

Cycle thorium et réacteurs à sel fondu. Exploration du champ des paramètres et des contraintes définissant le "Thorium Molten Salt Reactor"

Ludovic Mathieu

▶ **To cite this version:**

Ludovic Mathieu. Cycle thorium et réacteurs à sel fondu. Exploration du champ des paramètres et des contraintes définissant le "Thorium Molten Salt Reactor". Physique Nucléaire Théorique [nucl-th]. Institut National Polytechnique de Grenoble - INPG, 2005. Français. NNT : . tel-00010791

HAL Id: tel-00010791

https://theses.hal.science/tel-00010791

Submitted on 27 Oct 2005

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

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

INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE GRENOBLE

N° attribué par la bibliothèque

|__|__|__|__|__|__|__|__|__|__|

THESE

pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'INPG

Spécialité : Energétique Physique

préparée au Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie

dans le cadre de **l'Ecole Doctorale de Mécanique et Energétique**

présentée et soutenue publiquement

par

Ludovic MATHIEU

le 26 Septembre 2005

Titre :

Cycle Thorium et Réacteurs à Sel Fondu

Exploration du champ des Paramètres et des Contraintes définissant le "Thorium Molten Salt Reactor"

Directeur de thèse : Daniel HEUER

JURY :

Claude Renault	rapporteur
Jean-Claude Steckmeyer	rapporteur
Hubert Doubre	examinateur
Roger Brissot	examinateur
David Lecarpentier	examinateur
Daniel Heuer	directeur de thèse

Remerciements

J’aimerais remercier en premier lieu Johann Collot, directeur du LPSC, pour m’avoir accueilli dans son laboratoire pendant ces trois années de thèse. Merci également à notre chef, Roger Brissot, pour m’avoir subtilement mais judicieusement orienté vers le groupe Physique des Réacteurs à la fin de mes études. Je remercie vivement Daniel Heuer, dont j’ai apprécié la direction de thèse et qui m’a supporté tout ce temps -presque- sans faiblir. Merci aussi à mon co-directeur de thèse Jean-Marie Loiseaux et à Christian Le Brun pour leur influence positive et leur impact déterminant sur mon travail. Evidemment, cette thèse n’aurait pu être réalisée sans le financement du CNRS et d’EDF. Je les remercie donc sincèrement pour cela.

Un grand merci à Claude Renault et à Jean-Claude Steckmeyer d’avoir accepté la lourde et pénible tâche d’être mes rapporteurs, ainsi qu’aux autres membres du jury Hubert Doubre, David Lecarpentier et Roger Brissot. Merci à vous du temps que vous m’accordez, pris sur les vacances ou inséré dans un emploi du temps déjà chargé.

Je remercie le groupe de m’avoir accueilli en son sein, et avec lequel j’ai pris plaisir à travailler. Merci donc à Roger Brissot, Jean-Marie Loiseaux, Christian Le Brun, Eric Liatard, Olivier Méplan et Annick Billebaud. Je remercie chaleureusement Daniel Heuer qui a fait de cette thèse un moment très agréable et instructif : l’ambiance du bureau 230 me manquera. Un merci tout particulier à Alexis Nuttin, dont un conseil avisé a marqué l’orientation de mon travail. Un très grand merci à Elsa Merle-Lucotte et à son mari Arnaud Lucotte, pour leur soutien sans faille tout au long de cette thèse, et plus particulièrement lors de la délicate phase de rédaction. Merci également pour la confiance et la responsabilité accordées au jeune vacataire que j’étais. Enfin, je tiens à saluer le travail formidable d’Elisabeth Huffer en tant que traductrice officielle du groupe. A quoi auraient ressemblé mes articles sans son aide précieuse ?

Merci également aux différents services du LPSC qui ont contribué au bon déroulement de cette thèse. Merci tout spécialement à Christine Gondrand qui m’a si souvent dépanné, à Chantal Mazzola pour sa patience dans la gestion des missions, et à Anne-Marie Guglielmini pour m’avoir sauvé de la noyade admninistrative après mon petit accident. Un grand merci à Jacques Menet et à Gérard Callois du service “Transfert de Technologie” pour leur contribution à la phase expérimentale de cette thèse.

Je dois également beaucoup aux “extérieurs” au laboratoire. Merci à Claude Garzenne et David Lecarpentier qui ont supervisé cette thèse pour le compte d’EDF. Je remercie notre spécialiste chimiste, Michel Allibert, pour l’aide qu’il nous a apporté et sa bonne humeur de jeune retraité. Merci

tout spécialement à Véronique Ghetta du LTPCM pour notre collaboration fructueuse, son aide indispensable lors des manips et sa co-rédaction du chapitre 10.

La vie au labo n'aurait pas été la même sans mes compagnons de bagne. Merci à Fabien Perdu, Joachim Vollaire, Nicolas Thiollière et Olivier Laulan. Merci à vous pour les parties de blast endiablées, qu'elles fussent éthiques ou crapuleuses. Et surtout, merci de m'avoir si souvent laissé gagner : un chercheur heureux est un chercheur qui trouve. Merci également à notre dernière recrue, Marie-Anne Cognet, d'avoir apporté un peu de calme dans notre monde agité. Merci enfin à Florent Chevallier au contact duquel j'ai appris la patience...

Evidemment, je ne peux oublier mes proches. Un immense merci à ma famille, qui m'a toujours soutenu jusqu'à et pendant cette thèse. Je remercie mes amis, particulièrement mes fidèles amis du CPP, pour tout ce qu'ils m'ont apporté. J'ai également une pensée particulière aux personnes chères à mon coeur.

Table des matières

1 Contexte général **15**

1.1 Réchauffement climatique 15

1.2 Emissions, perspectives et ressources 16

1.3 Energie nucléaire et développement durable 19

1.3.1 Régénération et cycle du combustible 19

1.3.2 Production de déchets radioactifs 21

1.3.3 Types de réacteurs utilisant la régénération du combustible 21

2 Présentation générale du concept **25**

2.1 Historique 25

2.1.1 Les succès du passé 25

2.1.2 Le projet MSBR (Molten Salt Breeder Reactor) 27

2.1.3 Quelques études postérieures au MSBR 29

2.2 Les matériaux utilisés dans les RSF 30

2.2.1 Le sel combustible 30

2.2.2 L'irradiation du sel combustible 31

2.2.3 Le modérateur et les structures 31

2.3 Les problèmes du MSBR 32

2.3.1 Le retraitement du combustible 32

2.3.2 La sûreté 36

3 Méthodes et outils **39**

3.1 Méthodes de travail 39

3.1.1 Sûreté 39

3.1.2 Faisabilité du retraitement 41

3.1.3 Capacités de régénération 42

3.1.4 Tenue des matériaux 42

3.1.5 Inventaire initial nécessaire 44

3.1.6 Production de TRansUraniens 44

3.1.7 Production de tritium 45

3.1.8 Aspects de thermohydraulique 46

3.1.9 Résistance à la prolifération . . . 47
3.1.10 Poids des contraintes . . . 48
3.2 Outils de simulation . . . 49
3.2.1 Simulations et codes de calcul . . . 49
3.2.2 Fonctionnement du code MCNP . . . 49
3.2.3 Fonctionnement du code d'évolution . . . 50
3.2.4 Description de la géométrie . . . 53
3.2.5 Ajustement de la composition initiale . . . 53
3.2.6 Moyens de calcul . . . 54

4 Système de référence : présentation et étude 57
4.1 Présentation du système . . . 57
4.1.1 Géométrie et matériaux . . . 58
4.1.2 Retraitement du combustible . . . 60
4.2 Caractéristiques neutroniques de la configuration de référence . . . 62
4.2.1 Observables directes . . . 62
4.2.2 Observables indirectes . . . 72
4.3 Approche par contrainte . . . 84
4.3.1 Sûreté . . . 84
4.3.2 Capacités de régénération . . . 84
4.3.3 Tenue des matériaux . . . 84
4.3.4 Inventaire initial nécessaire . . . 85
4.3.5 Faisabilité du retraitement . . . 86
4.3.6 Production de TRansUraniens . . . 87
4.3.7 Production de tritium . . . 88
4.3.8 Aspects de thermohydraulique . . . 89
4.3.9 Résistance à la prolifération . . . 89
4.4 Synthèse de l'étude de la configuration de référence . . . 91

5 Etude du rayon des canaux 93
5.1 Présentation de l'étude . . . 93
5.1.1 Principe général . . . 93
5.1.2 Problème des grands rayons . . . 95
5.2 Sûreté . . . 97
5.2.1 Coefficient graphite . . . 100
5.2.2 Coefficient Doppler . . . 102
5.2.3 Coefficient densité . . . 107
5.2.4 Visualisation du coefficient total de température . . . 111
5.3 Capacités de régénération . . . 112
5.3.1 Neutrons disponibles et régénération . . . 112

5.3.2 Evolution des captures parasites . . . 113
5.4 Tenue des matériaux . . . 117
5.4.1 Evolution du flux de neutrons . . . 117
5.4.2 Durée de vie du graphite . . . 118
5.4.3 Flux de graphite à traiter . . . 118
5.5 Inventaire initial nécessaire . . . 120
5.6 Faisabilité du retraitement . . . 120
5.7 Aspects de thermohydraulique . . . 121
5.8 Production de TRansUraniens . . . 122
5.9 Production de tritium . . . 124
5.10 Résistance à la prolifération . . . 124
5.11 Synthèse de l'étude du rayon des canaux . . . 125

6 Etude de la puissance spécifique, de la taille des hexagones et des autres paramètres géométriques 129
6.1 Puissance spécifique . . . 129
6.1.1 Etude du volume de combustible . . . 129
6.1.2 Etude de la puissance totale . . . 135
6.1.3 Synthèse sur l'étude de la puissance spécifique . . . 136
6.2 Taille des hexagones . . . 138
6.2.1 Sûreté . . . 138
6.2.2 Capacités de régénération . . . 142
6.2.3 Aspects de thermohydraulique . . . 143
6.2.4 Tenue du graphite . . . 144
6.2.5 Inventaire nécessaire . . . 144
6.2.6 Synthèse sur l'étude de la taille des hexagones . . . 145
6.3 Couverture en thorium . . . 145
6.3.1 Capacités de régénération . . . 145
6.3.2 Autres contraintes . . . 147
6.3.3 Type de couverture . . . 148
6.4 Découpage du coeur en zones . . . 148
6.4.1 Présentation de l'étude . . . 148
6.4.2 Sûreté . . . 149
6.4.3 Capacités de régénération . . . 149
6.4.4 Tenue des matériaux . . . 149
6.5 Orthorhombicité du coeur . . . 151
6.6 Synthèse des études de la puissance spécifique, de la taille des hexagones et d'autres paramètres géométriques . . . 152

7 Etude du retraitement **155**
7.1 Absorptions parasites . . . 155
7.2 Temps de retraitement . . . 156
7.2.1 Impact sur les capacités de régénération . . . 156
7.2.2 Rejets et pertes au retraitement . . . 160
7.2.3 Impact sur les autres contraintes . . . 162
7.2.4 Suppression du retraitement . . . 162
7.2.5 Synthèse . . . 164
7.3 Eléments extraits . . . 164
7.3.1 TRansUraniens . . . 164
7.3.2 Protactinium . . . 165
7.3.3 Neptunium . . . 167
7.3.4 Produits de Fissions hors Lanthanides . . . 168
7.4 Etude du bullage . . . 169
7.4.1 Bullage des métaux nobles . . . 169
7.4.2 Bullage des gaz . . . 171
7.4.3 Bullage des configurations à spectres thermalisés et rapides . . . 172
7.4.4 Séparation isotopique . . . 172
7.5 Dilution . . . 174
7.5.1 Principe . . . 174
7.5.2 Résultats . . . 174
7.5.3 Impact de cette méthode . . . 175
7.6 Synthèse de l'étude du retraitement . . . 176

8 Etude du sel combustible **179**
8.1 Etude de la présence de Be dans le sel combustible . . . 179
8.1.1 Principe . . . 179
8.1.2 Système simulé . . . 180
8.2 Etude de la proportion de NL dans le sel LiF - $(NL)F_4$ . . . 181
8.2.1 Elévation de température . . . 181
8.2.2 Proportion de NL . . . 183
8.2.3 Exemple à taille constante . . . 189

9 Etudes diverses concernant la sûreté **191**
9.1 Vidange du coeur . . . 191
9.2 Vidange de la couverture . . . 192
9.3 Déplacement de la barre centrale . . . 194
9.3.1 Barre centrale en graphite . . . 194
9.3.2 Barre centrale en ZrC . . . 194
9.4 Insertion de réactivité . . . 195

10 Expérimentation sur l'extraction des métaux nobles par le bullage **197**
10.1 Principe de l'extraction des métaux nobles 198
10.2 Principe de l'expérience 199
10.2.1 Choix et obtention des matériaux 199
10.2.2 Phase de fusion du sel avec Molybdène 203
10.2.3 Type d'observations effectuées 203
10.3 Résultats des expériences préliminaires utilisant la poudre de Mo 206
10.4 Expériences avec implantation ionique de Mo 208
10.5 Conclusions de l'expérience 208

11 Synthèse générale **213**
11.1 Principes généraux découlant des études 213
11.1.1 Sûreté 213
11.1.2 Régénération 214
11.1.3 Tenue des matériaux 214
11.1.4 Inventaire nécessaire 215
11.2 Configurations possibles 216
11.2.1 Configurations à spectre thermique 216
11.2.2 Configurations à spectre épithermique 217
11.2.3 Configurations à spectre rapide 218
11.3 Questions en suspens 220

A Etudes des corrélations entre sous-coefficients de température **227**

B Tables de correspondances **229**

C Données concernant la décomposition des coefficients de température **231**

D Inventaires, Rapports α et Incinération des TRU **235**

Introduction

La Terre bénéficie d'une agréable température moyenne en raison d'un effet de serre qui réduit les pertes thermiques vers l'espace. Malheureusement, cet effet de serre est en train de croître en puissance progressivement, ce qui se traduit par un réchauffement global de la planète. Nous verrons dans un premier temps que cet accroissement, lié à la présence de gaz tels que le CO_2 dans l'atmosphère, est d'origine humaine. S'il apparaît indispensable de réduire nos émissions de CO_2, nous constaterons que cela implique de recourir massivement à d'autres sources d'énergies que les combustibles fossiles. L'énergie nucléaire, tout comme les énergies renouvelables, fait partie des moyens permettant d'atteindre ces objectifs. Cependant, les ressources naturelles étant limitées et les déchets radioactifs problématiques, nous indiquerons quels sont les axes de recherches rendant pérenne la production d'énergie nucléaire : la régénération du combustible d'une part, et l'utilisation du cycle thorium d'autre part. Nous terminerons le premier chapitre par un aperçu des différentes technologies disponibles, et ferons ressortir les avantages des Réacteurs à Sels Fondus (RSF).

Nous ferons au deuxième chapitre un tour d'horizon du concept de RSF. Nous présenterons leur historique, ainsi que quelques uns des projets ou réacteurs qui ont été étudiés jusqu'à aujourd'hui. Ensuite seront détaillés les matériaux utilisés dans les RSF et les contraintes qu'ils subissent lors du fonctionnement du réacteur. Enfin, nous expliciterons les raisons pour lesquelles le MSBR, bien que servant souvent de référence, doit être revu : son retraitement trop complexe et ses coefficients de température positifs.

Avant d'entrer dans le coeur de nos études, nous en poserons tout d'abord les bases, c'est-à-dire la méthode et les outils utilisés pour ce travail, dans le chapitre 3. Dans le cadre du forum international Generation-IV, un réacteur nucléaire se doit de répondre à un certain nombre de critères, tels que la sûreté et la régénération du combustible. Il est indispensable de considérer l'ensemble de ces contraintes lors de l'évaluation d'un concept de réacteur, sous peine de voir des axes de recherche prometteurs être anéantis par un critère ignoré. Nous définirons donc l'ensemble de ces contraintes, en donnant autant que possible des repères permettant d'étalonner notre raisonnement. Viendra alors la présentation des codes de calculs auxquels nous avons eu recours, en particulier le code de transport de neutrons et le code d'évolution. La caractéristique essentielle de ces outils est de simuler une géométrie précise du coeur et de prendre en compte individuellement tous les isotopes constituant les divers matériaux du réacteur. Nous expliciterons comment sont prises en compte les données physiques et chimiques, telles que les décroissances radioactives et le retraitement du combustible.

Les différentes études que nous avons réalisées s'articulent autour d'une configuration, dite "de référence", qui sera exposée en détail au chapitre 4. Nous profiterons de cette occasion pour présenter les différentes observables, directes et indirectes, ainsi que les méthodes de calculs employées. Un grand nombre d'informations seront ainsi disponibles pour cette configuration. Il sera toujours possible de s'y reporter dans la suite de l'ouvrage, cette configuration étant commune à presque toutes les études. Enfin, cette configuration de référence sera passée au crible des contraintes définies au chapitre précédent, de manière à en évaluer les performances.

Après cela se succèderont les diverses études paramétriques, aux chapitres 5 à 8. Nous commencerons par analyser l'influence d'un paramètre fondamental, à savoir le rapport de modération, sur le comportement du réacteur (chapitre 5). Nous allons ainsi être amenés à élargir le champ d'investigation étudié auparavant à une large gamme de configurations, allant des spectres neutroniques très thermiques aux spectres rapides. Cette première approche nous permettra de classifier les grandes tendances dépendant du type de spectre, et de voir les avantages et inconvénients de chacun. Nous retiendrons particulièrement l'option des spectres rapides, dont les performances sont très satisfaisantes. L'influence de plusieurs autres paramètres géométriques sera analysée (chapitre 6). Nous verrons que le volume de combustible, le pas du réseau modérateur ou l'orthorhombicité du coeur sont autant de moyens à notre disposition pour ajuster les caractéristiques d'un système et en corriger si possible les défauts.

Ce travail perdrait une partie de son sens sans une réévaluation du retraitement. Le chapitre 7 est donc consacré aux différents paramètres de celui-ci. Nous verrons comment le temps nécessaire pour traiter l'ensemble du combustible joue sur les capacités de régénération, pour des systèmes à spectres neutroniques différents. Il apparaîtra que les configurations à spectre rapide peuvent se contenter d'un retraitement extrêmement lent ou peu efficace tout en assurant la régénération du combustible. Nous montrerons également l'influence de l'auto-incinération des TRanUraniens (TRU) sur la composition du coeur, aboutissant à la formation d'éléments très lourds et radiotoxiques. L'impact du système de bullage, tant des gaz que des métaux, sera étudié et l'on pourra constater qu'une grande efficacité n'est pas toujours indispensable.

Après cela, le chapitre 8 sera consacré aux RSF fonctionnant à très haute température. Nous détaillerons les conditions nécessaires à un tel fonctionnement, et les avantages que l'on peut en retirer. Nous pourrons constater que cette voie semble très prometteuse, tant grâce à l'augmentation du rendement thermodynamique que par la possibilité de diminuer l'enrichissement du sel en noyaux lourds. L'intérêt de cette dernière option est de réduire la quantité de matière fissile sans changer celle de sel, ce qui revient à décorréler les fonctions combustible et caloporteur du sel.

Nous ferons part, dans le chapitre 9, de plusieurs études concernant spécifiquement la sûreté des RSF. Nous montrerons que ces réacteurs sont peu sensibles aux perturbations extérieures, telle que l'insertion accidentelle de combustible. Le chapitre 10 sera quant à lui consacré à une étude expérimentale préliminaire de l'efficacité du bullage des métaux nobles. Après avoir détaillé les principes

physiques et le protocole expérimental, nous verrons comment un métal noble implanté à l'état atomique dans un sel de fluorure se rassemble en agrégats aux interfaces.

Enfin, devant le grand nombre et la diversité des études réalisées lors de notre recherche de configurations possibles pour le Thorium Molten Salt Reactor (TMSR), nous effectuerons une synthèse au chapitre 11. Cette synthèse résumera les principes généraux qui régissent le comportement des RSF en cycle thorium, débouchera sur la présentation de plusieurs configurations jugées intéressantes, et présentera les axes de recherches à étudier en priorité.

Chapitre 1

Contexte général

1.1 Réchauffement climatique

Depuis plusieurs dizaines d'années, la menace d'un changement climatique se fait sentir de plus en plus pesamment. Ce bouleversement est dû à une accumulation de Gaz à Effet de Serre (GES) dans l'atmosphère. Ces gaz piègent une partie de la chaleur réémise par la Terre, engendrant une élévation de la température d'équilibre de celle-ci. Signalons que l'effet de serre est un processus naturel, sans lequel la température moyenne du globe serait d'environ -15 °C, ce qui rendrait le développement d'une vie évoluée improbable. Il semble acquis que les émissions anthropiques dues à une utilisation massive des énergies fossiles entraînent une augmentation significative de l'effet de serre, ce dernier ayant pour conséquence un réchauffement climatique dont les premiers symptômes commencent à se manifester. Cette origine anthropique signifie deux choses : d'une part que nous sommes responsables de ce bouleversement et de toutes les conséquences qui en découlent ; mais d'autre part que nous avons probablement les moyens de l'empêcher, une variation de la puissance rayonnée par le soleil étant par exemple beaucoup plus difficile à contrer.

