##### Lien avec la simulation

Le flux d'américium en sortie du concept peut être facilement évalué : en effet, la probabilité  $p_{Am}^{extraction}$  de disparition de l'américium 241 par extraction chimique peut s'exprimer comme 5.14 ( $N_{Am}$  représente le nombre d'atomes par unité de volume des américiums et  $\sigma_{abs}^{Am}$  la section efficace d'absorption totale)

$$p_{Am}^{extraction} = \frac{\lambda_{extraction}^{Am} N_{Am}}{(\langle \sigma_{abs}^{Am} \phi \rangle + \lambda + \lambda_{extraction}^{Am}) N_{Am}} \quad (5.14)$$

$\lambda_{Am}^{extraction}$  représentant la constante caractéristique de l'extraction, et puisque nous considérons que l'américium est extrait en 450 jours, nous avons  $\lambda_{Am}^{extraction} = \frac{1}{450}$ . L'application numérique indique que lorsque l'on extrait l'américium en 450 jours, la probabilité de disparition par extraction de l'Am 241 est de 82%.

De plus, comme chaque disparition d'uranium 233 conduit à la formation de  $3,86 \cdot 10^{-4}$  noyau d'Am-241, le flux d'extraction de l'américium 241 doit être de  $0,82 \cdot 3,86 \cdot 10^{-4}$  par disparition d'uranium 233. Le flux d'Am 241 sortant peut être exprimé comme  $N_{Am^{241}}^{sortant}$  calculé comme le produit de la probabilité de former l'Am-241 à partir d'une disparition d'U-233 par la probabilité de disparition par extraction de l'Am-241 et par le taux de disparition de l'U-233 ( $\tau_{disparition}^{U^{233}}$ ) (5.15).

$$N_{Am^{241}}^{sortant} = \tau_{disparition}^{U^{233}} P_{Am^{241}}^{U^{233}} \cdot p_{Am^{241}}^{extraction} \quad (5.15)$$

Par conséquent, le flux d'américium sortant du système (si celui-ci est extrait comme les lanthanides) devrait être de  $4,12 \cdot 10^{-3}$  mol/j. Nous avons effectué une simulation pour vérifier si ce flux d'américium était cohérent, et les résultats numériques donnent un flux de sortie d'américium 241 de  $4,12 \cdot 10^{-3}$ , ce qui est très satisfaisant, la précision de la simulation ne permettant pas de déceler une différence. La cohérence de ces résultats n'est finalement pas si surprenante puisque les valeurs de flux et de sections efficaces utilisées pour calculer la matrice des probabilités sont celles tirées de la simulation du cas général. L'hypothèse affirmant que le flux (et donc les valeurs de sections efficaces moyennes) ne varie pas en fonction du retraitement de l'américium est vérifiée.

#### Cas des descendants de l'Am-241

Du point de vue de la production des descendants de l'Am-241, il faut comparer les probabilités de formation dans le cas où les isotopes de l'américium seraient extraits et dans le cas où ils ne le seraient pas. Le rapport entre les deux nous indique alors

Elément	Probabilité de formation (américiums non extrait)	Probabilité de formation (américiums extrait)
Am-241	$3,86.10^{-4}$	$3,86.10^{-4}$
Am-243	$3,13.10^{-4}$	$2,74.10^{-4}$
Cm-242	$2,92.10^{-4}$	$5,26.10^{-5}$
Cm-244	$2,47.10^{-4}$	$3,96.10^{-5}$
Cm-245	$1,41.10^{-4}$	$2,27.10^{-5}$

TABLE 5.11: Comparaison des probabilités d'apparitions suivant la gestion de l'américium, normalisé à une disparition d'U-233

combien nous pouvons gagner sur la formation de ces éléments et donc sur la gestion des déchets. Notons que, puisque la chimie du retraitement ne permet pas d'effectuer une séparation isotopique, tous les américiums sont gérés de la même manière.

Les probabilités de formation sont présentés dans le tableau 5.11

Ce tableau nous montre que nous pouvons perdre un facteur 5 sur la production des curiums. Le taux de formation de l'Am-243 ne devrait pas être sensiblement affecté. En effet, la chaîne d'événement qui conduit à l'Am-243 ne passe pas par l'Am-241 mais par le Pu-243 et sa chaîne de production n'est donc pas coupée. Par contre, comme tous les américiums, l'Am-243 est extrait avec un temps caractéristique de 450 jours et il disparaîtra à 84% par extraction chimique (82,1% pour l'Am-241, ~0% pour l'Am-242 et 67% pour l'Am-242m). La production des fils des américiums devrait être beaucoup plus faible que dans le cas où nous cherchons à les incinérer.

Notons que ce gain sur la production de noyaux lourds est monotone décroissant avec le temps de retraitement puisque le terme lié à l'extraction chimique devient prépondérant dans l'expression du taux de disparition de l'expression 5.1. Par conséquent, la probabilité de former ces éléments en coeur tend vers 0 quand le temps de retraitement devient court. Ce dernier point est à mettre en opposition avec le principal atout du procédé de retraitement du MSFR qui est la faiblesse des débits de matière à gérer.

### 5.2.3.2 Bilan sur la gestion des déchets

Dans le cas où l'américium est retraité, nous avons vu que la production des curiums est plus faible. Le flux de déchet des américiums peut être estimé correctement grâce au modèle développé ci-dessus. Les calculs de flux sortant pour les américiums sont résumés dans le tableau 5.12.

Elément	Flux sortant
Am-241	$4,13.10^{-3}$
Am-242m	$6,44.10^{-5}$
Am-243	$3,40.10^{-3}$
Total Am	$8,23.10^{-3}$

TABLE 5.12: Flux sortant (en mol/j) d'américium dans le cas où l'américium est extrait

Le fait de ne pas extraire l'américium provoque donc un flux de 730 g d'américium par an. Il faut comparer cette quantité à celle en coeur dans le cas nominal qui est

Propriété	Extraction des américiums	Incinération des américiums
Flux sortant d'Am	730 g/an	13 mg/an
Quantité d'Am en coeur	890 g	6 kg

TABLE 5.13: Comparaison des deux stratégies de gestion des américiums

de 6 kg pour les américiums. L'extraction des américiums aura donc produit plus d'américiums au total au bout de 8,22 ans de fonctionnement.

Notons tous de même que notre raisonnement fondé sur les  $P_j^i$  n'est valide que lorsque l'on est dans un état stationnaire pour l'ensemble des actinides. Cet équilibre, en ce qui concerne les américiums, n'est atteint qu'au bout de 140 ans environ.

Nous avons effectué une simulation sur une centaine d'années pour avoir un ordre d'idée de la quantité d'américiums qui se retrouve aux déchets lorsque celui-ci n'est pas extrait. Pendant 150 ans de fonctionnement (soit 1970 TWh électrique produit), le système a rejeté environ 203 moles d'américium soit 50 kg. A titre de comparaison, les REP classiques (type N4) produisent environ 1,7kg d'américium par TWh électrique [Sa-95] (soit 3350 kg pour 1970 TWh électrique).

La comparaison est résumée dans le tableau 5.13.

Comme prévu, le flux de déchets est beaucoup plus important si on extrait l'américium du système. Si l'électrochimie le permet, recycler l'ensemble des actinides mineurs réduit grandement la production de déchets. Par contre, si le procédé ne permet pas d'extraire simplement les américiums, il n'est peut être pas nécessaire de concevoir une étape spécifique dans l'unité de retraitement au vu de la faible production d'américiums par énergie produite.

## 5.2.4 Extraction du protactinium

### 5.2.4.1 Régénération

Au début de l'histoire du concept des réacteurs à sels fondus, l'extraction du protactinium était nécessaire pour garder le réacteur régénérateur. Aujourd'hui, ce n'est plus une nécessité du fait du spectre rapide. La section efficace de capture est si faible en comparaison avec la décroissance que son taux de capture devient négligeable ( $\sigma_{absorption}^{Pa} \phi \ll \lambda$ ). Pour s'en convaincre, nous pouvons calculer la probabilité de disparition du Pa-233 par capture neutronique dans le cas nominal, c'est-à-dire dans le cas où l'ensemble du coeur est retraité en 450 jours et où les pertes au retraitement sont de 0,1% (le Pa est alors extrait en 450 000 jours). Cette probabilité  $p_{Pa}^{absorption}$  peut s'écrire comme 5.16 où  $\tau_{disparition}^{Pa}$  représente le taux de disparition total du Pa.

$$p_{Pa}^{absorption} = \frac{\langle \sigma_{abs} \phi \rangle N_{Pa}}{\tau_{disparition}^{Pa}} \quad (5.16)$$

L'application numérique de cette probabilité nous donne une valeur de 1,3%. Extraire le Pa très rapidement comme c'était préconisé dans le MSBR, n'augmenterait donc pas la régénération de manière significative dans ce cas puisque que l'on ne peut gagner au mieux que 1,3% des disparitions du Pa-233.