Le GES ayant le plus d'impact sur la température globale est l'H_2O qui concourt aux 2/3 de l'effet de serre. La masse d'eau dans l'atmosphère est considérable, et la quantité rejetée par l'homme est de ce point de vue négligeable. Paradoxalement, l'émission par les cheminées d'usine ou de centrale du GES prédominant n'a pas d'impact sur l'environnement. En revanche, la quantité de CO_2 dans l'atmosphère est relativement faible et a fortement augmenté au cours du dernier siècle, passant de 280 ppm à 350 ppm, niveau jamais égalé pendant les dernières centaines de milliers d'années. La figure 1.1 présente l'évolution de cette concentration pour le passé "géologiquement récent" de la Terre. Il apparaît évident qu'une augmentation aussi soudaine de la concentration en CO_2 n'est pas d'origine naturelle. Les cycles observés correspondent aux alternances entre périodes glaciaires et périodes tempérées. Remarquons que l'écart entre la concentration actuelle et la concentration normale d'une ère tempérée atteint -pour l'instant- 70 ppm. En revanche l'écart standard entre une ère glaciaire

et une ère tempérée n'est que de 80 à 100 ppm. Comme température et concentration de CO_2 sont intimement liées [1], les conséquences globales d'une telle évolution apparaissent facilement.

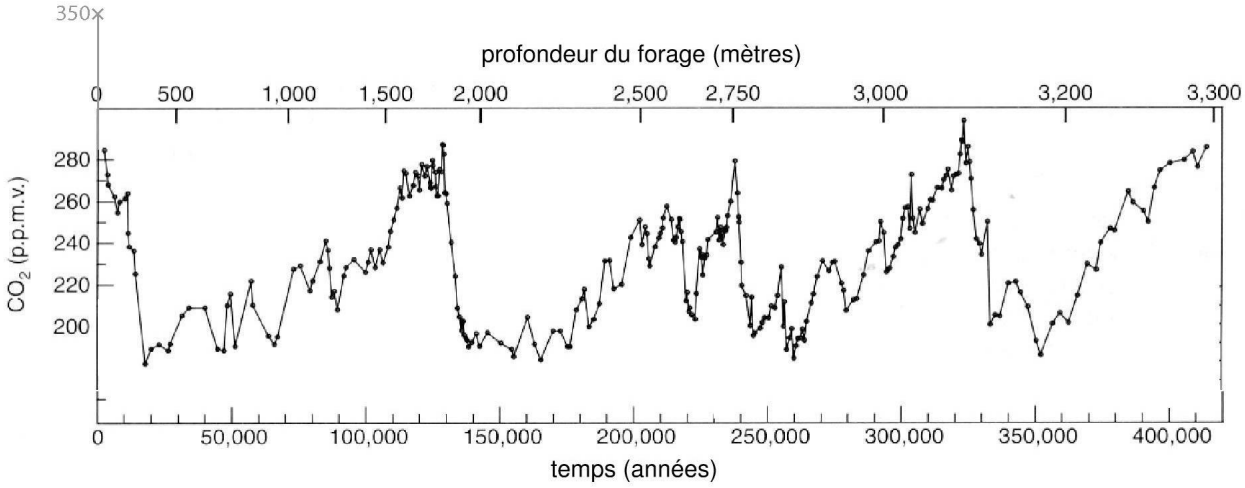


FIG. 1.1 – Quantités de CO_2 dans l'atmosphère au cours des 400 000 dernières années.

Comment l'homme a-t-il réussi à modifier un paramètre terrestre ? Contrairement à la vapeur d'eau, ses émissions de CO_2 représentent une part non négligeable de l'ensemble des émissions de la Terre (biosphère et océan), comme on peut le constater sur la figure 1.2 dressant le bilan des flux de carbone. Le CO_2 introduit par l'homme dans l'atmosphère est en partie dissout dans l'océan et photosynthétisé par la biosphère. Il reste tout de même plusieurs milliards de tonnes qui s'accumulent chaque année dans l'atmosphère. La limitation de l'augmentation de la concentration en CO_2 passe nécessairement par une diminution -drastique- de nos émissions.

1.2 Emissions, perspectives et ressources

Ces émissions viennent en grande partie de l'utilisation des combustibles fossiles. Que ce soit pour alimenter des centrales thermiques, des chaudières domestiques ou des automobiles, ces combustibles sont devenus incontournables dans notre civilisation. Le type de combustible employé a varié selon les époques, du bois au pétrole en passant par le charbon. La figure 1.3 présente l'évolution des parts de marchés des différentes sources d'énergie, et illustre particulièrement la montée en puissance d'une source d'énergie, puis son déclin lorsqu'elle est remplacée par une solution plus avantageuse ou lorsque les réserves disponibles diminuent. Les courbes chaotiques, représentant les valeurs observées, suivent assez bien les tendances, ce qui permet d'éventuelles extrapolations sur le futur.

[1] Le lien de causalité entre la variation de CO_2 et la variation de température n'est pas démontré, mais tout de même admis par la communauté scientifique.

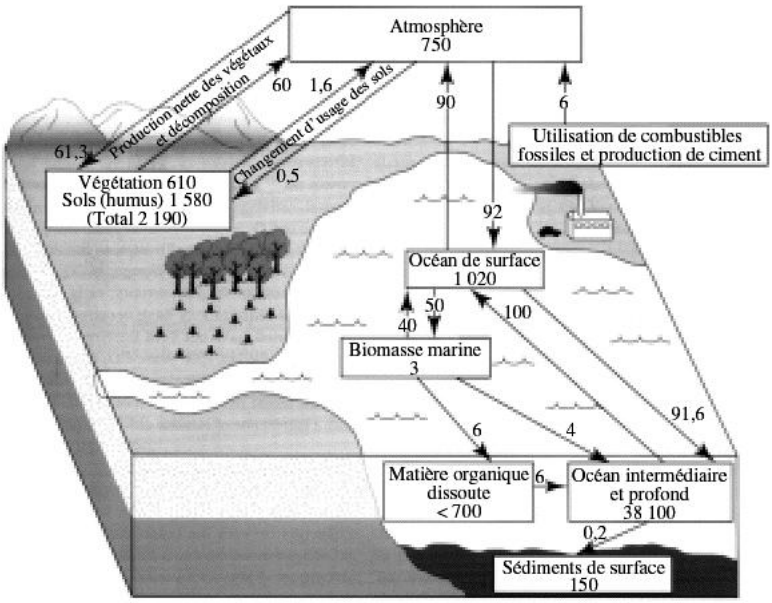


FIG. 1.2 – Flux annuels et stocks existants de carbone (en gigatonnes) en 2000 [1].

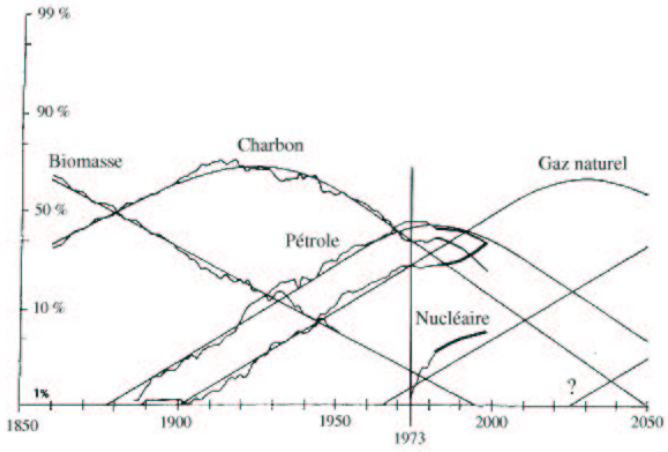


FIG. 1.3 – Evolution temporelle des parts de marchés des diverses sources d'énergie [2].

Si la combustion du gaz naturel rejette moins de CO_2 que celle du pétrole, qui elle même en rejette moins que celle du charbon, le gain n'est pas du tout suffisant pour limiter l'augmentation de sa concentration dans l'atmosphère. En effet, croissances économique et démographique aidant, la quantité totale d'énergie consommée en 2050 sera environ deux fois plus élevée qu'aujourd'hui [3]. De plus, ce calcul tient déjà compte d'une part substantielle d'économies d'énergie et d'améliorations de rendement, sans lesquelles il s'agirait plutôt d'un facteur 4. Rappelons sur ce point que les pays actuellement dit "développés" représenteront très probablement moins de la moitié de la consommation totale en 2050, et que les efforts de réduction doivent donc également être fournis par les pays émergents (en particulier la Chine et l'Inde). Or il semble impossible de forcer ces pays, éthiquement, économiquement ou militairement, à brider leur croissance par des économies massives d'énergie.

A partir de là se posent deux problèmes. Les ressources en pétrole et en gaz sont insuffisantes pour couvrir de manière durable de tels besoins. Que notre civilisation soit aussi dépendante du pétrole est en soi une faiblesse, qui pourra se révéler dangereuse lorsque la pénurie se fera sentir. Les réserves de charbon, à partir duquel on peut refabriquer les produits dérivés du pétrole (par procédé Fisher-Tropsch par exemple), sont plus importantes, mais l'utilisation massive du charbon engendrerait des conséquences néfastes localement (comme c'était le cas au XIX^e siècle) ou globalement (effet de serre). Le deuxième problème concerne justement la quantité de CO_2 dégagée par l'utilisation des combustibles fossiles. Malgré les techniques de séquestration du CO_2, qui ne sont réellement envisageables que pour des unités de production localisées, il semble très difficile de concilier réduction drastique de nos émissions et augmentation de la consommation d'énergie. Il apparaît incontournable de trouver une, ou plusieurs, sources d'énergie non émettrices de CO_2.

Diverses sources d'énergies de ce type sont déjà apparues : l'énergie nucléaire, hydraulique, issue des "nouveaux renouvelables" (solaire thermique, solaire photovoltaïque, éolien, géothermique, etc...). On citera également la biomasse, autant émettrice que consommatrice de CO_2, et l'hydrogène, qui n'est pas une source mais un vecteur d'énergie. Utilisée dans le passé, la biomasse pourrait faire un retour en force en tant qu'énergie propre compte tenu de sa facilité d'emploi. L'hydrogène permettrait, entre autres, de remplacer l'utilisation de combustibles fossiles dans le domaine des transports, par ailleurs en très forte progression. Notons que cet hydrogène doit d'abord être produit et que cela ne doit pas s'accompagner de rejet de CO_2 pour garder un intérêt à la filière.

La consommation mondiale d'énergie se monte actuellement à environ 10 milliards de tonnes équivalent pétrole (Gtep). Une large part de cette énergie est produite à l'aide de combustibles fossiles, soit 7.5 Gtep, suivie de la production dite "traditionnelle" des pays en voie de développement (bois principalement) qui se monte à 1.2 Gtep. Le reste se répartit presque équitablement entre l'énergie hydraulique et nucléaire. Les énergies renouvelables n'ont -pour l'instant- qu'une part marginale dans ce bilan avec environ 20 Mtep.

Le tableau 1.1 présente le bilan énergétique mondial pour l'année 2000 ainsi qu'une des perspectives possibles pour l'année 2050 [3]. Un doublement de la consommation d'énergie nécessite de produire 10 Gtep de plus. Rappelons au passage que ce doublement de la consommation est obtenu

en tenant compte de fortes économies d'énergie. Afin d'éviter de recourir aux énergies fossiles émettrices de CO_2, nous supposerons constante la production par les combustibles fossiles. C'est déjà un objectif difficile à atteindre, mais il permet probablement de réduire les émissions de CO_2 grâce aux techniques de séquestration. La production "traditionnelle" est supposée stagner pendant cette période. Les capacités de développement de l'énergie hydraulique étant limitées, nous ne considérerons possible qu'un doublement de la production. Les quelques 9 Gtep restantes sont réparties, de manière arbitraire, à égalité entre les énergies renouvelables et l'énergie nucléaire. Ce n'est bien sûr qu'une hypothèse, d'autres scénarios pouvant être adoptés. Celui-ci présente cependant plusieurs avantages :

- Il stabilise tout d'abord les émissions de CO_2, voire les diminue si la technologie permet de réduire les émissions des combustibles fossiles par unité d'énergie obtenue (amélioration des rendements et séquestration du CO_2).
- Il assure une équipartition entre énergies renouvelables et nucléaires, montrant ainsi la coopération possible et même nécessaire entre ces filières, souvent considérées comme antagonistes.

	2000	2050
TOTAL	10	20
Fossile	7.5	7.5
Traditionnel	1.2	1.1
Hydraulique	0.7	1.4
Nucléaire	0.6	5.0
Nouveaux renouvelables	0.02	5.0

TAB. 1.1 – Exemple de scénario énergétique (en Gtep).

1.3 Energie nucléaire et développement durable

Le développement demandé à l'énergie nucléaire, bien que sans commune mesure avec celui des énergies renouvelables, est assez conséquent. Répondre à cette demande en utilisant la technologie nucléaire existante engendre plusieurs problèmes. Dans les réacteurs actuels, utilisant de l'uranium enrichi en ^{235}U, moins de 1 % des noyaux de l'uranium naturel extrait contribue à la production d'énergie. Dans de telles conditions, l'épuisement prévisible des ressources naturelles en fait une solution non durable. De plus, cette filière fonctionne en cycle ouvert, c'est-à-dire accumulant le combustible usé. Or celui-ci contient du plutonium et d'autres TRansUraniens dont le recyclage est très problématique [4, 5].

1.3.1 Régénération et cycle du combustible

Il n'existe, à l'état naturel, qu'un seul noyau fissile (^{235}U) et deux noyaux fertiles (^{232}Th et ^{238}U). Les noyaux fissiles sont ceux qui, après absorption d'un neutron de basse énergie, se fragmentent en

libérant de nouveaux neutrons et de l'énergie. Les noyaux fertiles sont ceux qui, après absorption d'un neutron et plusieurs décroissances, forment un noyau fissile. L'ensemble d'un noyau fertile et de son noyau fissile associé forme un cycle de combustible. Il se trouve de plus que la quantité naturellement disponible de matière fissile (0.72 % de l'uranium) est très inférieure à celle de matière fertile. Le principe de régénération du combustible consiste à reformer la matière fissile (rare [6]) à partir de la matière fertile (abondante). Il permet donc d'augmenter substantiellement les ressources naturelles disponibles [7].

On dispose donc de trois options pour obtenir de l'énergie nucléaire à partir des éléments naturels : fission directe de l'^{235}U, régénération par le cycle ^{232}Th/^{233}U ou régénération par le cycle ^{238}U/^{239}Pu. La figure 1.4 récapitule, sous la forme d'un diagramme NZ, ces différentes options. L'^{235}U étant le seul élément fissile naturel, il était inévitable de commencer par la première option. Et comme l'^{238}U est mélangé à l'^{235}U, la transition vers le cycle ^{238}U/^{239}Pu paraît naturelle. De fait, les réacteurs actuels (type Réacteur à Eau Pressurisée) produisent déjà une fraction significative de leur électricité par la fission du ^{239}Pu. S'il est le plus facile à mettre en oeuvre, le cycle ^{238}U/^{239}Pu n'est pas forcément le plus avantageux, en particulier en ce qui concerne la production d'éléments radiotoxiques et les capacités de déploiement [5].

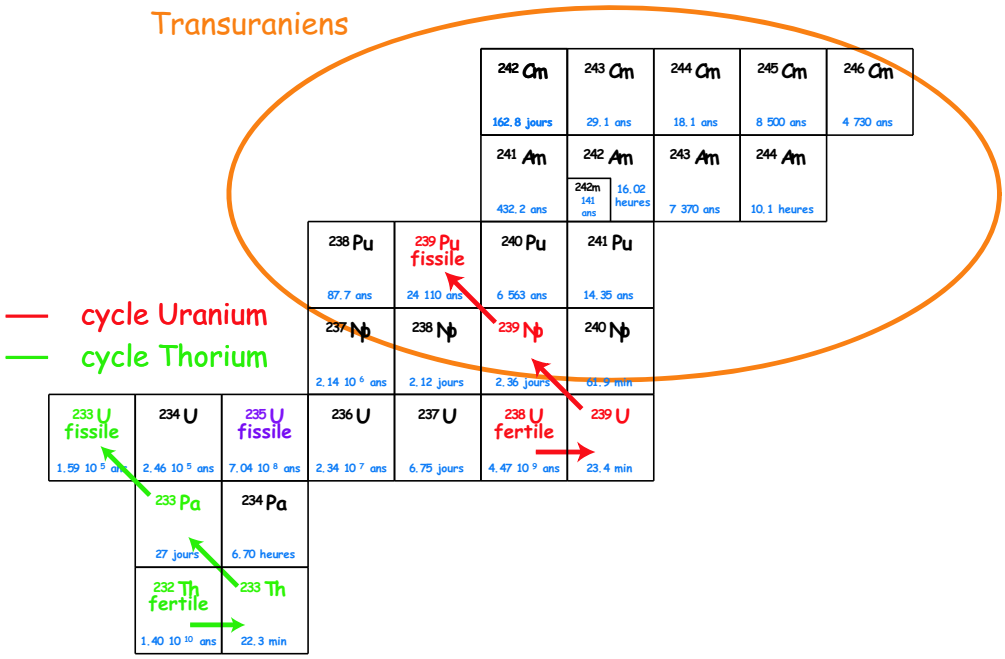


FIG. 1.4 – Diagramme NZ mettant en lumière les deux cycles du combustible et les premiers TRans-Uraniens.

1.3.2 Production de déchets radioactifs

Les matières très radioactives engendrées par la fission nucléaire sont principalement de deux types : les Produits de Fissions (PF) et les TRansUraniens (TRU). Les premiers sont issus des résidus du noyau fissionné. La plupart sont stables mais certains, radioactifs, nécessitent une gestion adaptée. Le ^{137}Cs, d'une période de 30.1 ans, doit par exemple être entreposé plusieurs centaines d'années. Le ^{99}Tc est quant à lui plus gênant, puisque sa période de 211 000 ans interdit tout suivi humain de sa décroissance. Les PF sont un résultat inévitable de la fission nucléaire et aucune méthode ne peut réduire leur production, sauf à améliorer les rendements thermodynamiques des installations. En revanche, certains, par exemple le ^{99}Tc, pourraient être transmutés pour être transformés en noyaux stables.

Les TRU sont obtenus lorsque le combustible capture un neutron au lieu de fissionner. Chaque capture supplémentaire augmente la masse du noyau, ce qui permet de former des éléments tels que l'Américium, le Curium, voire le Californium. Ces isotopes, dont les périodes radioactives sont indiquées dans le diagramme de la figure 1.4, sont beaucoup plus radiotoxiques [2] que les PF. Sur cette figure, on constate *de visu* que le cycle ^{238}U/^{239}Pu produit plus de TRU que le cycle ^{232}Th/^{233}U. En effet, l'élément fissile utilisé est lui même un TRU, et il suffit de quelques captures neutroniques pour former du Curium. En revanche, il faut 6 captures supplémentaires en partant de l'^{233}U, ce qui réduit considérablement la production de ces éléments radiotoxiques. Ainsi, le cycle ^{232}Th/^{233}U répond mieux au critère de minimisation des déchets à vie longue demandé par le forum Generation-IV [8] pour les réacteurs du futur [4, 5, 9] .

1.3.3 Types de réacteurs utilisant la régénération du combustible

D'un point de vue neutronique, ces deux cycles ne sont pas exactement identiques. Dans un réacteur nucléaire régénérateur, les neutrons sont utilisés pour maintenir la réaction en chaîne et pour assurer la régénération. Les captures dans le combustible, tout comme celles dans les structures, le modérateur ou les PF, sont autant de réactions dégradant les capacités de régénération du système. La figure 1.5 présente le nombre de neutrons disponibles par fission N_d pour les deux cycles du combustible, en supposant assurées la réaction en chaîne et la régénération, et en tenant compte des captures dans le combustible. Plus N_d est faible et plus il sera difficile d'obtenir la régénération. Comme on peut le voir, le cycle ^{238}U/^{239}Pu ne le permet réellement qu'en spectre rapide. En revanche le cycle ^{232}Th/^{233}U, bien que moins performant dans le domaine rapide, autorise la régénération du combustible quel que soit le spectre neutronique.

Dans le cadre d'une filière régénérant son combustible, il y a donc 4 options possibles : utilisation du cycle ^{238}U/^{239}Pu en spectre rapide, et utilisation du cycle ^{232}Th/^{233}U en spectre thermique, épithermique ou rapide. Comme précisé précédemment, la première option a été privilégiée et a mené à l'étude des Réacteurs à Neutrons Rapides (RNR) tels Superphénix. Dans ce type de réacteur, les

[2] La radiotoxicité quantifie la toxicité d'une substance radioactive, à partir de son activité et de son cycle biochimique dans l'organisme.