Dans le cas de référence, l'extraction du protactinium est délicate et demande certaines opérations supplémentaires. Cependant, certains travaux russes récents [Ig-10] affirment que le protactinium pourrait être extrait par fluoration. Dans ce cas, nous pouvons imaginer de séparer le protactinium des résidus de la fluoration pour améliorer les propriétés du MSFR. Le temps caractéristique d'extraction du protactinium serait alors de 450 jours, et nous regardons ici l'effet que pourrait avoir sa non-réinjection dans le coeur. Le Pa-233 décroît alors en quelques mois et il ne reste alors plus que du Pa-231 après refroidissement dans l'unité de retraitement.

Nous avons déjà vu que l'effet sur la régénération devrait être très faible. En effet, la même application numérique de 5.16 avec un temps caractéristique d'extraction de 450 jours pour le protactinium donne une probabilité de disparition par absorption de 1,2%, ce qui n'est pas suffisamment différent de la valeur dans le cas de référence pour mesurer un effet sur la régénération.

#### 5.2.4.2 Formation d'uranium 232

Par contre, l'extraction du protactinium en 450 jours pourrait être favorable pour la production d'uranium-232. Cet isotope qui a 68,9 ans de période contient, dans sa chaîne de décroissance, un émetteur gamma de 2,6MeV : le thallium 208. L'uranium 232 est aujourd'hui un élément dimensionnant pour la radioprotection des installations du cycle du combustible. La voie majoritaire pour former cet isotope est la capture neutronique du Pa-231. Nous pouvons imaginer couper cette chaîne de formation par extraction du Pa, en le laissant à l'extérieur du coeur une fois fluoré.

Dans le cas nominal, la probabilité de former un atome d'U-232 normalisé à une disparition de Pa-231 est de 96,6%. Par contre, si on extrait le Pa-231 en 450 jours par fluoration comme nous l'avons expliqué précédemment, cette probabilité descend à 25%. Pour connaître l'effet sur la formation de l'U-232, il faut pondérer ces probabilités par le taux de formation du Pa-231. Nous avons vérifié que la probabilité de formation du Pa-231 normalisée à une disparition de Th-232 ne varie pas en fonction de la gestion du protactinium dans l'unité de retraitement et vaut  $2,74 \cdot 10^{-3}$ . En ne considérant que l'effet de l'extraction du protactinium, nous pouvons donc exprimer le gain absolu sur la production d'U-232  $\Delta \tau_{disparition}^{Th^{232}}$  comme 5.17.

$$\Delta \tau_{production}^{U^{232}} = \tau_{disparition}^{Th^{232}} \cdot P_{Pa^{231}}^{Th^{232}} \cdot \left( \Delta P_{U^{232}}^{Pa^{231}} \right) \quad (5.17)$$

où l'on rappelle que  $P_j^i$  représente la probabilité de former  $j$  par disparition de  $i$  à l'équilibre.  $\Delta P_{U^{232}}^{Pa^{231}}$  représente la différence des probabilités de former U-232 par disparition de Pa-231 entre le cas où le temps caractéristique d'extraction du protactinium serait de  $450 \cdot 10^3$  jours (cas nominal) et le cas où ce temps vaudrait 450 jours. Puisque le taux de disparition total du Th-232 est de 13,8 mol/j, le gain sur la formation d'uranium 232 serait donc de  $2,72 \cdot 10^{-2}$  mol/j, sachant que la production totale d'U-232 dans le cas nominal est de  $3,82 \cdot 10^{-2}$  mol/j. il reste donc près de 29% de la production d'uranium 232, et donc près de 29% sur la quantité d'U-232 à l'équilibre dans le sel combustible (la réduction est de 71%).

Nous résumons les différents taux de formation dans le tableau 5.13

Propriétés	Extraction du Pa	Cas nominal
Probabilité de capture du Pa-233	1,2%	1,3%
Probabilité de former U-232 par disparition de Pa-231	25%	96,6%
Probabilité de former Pa-231 par disparition de Th-232	0,27%	0,27%
Formation d'U-232 (mol/j)	$1,10 \cdot 10^{-2}$	$3,82 \cdot 10^{-2}$

TABLE 5.14: Comparaison des propriétés suivant la gestion du protactinium

Si l'on envisage de retraiter en un temps deux fois plus rapide (225 jours) et sortir le Pa par fluoration, alors la probabilité de former un noyau d'U-232 par disparition de Pa-231 tombe à 14,4% et le gain sur la formation de l'U-232 devient de 81,4%, et par conséquent la quantité en coeur diminue d'autant.

Il est aussi possible de produire de l'U-232 par réaction (n,2n) sur l'U-233, mais il n'y a aucun moyen de réduire cette voie de formation qui produit environ 2 mmol/j d'U-232. L'un des modes de formation principaux de l'U-232 dans les REP actuels est la décroissance du plutonium 236. Le Pu-236 étant formé majoritairement par réaction (n,3n) sur le Pu-238 nous n'avons pu quantifier les effets d'extraction des plutoniums sur la production d'U-232 comme ces réactions ne sont pas prise en compte dans notre modèle.

### 5.2.4.3 Flux de Pa-231

Comme on s'y attendait, l'effet de l'extraction du Pa est complètement négligeable d'un point de vue de la régénération. Par contre, du point de vue de la production d'uranium 232, l'effet peut être positif. Si, pour le dimensionnement des installations, il faut minimiser la production d'U-232, il peut être intéressant de ne pas réinjecter le Pa-231 dans le coeur. Il semble raisonnable de penser que le gain ne mérite pas une véritable installation pour extraire le Pa du sel combustible, mais si, comme les travaux russes semblent l'affirmer, le Pa est extrait par fluoration, il pourrait être judicieux de ne pas le réinjecter. Un temps d'attente de quelques mois permettrait alors de récupérer l'uranium 233 produit par décroissance du Pa, et le Pa-231 pourrait sortir aux déchets. Le gain sur la production d'U-232 permettrait alors d'alléger les installations de radioprotection, sans toutefois compromettre la résistance à la prolifération puisque la quantité d'U-232 reste du même ordre de grandeur, même si nous pouvons gagner 71% sur sa production.

Le flux de Pa-233 dans l'unité de retraitement est de 1,13 moles par jour. En supposant que le temps de refroidissement du Pa soit d'un an, on a alors près de 96 kg de matière valorisable (Pa-233 et U-233) à l'extérieur du coeur. Cette quantité est largement supérieur à la masse critique, et cette option est alors très proliférante. Le taux de production du Pa-231 est de  $3,78 \cdot 10^{-2}$  mole par jour. Comme à l'équilibre, le taux de production est égal au taux de disparition et que la probabilité de disparition par extraction est de 74,1% dans le cas où l'on extrait le Pa en 450 jours, le flux de sortie du Pa-231 dans ce cas est de  $2,8 \cdot 10^{-2}$  mole par jour soit 2,36 kg par an. Ce chiffre peut paraître considérable devant le flux de Pa-231 dans le cas nominal : celui-ci n'est que de 10 grammes par an (la quantité en coeur, dans l'état stationnaire et dans le cas nominal est de 50 moles environ, ce qui représente 11,55 kg). En 5 ans, on a alors rejeté

l'équivalent de l'inventaire en coeur. Notons enfin que le Pa-231 possède 32760 ans de période ce qui fait de cet élément un des isotopes responsables du dimensionnement du site de stockage des combustibles à cycle thorium. Le gain sur la production d'uranium 232 semble faible au vu de ce que l'on perd du point de vue de la gestion des déchets à vie longue et de la résistance à la prolifération. Nous préconisons donc d'incinérer l'ensemble du protactinium même si celui-ci est extrait par fluoration : en effet, les complexifications qui découlent de sa gestion semblent trop contraignantes pour un gain de régénération quasiment nul et un gain sur la production d'U-232 de 71%.