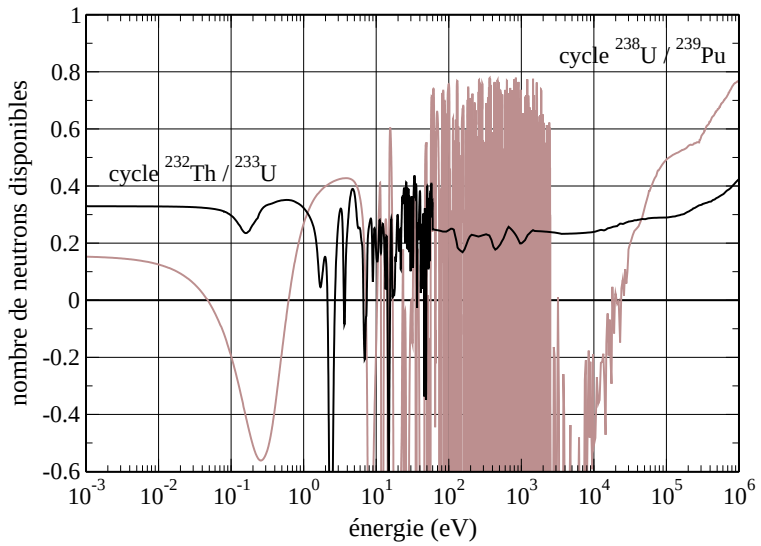


FIG. 1.5 – Nombre de neutrons disponibles en fonction de l'énergie des neutrons pour le cycle ^{232}Th/^{233}U et ^{238}U/^{239}Pu.

neutrons ne sont pas ralentis avant d'engendrer des fissions. Ainsi l'utilisation d'éléments légers, au fort pouvoir ralentisseur, y est proscrite. Le matériau caloporteur est généralement un métal liquide, comme le plomb ou le sodium. Compte tenu de la baisse des sections efficaces microscopiques de fission avec l'énergie des neutrons incidents, de tels réacteurs requièrent une grande quantité de matière fissile.

De ce point de vue, un spectre de neutrons thermique est préférable, ce qui implique alors l'utilisation du cycle ^{232}Th/^{233}U. Mais en spectre thermique, l'impact des PF sur le comportement neutronique du réacteur est beaucoup plus contraignant, en raison de leur fort pouvoir capturant. Pour garder un système régénérateur, il est nécessaire de retirer très régulièrement ces PF. L'utilisation de ce combustible dans un spectre neutronique différent, bien que ne bénéficiant pas de l'argument d'un faible inventaire de matière fissile, reste néanmoins à étudier, eu égard aux avantages apportés par le cycle ^{232}Th/^{233}U.

Les Réacteurs à Sels Fondus utilisent un combustible liquide circulant dans une matrice modératrice solide. Cette spécificité permet une extraction "en ligne" des PF, c'est-à-dire sans interruption pénalisante du fonctionnement du réacteur. Ils semblent donc particulièrement adaptés à l'utilisation du cycle ^{232}Th/^{233}U en spectre thermique. Cependant les RSF disposent d'autres atouts, les rendant intéressants quel que soit le spectre neutronique utilisé, voire même le cycle utilisé.

Contrairement aux combustibles solides, celui des RSF ne nécessite pas d'étape complexe de fabrication. En particulier, la présence de TRU dans le sel est beaucoup moins difficile à gérer. De même, le combustible liquide est peu sensible à l'irradiation, ce qui permet une possible augmentation de la puissance spécifique. De plus, les RSF disposent de caractéristiques de sûreté passive indéniables. Le combustible liquide peut être vidangé en cas de problème et ne présente, évidemment, pas de risque

de fusion accidentelle. Comme il est liquide à haute température, il n'est pas non plus utile de recourir à de fortes pressions, ce qui simplifie considérablement le design du réacteur.

Pour la suite, nous allons nous intéresser exclusivement à la combinaison des RSF et du cycle $^{232}Th/^{233}U$. Partant d'une configuration de référence épithermique, proche d'un concept existant (le Molten Salt Breeder Reactor, décrit au chapitre suivant), nous avons été amenés à élargir notre champ de recherche à l'ensemble du spectre neutronique, aussi bien rapide que thermique.

Chapitre 2

Présentation générale du concept

2.1 Historique

Le concept de réacteurs nucléaires basés sur l'utilisation d'un combustible liquide n'est pas nouveau puisqu'il remonte à la fin des années 40 [10, 11], une époque où un grand nombre de réacteurs nucléaires de tout type ont été imaginés, construits et testés. Cette phase de recherche intense a débouché sur le développement des quelques filières actuellement utilisées (réacteurs à eau pressurisée, réacteurs à eau lourde...). D'abord écartés au profit des réacteurs actuels, un certain nombre de concepts sont revenus sur le devant de la scène quelques décennies plus tard, comme par exemple les Réacteurs à Neutrons Rapides (RNR), et dans une moindre mesure les Réacteurs à Sels Fondus (RSF).

2.1.1 Les succès du passé

Depuis son apparition à la fin des années 40, le concept de RSF a été décliné sous différentes formes. Initialement prévu pour la propulsion aérienne avec l'ARE (Aircraft Reactor Experiment [10]), l'adaptation de ce concept à un but électrogène a engendré le réacteur de démonstration MSRE (Molten Salt Reactor Experiment [12]) dans les années 60. Ce démonstrateur a conduit à l'élaboration d'un projet de réacteur de puissance, appelé MSBR (Molten Salt Breeder Reactor [13]), qui n'a cependant jamais vu le jour.

Le projet MSBR a toutefois été repris par différents organismes de recherche de par le monde. Un certain nombre de nouvelles versions du concept ont été imaginées depuis les années 80, tels que le projet Thorims-NES (THORIum Molten Salt Nuclear Energy Synergetics system) de JAERI, TASSE (Thorium Based Accelerator driven System with Simplified fuel cycle for long term Energy production) du CEA ou AMSTER (Actinide Molten Salt transmutER [14, 15, 16]) d'EdF. Ces divers projets ont conduit le CNRS à s'intéresser au RSF et à développer le projet TMSR (Thorium Molten Salt Reactor).

2.1.1.1 Le réacteur ARE (Aircraft Reactor Experiment)

A l'Oak Ridge National Laboratory (ORNL), fondé en 1943 avec des objectifs militaires, est né le concept de Réacteur à Sels Fondus sous la forme d'un moteur d'avion, l'Aircraft Reactor Experiment [10] (1954), dont le schéma est exposé sur la figure 2.1. L'utilisation d'une telle technologie devait permettre d'allier autonomie, compacité et légèreté au moteur. Ce réacteur, d'une puissance de 2.5 MWth, a fonctionné -au sol- durant une centaine d'heures de façon tout à fait satisfaisante.

Le combustible utilisé pour ce réacteur était un mélange de fluorure dont la composition était : 53% NaF - 41% ZrF_4 - 6% UF_4[1]. Ce sel circulait au travers d'un bloc modérateur en oxyde de béryllium et ressortait à 860 °C. Si le sel s'est montré stable sous irradiation, les structures en Inconel 600 (78% Ni - 15% Cr - 7% Fe) ont montré lors du démantèlement une forte corrosion par le sel. Pour des raisons de sûreté inhérentes au principe même du projet, l'ARE est arrêté en 1957. Cependant, son succès encourage l'ORNL à poursuivre les recherches sur les RSF avec pour objectif la production de plutonium militaire.

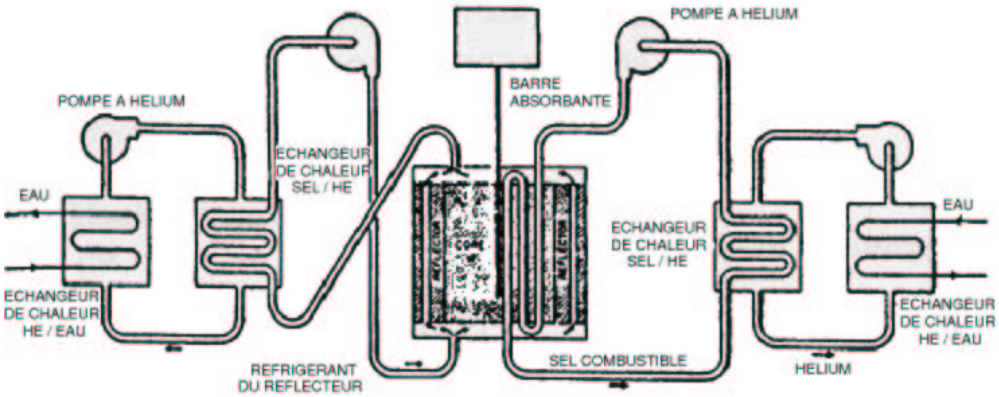


FIG. 2.1 – Schéma de principe de l'Aircraft Reactor Experiment.

2.1.1.2 L'expérience MSRE (Molten Salt Reactor Experiment)

Fort des réussites précédentes, l'ORNL construit en 1964 un réacteur de démonstration de 8 MWth. Le Molten Salt Reactor Experiment [12] (voir figure 2.2) est basé sur l'utilisation d'un modérateur en graphite percé de canaux, dans lequel circule le sel combustible. Celui-ci, de composition 66% LiF - 29% BeF_2 - 5% ZrF_4 - 0.2% UF_4 sort à près de 700 °C du coeur. Il évacue alors la puissance thermique par un sel secondaire (66% LiF - 29% BeF_2), lui-même refroidi par l'air. Les problèmes de corrosion rencontrés avec l'Inconel 600 ont été résolus par la mise au point de l'Hastelloy-N (70% Ni - 16% Mo - 7% Cr - 5% Fe), un matériau résistant à la corrosion du sel [12, 17, 18]. En raison de la très forte section efficace de réaction (n,t) du ^{6}Li, le lithium utilisé est enrichi à hauteur de 99.995 % en ^{7}Li.

[1] Toutes les compositions données dans cet ouvrage sont des compositions molaires.

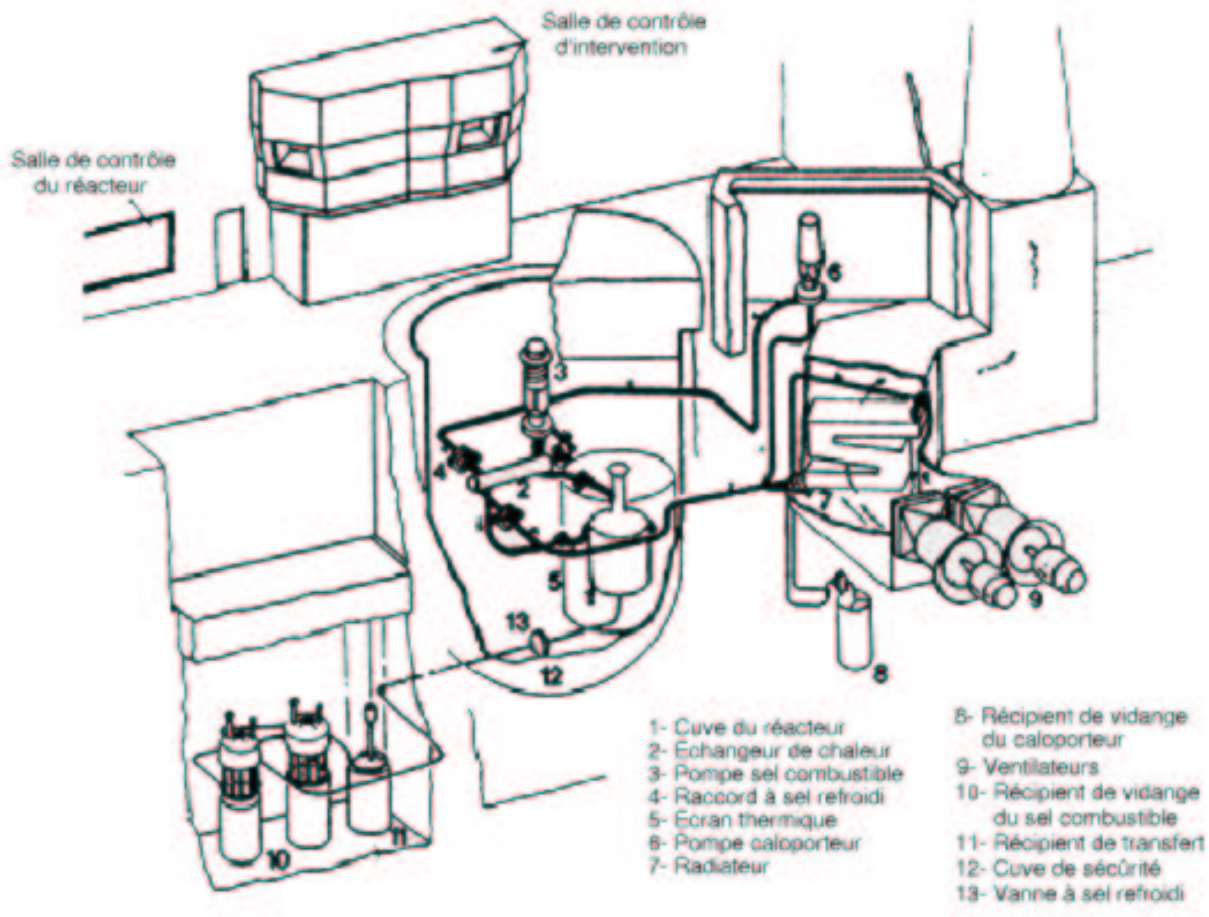


FIG. 2.2 – Ecorché du Molten Salt Reactor Experiment.

Ce réacteur a fonctionné pendant 4 années sans aucun incident avec un facteur de charge de 85 %. Différents noyaux fissiles ont été testés : uranium enrichi à 30 % en ^{235}U entre 1965 et 1968, ^{233}U pur entre 1968 et 1969, puis quelques centaines de grammes de ^{239}Pu mélangé à l'^{233}U en 1969. Le fonctionnement du MSRE, arrêté en 1969 pour des raisons budgétaires, a été très concluant, bien que le mélange ^{232}Th et ^{233}U prévu initialement n'ait pas été testé.

2.1.2 Le projet MSBR (Molten Salt Breeder Reactor)

L'expérience acquise avec le MSRE a toutefois conduit à l'élaboration dès 1969 d'un projet de réacteur d'une puissance de 1 GWe à base du combustible ^{232}Th/^{233}U et orienté vers la surgénération, appelé le Molten Salt Breeder Reactor [13] (voir figure 2.3). Le projet fut arrêté en 1976 au profit de la filière des réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium. Si ce projet n'a jamais abouti à la construction du réacteur, il n'en reste pas moins cohérent et détaillé, tant du point de vue de la thermohydraulique [19] que du point de vue du retraitement effectué [20]. C'est encore aujourd'hui une référence en matière de réacteurs à sels fondus.

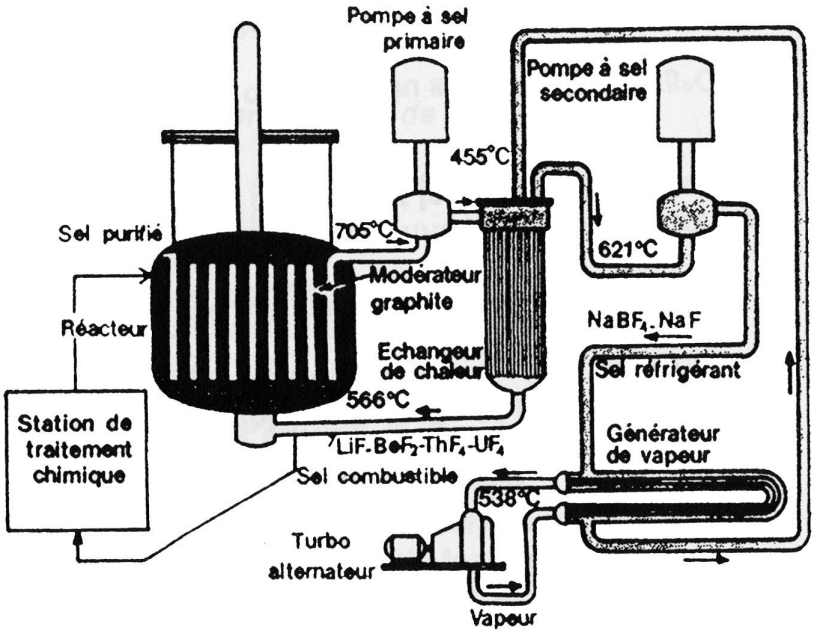


FIG. 2.3 – Schéma de principe du Molten Salt Breeder Reactor, comprenant le coeur nucléaire, le circuit de refroidissement et l'unité de retraitement.

Comme pour le MSRE, le coeur est constitué d'un bloc de graphite modérateur percé de canaux pour le passage du combustible, de composition 71.7% LiF - 16% BeF_2 - 12.3% $(NL)F_4$ (avec NL pour Noyaux Lourds). Celui-ci, échauffé jusqu'à environ 700 °C en sortie du coeur (650 °C de moyenne en coeur), est refroidi par un sel secondaire (92% $NaBF_4$ - 8% NaF). Les propriétés du sel combustible à 650 °C sont indiquées dans le tableau 2.1, et comparées aux propriétés de l'eau à 25 °C et 1 bar, ainsi qu'à 300 °C et 150 bars. Comparé à l'eau utilisée dans les REP, le sel combustible est près de 80 fois plus visqueux, ce qui se répercute directement sur la puissance à fournir pour sa circulation. On remarque aussi la très faible valeur de pression à saturation, ce malgré la température élevée. Ainsi, contrairement aux REP dont le circuit doit supporter une pression de 150 bars, les RSF opèrent à pression atmosphérique. Enfin, le sel conduit mieux la chaleur que l'eau (deux fois mieux que l'eau standard et trois fois mieux que l'eau pressurisée), argument intéressant quand on sait qu'il sert également de caloporteur.

Le passage de l'expérience MSRE à la conception d'un réacteur de puissance nécessite de coupler ce réacteur à une unité de retraitement. Celle-ci est destinée à extraire les Produits de Fission (PF) en ligne, de manière à limiter l'empoisonnement du coeur et maximiser ainsi la surgénération. Le retraitement prévu dans le cadre du projet MSBR consistait en un bullage et une unité de retraitement [13]. Par une circulation d'hélium au travers du sel combustible, le bullage permettait d'extraire les Produits de Fissions gazeux (tel que le xénon) ainsi que les métaux nobles (PF métalliques non solubles dans le sel). L'unité de retraitement devait traiter l'ensemble du volume du sel en une dizaine de jours. Cela permettait de retirer une large part du ^{233}Pa du flux neutronique afin d'éviter qu'il ne capture un neutron et ne forme de l'^{234}U fertile au lieu de l'^{233}U fissile. Afin de limiter la quantité de

Propriétés physiques	Sel combustible 650 °C	Eau 25 °C - 1 bar	Eau 300 °C - 150 bars
Densité ($g.cm^{-3}$)	3.3	1	0.726
Coefficient de dilatation ($g.cm^{-3}.K^{-1}$)	-6.7 $\times 10^{-4}$	-2.6 $\times 10^{-4}$	-3.2 $\times 10^{-3}$
Température de fusion (°C)	500	0	-
Température d'ébullition (°C)	$\simeq$1500	100	342
Pression à saturation (Pa)	13	3170	860 000
Viscosité (Pa.s)	7 $\times 10^{-3}$	9 $\times 10^{-4}$	9 $\times 10^{-5}$
Chaleur spécifique ($J.cm^{-3}.K^{-1}$)	4.5	4.18	7.53
Conductivité thermique ($W.m^{-1}.K^{-1}$)	1.2	0.61	0.41

TAB. 2.1 – Propriétés physique du sel combustible 71.7% LiF - 16% BeF_2 - 12.3% $(NL)F_4$ à 650 °C comparées à celles de l'eau à 25 °C / 1 bar et à 300 °C / 150 bars.

matière fissile placée à l'extérieur du coeur, la première étape consistait en une fluoration du sel, afin de récupérer l'uranium et de le réinjecter en coeur. Pour des raisons d'équilibre thermodynamique, les PF ne peuvent être extraits du sel avant les TRansUraniens (TRU). Ces derniers, accompagnés du Pa, étaient donc extraits préalablement par un échangeur à contre-courant sel / métal liquide (Bi métal) [17]. Ils étaient alors stockés de manière à laisser décroître le ^{233}Pa, avant d'être remis dans le sel traité retournant en coeur. Le sel ne contenant plus que les PF et le thorium, ainsi que des traces des autres éléments, passait pendant ce temps dans un autre système à contre-courant.

2.1.3 Quelques études postérieures au MSBR

Le projet MSBR est arrêté en 1976 aux Etats-Unis mais a continué d'être étudié, notamment en France jusqu'en 1983 [21]. De nombreuses variantes ont vu le jour (Thorims-NES, TASSE, AMSTER). Le MSBR a également été réévalué par le CNRS au début des années 2000, à la lumière de nouveaux codes de calcul présentés au chapitre suivant.

Le projet japonais Thorims-NES, toujours à l'étude actuellement, jugeait la surgénération du MSBR difficile à obtenir [22]. La production de matière fissile était donc découplée de la production d'énergie. La production d'^{233}U est alors assurée par un système sous-critique, l'Accelerator Molten Salt Breeder (AMSB). Dans ce système, un faisceau de protons de 1 GeV d'une intensité de 200 à 300 mA produit des neutrons par spallation dans le sel combustible sous-critique. La production d'énergie est quant à elle réalisée par des RSF de faible puissance et régénérateurs (réacteurs FUJI). Ces réacteurs sont fortement inspirés du MSBR, sans pour autant chercher à maximiser la surgénération.

Le besoin de plus en plus pressant de "propreté" d'une filière nucléaire a conduit le CEA à développer le concept de réacteur sous-critique TASSE [23]. Le retraitement y est ralenti pour limiter les rejets radiotoxiques, et les pertes neutroniques dans les PF sont compensées par la sous-criticité qui introduit des neutrons supplémentaires.

Le concept AMSTER d'EdF [15, 16] reprend quant à lui les principales caractéristiques du MSBR, déclinées selon différents modes de fonctionnement. Pour les mêmes raisons que dans le concept TASSE, le temps de retraitement est allongé de 10 à 300 jours.