Le flux de déchet à l'extérieur du coeur est important dans le cas où les protactiniums sont extraits car il est relativement facile d'incinérer le Pa-231. En effet, l'uranium 232 est un noyau que l'on pourrait qualifier de fissile et de fertile puisque sa section efficace de capture est égale à sa section efficace de fission. Les probabilités de disparition par fission et par capture de cet isotope sont identiques et proches de 0,5. Une capture neutronique sur l'U-232 conduit à la formation d'un U-233 qui disparaît majoritairement par fission.

### 5.3 Conclusion sur la sensibilité du réacteur à l'unité de retraitement

Dans ce chapitre nous avons étudié la façon dont le concept du MSFR réagit à certaines perturbations de l'unité de retraitement. Nous avons déjà vu dans le chapitre 3 qu'un arrêt du retraitement temporaire ne perturbait pas le fonctionnement tant que le contrôle électrochimique du sel est maintenu (soit une fluoration du sel en moins de 2000 jours environ). Dans ce chapitre, nous avons identifié certains éléments comme problématiques du point de vue de l'unité de retraitement comme les alcalins et alcalino-terreux ou le zirconium.

En ce qui concerne les alcalins et alcalino-terreux, nous avons vu dans le chapitre 3 qu'il n'était pas nécessaire d'extraire ces éléments pendant le fonctionnement du réacteur. L'accumulation, dans le cas nominal, conduit à la formation de 3% de baryum dans le sel en 200 ans, ce qui ne change pas les propriétés physico-chimiques du sel. Comme, parmi ces éléments, on trouve le Cs-137 et le Sr-90, nous avons essayé de quantifier l'effet d'une incinération sous flux neutronique de ces éléments. L'étude montre clairement que l'effet est nul sur la formation de ces produits de fission responsables de la radiotoxicité à moyen terme des déchets du MSFR. L'incinération ne perturbe pas non plus le fonctionnement du réacteur tant que l'ajout de baryum ne perturbe pas trop les propriétés du sel.

Les produits de fission qui pourraient être incinérés sous flux de neutrons rapides sont l'iode et le tchénetium qui possèdent des durées de vie très longues. Nous avons prouvé que l'incinération de l'iode est possible, ainsi que celle du tchénetium. Cependant, ce dernier élément étant métallique, il est délicat d'envisager de le renvoyer en coeur après son extraction.

Nous avons, dans le chapitre 3, montré que le zirconium ne pourrait être extrait par le bullage, ni par dégazage. Nous avons proposé, dans ce même chapitre, une opération qui permettrait d'extraire la production journalière de zirconium, qui consiste en la

formation d'un composé défini dans la nappe de bismuth. Il est toutefois possible que cette opération ne soit pas possible. Nous avons alors étudié, dans ce chapitre, l'effet que pourrait avoir son accumulation dans le sel combustible. Il apparaît que la question du zirconium est une question prépondérante qu'il faut résoudre puisque son accumulation n'est pas envisageable. Un contact rapide entre le sel combustible et une nappe de bismuth (sans aller à l'équilibre thermodynamique) permettrait peut-être d'extraire une bonne partie du zirconium. Ce point reste toutefois à être vérifié par une expérimentation.

Concernant le retraitement des noyaux lourds, la gestion des actinides mineurs peut sembler trop lourde dans le cas nominal (incinération des tous les actinides). Nous avons donc regardé et quantifié l'effet de l'extraction de l'américium en terme de taux de régénération, et de flux de déchets. Pour cela, nous avons développé un formalisme fondé sur les propriétés d'apparition et de disparition des noyaux lourds pour ne pas avoir à faire autant de simulation que de cas perturbatifs. La concordance entre les simulations numériques et notre formalisme est très satisfaisante et nous avons étudié le cas de l'américium et du protactinium comme deux exemples particuliers.

L'extraction des américiums provoque, comme prévu, un flux de déchets quantitatif, mais nous ne préconisons pas de développer certaines étapes supplémentaires pour assurer son incinération.

A l'aide de ce nouveau formalisme, nous avons étudié l'effet de l'extraction du protactinium puisque son comportement vis à vis de la fluoration reste incertain à l'heure actuelle.

L'extraction des protactiniums pouvait avoir un effet sur la régénération et sur la formation d'U-232, élément responsable de la radioprotection dans l'unité de retraitement. Cette option n'a, à posteriori, aucun effet sur la régénération et apporte un gain de 70% sur la formation d'U-232. Par contre les flux de Pa-231 induits par l'extraction des protactiniums est rédhibitoire pour envisager cette option. En effet, le Pa-231 est assez facile à incinérer, et il serait préjudiciable de ne pas profiter de cette caractéristique de ce noyau.

# Conclusion

L'énergie nucléaire actuelle, produite dans les réacteurs à eau pressurisée, offre beaucoup d'avantages : elle est relativement bon marché, sa production est sûre et elle est établie au niveau industriel. Il reste toutefois un certain nombre de points à améliorer comme l'optimisation des ressources et la diminution de l'emprise des futurs sites de stockage des déchets. Ces améliorations nécessitent un saut technologique fort (passage à la quatrième génération de réacteur) et il paraît raisonnable de développer des systèmes innovants qui apporteront de réelles avancées par rapport à la situation actuelle.

Parmi ces réacteurs, il y a le concept de réacteur à sels fondus, inventé par l'ORNL dans les années 50 et repris depuis sous de nombreuses déclinaisons. Les coeurs à fluorures fondus semblent particulièrement adaptés au cycle thorium du point de vue de la physico-chimie des sels. Parmi ces réacteurs, on trouve le MSFR : réacteur à sels fondus sans modérateur en coeur, développé par le groupe de physique des réacteurs du LPSC à Grenoble. Ce concept est né d'une réévaluation du projet de l'ORNL. Il bénéficie donc de toutes les études effectuées pendant les années 50 à 70.

Le retraitement de ce réacteur est effectué sur site, pendant le fonctionnement. L'idée est de profiter de l'état liquide du combustible pour en extraire une petite fraction chaque jour et de le retraiter. Comme la stratégie française a choisi de travailler massivement sur les procédés de retraitement dit "aqueux", la principale source de données et de retours d'expérience accessible reste, même à l'heure actuelle, les rapports de l'ORNL. Le procédé de retraitement du MSFR est donc fondé sur un procédé similaire à celui imaginé dans les années 70, avec toutefois une différence majeure. Le débit de retraitement (énorme dans le cas du projet américain) est désormais faible : 40 litres de sel à retraiter chaque jour.

L'objet de ce travail de thèse a été d'étudier ce procédé de retraitement, et d'effectuer un couplage entre la chimie et la neutronique du coeur dans les études systèmes, pour en trouver les propriétés principales. Pour cela, il a fallu étudier chaque étape de l'unité de retraitement, trouver les données thermodynamiques qui permettent de quantifier les procédés et effectuer les modifications nécessaires dans le procédé. L'unité de bullage est, par exemple, profondément modifiée par rapport au système envisagé par l'ORNL. En effet, nous avons découpé ce système en deux étages : un premier situé dans la cuve du réacteur, et un second, constitué de bouteilles et éventuellement d'une séparation cryogénique à l'extérieur. L'étude de l'unité pyrochimique a révélé, quant à elle, un certain nombre de questions que nous avons pu lever par la suite. La problématique des alcalins et des alcalino-terreux, par exemple, n'est désormais plus rédhibitoire pour le fonctionnement du concept : le spectre neutronique rapide permet à

ces éléments de rester en coeur. Il est donc inutile de développer une étape particulière pour ces éléments. L'étude a aussi montré que l'extraction du zirconium était indispensable et que son accumulation nuirait considérablement aux bonnes caractéristiques du concept.

Les conclusions sur les propriétés de chacune des parties de l'unité de retraitement sont présentées dans le chapitre 3 de ce manuscrit. Préalablement, nous avons identifié les besoins en retraitement global et montré que le temps maximum acceptable pour retraiter l'ensemble du coeur était de 2000 jours, soit plus de 4 fois moins que le retraitement nominal. La limite vient du contrôle du potentiel redox du sel, imposé par l'uranium. Cette limite n'est pas strictement une limite pour le retraitement, et nous pouvons imaginer une fluoration du sel combustible en 2000 jours et une extraction des produits de fission en un temps plus long. En effet, les limites dues à des considérations neutroniques identifiées sont de l'ordre de 10000 jours.

La réalisation du couplage entre la physique du coeur du réacteur et celle du retraitement a nécessité un certain nombre de développements dans le code de simulation utilisé au LPSC. Ces développements, présentés dans le chapitre 2, permettent une grande marge de manoeuvre pour l'utilisateur, autant du point de vue de la description de la géométrie que du point de vue de la gestion des contraintes et des paramètres du système. Il est en effet possible, aujourd'hui, de simuler presque n'importe quelle géométrie de coeur, associée à n'importe quelle unité de retraitement. Les processus de compétition entre les décroissances nucléaires et la cinétique de l'extraction chimique sont pris en compte en associant artificiellement une constante de disparition, homogène à l'inverse d'un temps, à chaque étape élémentaire du retraitement chimique. L'unité de retraitement est alors découpée en zones caractérisées par des temps de séjour. La taille des matrices des équations de Bateman est alors multipliée par le nombre de zones élémentaires estimées, ce qui a pour conséquence d'augmenter le temps de calcul. Ce temps de calcul augmente aussi, et surtout à cause du raccourcissement des temps caractéristiques mis en jeu. En effet, le nombre de pas pour l'intégration augmente considérablement lorsque nous souhaitons suivre des processus qui sont court devant le temps total de l'évolution.

Malgré cet inconvénient, cet artifice pour la résolution permet de connaître, à chaque instant et dans chaque zone, le vecteur isotopique concerné.

A partir de ces vecteurs isotopiques, nous avons calculé, dans le chapitre 4, l'ensemble des grandeurs pertinentes pour un prédimensionnement de l'unité de retraitement. Les grandeurs choisies sont :

- l'inventaire,
- l'irradiation gamma,
- la puissance résiduelle,
- l'irradiation neutron,
- et la radiotoxicité quantifiée par le débit d'équivalent de dose

Le calcul de chacune de ces grandeurs montrent que le dimensionnement des installations de radioprotection ou de refroidissement n'est pas rédhibitoire pour le développement du concept. Nous citerons tout de même le risque de criticité non-négligeable en ce qui concerne l'inventaire en sortie de fluoration. En effet, le vecteur isotopique contient es-

sentiellement de l'uranium, du neptunium et du plutonium.

L'étude du dimensionnement a été effectuée dans le cas du retraitement nominal. Les grandeurs qui permettent d'établir ce procédé ne bénéficient pas toutes d'une grande confiance. Nous pensons notamment à l'américium dont le comportement est plus qu'incertain. Parmi les produits de fission, le comportement de l'iode n'est pas forcément bien établi. Puisque les données ne seront pas accessibles tout de suite, nous avons choisi d'étudier la sensibilité du réacteur aux incertitudes du retraitement. Pour cela, nous avons regardé les possibilités d'incinération des produits de fission d'une part et l'extraction de certains actinides d'autre part.

Concernant les produits de fission, l'étude montre que l'incinération de l'iode est possible, ainsi que celle du tchénetium. Ce dernier étant métallique, il paraît difficile de mettre cette possibilité en oeuvre. Par contre, si l'extraction de l'iode du reste des produits de fission est aisée, il serait dommage de ne pas en tirer profit et de l'incinérer - ce qui ne perturberait pas la neutronique du coeur. L'incinération des alcalins et des alcalino-terreux est possible, mais son efficacité est nulle. Nous avons montré aussi que l'extraction du zirconium restait une question fondamentale : l'introduction de 10% de zirconium dans le sel combustible, en gardant la proportion de noyaux lourds constante, dégrade considérablement les bonnes propriétés du MSFR. Il est donc nécessaire de réaliser les expériences qui permettront de valider, ou non, les procédés d'extraction du zirconium.

Du point de vue des actinides, nous avons cherché à quantifier les effets de perturbations sur leur extraction. Pour ne pas avoir à refaire une simulation pour chaque cas, nous avons choisi d'utiliser une méthode originale fondée sur les probabilités d'apparition des différents noyaux, normalisées aux disparitions des noyaux principaux (Th-232 et U-233). Nous avons vérifié le bien-fondé de cette méthode avec le cas de l'extraction de l'américium. Il ressort de l'étude que si celui-ci est extrait par la pyrochimie, les flux de matière seront plus importants puisque 10 ans de fonctionnement avec rejet environ produisent autant d'américiums qu'il n'y en a dans le sel combustible à l'équilibre dans le cas nominal. Les flux en question sont toutefois suffisamment faibles pour ne pas développer une étape spécifique à l'américium si celui-ci venait à être extrait avec les lanthanides.

Nous avons aussi appliqué notre modèle à l'extraction hypothétique du protactinium. En effet, son comportement lors de la fluoration n'est pas certain au dire de certains scientifiques russes. Les influences de l'extraction du Pa sont très faibles en terme de gain sur le taux de régénération. En effet, à cause du spectre rapide, la probabilité que le Pa-233 disparaisse par capture est déjà très faible lorsque celui-ci est laissé en coeur. Par contre, l'effet serait bénéfique sur la production d'uranium 232, et donc sur les installations de radio-protection. Cependant, les flux de matière qu'entraînerait l'extraction du Pa-231 sont tels qu'il semble préférable de le laisser en coeur et de faire l'effort sur les installations de protection.

L'ensemble du concept semble donc être très robuste. En effet, les éléments délicats (voire impossible) à extraire semblent ne pas avoir d'importance du point de vue de la neutronique. Les débits semblent être suffisamment faibles pour que la radioprotection ne soit pas non plus un point crucial. Seule la question de l'extraction du zirconium reste

aujourd'hui non-résolue, mais néanmoins fondamentale.

Une étude complète de la radioprotection de chaque installation de l'unité de retraitement n'est pas envisageable aujourd'hui : il manque trop de données sur le design du coeur et de chaque étape du retraitement. Nous insistons aussi sur l'importance des données physico-chimiques (et notamment les données de thermodynamiques) pour valider la pertinence d'une étude plus précise sur l'unité de retraitement. Les données expérimentales semblent être indispensables pour développer les outils nécessaires à l'estimation des efficacités d'extraction de différentes étapes. On retiendra particulièrement les points suivants :

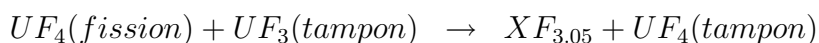
- L'équilibre de l'américium dans les opérations d'extraction réductrice.
- Le comportement du protactinium vis à vis de la fluoration.
- La solubilité de l'iode dans le sel combustible.
- Le comportement de l'iode vis à vis de la fluoration.
- L'oxydation du zirconium et de celle des actinides.
- La comparaison de la cinétique de réduction du zirconium vis à vis de celle des actinides.
- Les mesures de solubilités des gaz et des métaux dans le sel combustible.
- Et d'une manière générale les données physicochimiques des sels (densité, viscosité, conductivité thermique etc...)



# Annexe A : Décollage du potentiel

D'après les calculs pour un atome de U fissionné on récolte environ deux atomes de PF avec une valence moyenne de 3.05.

Comme il existe un tampon formé par le couple  $U^{3+}/U^{4+}$  la fission s'accompagne de la transformation du degré d'oxydation moyen de l'uranium afin de conserver la neutralité électrique du sel (le fluor n'ayant que 0 et -1 comme valences possibles). On peut symboliser cette conservation en écrivant la transformation de la manière suivante :



Pour faire un bilan plus précis, si le sel contient une fraction  $c$  de son U sous forme  $3+$  ( $1-c$  sous forme  $4+$ ) une fission fera disparaître  $c$   $U^{3+}$  et  $(1-c)U^{4+}$  pour donner  $X^{3.05+}$  soit un bilan :

$$-3c - (1-c)4 + 3.05 = c - 0.95 (< 0)$$

Le bilan sera neutre si on transforme  $(0.95-c) U^{3+}$  en  $U^{4+}$ . Si cette transformation ne fait pas changer significativement la proportion des  $U^{3+}$  et  $4+$  alors il n'y aura pas de variation de potentiel chimique. La fission conduit ainsi à une oxydation de  $U^{3+}$ , ou de tout autre élément susceptible d'être oxydé (le Cr des métaux de structure peut aussi l'être en formant  $Cr^{3+}$ ). Autrement dit la fission de U rend le potentiel chimique du bain plus oxydant.