2.2 Les matériaux utilisés dans les RSF

2.2.1 Le sel combustible

Le choix du sel combustible est un problème complexe, liant la chimie et la physique nucléaire. En effet les contraintes sur le sel sont nombreuses [24]. Il s'agit de trouver un sel qui fonde à une température suffisamment basse, qui soit stable thermiquement, chimiquement (avec l'apparition de nouveaux éléments dus aux fissions) ainsi que sous irradiation. Il doit également avoir une section efficace d'absorption faible pour ne pas dégrader le bilan neutronique, une faible pression de vapeur et ne pas entraîner de corrosion trop importante.

Il existe deux grands types de sels fondus envisageables : les fluorures et les chlorures. La minimisation des captures parasites implique de comparer les sections efficaces de capture du fluor et du chlore, ce qui est fait sur la figure 2.4 (partie de gauche). Le chlore est composé à 75.77 % de ^{35}Cl et à 24.23 % de ^{37}Cl, deux isotopes ayant une grande section efficace d'absorption. Le fluor est en revanche beaucoup moins absorbant aux énergies thermiques ou épithermiques, et convient de ce fait beaucoup mieux à l'utilisation dans des RSF modérés (MSBR ou AMSTER). Signalons qu'en spectre rapide, tous ces isotopes ont peu ou prou la même section efficace d'absorption. Le ^{19}F a cependant une très forte section efficace de diffusion inélastique à haute énergie, et un pouvoir modérateur plus fort du fait de sa masse plus faible. Il est donc particulièrement inadapté à l'utilisation en spectre rapide. Le réacteur à spectre rapide TASSE est d'ailleurs basé sur l'utilisation d'un sel combustible de chlorures. Signalons également que les fluorures sont thermiquement et chimiquement plus stables que les chlorures, ce qui rend leur utilisation moins complexe.

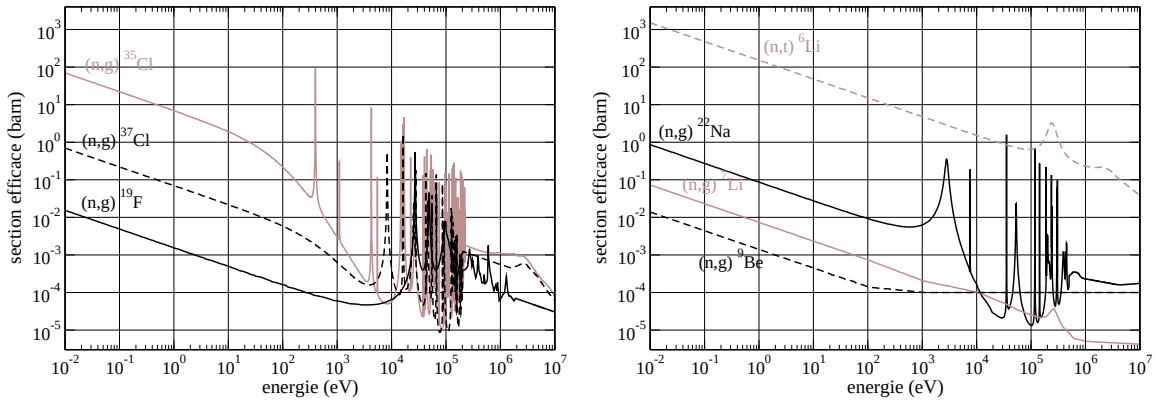


FIG. 2.4 – Section efficace d'absorption des différents éléments constitutifs de sel : fluor et chlore (à gauche), lithium, béryllium et sodium (à droite).

Comme la température de fusion de sels comme UF_4 ou ThF_4 est très élevée, supérieur à 1000 °C, il est indispensable d'ajouter au sel des composants dits "fondants" comme le LiF, le BeF_2, voire le NaF. Il faut bien évidemment tenir compte de leurs propriétés neutroniques [2], comme l'illustre la figure 2.4 (partie de droite). Le ^{6}Li absorbe principalement un neutron en se fractionnant en un tritium et un alpha. L'utilisation du lithium comme fondant implique de l'enrichir fortement en ^{7}Li, comme c'était le cas dans le projet MSBR où cet enrichissement se montait à 99,995 %. Dans ce projet, le choix du mélange a été motivé par plusieurs critères :

- une température de fusion inférieure à 550 °C pour des concentrations molaires en noyaux lourds de 10 à 30 %.
- une bonne solubilisation des éléments de valence III, particulièrement certains PF comme les Terres-Rares, ainsi que les TRU.
- une bonne stabilité chimique et thermique.

La forte proportion de noyaux lourds dans le sel, contrairement à l'ARE ou au MSRE, permet au MSBR de n'utiliser un combustible que faiblement enrichi et une grande quantité de matière fertile. Toutes ces contraintes ont amené à choisir pour le MSBR la composition 71.7% ^{7}LiF - 16% BeF_2 - 12.3% $(NL)F_4$.

2.2.2 L'irradiation du sel combustible

Les divers atomes présents en coeur ne s'entourent pas tous du même nombre d'atomes de fluor. Les PF sont principalement de valence II (SrF_2) ou III (NdF_3), mais peuvent aussi ne pas s'assembler avec le fluor (Xe, Mo). Le thorium, et généralement l'uranium, sont de valence IV (ThF_4, UF_4) [17, 21]. Au cours du fonctionnement du réacteur, la matière fissile disparaît au profit des PF, ce qui déstabilise le bilan du fluor. Cela se traduit par une lente augmentation du potentiel RedOx du sel. Ce potentiel peut être ajusté par un contrôle de l'uranium introduit en coeur, et en particulier du rapport U^{III}/U^{IV}. Signalons que la solubilité dans le sel des éléments de valence III est limitée, ce qui implique une saturation de leur concentration en sel et une précipitation de l'excédent. Les conditions dans lesquelles se réaliserait une telle précipitation ne sont pour le moment pas connues. Elle peut, selon le cas, être considérée comme gênante ou au contraire bénéfique.

2.2.3 Le modérateur et les structures

Le modérateur habituellement retenu pour les RSF est le graphite. D'un point de vue neutronique, le carbone a l'avantage d'avoir une très faible section efficace de capture (3 mb à 25 meV) et un bon pouvoir modérateur. Le graphite a de plus de très bonnes propriétés thermiques, alliant une bonne conductivité et une résistance aux très hautes températures (jusqu'à près de 3500 °C) [3]. Le graphite soumis à un flux de neutrons voit sa structure, et donc ses propriétés, se dégrader. Un remplacement du graphite irradié doit donc être envisagé régulièrement. Outre la complexité mécanique d'une telle

[2] A l'exception de celle du ^{6}Li, toutes les sections efficaces d'absorption données sont des sections efficaces de capture.
[3] Les propriétés physico-chimiques exactes dépendent du type de graphite utilisé.

opération, le graphite extrait est radioactif et doit être géré convenablement. Cette radioactivité provient de deux sources principales : la formation de ^{36}Cl au sein du graphite par capture neutronique sur le ^{35}Cl (naturellement présent à l'état de trace dans le graphite), ainsi que la présence en surface de PF instables. Le sel ne mouille pas le graphite mais des gaz, comme le xénon et le krypton, peuvent être adsorbés sur les parois. Cette adsorption peut être réduite en utilisant un graphite dense, dont le diamètre de pores est très faible (inférieur à 0.5 μm). Une fois implantés en surface du graphite, ces gaz décroissent en divers éléments instables (Cs, Sr, La, Y...) [17, 25]. Si le graphite n'est pas trop contaminé, il peut être stocké de manière à attendre la décroissance des radioéléments les plus gênants (^{137}Cs). Dans le cas contraire, il est tentant d'imaginer son recyclage en nouveaux blocs modérateurs.

Les matériaux constituant les structures, comme les canalisations, sont également soumis à de fortes contraintes. Ils doivent résister à la corrosion du sel, à la haute température, et être facilement usinables. Dans les RSF, peu d'éléments de structures sont situés à l'intérieur même du coeur, dans un flux neutronique intense, contrairement aux réacteurs à combustible solide. L'Hastelloy-N (68% Ni - 17% Mo - 7% Cr - 5% Fe) utilisé dans le MSRE, et particulièrement la version améliorée de cet Hastelloy-N, remplit ces critères [26, 27]. Ce matériau peut supporter des températures de 750 à 800 °C et la corrosion n'est que de quelques μm par an (à 750 °C pour un potentiel RedOx correspondant à un rapport $U^{III}/U^{IV} \leq 10^{-2}$ [15]).

2.3 Les problèmes du MSBR

Le projet MSBR a été abandonné parce qu'il souffrait d'inconvénients majeurs. En particulier, le retraitement envisagé était très contraignant et n'est, plusieurs décennies après, toujours pas considéré comme technologiquement réalisable. De plus, les récents calculs ont montré un inquiétant problème de sûreté, à cause d'un coefficient de contre-réaction légèrement positif [4]. La constatation des défauts du MSBR est la cause même de notre travail sur les RSF, ces deux points vont donc être développés plus précisément.

2.3.1 Le retraitement du combustible

2.3.1.1 Présentation détaillée

La figure 2.5 représente le schéma du retraitement envisagé pour le MSBR [13, 28]. Dans cette unité de retraitement devait passer l'ensemble des 50 m^3 du sel combustible en un délai d'une dizaine de jours. Ceci devait permettre de maximiser la surgénération en extrayant rapidement le ^{233}Pa et en limitant fortement les captures parasites sur les PF, et en particulier sur les lanthanides qui sont les PF les plus capturants. Le retraitement était prévu pour fonctionner en continu, c'est-à-dire que le sel combustible s'écoulait directement du coeur en passant successivement dans les différentes étapes du retraitement.

La première consiste en un passage du sel sous gaz HF (acide fluorhydrique) qui va volatiliser l'uranium sous la forme d'UF_6. Un certain nombre d'autres composés suivent le même chemin, tels

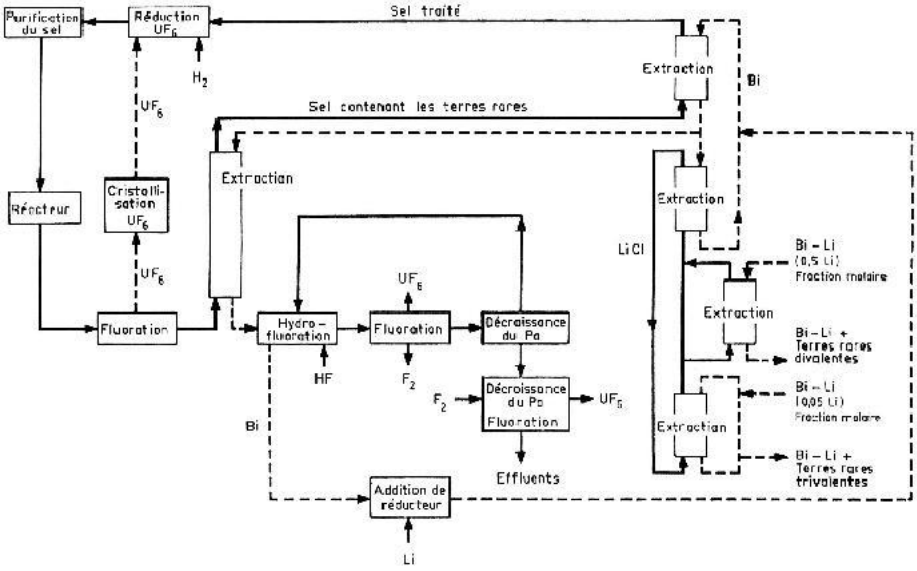


FIG. 2.5 – Schéma du retraitement envisagé pour le projet MSBR.

que le neptunium et l'iode (sous la forme NpF_6, IF_5 et IF_7) [15]. Le neptunium peut ensuite être séparé de l'uranium par une condensation sélective en jouant sur la température. L'efficacité de la fluoration est très bonne et seules des traces d'uranium continuent dans la suite du procédé.

Les étapes d'extraction suivantes sont constituées par un (ou plusieurs étage d'un) échangeur à contre-courant. Ces échangeurs réalisent l'extraction réductrice à l'aide de bismuth métallique liquide plus ou moins enrichi en lithium. Le bismuth a été choisi pour sa bonne solubilité du lithium, des PF et des actinides, ainsi que pour ses intéressantes propriétés thermiques (points de fusion à 271 °C et d'ébullition à 1564 °C). L'extraction réductrice consiste en un échange entre le lithium du métal et l'élément à retirer, selon la réaction chimique suivante [20, 29, 30] :

$$\mathrm{MF}_n(sel) + n\,\mathrm{Li}(metal) \rightleftharpoons \mathrm{M}(metal) + n\,\mathrm{LiF}(sel) \tag{2.1}$$

avec M l'élément à extraire et n sa valence

Comme la réaction correspond à un échange entre l'élément M et le Li, l'équilibre est gouverné par la concentration en lithium dans chaque phase. Comme la quantité de Li dans le coeur est fixée, la constante de réaction K pour chaque élément est dépendante de la quantité de Li présente dans le bismuth. Cette constante de réaction, dans le cas de solution idéale (ce qui est le cas tant que les proportions des éléments en question restent faibles par rapport au solvant), s'écrit sous la forme :

$$\mathrm{K} = \frac{X_{M(metal)}.X^n_{LiF(sel)}}{X_{MF_n(sel)}.X^n_{Li(metal)}} \tag{2.2}$$

avec X_i la fraction molaire de l'élément i qui est définie par $X_i = \frac{N_i}{N_{total}}$($N_i$ est le nombre de moles de l'élément i).

Une décomposition intéressante consiste à séparer les rapports de fraction molaire concernant le lithium de ceux concernant l'élément M. Cela nous donne deux grandeurs appelées coefficients de partage : $D_{Li} = \frac{X_{Li(metal)}}{X_{LiF(sel)}}$ et $D_M = \frac{X_{M(metal)}}{X_{MF_n(sel)}}$. L'efficacité d'extraction de l'élément M, c'est-à-dire la quantité extraite par rapport à la quantité restant dans le sel, est directement liée à D_M, que l'on peut écrire d'après les autres grandeurs :

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

Cette droite, appelée droite de partage de l'élément M, permet de connaître l'efficacité d'extraction du procédé en fonction de la quantité de lithium dans le métal. La figure 2.6 (partie de gauche) représente ces droites pour différents éléments : des actinides (en foncé) et quelques produits de fission (en clair). Le "domaine du métal" représente la zone où un élément donné est, à l'équilibre, plus concentré dans le métal.

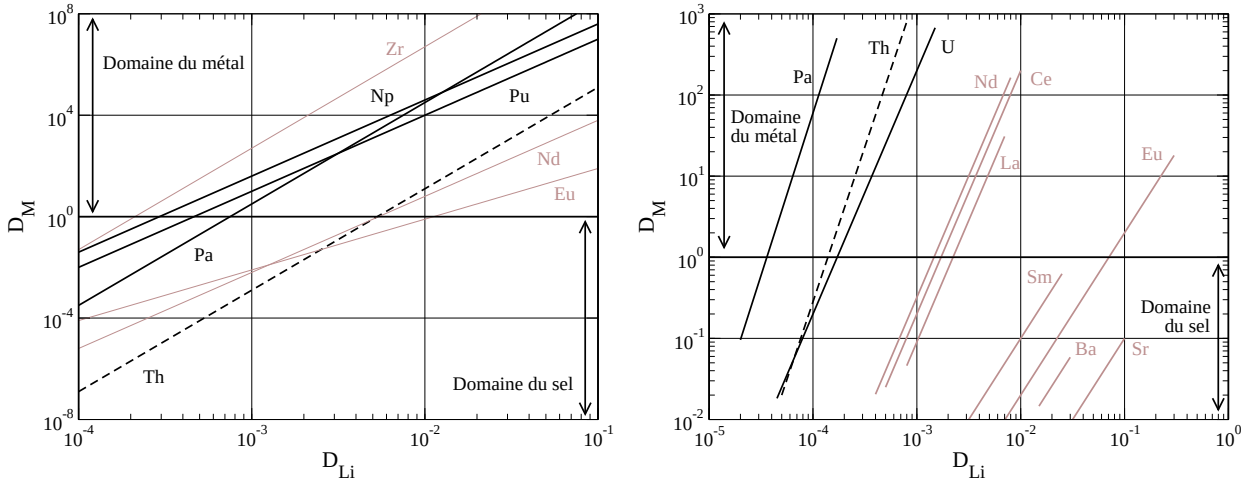


FIG. 2.6 – Coefficients de partage de différents actinides et produits de fission, en fonction du coefficient de partage du lithium, pour le couple LiF / Bi (valable pour le couple 71.7% LiF - 16% BeF_2 - 12.3% $(NL)F_4$ / Bi métal à 600 °C) (à gauche) et le couple LiCl / Bi (à droite) [30, 31, 32, 33].

On voit sur cette figure qu'il n'est pas possible d'extraire les lanthanides en présence d'actinides sans retirer également ces derniers. Cela justifie l'extraction préliminaire du Pa et des TRU. A cette étape, l'uranium n'est plus présent qu'à l'état de traces et suit les autres TRU. Quant au thorium, les quantités mises en jeu sont beaucoup trop importantes pour permettre de l'extraire. Cette première étape du retraitement peut être réalisée avec un coefficient de partage du lithium de 2.10^{-3} par exemple. Cela donnerait à l'équilibre des coefficients de partage pour le neptunium, le plutonium et le protactinium de 300, 80 et 50 respectivement. Signalons que ces rapports ne sont valables qu'à l'équilibre et que la cinétique de réaction détermine le nombre d'étages nécessaires pour s'en approcher suffisamment. Comme on le voit avec l'exemple du zirconium, certains PF peuvent suivre le chemin des TRU. Cela n'a que peu d'importance pour ce retraitement puisque ces PF n'ont pas d'im-

pact fort sur le comportement neutronique du réacteur : une extraction supplémentaire, même lente ou peu efficace, suffirait à les stabiliser à une concentration acceptable.

Une fois cette étape passée, le sel ne contient en proportion notable que du thorium et des PF. L'extraction réductrice utilisant le couple précédent (LiF / Bi) ne permet pas de séparer les PF du thorium. En effet, ce dernier est à la fois plus stable dans le métal que les PF pour les coefficients de partage du lithium élevés, et plus stable dans le sel pour les coefficients de partage faibles. Or, il est hors de question, tant d'un point de vue économique que du point de vue des ressources naturelles, de rejeter le thorium en même temps que les PF. Si le couple LiF / Bi ne permet pas de résoudre ce problème, l'utilisation d'un autre couple au comportement différent est possible. En particulier, le couple LiCl / Bi, dont les coefficients de partages sont indiqués sur la figure 2.6 (partie de droite), apporte une solution. On constate sur cette figure qu'un coefficient de partage du lithium de 3.10^{-4} conduit à une séparation du thorium (qui va dans le métal) et des lanthanides (qui vont dans le sel de chlorure).

Voyons à présent comment utiliser le couple LiCl / Bi, permettant l'extraction des PF, avec le sel de fluorure utilisé en coeur. La figure 2.7 illustre le schéma du principe d'extraction des PF. Ce procédé requiert deux échangeurs à contre courant (LiF / Bi et Bi / LiCl) et l'utilisation d'un métal de bismuth saturé en thorium. Le premier échangeur, dont le coefficient de partage du lithium est élevé (par exemple 4.10^{-2}), fait passer tous les PF dans le métal. Le thorium étant déjà présent en grande quantité dans le bismuth, le flux transitant du sel vers le métal reste faible. Le bismuth passe alors dans le second échangeur, dont le coefficient de partage du lithium de 3.10^{-4} permet le passage des PF dans le sel de chlorure mais garde le thorium dans le métal.

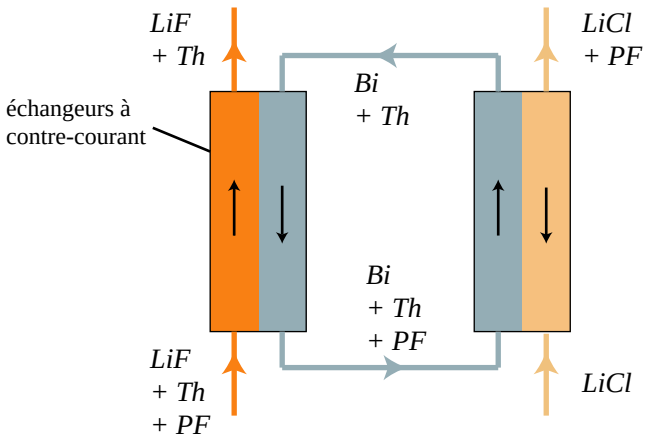


FIG. 2.7 – Schéma de principe de l'extraction des PF par les couples LiF / Bi et LiCl / Bi..

Une fois le sel combustible purifié, les TRU, l'^{233}U et le ^{233}Pa non décru sont réinjectés par un échangeur Bi / LiF afin de retourner en coeur. Les PF doivent quant à eux être gérés en vue de leur décroissance radioactive.

2.3.1.2 Le problème du retraitement

Ce retraitement est très efficace puisqu'il conduit à stabiliser la quantité de PF en coeur à une valeur très faible, et à stocker environ 80 % du ^{233}Pa hors flux. Cependant, un certain nombre de points négatifs assombrissent singulièrement ce constat, et rendent ce retraitement trop contraignant pour être envisagé dans un avenir proche.