En démarrant avec Pu seul (en première approximation) et si la fission d'un Pu conduit à des PF de valence moyenne 3.05 (comme pour U) le bilan de valence devient :

$$-3 + 3.05 = +0.05$$

Ce bilan de valence de fission est cette fois positif c'est-à-dire que contrairement à la fission de U son résultat devrait être une réduction d'espèces chimiques dans le bain : passage de  $3+$  à  $2+$  (Sm par ex),  $4+$  à  $2+$  (Zr) ou  $Cr^{3+}$  à Cr métal pur (dépôt de Cr). Par contre cet effet est environ 20 fois plus faible qu'avec l'U. Autrement dit la capacité du tampon qui maintiendra le potentiel chimique dans des fourchettes tolérables pourra être vingt fois plus faible. Ainsi on peut conserver l'idée que le tampon U sera toujours présent.

Dans l'état d'équilibre, il y a 327 moles d'uranium  $3+$  et 32420 moles d'uranium  $4+$ .

Après une journée de fonctionnement, 16,2 moles d'uranium total ont disparu, ce qui donne 343 moles d'uranium 3+ et 32386 moles d'uranium 4+

En appliquant la loi de Nernst à l'état d'équilibre et à l'état perturbé, on arrive à l'équation suivante qui quantifie le décalage du potentiel redox du à la fission  $\Delta E$  :

$$\Delta E = \frac{RT}{nF} \cdot \Delta \ln \left( \frac{[U^{3+}]}{[U^{4+}]} \right)$$

où  $\Delta \ln \left( \frac{[U^{3+}]}{[U^{4+}]} \right)$  représente la différence des états final - initial.

Comme la température moyenne du coeur est de 750°C, l'application numérique donne un décalage de 4,3 mV par jour environ.

# Table des figures

1.1	Evolution de la production mondiale d'énergie . . . . .	10
1.2	Nombre de neutrons disponibles en cycle thorium et en cycle uranium .	12
1.3	Extrait de la charte des isotopes . . . . .	13
1.4	Comparaison des radiotoxicités des produits de fission de l'U-233 et du Pu-239 . . . . .	14
1.5	Comparaison des chaleurs résiduelles des produits de fission de l'U-233 et du Pu-239 . . . . .	15
1.6	Représentation du MSRE . . . . .	18
1.7	Schéma de principe du MSBR . . . . .	19
1.8	Principales caractéristiques du TMSR en fonction du rapport de modération	21
1.9	Représentation d'un quart de réacteur . . . . .	22
1.10	Evolution de la quantité de noyaux lourds dans le sel combustible au cours de l'évolution, en supposant un démarrage à l'uranium 233 . . . .	24
1.11	Schéma de l'ensemble du retraitement . . . . .	26
2.1	Extrait d'un schéma d'un arbre de décroissance, notons que les décroissances $\alpha$ alimentent la production d'hélium . . . . .	37
2.2	Erreur relative obtenue sur les compositions en actinides en fin d'évolution en suivant 5000 neutrons par cycle pendant 50 cycles actifs . . . . .	44
2.3	Erreur relative obtenue sur les compositions en actinides en fin d'évolution en suivant 10000 neutrons par cycle pendant 100 cycles actifs . . . . .	45
2.4	Rapport des erreurs : erreur statistique du calcul de grande précision sur celle du calcul de précision moindre . . . . .	46
2.5	Schématisation de la séquence d'opérations effectuées par le code d'évolution	48
2.6	Schéma de calcul de l'évolution . . . . .	49
2.7	Comparaison de l'estimateur et de la valeur calculée par MCNP du coefficient de multiplication effectif . . . . .	50
2.8	Schéma de principe du couplage retraitement/neutronique du coeur du réacteur . . . . .	52
2.9	Exemple de gestion d'une étape chimique par le module SUR . . . . .	53
2.10	Exemple de fichier décrivant la géométrie d'un réacteur (ici, une sphère)	55
2.11	Illustration de la priorité des paramètres . . . . .	57
2.12	Représentation schématique des transferts . . . . .	58
3.1	Extrait du diagramme de prédominance, calculé à l'aide de HSC . . . .	63
3.2	Proportion d'éléments de valence 3 dans le sel combustible en fonction du temps de retraitement . . . . .	66

3.3	Evolution de la régénération en fonction du temps de retraitement . . .	67
3.4	Coefficients de température, fonction du temps de retraitement . . . . .	68
3.5	Proportion de neutrons retardés perdue en fonction du temps de bullage	70
3.6	Schéma de fluoration . . . . .	74
3.7	Représentation des coefficients de partage entre une nappe de bismuth liquide enrichi en thorium et un sel fluorure. . . . .	76
3.8	Image de l'extraction des lanthanides grâce à deux échangeurs couplés .	80
3.9	Représentation schématique des échangeurs contre-courant . . . . .	84
3.10	Efficacité d'extraction pour différents éléments en fonction du nombre d'itérations . . . . .	88
3.11	Efficacité en fonction du rapport quantité de métal sur quantité de sel pour les deux extractions réductrices dans le cas nominal (2 itérations pour la courbe de gauche et 20 itérations pour la courbe de droite) . . .	88
3.12	Efficacité en fonction de l'incertitude des coefficients de partage en milieu fluorure . . . . .	89
3.13	Efficacité en fonction de l'incertitude des coefficients de partage en milieu chlorure . . . . .	90
3.14	Evolution des quantités de produits de fission en coeur sans extraction des alcalins et alcalino-terreux . . . . .	91
3.15	Evolution des taux de capture des différents groupes d'éléments . . . . .	92
3.16	Comparaison des densités de $\text{LiF-ThF}_4$ et de $\text{LiF-ThF}_4\text{-BaF}_2$ en fonction de la température . . . . .	95
3.17	Enthalpie en fonction de la température pour les deux sels . . . . .	95
3.18	Diagramme ternaire $\text{LiF-ThF}_4\text{-ZrF}_4$ à $650^\circ\text{C}$ calculé par FactSage . . .	96
3.19	Activité des principales espèces de la phase gazeuse en équilibre avec $\text{LiF-ThF}_4\text{-ZrF}_4$ en fonction de la proportion de zirconium (la proportion de thorium est fixée à 22,5%) à $650^\circ\text{C}$ . . . . .	97
3.20	Activité des principales espèces de la phase gazeuse en équilibre avec $\text{LiF-ThF}_4\text{-ZrF}_4$ en fonction de la proportion de zirconium (la proportion de thorium est fixée à 22,5%) à $800^\circ\text{C}$ . . . . .	98
3.21	Diagramme binaire du mélange Bi-Zr . . . . .	99
3.22	Solubilité de différents éléments dans le bismuth liquide . . . . .	100
3.23	Elements extraits par le bullage . . . . .	102
3.24	Version schématique du séparateur conçu pour FFFER [Gh-10] . . . . .	104
3.25	Dimensionnement du système de bullage en fonction des performances souhaitées . . . . .	111
3.26	schéma du dispositif de bullage . . . . .	112
3.27	Caractéristiques des bouteilles en fonction de l'extraction . . . . .	113
4.1	Dénomination de chaque zone de l'unité de retraitement . . . . .	120
4.2	Evolution de la puissance résiduelle du sel de coeur, pour 40L de sel . .	126
4.3	Représentation des dégagements de chaleur dans l'unité de retraitement pyrochimique . . . . .	128
4.4	Evolution du débit de dose ambiant à proximité de $1\text{ cm}^3$ de sel, chaque origine des temps correspond au temps d'arrivée du sel dans l'étape considérée. . . . .	129