L'aspect continu du retraitement implique un couplage direct entre le coeur nucléaire et l'unité de retraitement. Toute erreur dans un procédé chimique se propagera jusqu'au réacteur. Il semble en effet plus difficile d'établir un contrôle sur un flux entrant en coeur que sur des "batchs" isolés, quand on dispose de tout le temps nécessaire. La technologie requise par le retraitement continu, à savoir des échangeurs à contre-courant, est également beaucoup plus complexe que celle requise pour des opérations en "batch". Même si de tels échangeurs existent à l'heure actuelle, leur mise au point pour le domaine du nucléaire, et particulièrement la phase de validation, risque d'être longue, difficile et coûteuse.

De même, un retraitement aussi rapide a des répercussions sur les flux à traiter, qui se montent à 5 m^3 (contenant près de 7 tonnes de thorium) par jour. La moindre interruption de l'unité de retraitement remet en question le fonctionnement du coeur, du sel propre ne pouvant être injecté en coeur à un tel rythme bien longtemps. Cette vitesse conduit également à des pertes d'actinides au retraitement. Celles-ci représentent la fraction de Noyaux Lourds qui sont extraits avec les PF et considérés comme déchets. Elles ont donc un impact fort sur la radiotoxicité à long terme de ces déchets. De plus, la quantité de thorium perdu par cette voie peut devenir inquiétante d'un point de vue de l'économie des ressources. Il convient donc de minimiser toutes ces pertes.

2.3.2 La sûreté

Les calculs réalisés à EdF comme au CNRS, visant à réévaluer le concept MSBR ont mis en lumière un problème de sûreté du réacteur. Les coefficients de contre-réaction [4] calculés à l'époque étaient donnés légèrement négatifs (de l'ordre de -1 pcm/°C [13]), ce qui implique une stabilité intrinsèque du coeur nucléaire. En revanche, les deux réévaluations donnent des résultats légèrement positifs pour ces coefficients. Qui plus est, ces dernières ont été réalisées à l'aide de moyens de calculs totalement différents (calculs déterministes pour l'étude d'EdF et stochastiques pour celle du CNRS).

La non concordance des résultats peut probablement être expliquée par la rusticité des moyens de calculs de l'époque. Cela les avait en effet conduit à considérer le réacteur comme homogène afin de simplifier le problème. Comme il sera montré dans un prochain chapitre (6), le seul rapport de modération, c'est-à-dire la répartition entre graphite et sel, ne suffit pas à définir la sûreté du réacteur. Même s'il est techniquement possible de le piloter, il est dorénavant fort peu probable qu'un réacteur voit le jour sans avoir des coefficients de contre-réaction négatifs. Ainsi le MSBR n'est plus considéré comme un réacteur sûr, et un concept de RSF qui en est directement inspiré se doit de combler cette

[4] Les coefficients de contre-réactions, leur signification précise comme la façon dont ils sont calculés, seront présentés au chapitre suivant.

lacune.

Comme on peut le voir, le concept de MSBR souffre de sérieux problèmes de faisabilité et de sûreté. Près de 30 années après sa conception, ce projet fait encore partie des RSF de référence. L'objectif de notre travail est de trouver des solutions permettant d'aboutir à un ou plusieurs concepts de RSF, à la fois sûrs, régénérateurs, technologiquement réalisables... Nous allons détailler dans le chapitre suivant la méthode que nous allons suivre et les outils dont nous disposons pour cette étude.

Chapitre 3

Méthodes et outils

3.1 Méthodes de travail

Afin d'explorer au mieux les diverses possibilités offertes par le concept de RSF, nous avons été amené à modifier profondément les caractéristiques du réacteur. Ces modifications portent sur plusieurs paramètres particuliers tels que la géométrie du coeur ou le retraitement envisagé. Une grande partie du travail effectué est donc une étude paramétrique du fonctionnement d'un RSF.

Il existe un certain nombre de contraintes, permettant de juger des performances d'un système, et ainsi de comparer les systèmes entre eux. Nous avons mis particulièrement en avant dans nos études certaines contraintes : la sûreté, la faisabilité du retraitement, les capacités de régénération, la tenue du graphite à l'irradiation et l'inventaire en matière fissile nécessaire. Beaucoup de résultats obtenus seront ainsi passés au crible de ces cinq critères. Il existe également d'autres contraintes, non moins importantes, mais dont les résultats seront présentés moins fréquemment. On citera ainsi la thermohydraulique, la minimisation de la production de déchets radioactifs, les aspects de non-prolifération...

La prise en compte de l'ensemble de ces contraintes, et le recul que cela nécessite, sont fondamentaux. En effet, beaucoup de temps peut être perdu dans des axes de recherche en apparence prometteurs, mais ne respectant pas toutes les contraintes. Ce principe d'étude systématique est à la base de notre travail.

3.1.1 Sûreté

Nous nous sommes principalement focalisés sur l'étude des coefficients de contre-réaction, qui ne représentent qu'une des facettes de la sûreté. En effet, les modifications apportées au concept de RSF n'ont pas un impact significatif sur les caractéristiques générales de sûreté. Par exemple l'absence de fortes pressions, de réserve de réactivité, ou la possibilité de vidange du combustible ne sont pas affectées. Lorsque ce n'est pas le cas, une mention sera faite pour indiquer dans quelle mesure les modifications apportées perturbent la sûreté. Enfin, nos études ne prennent pas en compte l'analyse

des aspects plus cinétiques de la sûreté. Les transitoires, dus à des insertions de réactivité ou des défaillances techniques, n'ont pas été simulés.

Dans la majorité des cas on s'intéressera à la variation dk du coefficient de multiplication k en raison d'une variation de température dT du coeur ou d'une partie du coeur. Ce coefficient de contre-réaction, ou coefficient de température, doit être négatif afin d'assurer la stabilité intrinsèque du réacteur. Le calcul d'un coefficient de température est effectué de la façon suivante. Un premier calcul de k est effectué par MCNP [34], avec des compositions dépendant du calcul souhaité (coefficient de température initial ou final). Un deuxième calcul est alors réalisé, avec les mêmes compositions, mais pour une température du réacteur différente. En pratique, les modifications portent sur la température du sel lui-même et sur celle du graphite modérateur, mais également sur la densité du sel en raison de la dilatation de celui-ci (coefficient de dilatation de 10^{-3} /°C dans notre cas [35]). Le graphite garde quant à lui la même densité, sa dilatation étant beaucoup plus faible (de l'ordre de 10^{-6} /°C). La variation de température des autres matériaux (tels les réflecteurs ou la couverture) n'est pas prise en compte, ces matériaux ayant une contribution très faible et s'échauffant beaucoup plus lentement que le reste du coeur.

Le coefficient $\frac{dk}{dT}$ peut être décomposé en plusieurs sous-coefficients, relatifs à chacune de ces perturbations. Si l'on néglige les corrélations entre les différents effets, on obtient la somme :

$$\frac{dk}{dT}\Big)_{total} = \frac{\partial k}{\partial T}\Big)_{echauffement_sel} + \frac{\partial k}{\partial T}\Big)_{dilatation_sel} + \frac{\partial k}{\partial T}\Big)_{echauffement_graphite} \tag{3.1}$$

Une étude des corrélations entre effets est disponible en Annexe A. Hormis la dilatation, l'échauffement du sel a un double effet sur la neutronique du coeur. Il entraîne d'une part un élargissement des résonances des sections efficaces de réaction par un mécanisme Doppler. D'autre part, les neutrons sont en partie thermalisés par le sel, et la position en énergie de la partie thermique du spectre neutronique dépend de la température du modérateur. L'échauffement du sel conduit alors à un léger décalage de cette partie du spectre vers les hautes énergies. Ces deux effets seront cependant regroupés sous la seule appellation de $\frac{\partial k}{\partial T}\Big)_{Doppler}$, en raison de la prépondérance du premier effet et bien qu'il ne s'agisse pas d'un seul effet mais de la somme d'une multitude d'effets Doppler.

Le graphite modérateur est chauffé par les rayons γ issus des réactions nucléaires, ainsi que par la diffusion des neutrons en son sein. La puissance déposée est ensuite évacuée par la circulation du sel combustible. En cas d'excursion de puissance dans le sel, et compte tenu des propriétés thermiques des matériaux, le graphite verra sa température croître sur un temps relativement long (de l'ordre de plusieurs minutes [36]). Ce laps de temps peut alors être employé pour diminuer la réactivité, et donc la température du sel, par des moyens artificiels (mouvement des barres de contrôle) ou grâce aux coefficients de contre-réaction négatifs. Ainsi, un système dont le coefficient de température total est positif, mais dont celui du sel (somme du coefficient de "densité" et de "Doppler") est négatif, pourrait être pilotable. Nous limiterons cependant nos études aux configurations dont le coefficient

total est négatif, et dont la stabilité ne nécessite pas d'intervention extérieure. Cependant, à coefficient total similaire, on privilégiera les configurations dont le coefficient de sel est le plus négatif.

Si l'on excepte l'échauffement lent du graphite, la réponse -rapide- d'un coeur en cas d'insertion de réactivité dépend de ce coefficient de température. La température de pré-équilibre du sel (avant la contre-réaction du graphite) est fortement dépendante du coefficient de température. Si 1000 pcm sont introduits en coeur, la hausse de température sera de 500 °C pour un coefficient de sel de -2 pcm/°C, 200 °C pour -5 pcm/°C et 100 °C seulement pour -10 pcm/°C. De plus, en fonction de l'importance de l'excursion de puissance, la température du sel peut, l'espace d'un instant, fortement dépasser sa valeur de pré-équilibre. Or ce dépassement est d'autant plus fort que le coefficient de température du sel est faiblement négatif [37]. Comme l'objectif de sûreté est d'éviter les températures extrêmes et leurs fâcheuses conséquences, il est important d'obtenir le coefficient de sel le plus négatif possible. La sûreté peut encore être accrue si le coefficient concernant uniquement la dilatation du sel est négatif. Cela signifie qu'une diminution locale de densité, causée par exemple par le passage d'une bulle, conduit à une diminution de la réactivité du système.

L'incertitude sur les coefficients de température dépend d'erreurs statistiques, bien connues et pouvant être réduites, mais également d'erreurs systématiques non quantifiées, par exemple liées à l'évaluation des sections efficaces. Les coefficients de température doivent donc être suffisamment négatifs pour assurer sans ambiguïté la stabilité.

3.1.2 Faisabilité du retraitement

La contrainte de faisabilité du retraitement traduit la complexité de mise en oeuvre des procédés chimiques. En effet, certains procédés d'extraction sont considérés comme trop difficiles à mettre en oeuvre. Cela peut venir de plusieurs aspects : procédés utilisés mal connus ou mal maîtrisés, flux de matières à traiter trop importants, couplage direct avec le coeur...

L'expérience du MSRE nous apporte de plus quelques informations concernant la faisabilité du retraitement. En effet, des opérations d'extraction du xénon ont été réalisées lors de la dernière année de son fonctionnement et ont montré une efficacité acceptable. Le bullage nécessaire pour un réacteur de puissance est cependant plus complexe et doit encore être démontré. L'^{233}U fortement radioactif s'est quant à lui révélé facile à manipuler, ce qui aurait été plus délicat avec un combustible solide. Le processus de fluoration, testé pour changer de combustible, a débarrassé le sel de la totalité de son uranium en 4 jours. On ne considèrera donc pas cette opération comme une étape difficile du retraitement. En revanche l'extraction des PF pose de sérieux problèmes comme indiqué au chapitre 2.

Cette contrainte n'est pas quantitative et l'expertise nous manque pour juger objectivement de la faisabilité d'un procédé par rapport à un autre. Cependant, de l'avis général, le retraitement prévu pour le MSBR est considéré comme trop complexe. Il convient donc de s'en éloigner, tant par de nouveaux procédés d'extraction, des temps de retraitement moins contraignants, ou par un changement drastique dans le principe même du retraitement. L'objectif lors de nos études est d'obtenir le système le plus

simple compatible avec les autres contraintes. En particulier, on veillera à ne pas trop détériorer les capacités régénératrices du système.

3.1.3 Capacités de régénération

Comme expliqué précédemment, la régénération est la capacité d'un système à refabriquer son combustible nucléaire à partir de matière fertile, bien plus abondante dans la nature. Le taux de régénération indique le bilan entre la quantité de noyaux fissiles consommée (par fission et par capture principalement) et la quantité produite (par capture sur l'élément fertile). En cycle thorium il faut tenir compte du ^{233}Pa, obtenu par réaction (n,γ) sur le ^{232}Th. Sa période est en effet suffisamment longue (27 jours) pour lui permettre de capturer un neutron et de former de l'^{234}U non fissile, au lieu de l'^{233}U. Ce bilan s'écrit :

$$T_{reg} = \frac{\tau_{c,^{232}Th} - \tau_{c,^{233}Pa}}{\tau_{f,^{233}U} + \tau_{c,^{233}U}} \tag{3.2}$$

avecτ_c et τ_f respectivement les taux de capture et de fission des différents isotopes.

Le MSBR a été conçu avec comme objectif de maximiser la surgénération. Cela devait permettre de stocker en 20 à 30 ans suffisamment de matière fissile pour démarrer un nouveau réacteur, qui aurait alors fait de même, et ainsi de suite [4]. La politique actuelle est différente. Il semble envisageable que l'^{233}U nécessaire pour démarrer les premiers RSF soit produit dans des REP (à partir de MOX thorié) ou des RNR (dans des couvertures thoriées). Les capacités de production d'^{233}U de ces réacteurs dépassant probablement de loin la surgénération possible en RSF, il est concevable d'imaginer un scénario de déploiement à plusieurs strates [7]. A partir de là, la surgénération n'est plus l'objectif prioritaire pour les RSF.

Cependant, un taux de régénération inférieur à 1 indique une consommation d'^{233}U et nécessite d'alimenter régulièrement le coeur en matière fissile. Cela entraîne inévitablement un accroissement des quantités et des fréquences des transports de ces matières dangereuses. D'une manière similaire, une surgénération amène à devoir stocker ou transporter l'^{233}U produit en surplus. En revanche, cette surgénération peut être valorisée, les neutrons disponibles pouvant être dirigés vers une autre application (améliorer les coefficients de température, transmuter des PF ou incinérer des TRU...), de manière à se ramener à l'iso-génération.

3.1.4 Tenue des matériaux

Pour cette contrainte, nous nous intéressons plus particulièrement à la tenue du graphite sous irradiation. En effet, les neutrons diffusant dans le matériau peuvent expulser les atomes de carbone, leur conférant assez d'énergie pour créer un grand nombre de défauts dans le réseau. Les propriétés du graphite, telles que le volume, le module d'élasticité ou la résistance thermique, sont affectées par cette détérioration [38]. Pour des raisons évidentes de tenue mécanique, la variation de volume est la plus problématique. Soumis à un flux de neutrons, le graphite voit tout d'abord son volume diminuer,

en raison de la fermeture des microporosités. A des fluences plus élevées, le volume du graphite croît à cause des nombreux atomes déplacés qui perturbent l'organisation en plans hexagonaux (en raison des interstitiels et des lacunes). On appellera fluence limite la fluence pour laquelle le volume revient à sa valeur initiale, avant d'augmenter fortement.

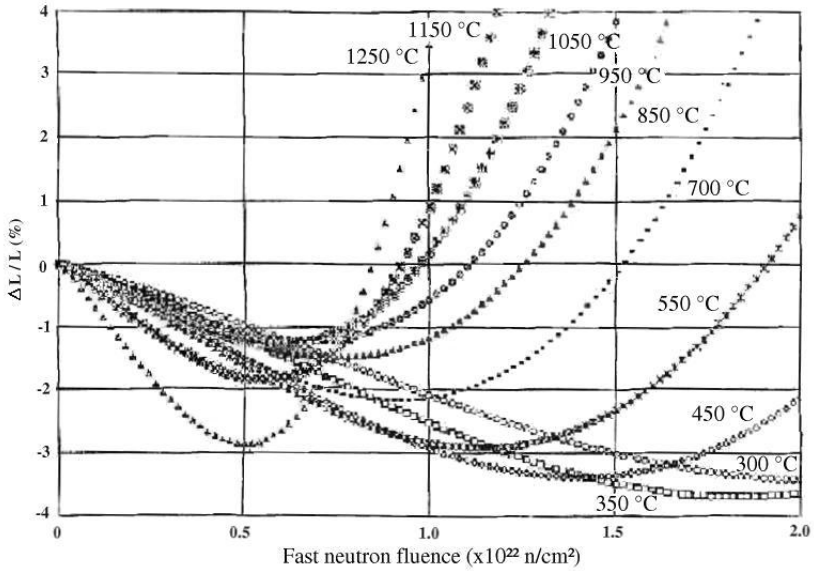


FIG. 3.1 – Variation à l'irradiation de la longueur d'un bloc de graphite en fonction de la fluence et pour différentes températures [39].

La figure 3.1 illustre cette variation du volume et indique une forte dépendance à la température d'irradiation. La température moyenne du coeur d'environ 650 °C correspond à une fluence limite d'approximativement $1.7.10^{22}$ n/cm^2. D'un autre côté, des études réalisées à l'ORNL se basaient sur une fluence limite de 3.10^{22} n/cm^2 [19]. Dans notre étude nous prendrons la valeur, plutôt pessimiste, de 2.10^{22} n/cm^2. Pour l'évaluation de cette fluence ne doivent être comptabilisés que les neutrons dont l'énergie est supérieure à 50 keV, seuls susceptibles de créer de réels dommages au graphite. La durée de vie du graphite découle de la fluence limite et du flux de neutrons par la relation :

$$D = \frac{f_{lim}}{\phi \times \rho} \tag{3.3}$$

avec f_{lim} la fluence limite, ϕ et ρ respectivement le flux moyen et la proportion des neutrons dont l'énergie est supérieure à 50 keV.

Le graphite le plus exposé du coeur est celui composant le modérateur. Le bloc modérateur est composé d'un réseau d'hexagones, percés en leur centre pour le passage du sel. Une fois arrivés en fin de vie, ces hexagones doivent être retirés et remplacés, ce qui est a priori délicat compte tenu de

la compacité du réseau. Pour des contraintes économiques, ces arrêts doivent être les moins fréquents possibles.

La gestion du graphite radioactif extrait n'est pas non plus chose aisée. En effet, le graphite des réacteurs UNGG n'a toujours pas été retraité, alors que cette filière est arrêtée en France depuis le début des années 70. Il semble de plus très difficile de recycler le graphite dans un nouveau bloc modérateur, en raison de sa forte radioactivité (mais ce point demeure discutable [40]). Puisque l'entreposage ou le stockage sont les seules solutions envisageables, il est fondamental de minimiser la quantité de graphite remplacé. Même si cet aspect est moins contraignant que celui concernant le temps de remplacement, il ne faut pas le négliger en raison de l'important volume du bloc modérateur.

Pour terminer, il faut signaler que le graphite est combustible et qu'il prend feu spontanément lorsqu'il est porté à haute température en présence d'oxygène. Bien que dans les RSF le milieu soit dépourvu d'oxygène, le risque de combustion accidentelle existe. Un tel foyer est extrêmement difficile à éteindre, d'autant plus difficile que le massif est important, en raison de l'inertie thermique qui entretient la combustion. De plus, l'incendie, et particulièrement la colonne d'air chaud en résultant, servent de vecteur de dissémination des PF présents dans le milieu environnant. Une fois propulsés dans l'atmosphère, ceux-ci peuvent alors contaminer des zones très éloignées. Sans bannir toute utilisation du graphite, il convient de garder à l'esprit qu'un bloc modérateur volumineux peut aggraver les conséquences d'un accident majeur.

3.1.5 Inventaire initial nécessaire

Cette grandeur représente la quantité de matière fissile nécessaire pour démarrer le réacteur. L'inventaire initial est ajusté de manière à obtenir un réacteur critique. En cycle thorium, l'^{233}U n'est pas immédiatement produit par capture sur la matière fertile en raison de la période du ^{233}Pa de 27 jours. Ainsi, pendant les premières semaines, l'uranium est consommé sans être régénéré. Cela se traduit par un besoin supplémentaire de matière fissile, jusqu'à équilibrage de la composition en Pa. Cet apport est ajouté à l'inventaire initial pour représenter l'inventaire nécessaire de matière fissile.

La quantité de matière fissile nécessaire pour démarrer un réacteur nucléaire a un impact direct sur ses capacités de déploiement [7]. Plus celle-ci est faible et plus rapide sera ce déploiement. De plus, tant pour des raisons de gestion que de transport, de risque de prolifération ou de sûreté, une petite quantité de matière fissile est préférable. Sans exclure les configurations à grand inventaire, on recherchera donc à minimiser celui-ci.

3.1.6 Production de TRansUraniens

La "propreté" est l'un des critères des réacteurs de Génération-IV. Cela implique une réduction drastique de la quantité d'éléments radioactifs rejetés, en particulier les noyaux à longue durée de vie : les Produits de Fission à Vie Longue (PFVL, tel que le ^{99}Tc, l'^{129}I et le ^{135}Cs) et les TRansUraniens. Les PF sont une donnée incompressible de la technologie "fission nucléaire" ; il n'est donc

pas possible de diminuer drastiquement leur production, sauf à améliorer les rendements thermodynamiques. Ceci étant, seuls les PFVL, soit une faible fraction des PF, posent un problème de gestion à long terme.

Les TRU sont en revanche beaucoup plus difficiles à gérer, de par leur durée de vie et leur radiotoxicité. Dans une optique d'incinération, certains TRU peuvent être replacés en réacteur. La fabrication d'un combustible solide est cependant rendue très délicate par ces éléments, en raison de la puissance thermique qu'ils dégagent. Rappelons que les demi-vies de l'^{241}Am, du ^{252}Cm et du ^{252}Cf sont respectivement de 432 ans, 18 ans et 2.6 ans. Plus gênants encore sont les neutrons émis par ces éléments "chauds", puisque leur proportion de fission spontanée sont respectivement de 4.10^{-12}, $1.3.10^{-6}$ et $3.1.10^{-2}$ (!). En effet, les protections nécessaires pour se prémunir d'un matériau émetteur de neutrons sont beaucoup plus contraignantes que pour un matériau émetteur de rayons γ. Enfin, pour éviter que des produits à longue durée de vie et très radiotoxiques ne soient mélangés aux PF lors d'un éventuel stockage, la séparation TRU/PF doit être la plus efficace possible. Les pertes au retraitement représentent la quantité de TRU qui sont extraits avec les PF et dépendent du taux de pertes au retraitement (fraction perdue à chaque retraitement), de la rapidité de ce retraitement, et bien sûr de la quantité de TRU en coeur.

L'objectif de cette contrainte est donc la minimisation de la quantité de TRU en coeur ainsi que la quantité extraite, volontairement lors du retraitement ou malencontreusement avec les PF. La composition de ces TRU est également un facteur à prendre en compte, étant données les disparités importantes au sein de ce groupe d'éléments.

3.1.7 Production de tritium

Le tritium est un élément radioactif β^- dont la période est de 12.3 ans. Il est pour cette raison considéré comme actif, sans pour autant disparaître immédiatement après l'arrêt du réacteur ou la sortie du combustible. Comme il a, plus encore que l'hydrogène, la capacité de diffuser dans les matériaux, il est difficile de le garder confiné pendant le temps de sa décroissance. A cela s'ajoutent les contraintes standard du stockage de l'hydrogène (risque d'explosion, volumes importants). Notons toutefois que ces difficultés peuvent probablement être contournées en insérant le tritium dans une molécule telle que l'eau (eau tritiée).

En tant que produit radioactif entraînant des difficultés de gestion, la production de tritium doit être minimisée. Les REP actuels produisent du tritium par réaction sur le bore et sur le deutérium de l'eau du circuit primaire, à hauteur de 2.8 g.GWe^{-1}.an^{-1} [41]. Par contre, les réacteurs CANDU, utilisant de l'eau lourde comme modérateur, en produisent 280 g.GWe^{-1}.an^{-1} [42]. Sans nier les contraintes que cela impose, une telle production semble être technologiquement gérable sans être économiquement rédhibitoire.

3.1.8 Aspects de thermohydraulique

Cette contrainte traite de l'écoulement du fluide combustible et de l'extraction de la puissance thermique. La principale limite que l'on peut imposer concerne la puissance des pompes nécessaire au bon fonctionnement du réacteur. La vitesse de circulation du sel, si elle n'est pas un problème en soi, se répercute immanquablement sur les frottements engendrés par le passage du sel (pertes de charge) et donc sur la puissance des pompes. Nous ne ferons pas une étude complète du couplage neutronique - thermohydraulique [36, 43, 44].

L'échauffement du sel lors de son passage en coeur (on appellera coeur uniquement l'ensemble des canaux de sel, en négligeant l'échauffement dans les plenums) est donné par la formule suivante :

$$\Delta T = \frac{1}{C_p} \times \frac{P_{th}}{V_{coeur}} \times t_{passage} \tag{3.4}$$

$$= \frac{1}{C_p} \times \frac{P_{th}}{S.H} \times \frac{H}{v} \tag{3.5}$$

avec :

ΔT la différence de température du sel entre l'entrée en coeur et la sortie

C_p la capacité calorifique volumique du sel

P_{th} la puissance thermique du réacteur

$V_{coeur} = S.H$ le volume de sel en coeur, égal au produit de la hauteur H par la surface de l'ensemble des canaux S

$t_{passage} = \frac{H}{v}$ le temps de passage du sel, pour parcourir la hauteur H à la vitesse v

Si l'on fixe ΔT , on peut déterminer la vitesse d'écoulement du fluide dans les canaux v. Cette vitesse entre en compte dans le calcul du nombre de Reynolds *Re*, grandeur hydraulique sans dimension caractérisant la turbulence d'un fluide, et donné par la formule :

$$Re = \frac{\rho.v.D}{\mu} \tag{3.6}$$

avec ρ la masse volumique, D le diamètre hydraulique et μ la viscosité dynamique.

Une fois connus le régime d'écoulement (grâce au *Re*) et la vitesse, il est possible de déterminer les pertes de charge occasionnées par le passage du sel dans les canaux. Ces pertes de charge représentent la pression qu'il faut appliquer pour faire transiter le fluide à la vitesse voulue dans les canaux. L'équation 3.7 donne la valeur des pertes de charge linéiques dans une conduite :

$$\frac{\Delta P}{H} = \frac{\lambda}{D} \times \frac{1}{2}\rho v^2 \tag{3.7}$$

avec λ un nombre adimensionnel appelé coefficient de pertes de charge. λ dépend du nombre de Reynolds et, dans le cas des écoulements turbulents, de la rugosité. Le diagramme de Moody, représenté sur la figure 3.2, donne la valeur de $\lambda(Re, \frac{\varepsilon}{D})$, tant pour les écoulements laminaires que turbulents.

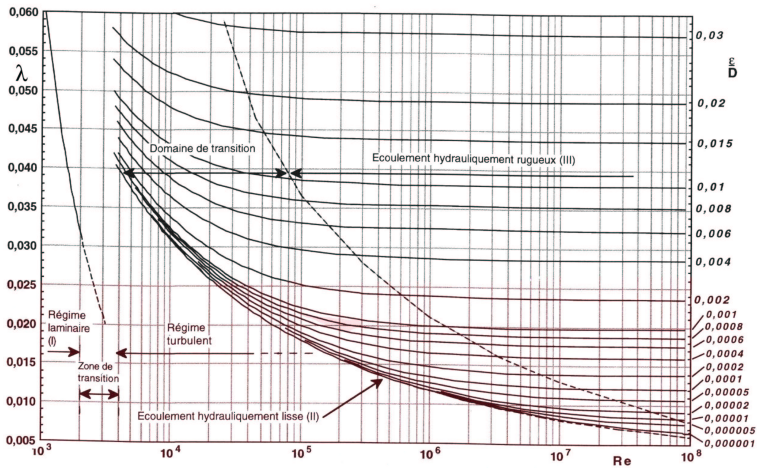


FIG. 3.2 – Diagramme de Moody : coefficient de pertes de charge λ en fonction du nombre de Reynolds *Re*, de la rugosité ε et du diamètre *D* du canal.

Satisfaire cette contrainte revient à ce que les pertes de charge occasionnées par le passage du sel ne soient pas trop élevées, typiquement inférieures à quelques bars. Le coeur n'est pas le seul endroit où les écoulements du combustible peuvent être délicats. Les échangeurs de chaleur sont, dans leur principe même, des dispositifs maximisant la surface d'échange et par conséquent les frottements. Ils sont bien évidemment le siège d'importantes pertes de charge.

L'autre aspect à ne pas négliger est l'extraction de la puissance thermique du coeur, c'est-à-dire l'efficacité et le nombre d'échangeurs thermiques nécessaires. Nous ne ferons pas ici d'étude de ces échangeurs, mais nous comparerons la puissance à extraire par unité de volume de sel par rapport à celle de la configuration de référence.

3.1.9 Résistance à la prolifération

La matière fissile représente un danger potentiel en cas de détournement à des fins plus ou moins militaires. Si la dissuasion et la protection active des installations est vitale, il est préférable que le procédé technologique lui-même soit un frein à la prolifération. Cela peut prendre une multitude de formes. La matière fissile peut, par exemple, être isotopiquement ou chimiquement dégradée (les isotopes/éléments fissiles mélangés avec des isotopes/éléments non fissiles) ou contenir des isotopes dangereux ou facilement détectables.

Dans le cadre des RSF en cycle thorium, deux aspects fondamentaux doivent être pris en compte :

– La demi-vie du ^{233}Pa (27 jours) est suffisamment longue pour permettre son extraction. Sa décroissance formera alors de l'^{233}U pur, dont la masse critique n'est que de 16 kg.
– L'avantage des RSF est de pouvoir extraire le combustible en ligne et de réaliser des opérations chimiques immédiatement et "assez simplement", contrairement au combustible solide requérant un long refroidissement et une usine telle que celle de La Hague. Mais du point de vue de

la contrainte de prolifération, cet avantage est un inconvénient puisqu'il facilite l'extraction de matière fissile du combustible. On voit ici que souplesse d'utilisation et non-prolifération sont deux concepts antagonistes.

Le cycle thorium présente cependant un atout intéressant. Celui-ci produit de l'^{232}U, soit par les réactions 3.8 à partir du ^{232}Th, soit, dans une moindre mesure, par une réaction (n,2n) sur l'^{233}U. La période radioactive de l'^{232}U est de 68.9 ans et celui-ci forme, après cinq désintégrations α et une β, du ^{212}Bi qui se désintègre à 36 % en ^{208}Tl et à 64 % en ^{212}Po. Or le ^{208}Tl décroît à son tour par réaction β^- en ^{208}Pb en émettant quasi-systématiquement un rayon γ de 2 614 keV. Un γ d'une telle énergie est difficile à arrêter, que ce soit pour s'en protéger ou pour dissimuler sa présence. Si cela complexifie un peu les opérations nécessaires dans le cadre d'une exploitation nucléaire, cela s'avère en revanche très pénalisant pour toute activité clandestine. D'autant plus que l'^{232}U ne peut pas être séparé chimiquement du reste du combustible, et lui est ainsi "définitivement" associé.

$$\begin{cases} {}^{232}\mathrm{Th} + \mathrm{n} \xrightarrow[(n,2n)]{} {}^{231}\mathrm{Th} \xrightarrow[\beta^-]{26\,h} {}^{231}\mathrm{Pa} \\ {}^{231}\mathrm{Pa} + \mathrm{n} \xrightarrow[(n,\gamma)]{} {}^{232}\mathrm{Pa} \xrightarrow[\beta^-]{1.3\,j} {}^{232}\mathrm{U} \end{cases} \tag{3.8}$$

Nous évaluerons pour cette contrainte la résistance à la prolifération des différents systèmes étudiés, en particulier l'isolement du combustible et la présence d'^{232}U, et nous tenterons éventuellement de proposer des solutions permettant de l'améliorer.

3.1.10 Poids des contraintes

Toutes ces contraintes ne sont pas équivalentes et un poids peut être affecté à chacune d'elles. Il apparaît en effet évident que le critère de sûreté a préséance sur celui de l'inventaire. Ces poids dépendent des technologies disponibles et des objectifs gouvernant les choix de réacteurs (déploiement du nucléaire ou stagnation à puissance constante).

Les dernières contraintes définies ne sont pas obligatoirement affectées de poids inférieurs. Par exemple, les limites concernant la thermohydraulique ne peuvent être considérées comme secondaires. De même, un réacteur nucléaire favorisant la prolifération pourrait être scientifiquement satisfaisant, mais politiquement inacceptable. Signalons qu'il est parfaitement possible de définir de nouvelles contraintes, mais que celles définies dans cet ouvrage sont suffisantes pour les larges études d'exploration du potentiel des RSF que nous réalisons.

Comme les performances d'un système dépendent des poids affectés à ces contraintes, il n'est pas possible de définir la meilleure solution, mais seulement de mettre en lumière certaines tendances intéressantes. Cela permet une meilleure compréhension du système en vue d'une définition d'un

réacteur de puissance déployable (contraintes fortes) comme d'un démonstrateur (contraintes plus faibles).

3.2 Outils de simulation

Le recours aux simulations numériques est très important dans l'étude des réacteurs nucléaires. Cela permet d'analyser une large gamme de réacteurs sans avoir à répondre à de très lourdes contraintes expérimentales.

3.2.1 Simulations et codes de calcul

Les simulations numériques ont pour objectif de reproduire le transport des neutrons dans le coeur, en vue d'obtenir les différentes propriétés de celui-ci (flux, taux de réaction...). Il existe deux grandes familles de programmes de simulations numériques : les codes déterministes et les codes stochastiques. Les premiers sont basés sur la résolution de l'équation de transport neutronique ou équation de Boltzmann. Compte tenu de la complexité du problème, de nombreuses hypothèses simplificatrices doivent être posées pour la résoudre. Les seconds sont quant à eux basés sur une approche probabiliste visant à reproduire le parcours d'un ensemble statistique de particules. Ils nécessitent une puissance de calcul importante et leur utilisation est favorisée par le développement du parc informatique.

Le choix a été fait d'utiliser MCNP (Monte Carlo N Particule), un code stochastique développé au Los Alamos National Laboratory [34]. Ce choix découle tout d'abord de raisons historiques, les membres du Groupes de Physique des Réacteurs ayant décidé de mettre leur expérience des codes stochastiques au service de l'étude des réacteurs nucléaires. Ensuite, il apparaît que les codes stochastiques sont plus précis que les codes déterministes dans leur description des phénomènes mis en jeu. En particulier, les codes Monte Carlo réalisent un traitement continu de l'énergie des neutrons, là où les codes déterministes rassemblent ceux-ci en domaines d'énergie (interprétation multi-groupe).

3.2.2 Fonctionnement du code MCNP

3.2.2.1 Principe

Le principe fondamental du fonctionnement de MCNP est de calculer le comportement d'un vaste ensemble de neutrons, en simulant l'histoire de chacun d'eux, de son apparition à sa disparition.

En partant de la naissance du neutron, MCNP détermine successivement : la position de la prochaine interaction, le noyau sur lequel l'interaction se fait, et enfin le type de réaction. Pour la première étape, MCNP calcule le libre parcours moyen, à partir des sections efficaces d'interaction des matériaux en présence ainsi que leur composition, par la relation :

$$l(E) = \frac{1}{\Sigma^{tot}(E)} = \sum_i N_i \sigma_i(E) \tag{3.9}$$

avec $l(E)$ le libre parcours moyen, $\Sigma^{tot}(E)$ la section efficace macroscopique totale d'interaction, N_i et $\sigma_i(E)$ les quantités et les sections efficaces microscopiques d'interaction des éléments *i* constituant le matériau.

Une fois le point d'interaction déterminé, l'élément cible (^{233}U, ^{232}Th, ^{7}Li...) et la réaction (diffusion élastique, fission, capture...) sont choisis aléatoirement, en fonction des proportions N_i et des sections efficaces σ_i. Le procédé entier est réitéré jusqu'à ce que le neutron disparaisse par absorption sur un noyau ou s'échappe du coeur. La première partie du calcul MCNP consiste à propager ainsi les neutrons et relever les coordonnées de chaque fission. Celles-ci marquant le point de départ des nouveaux neutrons, cette étape du calcul permet de créer une source tridimensionnelle de neutrons utilisée par la suite.

3.2.2.2 Les besoins du code MCNP

Pour effectuer ces opérations, MCNP requière un certain nombre d'informations. La géométrie du réacteur, découpée en un nombre très variable de "cellules", associée aux caractéristiques (éléments, proportions, températures...) des matériaux présents dans chaque cellule, constitue la base du fichier d'entrée de MCNP.

Ensuite doivent être fournies les sections efficaces d'interaction de chaque élément utilisé dans le réacteur. Ces informations sont disponibles dans diverses bases de données au format ENDF (Evaluated Nuclear Data File [45]). Une transformation à l'aide du programme NJOY [46] les convertit en un format lisible par MCNP. Les bases de données les plus complètes sont les bases américaine ENDF/B-VI, japonaise JENDL 3.2 et européenne JEF 2.2. Un couple élément/réaction non présent dans une base peut ainsi l'être dans une autre. Nous utilisons ces bases dans cet ordre de priorité, à l'exception de quelques noyaux particuliers qui sont spécifiquement choisis dans l'une ou l'autre de ces bases.

Enfin, le fichier peut comporter certaines informations relatives aux résultats attendus par l'utilisateur. Le coefficient de multiplication k_{eff}, les sections efficaces moyennes de réaction, le flux neutronique sont autant d'observables que le code peut calculer.

3.2.3 Fonctionnement du code d'évolution

3.2.3.1 Objectif et couplage

Que le code de transport de neutrons soit déterministe ou stochastique, il ne fournit d'informations qu'à un instant donné de la vie du coeur. Or l'étude de réacteurs nucléaires nécessite de connaître également l'évolution temporelle de ce coeur. Pour ce faire, le code de transport est couplé à un code d'évolution.

Ce second programme, développé avant mon arrivée [9], a pour but de modifier la composition des matériaux en fonction des réactions ayant lieu en leur sein, et en fonction de paramètres externes tels que le retraitement. Cette évolution va à son tour engendrer des modifications au niveau du calcul

neutronique. Un nouveau calcul MCNP est alors à faire, tenant compte des nouvelles compositions des matériaux ayant évolué. Un certain nombre d'aller-retours sont nécessaires pour atteindre le temps total d'évolution souhaité.

3.2.3.2 Principe général

Les concentrations $N_i(t)$ de tous les noyaux satisfont à un système d'équations différentielles linéaires couplées : les équations de Bateman. Ces équations sont de la forme :

$$\frac{\partial N_i}{\partial t} = \sum_j \left(\left\langle \sigma_j \phi(t) \right\rangle N_j(t) b_{j\to i} + \lambda_j N_j(t) b'_{j\to i} \right) - \langle \sigma_i \phi(t) \rangle N_i(t) - \lambda_i N_i(t) \tag{3.10}$$

avec :

- σ_i la section efficace microscopique de réaction sur l'isotope i
- $b_{j\to i}$ le rapport de branchement de l'isotope j vers l'isotope i par réaction
- $b'_{j\to i}$ le rapport de branchement de l'isotope j vers l'isotope i par décroissance
- $\phi(t)$ le flux neutronique

Le terme "somme" représente l'apparition de l'isotope i respectivement par réaction (fission ou capture neutronique) et par décroissance radioactive. Les deux derniers termes concernent sa disparition par réaction et par décroissance.

Au début de chaque pas d'évolution, le programme établit "l'arbre des noyaux" pour chaque matériau dont l'évolution est demandée. Un tel arbre détermine les liens de filiation entre les isotopes présents dans le matériau. Ces liens prennent en compte aussi bien les décroissances radioactives que les réactions, comme le montre la figure 3.3. Cet arbre est réalisé de proche en proche, connaissant les différentes réactions et décroissances s'appliquant à chaque noyau. On connaît donc pour chaque noyaux ceux qui le forment (les noyaux pères) et ceux qui en descendent (les noyaux fils), ce qui permet de résoudre l'équation 3.10. Signalons que dans ce programme les PF sont traités isotope par isotope, et non regroupés en pseudo-PF comme cela peut-être le cas dans d'autres méthodes de calcul.

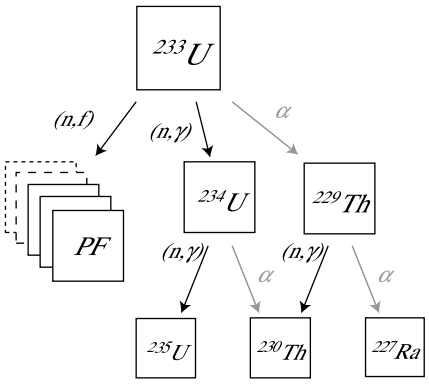


FIG. 3.3 – Exemple simplifié d'arbre de décroissance.

Pour diminuer le temps de calcul, cet arbre peut être fortement simplifié. Lorsque les décroissances sont suffisamment rapides, le noyau est “élagué”, c’est-à-dire supprimé et remplacé directement par ses noyaux fils. Ce temps d’élagage est généralement pris égal à 10 heures, de manière à traiter convenablement des noyaux tels que l’américium (^{244}Am et ^{242}Am de périodes respectives 10.1 et 16.0 heures).

Lors de l’évolution des compositions, la matière fissile comme la matière fertile est consommée. Cela entraîne une modification des propriétés du coeur. En particulier, la criticité peut ne plus être assurée puisque la matière fissile est consommée. Afin de maintenir le réacteur critique, celui-ci est régulièrement alimenté en ^{233}U. De même, une alimentation en ^{232}Th maintient la proportion de noyaux lourds constante. Malgré ces ajustements, le taux de fission total du coeur évolue en raison du changement de composition isotopique de la matière fissile. Le niveau de flux est modifié afin de garder ce taux de fission, et donc la puissance thermique, constants dans le réacteur. La précision souhaitée par l’utilisateur joue sur les temps entre les ajustements et pilote fortement la durée réelle d’un calcul d’évolution.

3.2.3.3 Couplage avec la chimie

Les Réacteurs à Sels Fondus ayant l’avantage d’avoir un combustible pouvant être retraités en ligne, il faut adapter la méthode de calcul à ces spécificités. En particulier, des noyaux peuvent être extraits du coeur, non à des instants précis mais en continu. Cela se fait de la même manière que pour les décroissances radioactives. Pour chaque élément concerné est indiqué un temps de retraitement $T_{retr.}$ et une efficacité d’extraction ε. $T_{retr.}$ représente le temps moyen nécessaire pour retraiter l’ensemble du sel du coeur. Il s’apparente à une demi-vie par la relation $T_{\frac{1}{2}} = \frac{\ln 2 \times T_{retr.}}{\varepsilon}$.