---

4.5	Influence d'un court refroidissement sur l'émission gamma du sel de coeur	129
4.6	Evolution de la chaleur après l'arrêt du système de bullage . . . . .	133
4.7	Chaleur des métaux après extraction de la nappe filtrante . . . . .	134
4.8	Evolution de la chaleur dans une bouteille . . . . .	135
4.9	Evolution du débit de dose ambiant d'une bouteille . . . . .	136
4.10	Evolution de la chaleur dégagée dans le stockage après différents temps de fonctionnement, les courbes pointillées représentent les déchets sous forme oxyde, issus du retraitement pyrochimique et les courbes en trait plein représentent les déchets sous forme métallique, issus du système de bullage. . . . .	138
4.11	Evolution de la radiotoxicité à long terme dans le stockage de différents isotopes. L'origine des temps est située deux cents ans après le début du fonctionnement du réacteur. . . . .	140
4.12	Radiotoxicité des actinides présents dans le sel de coeur à l'équilibre, comparée aux pertes au retraitement et aux produits de fission pour 200 ans de fonctionnement . . . . .	141
5.1	Evolution de la proportion atomique des alcalins et alcalino-terreux, dans le cas où l'on réinjecte les éléments fils des gaz de fission (trait plein) et dans le cas contraire-cas nominal (trait pointillé). . . . .	149



# Liste des tableaux

1.1	Facteurs de dose des principaux actinides (en Sievert par Becquerel) . . .	13
1.2	Composition de l'alliage constituant les réflecteurs axiaux et la structure de la couverture fertile, en mol% [Cu-07] . . . . .	23
1.3	Limites des matériaux de structure du MSFR d'après [Me-09-2] . . . . .	24
1.4	Principales caractéristiques du MSFR . . . . .	25
2.1	Sensibilité du $k_{eff}$ aux principales données nucléaires (%/%) d'après [Ho-10] . . . . .	34
2.2	Estimation des coefficients de sensibilité à la densité avec ERANOS et MCNP . . . . .	36
2.3	Récapitulatif des actinides dont l'incertitude relative est supérieure à 10% . . . . .	46
3.1	Bilan des captures neutroniques par neutron de fission dans le sel de coeur à l'équilibre pour un temps de retraitement de 450 jours . . . . .	63
3.2	Résumé des valeurs de solubilité (en % molaire) du Pu dans LiF-ThF <sub>4</sub> mesurées par Snood et al. au BARC . . . . .	65
3.3	Groupes de neutrons retardés [Ke-65] . . . . .	69
3.4	Précurseurs de neutrons retardés pouvant être extraits par le bullage . . . . .	69
3.5	Valence des différents PF . . . . .	70
3.6	Enthalpie libre de réaction (à 700°C) . . . . .	73
3.7	Comparaison des constantes de réactions avec le lithium ( $K'_X$ ) tirées des données de [Le-92] avec notre calcul . . . . .	78
3.8	Comparaison des constantes de réaction entre une nappe métallique et un sel chlorure avec le lithium comme réducteur . . . . .	78
3.9	Résumé des valences et des $u$ pris en compte dans le programme d'évolution pour calculer les coefficients de partage entre une nappe de bismuth à saturation de thorium et le sel combustible (le terme valence représente une valence relative à celle du thorium) . . . . .	79
3.10	Efficacité de la deuxième extraction réductrices des actinides et des lanthanides . . . . .	83
3.11	Efficacité de transfert des différents éléments . . . . .	87
3.12	Bilan neutronique détaillé de l'absorption des PF du sel coeur à l'équilibre dans le cas nominal (retraitement en 450 jours et temps caractéristique du bullage de 30 secondes) . . . . .	90
3.13	Bilan neutronique après 200 ans d'évolution dans le cas d'une extraction nulle des alcalins et alcalino-terreux. . . . .	92

3.14	Comparaison des densités de deux sels à 22,5% de noyaux lourds pour différentes températures . . . . .	94
3.15	Résumé des données nécessaires pour calculer les coefficients de partage	101
3.16	Enthalpies des réactions bilan de chaque oxydation . . . . .	103
3.17	Solubilités mesurées et solubilités effectives . . . . .	105
3.18	Résumé des taux de production des différents produits de fission gazeux (en mol/j) . . . . .	107
3.19	Estimation des dépôts dans les bouteilles de stockage . . . . .	114
3.20	Taux de production des métaux dans la couverture (sans bullage) . . .	115
4.1	Classification des zones EPR d'après [EPR] . . . . .	123
4.2	Criticité de trois étape clefs du retraitement dans le cas nominal à 1100K	124
4.3	Influence de différents paramètres sur le calcul de criticité du sel combustible . . . . .	125
4.4	Débit d'équivalent de dose à un mètre des inventaires sans et avec protection. Les débits de dose sont exprimés en mSv/h pour un retraitement en 450 jours du coeur (soit 40l de sel) . . . . .	130
4.5	Bilan de matière dans différentes étapes du retraitement . . . . .	131
4.6	Emissions de neutrons (en particules par seconde) du sel combustible .	132
4.7	Chaleur dégagée par les PF pour différents temps de fonctionnement du MSFR, après un an de refroidissement . . . . .	137
4.8	Caractéristiques des déchets produits pendant 1 an de fonctionnement .	139
5.1	Chemins de formation et rendement de fission des isotopes tenant un rôle dans la formation des alcalins . . . . .	147
5.2	Proportion de baryum dans le sel combustible après 50 ans de fonctionnement en fonction du temps caractéristique du bullage . . . . .	148
5.3	Quantités de Cs-137 et de Sr-90 dans le sel combustible et dans le site de stockage suivant la gestion des gaz, après 100 ans d'évolution . . . . .	149
5.4	Caractéristiques des différents isotopes de l'iode . . . . .	150
5.5	Résumé des performances de l'incinération de l'iode . . . . .	150
5.6	Caractéristiques des différents isotopes du Zr présent dans le sel combustible, comparé au lithium 7 . . . . .	151
5.7	Comparaison entre un sel combustible LiF-NLF <sub>4</sub> (22,5%)-ZrF <sub>4</sub> (10%) et le cas nominal . . . . .	153
5.8	Bilan neutronique des différents actinides présents dans le sel combustible . . . . .	157
5.9	Formation de différents isotopes lourds (en mol/j) . . . . .	160
5.10	Calcul des taux de production (en mol/j) de différents éléments comparé à la simulation . . . . .	161
5.11	Comparaison des probabilités d'apparitions suivant la gestion de l'américium, normalisé à une disparition d'U-233 . . . . .	163
5.12	Flux sortant (en mol/j) d'américium dans le cas où l'américium est extrait	163
5.13	Comparaison des deux stratégies de gestion des américiums . . . . .	164
5.14	Comparaison des propriétés suivant la gestion du protactinium . . . . .	166



# Bibliographie

- [Al-09] M. Allibert, “Thermodynamique chimique”, Sels fondus à haute température, ch-2, Presses Polytechniques et Universitaires Romandes (2009)
- [Am-10] M. Ammerich, “Protection contre l’exposition externe”, cours de radioprotection, <http://www.rpcikus.com/documents-techniques/diaporamas-techniques/> (2010)
- [An-04] ANDRA, “Inventaire des déchets radioactifs et des matières valorisables”, Rapport de synthèse ANDRA (2004)
- [An-06] ANDRA, “Inventaire des déchets radioactifs et des matières valorisables”, Rapport de synthèse ANDRA (2006)
- [As-10] M. Ascani, P. Lesage, S. Jezequel, “Traitement du combustible nucléaire - atelier R7 et T7 - Vitrification”, Communiqué Areva-NC (2010)
- [Be-00] V. Berthou, “Le concept TASSE (Thorium ADS with simplified fuel cycle for long term energy production)”, Thèse de doctorat, Université d’Evrety, Val d’Essonne (2000)
- [Bi-05] A. Bidaud, “Analyses de sensibilité et d’incertitude de données nucléaires. Contribution à la validation d’une méthodologie utilisant la théorie des perturbations ; application à un concept innovant : réacteur à sels fondus thorium à spectre épithermique”, Thèse de doctorat, Université Paris XI (2005)
- [Bo-10] H. Boussier, “Réacteur à sels fondus : évaluation du schéma MSBR”, Note technique CEA, DRCP/SCPS/2009/42 (2010)
- [Br-57] R.C. Briant, A.M. Weinberg, “Aircraft nuclear propulsion reactor”, Nuclear Science and Engineering 2, p.795-853 (1957)
- [Br-63] R.B. Briggs, “Molten Salt Reactor Program Semiannual Progress Report for Period Ending : July 31 1963”, Rapport ORNL-3529 Oak Ridge (1963)
- [Br-92] E.A. Brandes, G.B. Brook, “Smithells Metals Reference Book”, Seventh Edition, Butterworth Heinemann (1992)
- [Br-97] J.F. Briesmeister, “MCNP4B-A, General Monte Carlo N particule transport code”, Los Alamos Lab report, LA-12625-M (1997)
- [Ca-60] J.A. Cahill, A.D. Kirshenbaum, C.S. Stokes, “The density of molten metal fluorides in the range of 1600K 2500K”, Journal of Inorganic and Nuclear Chemistry, 15 , 297-304 (1960)
- [Ca-61] J.A. Cahill, A.D. Kirshenbaum, “Density of molten thorium and uranium tetrafluorides”, Journal of inorganic and nuclear chemistry, 19, 65-68 (1961)