La constante d’extraction $\lambda_{extr.} = \frac{1}{T_{extr.}}$ s’introduit dans l’équation 3.10 par un terme de la forme $-\lambda_{extr.i} N_i$. Par cette méthode, l’extraction des noyaux est intégrée à l’arbre de décroissance, de la même manière que les décroissances radioactives. Cette méthode revient à définir un marqueur de position pour le noyau. Ce marqueur caractérise l’endroit géographique où celui-ci se trouve. Ainsi, il est possible de déplacer un noyau pour l’extraire du coeur, ou pour le faire transiter d’un endroit donné à un autre. En particulier, il est possible de simuler les différentes étapes d’une unité de retraitement, en associant des périodes de décroissance et des directions différentes aux éléments [47]. Enfin, un élément extrait peut être réinjecté en coeur par une remise à zéro de ce marqueur de position.

Bien que faisant partie de l’arbre des noyaux, les éléments extraits sont mis hors du flux neutronique et aucune réaction nucléaire ne s’applique à plus eux.

La figure 3.4 récapitule l’organisation des différents programmes réalisant la simulation d’évolution de réacteur. Le code MCNP y tient une part centrale, comme dans la répartition du temps de calcul. Les résultats sont bien évidemment fonction des bases de données, tant nucléaires que chimiques. En particulier, il manque certaines sections efficaces dans les bases nucléaires, tandis que certaines autres sont mal connues [48, 49]. Cela conduit directement à une erreur sur le taux de réaction des noyaux concernés. De même, les données chimiques utilisées sont parfois sujettes à caution.

En effet, l'évaluation de ces données est très délicate, et l'éloignement thématique de ce domaine ne facilite pas son intégration dans les simulations.

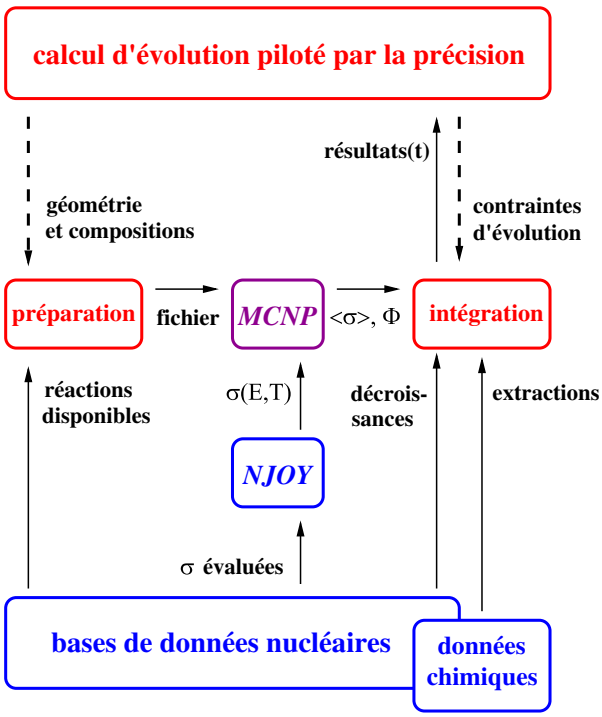


FIG. 3.4 – Organisation des outils autour de MCNP.

3.2.4 Description de la géométrie

Le fichier fourni à MCNP, contenant la description de la géométrie du réacteur ainsi que les matériaux et les références aux sections efficaces, est très complexe, même pour un réacteur de géométrie épurée comme le RSF. Afin de faciliter les études et d'éviter les erreurs, ce fichier est généré automatiquement à partir d'un fichier plus simple listant une série de paramètres, tels que la taille des hexagones, le rayon des canaux de sel, les températures du graphite ou du combustible... [9].

Dans ce fichier sont également indiqués les paramètres concernant la précision souhaitée, tant celle des calculs MCNP, que celle des calculs d'évolution ou le temps minimum d'élagage.

3.2.5 Ajustement de la composition initiale

Pour éviter d'obtenir des résultats trop fluctuant au début de l'évolution du réacteur, il est nécessaire d'ajuster la composition du combustible de manière à obtenir un réacteur critique. La modification est apportée à la proportion de noyaux fissiles présents, et se répercute sur celle des noyaux fertiles pour garder une proportion de noyaux lourds constante. Un programme simple couplé à MCNP

permet d'itérer à partir d'une proportion quelconque vers la proportion critique, comme le montre la figure 3.5.

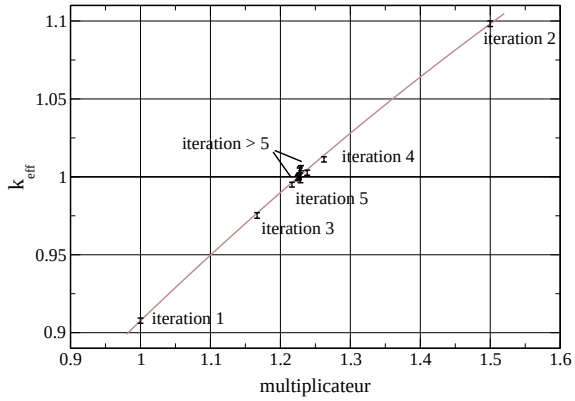


FIG. 3.5 – Recherche de la criticité par ajustement de la proportion de noyaux fissiles (multiplicateur par rapport à la quantité de matière fissile initiale).

3.2.6 Moyens de calcul

Les simulations par codes stochastiques requièrent une puissance de calcul importante. Ces moyens ont pris pour nous trois formes différentes : des ordinateurs de bureau, une ferme de calcul basée au LPSC, et le centre de calcul CC-IN2P3 à Lyon.

Les ordinateurs de bureau, au nombre d'une vingtaine, forment un parc très hétérogène de machines. La puissance de ce parc a évolué, entre les débuts de la thèse et son achèvement, au fil du renouvellement des machines. Après la mise en place de la ferme informatique, ces machines ont été plus particulièrement réservées aux simulations d'évolution de réacteurs les moins urgentes. Sur de tels ordinateurs, d'une "puissance" moyenne de 2 GHz, l'évolution d'un réacteur sur une période de 100 ans prend généralement entre une et deux semaines.

La ferme de calcul se compose de 14 biprocesseurs *Opteron* de 1.8 GHz [1], partagés approximativement entre deux utilisateurs. Ces ordinateurs ont permis le calcul en des temps raisonnables des simulations les plus conséquentes. De plus, ils ont été particulièrement utilisés pour le calcul des coefficients de température. Le calcul MCNP requis pour cette tâche se doit d'être précis. Or une incertitude statistique de $\pm$ 10 pcm (qui conduit à $\pm$ 0.14 pcm/°C) s'obtient par un calcul MCNP de 5 jours environ, et il faut cinq calculs pour obtenir les quatre coefficients et sous-coefficients de température (total, densité, Doppler et graphite, plus un calcul pour établir la référence). En cas d'ur-

[1] Bien que d'une fréquence horloge inférieure, ces processeurs sont en moyenne 50 % plus puissants que les ordinateurs de bureau dont nous disposons.

gence, un traitement en parallèle [2] des calculs MCNP réduit considérablement le temps d'attente d'une évolution ou d'un coefficient de température.

Le centre CC-IN2P3 de Lyon dispose d'une puissance de calcul considérable en comparaison de ce dont nous disposions au LPSC. En revanche, ce centre est utilisé par plusieurs expériences internationales de renom voraces en temps de calcul (Babar, Atlas, AMS, etc...). La disponibilité du centre était donc très fluctuante et le recours à sa puissance de calcul n'a pas toujours été possible. Comme il n'était pas non plus adapté aux calculs d'évolution, nous avons réservé son utilisation aux calculs des coefficients de température. Nous avons ainsi pu, dans des temps raisonnables, obtenir des précisions de ± 3 pcm (qui conduisent à ± 0.04 pcm/$^{\circ}$C) pour les calculs MCNP.

Maintenant que voila présentés la méthode et les moyens utilisés pour nos études, intéressons-nous maintenant au coeur du problème. Nous allons commencer par une description détaillée de la configuration de référence et de ses propriétés, avant de s'atteler aux diverses études paramétriques.

[2] Le calcul en parallèle permet de découper un travail en plusieurs tâches indépendantes, chaque tâche étant alors réalisée par un processeur particulier. Le principe même des codes stochastiques s'adapte très bien à cette méthode de calcul.

Chapitre 4

Système de référence : présentation et étude

Ce chapitre a pour objectif de présenter le système de référence, dont l'analyse approfondie est indispensable puisqu'il est commun à la plupart de nos études. De plus, seront présentées les différentes observables directement issues des codes de calculs (par exemple un taux de réaction), et par quels moyens sont calculées les observables indirectes (par exemple un coefficient de température ou une durée de vie du graphite).

4.1 Présentation du système

Avant de présenter les différentes caractéristiques du "RSF de référence", il convient de préciser ce que nous entendons par "référence". Le grand nombre de paramètres nous interdit, pour des raisons évidentes de temps, de réaliser une étude paramétrique complète. Nous en sommes donc réduits à analyser la variation d'un seul -plus rarement deux- de ces paramètres, les autres restant constants. Afin de garder un lien entre nos différentes études, il est nécessaire que chacune d'elles s'articule autour du même système, servant alors de référence. Bien que la configuration choisie ne soit pas sans intérêt, il n'est pas indispensable qu'une telle "référence" présente les caractéristiques les plus intéressantes.

Le choix de cette configuration comme configuration de "référence" est d'avantage basé sur des raisons d'ordre historique que sur une analyse prenant en compte les contraintes décrites au chapitre 3. Cette configuration a été retenue car elle était intéressante au moment où les études paramétriques systématiques ont été commencées. Or, ces études ont mis en lumière quantité de nouvelles informations, rendant toutes relatives les analyses précédentes. Ainsi le "RSF de référence" n'est pas le RSF dont la configuration est obligatoirement la meilleure, celle ayant notre préférence, ni la seule devant être retenue de nos travaux.

4.1.1 Géométrie et matériaux

4.1.1.1 La structure en graphite

Le réacteur considéré comme référence est un réacteur de 1 GWe modéré au graphite. Sa température de fonctionnement est de 630 °C et le rendement thermodynamique de 40 %. La matrice de graphite est composée d'un réseau d'éléments hexagonaux de 15 cm de côté (30 cm de diagonale) percés de canaux de 8.5 cm de rayon. Pour minimiser les fuites neutroniques, le coeur est orthorhombique et mesure 3.20 m de diamètre comme de hauteur. Deux blocs de graphite de 1.30 m, situés au dessus et en dessous du coeur, font office de réflecteurs axiaux. L'hexagone au centre du réseau n'est pas percé, donc intégralement composé de graphite, et a pour but de simuler une barre centrale de pilotage. Deux coupes du coeur, verticale et horizontale, sont exposées sur la figure 4.1.

La densité de ce graphite de qualité nucléaire est prise égale à 1.86. Cette valeur est inférieure à celle des études précédentes [9, 15] mais correspond à ce qui avait été choisi pour le MSRE. La densité du graphite dépend fortement de sa qualité, qui se traduit par un écart à l'état mono-cristallin. Ce dernier, de densité 2.3, n'est jamais obtenu en pratique en raison des nombreux défauts du réseau cristallin. Ces défauts peuvent cependant être en partie comblés par des imprégnations successives de brai de pétrole. L'utilisation d'un graphite dense, à pores fins, limite également le dépôt de PF à sa surface et donc sa contamination. Essayant, dans le cadre de cette étude, de simuler un réacteur "réaliste", la densité a été réduite à une valeur plus raisonnable.

4.1.1.2 Le sel combustible : 78% LiF - 22% (NL)F_4

Le sel combustible utilisé pour le projet MSBR, un mélange de fluorures de composition 71.7% LiF - 16% BeF_2- 12.3% (NL)F_4, n'a pas été utilisé dans notre configuration de référence, puisque lui a été préféré un sel binaire. La composition utilisée, 78% LiF - 22% (NL)F, se situe au voisinage de l'eutectique afin de minimiser la température de fusion. La suppression du béryllium est principalement motivée par des problèmes de chimie, de toxicité et d'approvisionnement. Avec cette nouvelle composition de sel, la proportion de NL de l'eutectique est presque doublée (de 12.3 à 22 %), et sa température de fusion augmente de 490 °C à 565 °C [1]. Sa densité à 630 °C est de 4.3 et son coefficient de dilatation de 10^{-3} /°C [35].

Le sel passe au centre de chaque élément de graphite et ressort dans un plenum au dessus du bloc modérateur, puis redescend le long des parois du coeur. Cette partie simule de manière simplifiée le passage du sel dans les échangeurs de chaleur, qui n'est neutroniquement pas significatif. Une couche protectrice en $^{10}B_4C$ assure cependant que le sel redescendant soit hors du flux de neutrons. Afin de respecter un minimum de vraisemblance pour l'évacuation de la puissance thermique, on supposera toujours qu'un tiers du volume du combustible est situé dans ces circuits externes. Les plenums sont dimensionnés de telle sorte que la vitesse du sel soit conservée entre l'entrée et la sortie (égalité entre surface totale des canaux de sel et surface latérale).

[1] Afin de faciliter la comparaison et compte tenu de la faible variation de température, les études avec le sel 78% LiF - 22% (NL)F_4 ont été réalisées à la même température que les précédentes [9, 15], soit 630 °C.

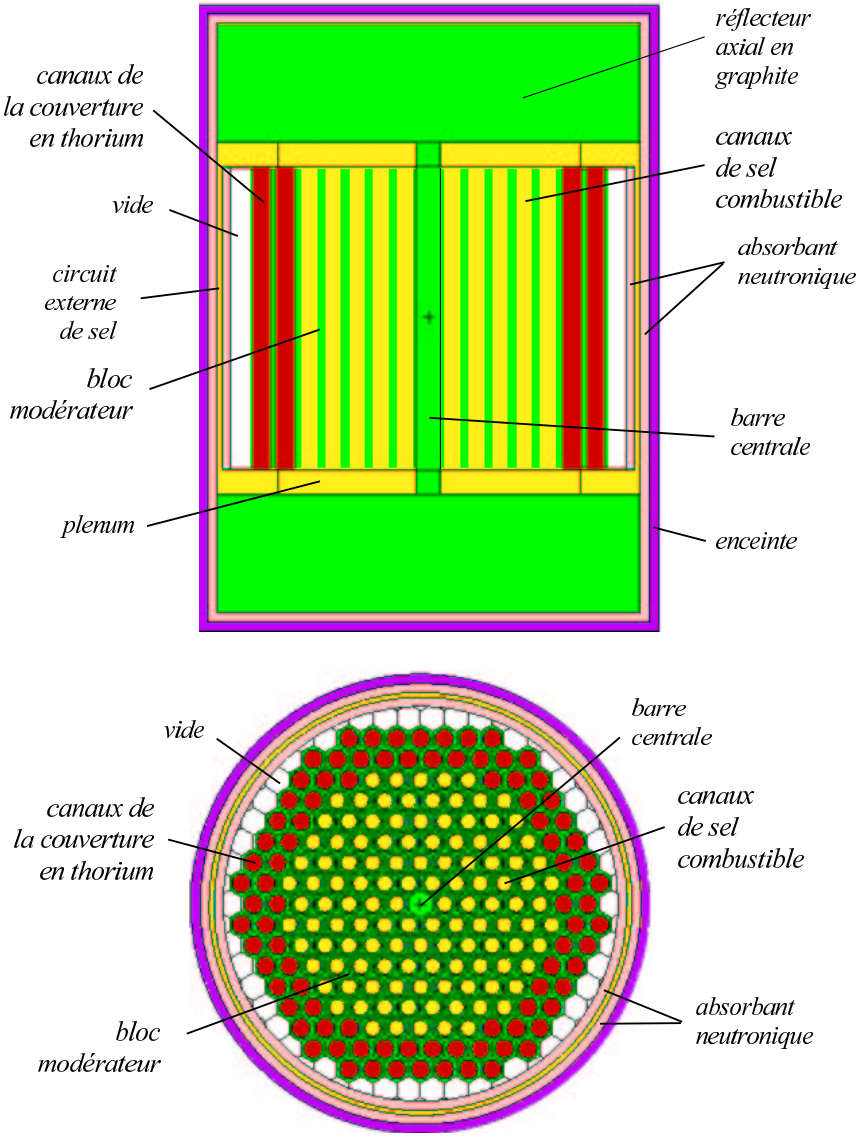


FIG. 4.1 – Coupes verticale et horizontale du coeur du RSF de référence.

4.1.1.3 La couverture en thorium

Une couverture radiale, composée de thorium et de graphite, entoure le coeur afin d'améliorer les performances de régénération du système. Quelle que soit la structure de cette couverture, elle a pour propriété d'arrêter environ 80 % des neutrons et ainsi de protéger les structures externes, tout en favorisant la régénération. Dans notre cas, cette couverture répète le réseau modérateur, avec des hexagones de graphite percés de canaux de 10 cm de rayon. Ces canaux sont remplis par un sel de composition 78% LiF - 22% ThF_4 (sans uranium) et de densité 4.3 à 630 °C. La couverture mesure environ une cinquantaine de centimètres d'épaisseur, ce qui correspond à deux rangées d'hexagones (voir schéma 4.1). Cette couverture remplace le réflecteur radial en graphite habituellement présent à cet endroit. De plus, aucun matériau réflecteur ne se situe entre la couverture et la protection neutronique, comme on peut le voir sur la figure. En effet, avec un réflecteur situé derrière la couverture, une vidange accidentelle de celle-ci (si elle est liquide) engendrerait une augmentation de la réactivité du coeur, comme il sera montré au chapitre 9.

Une couverture fertile peut bien évidemment être différemment constituée. Un sel fertile peut circuler ou être encapsulé, et le thorium peut être placé autour du coeur sous forme métallique plutôt que sous forme liquide. Ces aspects seront détaillés au chapitre 6.

4.1.2 Retraitement du combustible

Le retraitement d'un RSF se compose de deux parties complètement distinctes : le bullage d'une part, et l'extraction du sel avec retraitement en ligne d'autre part. Le premier est sans conteste le plus efficace, puisqu'il permet l'extraction de poisons neutroniques très puissants tel le ^{135}Xe. Sauf mention contraire, ce bullage a été conservé identique à celui du MSBR dans toutes nos études. Cette opération est simulée par une extraction en 30 secondes des PF gazeux et des métaux nobles.

Comme il a été dit précédemment, le retraitement en ligne du MSBR est considéré comme trop complexe pour être réalisable dans les prochaines décennies. Les performances de ce retraitement s'appuyaient principalement sur le stockage hors flux du protactinium en vue d'éviter au maximum la formation d'^{234}U par capture neutronique. La demi-vie du ^{233}Pa étant de 27 jours, l'extraction devait être sensiblement plus rapide pour rester efficace. C'est pourquoi un retraitement en 10 jours de la totalité du coeur était envisagé.

Afin de pallier les problèmes du retraitement MSBR, nous avons envisagé de le ralentir fortement, en traitant l'ensemble du coeur en 6 mois plutôt qu'en 10 jours. Toute la difficulté du retraitement provient de l'extraction des Produits de Fission en présence de thorium. Un retraitement lent permet d'extraire ce thorium préalablement, de manière à ne pas être gêné par celui-ci lors de l'extraction des PF. Cette méthode n'était pas applicable dans le projet MSBR en raison des flux de thorium considérés. Ce flux s'élevait à plusieurs tonnes par jour, contre seulement quelques centaines de kilogrammes par jour dans le cas d'un retraitement en six mois.

La figure 4.2 est une représentation générale de ce que peut être le retraitement lent. Certaines étapes de ce schéma général, comme le stockage du protactinium, peuvent être écartées tout en gar-

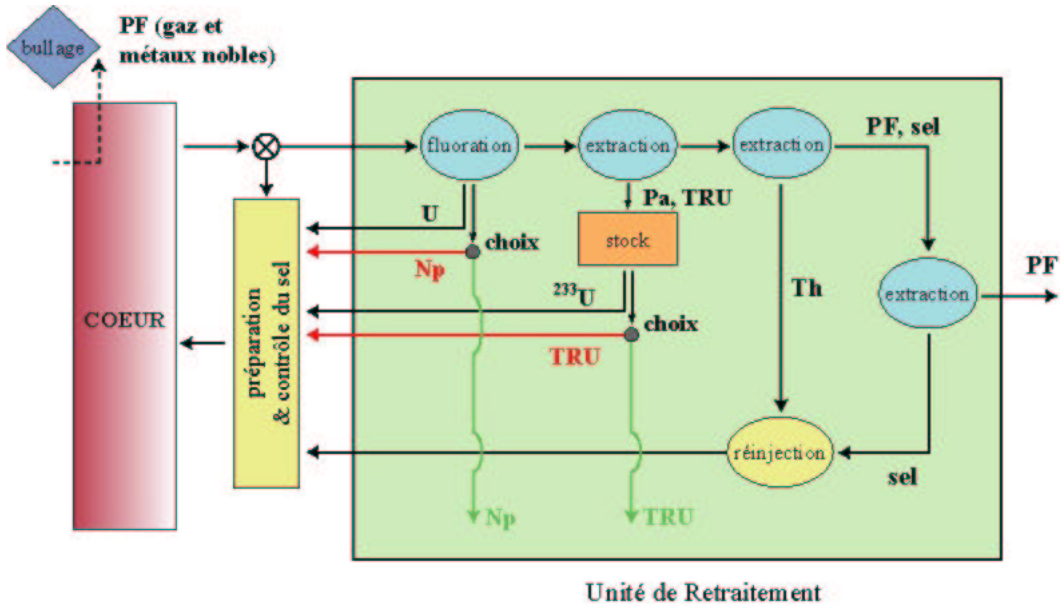


FIG. 4.2 – Schéma général du retraitement lent.

dant l'intérêt premier du retraitement. De même, le neptunium extrait à la première fluoration et les autres TRansUraniens peuvent être soit réinjectés dans le coeur, soit gérés séparément. La première solution a l'avantage d'être une configuration "incinératrice" puisque tous les TRU retournent en coeur. La seconde permet quant à elle de diminuer sensiblement la production d'américium, de curium et d'autres éléments plus lourds. C'est cette seconde solution qui sera considérée comme la référence pour nos études.