- [Ca-09] L.Cassayre, L. Massot, M. Gibilaro, P. Chamelot “Extraction/dés extraction électrochimique de  $\text{NdF}_3$  et de  $\text{ThF}_4$  sur cathode liquide de bismuth dans  $\text{LiF-CaF}_2$ ”, Présentation Atelier annuel du PCR-ANSF, Paris (2009)
- [Co-08] T. Courau, “Elément de transport neutronique : schéma industriel appliqué aux calculs de réacteur”, Cours ENSPG (2008)
- [Cu-07] R. Cury, “Etude métallurgique des alliages Ni-W et Ni-W-Cr : relation entre ordre à courte distance et durcissement”, Thèse de doctorat, Université Paris XII, France (2007)
- [Da-07] S. David, “La problématique de l’énergie nucléaire”, Congrès général de la Société Française de Physique, Grenoble, France (2007)
- [De-06] J.G. Devezeaux et al, “Des solutions industrielles pour les déchets de haute et moyenne activité à vie longue”, Clefs du C.E.A., 53 (2006)
- [De-09] S.Delpech et al., “Reactor Physic and reprocessing scheme for innovative molten salt reactor system” Journal of fluorine chemistry, vol.130, p.11-17 (2009)
- [Di-01] B. Diu, C. Guthmann, D. Lederer, B. roulet, “Elément de Physique statistique”, edition Hermann, coll. enseignement des sciences (2001)
- [Do-07] X.Doligez, “Etude par simulation numérique du retraitement des déchets du TMSR”, Note-interne LPSC 07-105, <http://hal.in2p3.fr/docs/00/18/01/93/PDF/LPSC07105-Doligez.pdf> (2007)
- [Do-08] X. Doligez, D. Heuer, E. Merle-Lucotte, et al. “Influence on the reprocessing capacities on Thorium Molten Salt Reactor-Non Moderated core behaviour, Proceedings of Joint Symposium on Molten Salt MS8 (2008)
- [Do-09] X.Doligez et al, “Numerical tools for molten salt reactors simulation”, Proceeding International conference GLOBAL09, no.9207, Paris (2009)
- [Du-04] S. Dulla, P. Ravetto, M.M. Rostagno, “Neutron kinetic of fluid-fuel systems by the quasi-static method”, Annals of Nuclear Energy, Vol 31, Iss. 15, 1709-1733 (2004)
- [EL-06] Commissariat à l’énergie atomique, “Les centrales Nucléaires dans le monde”, ELECNUC, 2006
- [EPR] <http://www.edf.fr/html/epr/rps/chap12/chap12.pdf>, “rapport préliminaire de sûreté de l’EPR, chapitre 12, radioprotection”
- [FACT] Logiciel FactSage, [www.factsage.com](http://www.factsage.com)
- [Fa-01] P. Faugeras, J. Vergnes, D. Lecarpentier, “Etude préliminaire d’un circuit de retraitement des sels”, rapport interne EDF, HT-13/01/043/A (2001)
- [Fe-70] L.M. Ferris, J.C. Mailen, F.J. Smith, J.J. Lawrence, E.D. Nogueira, “Equilibrium distribution of actinide and lanthanide elements between molten fluoride salts and liquid bismuth solutions”, Journal of Inorg. and Nuclear Chemistry, vol 32, Iss. 6, p. 2019-2035
- [Fe-71] L.M. Ferris, J.C. Mailen, F.J. Smith, “Chemistry and thermodynamics of the distribution of lanthanide and actinide elements between molten  $\text{LiF-BeF}_2$  and liquid bismuth solutions”, Journal of Inorg. and Nuclear Chemistry, vol 33, Iss. 5, p. 1325-1335

- [Fr-Nuc] [http://www.francenuc.org/fr\\_sites/rhone\\_tri\\_f3.htm](http://www.francenuc.org/fr_sites/rhone_tri_f3.htm)
- [Fu-90] K.Furukawa et al., "Thorium molten salt nuclear energy synergetics", Journal of nuclear science and technology, vol.27, no.12, p.1157-1178 (1990)
- [GEN-IV] Site web du forum international génération 4 : [www.gen-4.org](http://www.gen-4.org)
- [Gh-09] V. Ghetta, "Etude du traitement du sel par bullage en ligne", Présentation Atelier annuel du PCR-ANSF, Paris (2009)
- [Gh-10] V. Ghetta, D. Heuer, E. Merle-Lucotte, X. Doligez, "Boucle en convection forcée pour l'étude du nettoyage en ligne de caloporteur de type sel fondu", Proceedings of Matériaux 2010, Nantes (2010)
- [Gi-09] M. Gibilaro, L. Massot, P. Chamelot, L. Cassayre, P. Taxil, "Electrochemical extraction of europium from molten fluoride media", Electrochimica Acta 55, 281-287 (2009)
- [Gr-58] W.R.Grimes et al, "Solubility of noble gases in molten fluorides in mixture of NaF-ZrF<sub>4</sub> (53-47 mole %) and NaF-ZrF<sub>4</sub>-UF<sub>4</sub>(50-46-4 mole%), Journal of chemical physics, vol.62, p.862-866 (1958)
- [Gr-63] A.V.Grosse et al., "Krypton tetrafluoride : preparation and some properties", Science, vol.139, p.1047-1048 (1963)
- [Gr-70] W.R.Grimes, "Molten salt reactor chemistry", Nuclear application and technology, vol.8, p.137-155 (1970)
- [Gr-07] D. Grenech et al, "Rethinking the thorium fuel cycle : an industrial point of view, Proceeding internation conference ICAPP07, Nice, France (2007)
- [Gu-09] P.Guillemain,"Recherche de la haute conversion en cycle thorium dans les réacteurs CANDU et REP - Développement des méthodes de simulation associées et étude de scénarios symbiotiques", Thèse de doctorat, Institut national polytechnique de Grenoble, Grenoble (2009)
- [Gw-05] B.Gwinner, "Boucle à hélium dans les réacteurs nucléaires à sels fondus", Rapport de post-doctorat effectué au LSGC, Nancy (2005)
- [Ha-70] P.Haubenreich, J.R.Engel, "Experience with molten salt reactor experiment", Nuclear applicationand Technology, vol. 8, p.118-136 (1970)
- [He-09] D. Heuer et al., "Le réacteur MSFR", Sels fondus à haute température, ch-11, Presses Polytechniques et Universitaires Romandes (2009)
- [Ho-10] M. Hoogemoed, A. Bidaud, X. Doligez, "Thorium molten Salt fast reactor nuclear data uncertainty analysis", Proceedings of international Conference on Nuclear Data for Science Technology, Korea (2010)
- [IAE] Site web de l'agence internationale pour l'énergie : [www.iaea.org](http://www.iaea.org)
- [Ig-10] V. Ignasiev, communication privée (2010)
- [Ja-63] M. Jacquin, A. Lecocq, J.L. Romet, "Réacteurs à sels fondus : traitement en continu du sel MSBR", Dossier d'affaire "Sels Fondus", T10/SELST11/910, Electricité de France, Paris (1963)
- [JO] Journal officiel de la république française : Ministère de la santé, de la famille et des personnes handicapées, "Arrêté du premier septembre 2003 définissant les modalités de calcul des doses efficaces et des doses équivalentes résultant

- de l'exposition de personnes aux rayonnements ionisants", SANCO232527A, p.58003 à p.58054 (2003)
- [Ke-65] G.R. Keepin, "Physics of nuclear kinetics", Addison-Wesley publishing company, inc. (1965)
- [Ko] R. Konings, Communication privée
- [Le] Compilation des données de V.A. Lebedev
- [Le-92] F. Lemort, "Etude de la séparation actinides/lanthanides des déchets nucléaires par un procédé pyrochimique nouveau", Thèse de doctorat, Institut national polytechnique de Grenoble (1992)
- [Le-02] D.Lecarpentier et al., "The Amster Concept", Nuclear engineering and design, no.216, p.43-67 (2002)
- [Ma-68] J.C.Mailen, G.I.Cather, "Fluorination of falling droplets of molten fluoride salt as a mean of recovering uranium and plutonium", Rapport de l'ORNL, no. 4224, Chemical technology division (1968)
- [Ma-05] L.Mahtieu, "Cycle thorium et réacteurs à sels fondus ; Exploration du champ des paramètres et des contraintes définissant le Thorium Molten Salt Reactor", Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Grenoble, Grenoble (2005)
- [Me-08-1] E.Merle-Lucotte, "Le cycle thorium en réacteurs à sels fondus peut il être une solution au problème énergétique du XXI siècle ?", Mémoire d'habilitation à diriger les recherches, INP-G, (2008)
- [Me-09-1] E.Merle-Lucotte et al., "Optimizing the burning efficiency and the deployment capacities of the molten salt fast reactor", Proceeding International conference GLOBAL09, no.9149, Paris (2009)
- [Me-09-2] E.Merle-Lucotte et al., "Minimization of the fissile inventory of the molten salt fast reactor", Proceeding ANFM2009 (Advances in Nuclear Fuel Management), South Carolina (2009)
- [Me-08-2] E.Merle-Lucotte et al., "Optimization and simplification of the concept of non-moderated Thorium Molten Salt Reactor", Proceeding PHYSOR2008, Interlaken (2008)
- [MS-06] MSH-ALPES, "Recherche et déchets nucléaires, une réflexion interdisciplinaire", Cahier - Risques Collectifs et Situations de Crise, Publication de la MSH-ALPES (2006)
- [NNDC] <http://www.nndc.bnl.gov>
- [Nu-02] A.Nuttin, "Potentialités du concept de réacteur à sels fondus pour une production durable d'énergie nucléaire basée sur le cycle thorium en spectre épithermique", Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier, Grenoble (2002)
- [Ou-02] Outokompu research Oy, "HSC Chemistry 5.11, Chemical reaction and equilibrium with extensive thermochemical data base", Pori, Finland (2002)
- [Pe-03] F.Perdu, "Contribution aux études de sûreté pour les filières innovantes de réacteurs nucléaire", Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier-Grenoble I (2003)

- [Po-74] A.M. Poyarkov, V.A. Lebedev, I.F. Nichkov, S.P. Raspopin, *Ress. Met*, 5 96 (1974)
- [Ro-70] M.W. Rosenthal et al., "Molten Salt Reactor History, Status and Potential, Nuclear Applications and Technology, vol.8, 118-136 (1970)
- [Ro-71-1] R.C. Robertson, "Conceptual design study of a single fluid molten salt breeder reactor" ; Oak Ridge National Laboratory Report, ORNL-4541 (1971)
- [Ro-71-2] M.W. Rosenthal, J.B. Briggs, P.N. Haubernreich, "Molten Salt Reactor program - Semiannual progress report for period ending February 28, 1971", Rapport ORNL-4676 Oak Ridge (1971)
- [Ro-73] M.W. Rosenthal, J.H. Devan, D.L. Manning, "Compatibility studies of potential molten salt breeder reactor materials in molten fluoride salts", Rapport ORNL-4832, Oak Ridge (1973)
- [Ru-06] J.M. Ruggieri et al, "ERANOS 2.1, International code system for GENIV fast reactor analysis", Proceedings of International congress on advances in nuclear power plant (ICAPP), Reno (2006)
- [Sa-95] S. Sala, "Réduction de la radiotoxicité des déchets nucléaires à vie longue : étude théoriques et stratégiques de la transmutation des actinides mineurs et des produits de fission dans les réacteurs électronucléaires", Thèse de doctorat, Université de provence, Marseille (1995)
- [Sa-96] M. Salvatores, I. Slesarev, A. Tchistiakov, "Analysis of Nuclear Power Transmutation Potential at Equilibrium", *Nuclear Science and Engineering*, 124, 280-290 (1996)
- [Sa-06-1] M. Salanne, "Modélisation atomique de sels fondus fluorés à haute température", thèse de doctorat de l'université Paris IV, (2006)
- [Sa-06-2] M. Salanne, C. Simon, P. Turq, "A first-principles description of liquid  $\text{BeF}_2$  and its mixture with  $\text{LiF}$  : Potential development and pure  $\text{BeF}_2$ ", *Journal of physical chemistry B*, 110, 11461-11467 (2006)
- [Sa-06-3] B. Saadi, "Contrôle électromagnétique des transferts de masse aux interfaces liquides/liquides", Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Grenoble (2006)
- [Si-00] R.K Sinah et al, "Design and development of AHWR - the indian thorium fueled innovative reactor - Status, strategies and direction INSAC", Proceedings Ann. Conference, 1, 81-106, Mumbai, India (2000)
- [So-75] D.D. Sood et al, "Plutonium trifluoride as a fuel for molten salt reactors solubility studies", *Nuclear Technology*, Vol. 27, Iss. 3, 411-415 (1975)
- [Uh-09] J.Uhlif, M.Marecek, "Fluoride volatility for reprocessing of LWR and FWR fuels", *Journal of fluorine chemistry*, vol.130, p.89-93 (2009)
- [Wh-70] M.E.Whatley et al., "Engenireering development of the MSBR fuel recycle", *Nuclear application and technology*, vol.8, p.170-178 (1970)



### **Résumé :**

L'industrie électronucléaire, pour faire face aux besoins énergétiques croissant, à besoin de développer une nouvelle génération de réacteur : la quatrième génération. Parmi les six candidats, on trouve les réacteurs à sels fondus, qui, en configuration rapide, semble avoir de très bonnes propriétés : la régénération est facilement accessible tout en gardant des coefficients de contre-réaction négatifs. Le procédé de retraitement du sel combustible n'est toutefois toujours pas établi de manière définitive. Beaucoup d'incertitude sur les paramètres physicochimiques des sels combustibles empêchent de définir de manière précise chaque étape du procédé.

Grâce à la simulation numérique nous avons pu étudier le comportement du cœur du réacteur couplé à une unité de retraitement de référence. De cette manière nous avons pu quantifier les flux de chaleurs et les radiations pour identifier les étapes qui nécessiteront une attention particulière lors du dimensionnement. Nous avons aussi pu identifier les éléments pour lesquels une mauvaise extraction mettrait en péril le bon fonctionnement du réacteur. Enfin, toujours grâce à la simulation numérique, ce travail présente une analyse des sensibilités du procédé de retraitement sur un certain nombre de grandeurs physique représentative du cœur du MSFR.

### **Mot Clefs :**

Réacteur à sels fondus, cycle thorium, retraitement, génération 4, procédé pyrochimique, extraction par bullage, MSFR, régénération.

### **Abstract :**

In order to face with the growing of the energy demand, the nuclear industry has to reach the fourth generation technology. Among those concept, molten salt reactor, and especially the fast neutron spectrum configuration, seems very promising : indeed breeding is achievable while the feedback coefficient are still negative. However, the reprocessing salt scheme is not totally set down yet. A lot of uncertainties remain on chemical properties of the salt.

Thanks to numerical simulation we studied the behavior of the molten Salt Fast Reactor coupled to a nominal repossessing unit. We are now able to determine heat transfer and radiation in each elementary step of the unit and, by this way determine those that need special study for radioprotection. We also studied which elements are fundamental to extract for the reactor operation. Finally, we present a sensibility analysis of the chemical uncertainties to few relevant properties of the reactor behavior

### **Keywords :**

Molten Salt Fast Reactor, Molten Salt, Thorium cycle, Breeder reactor, pyrochemical reprocessing, Bubbling extraction, Generation IV.