L'augmentation de la quantité de matière nécessaire (fertile ou constituant du sel), en remplacement de celle en cours de retraitement, dépend du temps nécessaire pour retraiter l'ensemble du coeur, ainsi que du temps mis pour nettoyer le sel. Si ces deux temps sont identiques, il faut alors deux fois plus de thorium, de lithium et de fluor pour faire fonctionner le réacteur. L'inventaire de matière fissile n'est quant à lui pas augmenté, grâce à la possibilité d'extraction de l'uranium par une étape préliminaire de fluoration. Un retraitement lent, en 6 mois, laisse donc beaucoup plus de temps pour retirer les PF qu'un retraitement en 10 jours. Compte tenu de ce délai, nous considérons les efficacités d'extraction comme très bonnes (égales à 1 pour les calculs).

La fraction de Noyaux Lourds mêlés aux PF en sortie de l'unité de retraitement est prise égale à 10^{-5}. Cette bonne efficacité est le résultat de plusieurs procédés d'extraction en cascade (fluoration de l'U, extraction des TRU, extraction du Th) qui concourent à réduire fortement la quantité de ces éléments arrivant à l'étape finale d'extraction des PF. Ce taux de pertes extrêmement faible provient donc du principe même du retraitement des RSF [50].

La couverture en thorium subit elle aussi un retraitement, principalement pour récupérer l'^{233}U qui s'y forme. Une fluoration de l'ensemble du volume de cette couverture est donc prévue en 6 mois. Avant d'être extrait, l'^{233}U peut fissionner ce qui conduit à l'apparition de PF et donc à un

empoisonnement neutronique. Le même bullage que pour le coeur (extraction en 30 secondes) est appliqué à la couverture.

Les paramètres importants de la configuration de référence, rassemblés dans le tableau 4.1, sont maintenant définis. L'étude de cette configuration, puis l'évaluation de ses performances du point de vue des contraintes, peuvent être menées.

4.2 Caractéristiques neutroniques de la configuration de référence

4.2.1 Observables directes

4.2.1.1 Composition des cellules

L'un des principaux résultats que l'on peut obtenir en sortie des codes de calcul est l'évolution de la composition des différents matériaux en coeur. En effet, chaque étape du calcul est conservée ce qui permet de suivre les variations d'une composition depuis l'instant initial jusqu'à la fin du calcul d'évolution. Ceci est représenté sur la figure 4.3 concernant l'inventaire en uranium et ses divers isotopes.

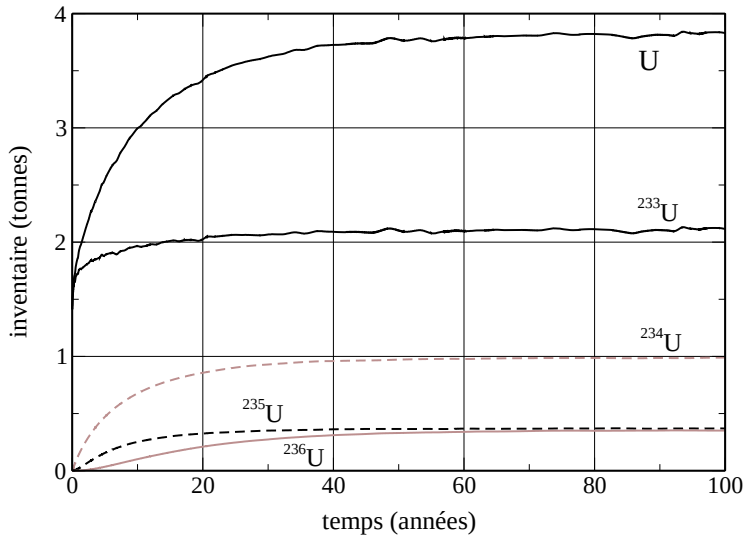


FIG. 4.3 – Evolution de l'inventaire en uranium et de ses différents isotopes pendant 100 années d'évolution du combustible.

Concernant ces résultats en tant que sorties de codes de calcul, on constate clairement la grande finesse de ceux-ci. Les ondulations visibles par endroits ne sont que de légères perturbations dues aux incertitudes statistiques des calculs MCNP. En effet, un k_{eff} imprécis peut facilement s'éloigner de 1, ce qui entraîne une correction de la part du programme et une alimentation en matière fissile accrue

Paramètre	Valeur
Puissance	thermique : 2500 MW électrique : 1000 MW
Sel combustible	LiF - $(NL)F_4$
Proportion de $(NL)F_4$	22 %
Noyau fissile principal	^{233}U
Noyau fertile principal	^{232}Th
Température moyenne	630 °C
Densité du sel	4.3
Coefficient de dilatation du sel	10^{-3} /°C
Volume de sel	20 m^3
Rapport volume sel externe	1/3
Rapport volume sel plenums	1/5
Modérateur	graphite
Densité du modérateur	1.86
Diamètre du coeur	3.2 m
Hauteur du coeur	3.3 m
Taille des hexagones	15 cm
Nombre de canaux	120
Rayon des canaux	8.5 cm
Temps de retraitement	bullage : 30 s autre : 6 mois
Extraction des PF	totale
Extraction des TRU	totale
Stockage externe du Pa	oui
Couverture fertile	oui
Rayon des canaux couverture	10 cm
Nombre de canaux couverture	90
Matériaux couverture	hexagones de graphite canaux de sel sans U

TAB. 4.1 – Paramètres importants de la configuration de référence.

(si $k_{eff} < 1$) ou en baisse (si $k_{eff} > 1$). Bien qu'une meilleure précision des calculs permettrait de résoudre ces problèmes, le gain n'est pas suffisamment intéressant en comparaison de l'allongement des temps de calcul (multipliés par 4 pour une simple amélioration d'un facteur 2 des erreurs statistiques). Remarquons que la durée totale d'évolution choisie dans toutes nos études, à savoir 100 ans, est de loin supérieure à la durée de vie d'un réacteur. Cependant, après l'arrêt d'un réacteur, le sel peut être transféré dans un autre réacteur identique et continuer à évoluer. Cela permet en outre de mieux appréhender les phénomènes lents, tels que l'apparition des TRU. On tâchera de ne pas perdre de vue que 100 années d'évolution sous les mêmes hypothèses de départ (géométrie, retraitement...) sont hautement théoriques et que de nombreux changements auront probablement lieu auparavant.

D'un point de vue physique, les résultats de la figure 4.3 montrent l'apparition des isotopes de l'uranium formés par capture sur l'^{233}U, ainsi que l'empoisonnement du coeur qui se traduit par une augmentation visible de la quantité de matière fissile. L'^{234}U apparaît logiquement en premier et atteint de fortes proportions en quelques années (1 tonne à l'équilibre). L'^{235}U étant fissile, son inventaire à l'équilibre est nettement inférieur (environ 350 kg) et il est rejoint par l'^{236}U au bout d'une soixantaine d'années. L'empoisonnement du coeur durcit progressivement le spectre neutronique, ce qui implique une diminution de la section efficace de fission de l'^{233}U, comme il sera montré au paragraphe 4.2.1.2. Afin de maintenir la criticité, l'alimentation en matière fissile compense cette baisse et l'inventaire en ^{233}U s'en retrouve augmenté (de 1.4 tonnes au départ à 2.1 tonnes à l'équilibre).

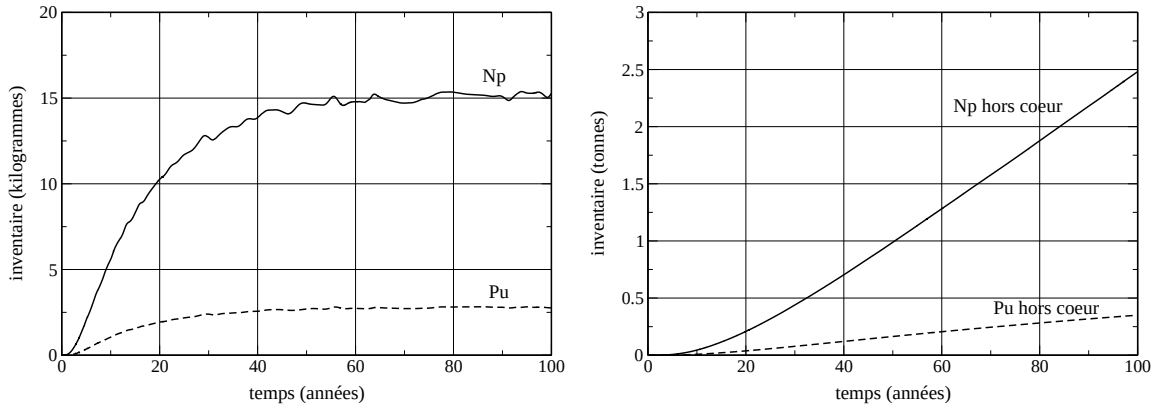


FIG. 4.4 – Evolution de l'inventaire en neptunium et plutonium au cours de la vie du réacteur, à l'intérieur du coeur (à gauche) ainsi qu'à l'extérieur (à droite).

La figure 4.4 représente quant à elle l'inventaire des TRU, à la fois en coeur et à l'extérieur (retiré au retraitement). Dans le cycle Th/^{233}U, le neptunium est quasiment mono isotopique (^{237}Np) et le plutonium est composé très majoritairement de ^{238}Pu. Les éléments plus lourds (américium et curium) n'apparaissent pas à cette échelle sur la figure. Le neptunium et le plutonium en coeur atteignent leur équilibre en une soixantaine d'années, comme l'^{236}U dont ils sont issus. Signalons toutefois que contrairement aux différents isotopes de l'uranium, ces éléments sont en équilibre entre leur formation et leur disparition, par réaction (n,γ) mais aussi par extraction chimique. En l'occurrence, cette

extraction, en 6 mois, est de loin la plus efficace, ce qui explique la très faible formation d'éléments plus lourds.

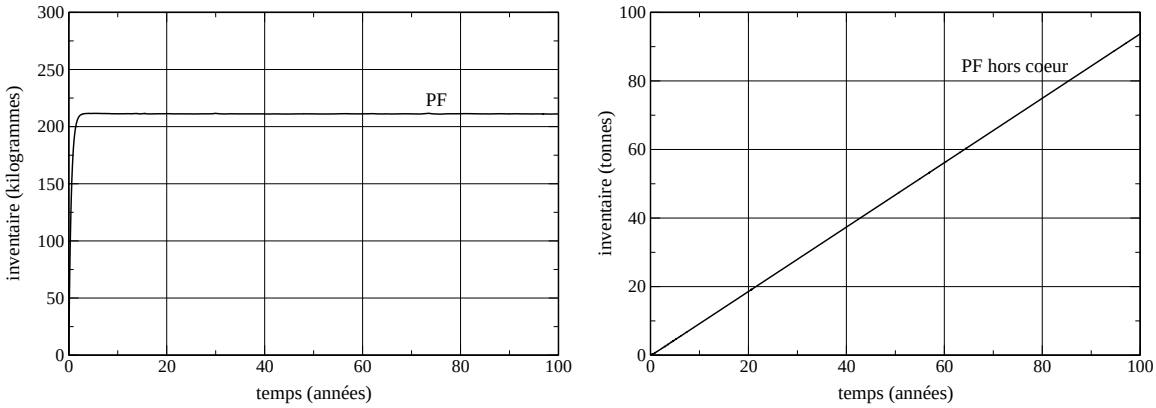


FIG. 4.5 – Evolution de l'inventaire en PF au cours de la vie du réacteur, à l'intérieur du coeur (à gauche) ainsi qu'à l'extérieur (à droite).

La quantité de PF présents en coeur est représentée sur la figure 4.5, ainsi que la quantité qui a été extraite, par le bullage ou par l'unité de retraitement. En coeur, les PF atteignent un équilibre très rapidement en raison du retraitement en 6 mois, tandis que la masse extraite croît linéairement.

Le tableau 4.2 fait l'inventaire des matières présentes en coeur après 100 années d'évolution, pour les éléments ou isotopes les plus importants. On peut constater l'efficacité de l'extraction par la limitation de la formation d'éléments très lourds et difficiles à gérer. En effet, les quantités en coeur de plutonium, américium, curium et californium sont respectivement de 2.8 kg, 515 mg, 105 mg et 50 ng. Les quantités extraites lors du retraitement semestriel restent quant à elles assez faibles, puisqu'on extrait annuellement le double de la quantité en coeur (soit 210 mg de curium par exemple). On peut également remarquer l'apparition d'isotopes tels que le ^{230}Th, l'^{232}U ou le ^{231}Pa en quantités non négligeables (entre 100 g et 1 kg). Ces éléments proviennent de réactions secondaires, en particulier (n,2n) voire (n,3n). Le principe de formation de l'^{232}U est par exemple décrit par les réactions 3.8 (partie 3.1.9 sur la prolifération). Précisons enfin que les quantités de Cf, de Bk et dans une moindre mesure de Cm, sont données à titre indicatif. En effet, de nombreux facteurs (équilibre non atteint, sections efficaces mal connues, etc...) peuvent introduire de fortes incertitudes.

La masse de lithium en coeur est maintenue constante, pour des raisons d'ordre physico-chimie. Du lithium est donc régulièrement ajouté. Le ^{6}Li présent dans le sel combustible initial disparaît rapidement par réaction (n,t). Il est faiblement régénéré par réaction (n,2n) sur le ^{7}Li (la contribution de l'alimentation en Li non pur est négligeable), et son inventaire se stabilise à 1.4 g. Les PF étant extraits régulièrement (par bullage ou dans l'unité de retraitement), leur inventaire atteint seulement 210 kg, bien qu'il s'en forme 2.6 kg par jour. La couverture nécessite un apport initial supplémentaire de thorium, de lithium et de fluor (respectivement 17.8 t, 1.9 t et 11 t), en remplacement d'une partie du réflecteur en graphite. Cet apport reste cependant modéré vis-à-vis des quantités mises en jeu pour

Elément	Isotope	Inventaire	
Th	^{228}Th	13 g	(280 mg)
	^{229}Th	22 g	(700 mg)
	^{230}Th	100 g	(2.6 g)
	^{231}Th	7 g	(130 mg)
	^{232}Th	46.2 t	(17.8 t)
	total	46.2 t	(17.8 t)
Pa	^{231}Pa	680 g	(118 g)
	^{232}Pa	2 g	(170 mg)
	^{233}Pa	77 kg	(8.2 kg)
	total	78 kg	(8.3 kg)
U	^{232}U	950 g	(15 g)
	^{233}U	2 110 kg	(35 kg)
	^{234}U	990 kg	(1 kg)
	^{235}U	370 kg	(52 g)
	^{236}U	350 kg	(1 g)
	^{237}U	950 g	(1.3 mg)
	^{238}U	1.7 kg	(75 μg)
	total	3820 kg	(36 kg)
Np	^{236}Np	37 mg	(-)
	^{237}Np	15 kg	(22 mg)
	^{238}Np	45 g	(30 μg)
	^{239}Np	2.1 g	(50 ng)
	total	15 kg	(22 mg)
Pu	^{238}Pu	2.5 kg	(37 mg)
	^{239}Pu	220 g	(4 mg)
	^{240}Pu	22 g	(1 mg)
	^{241}Pu	14 g	(2.1 mg)
	^{242}Pu	1.3 g	(1.7 mg)
	total	2.8 kg	(45 mg)

Elément	Isotope	Inventaire	
Am	^{241}Am	245 mg	(190 μg)
	^{242}Am	500 μg	(250 ng)
	^{242m}Am	4.2 mg	(4 μg)
	^{243}Am	265 mg	(1.2 mg)
	total	515 mg	(1.4 mg)
Cm	^{242}Cm	42 mg	(50 μg)
	^{243}Cm	1.2 mg	(2 μg)
	^{244}Cm	55 mg	(2.6 mg)
	^{245}Cm	6.5 mg	(500 μg)
	^{246}Cm	250 μg	(-)
	^{247}Cm	5 μg	(-)
	^{248}Cm	400 ng	(-)
	total	105 mg	(3.2 mg)
Bk	^{249}Bk	15 ng	(-)
Cf	^{249}Cf	10 ng	(-)
	^{250}Cf	10 ng	(-)
	^{251}Cf	10 ng	(-)
	^{252}Cf	20 ng	(-)
	total	50 ng	(-)
Li	^{6}Li	1.4 g	(34 mg)
	^{7}Li	5.3 t	(1.9 t)
	total	5.3 t	(1.9 t)
F	^{19}F	30.6 t	(11 t)
PF	-	210 kg	(320 kg)
C	modérateur	15 t	
	manches	11.3 t	
	couverture	15 t	
	réfl. axiaux	80 t	
	total	120 t	

TAB. 4.2 – Inventaire des principaux éléments ou isotopes du coeur et de la couverture (entre parenthèses) après 100 ans d'évolution.

le sel combustible (environ 1/3). En revanche, la couverture n'est pas retraitée comme le reste du combustible, seul l'uranium étant extrait par fluoration en 6 mois (on peut négliger le bullage). Une fois le neptunium formé, cet élément n'est plus extrait et peut capturer et former du plutonium et autres éléments plus lourds. La masse de graphite est quant à elle un paramètre important, puisque celui-ci est soumis à irradiation et doit être changé régulièrement. Dans ce calcul n'est pas pris en compte le graphite des réflecteurs axiaux ou de la structure de la couverture. Celui-ci est en effet beaucoup moins irradié et son remplacement est du même coup moins fréquent.

4.2.1.2 Sections efficaces et flux moyen

Principe Le programme calcule le flux moyen et la section efficace moyenne d'une réaction pour un matériau par les formules :

$$<\phi>=\int_V\int_E \phi(E,\overrightarrow{r})dEd\overrightarrow{r} \tag{4.1}$$

$$<\sigma>=\frac{\int_V\int_E \sigma(E,\overrightarrow{r}).\phi(E)dEd\overrightarrow{r}}{\int_V\int_E \phi(E,\overrightarrow{r})dEd\overrightarrow{r}} \tag{4.2}$$

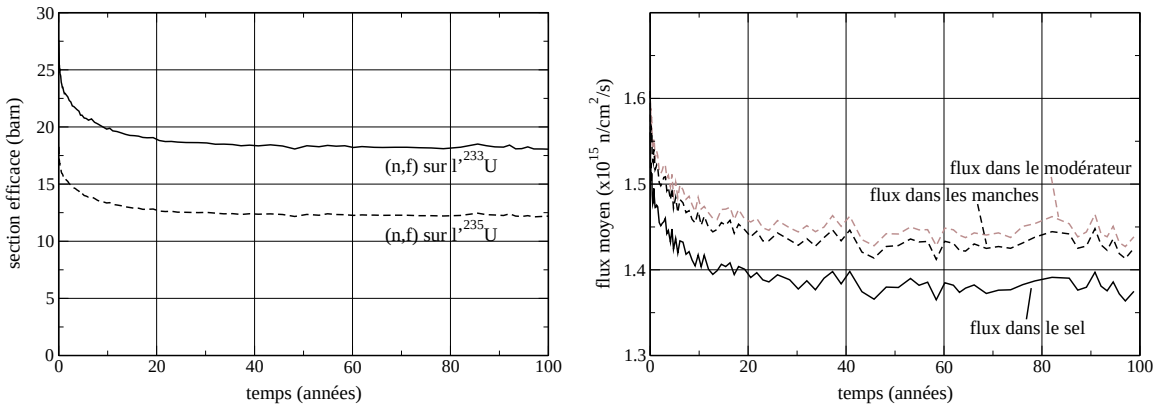


FIG. 4.6 – Section efficace moyenne de fission de l'^{233}U et de l'^{235}U (à gauche) et flux moyen dans le sel, les manches et le reste du modérateur (à droite).

Comme mentionné précédemment, l'apparition des PF et de l'^{234}U empoisonne le coeur et durcit le spectre neutronique, i.e accroît l'énergie moyenne des neutrons du coeur. Comme la section efficace microscopique de fission de l'^{233}U et de l'^{235}U est globalement décroissante lorsque l'énergie des neutrons augmente, un durcissement du spectre diminue leur section efficace moyenne. La figure 4.6 confirme cela en indiquant, partie de gauche, l'évolution de $<\sigma_f>$ pour la fission des deux principaux isotopes fissiles du coeur que sont l'^{233}U et l'^{235}U.

La partie droite de cette figure indique l'évolution du flux neutronique moyen au sein du sel combustible [2] et du graphite (découpé en deux cellules : les manches et le reste du modérateur comme indiqué sur la figure 4.7). Plusieurs constatations peuvent être faites :

- Les courbes du flux sont beaucoup plus chaotiques que celles des compositions ou des $< \sigma >$. Cela est dû aux ajustements réguliers du niveau de flux qui sont directement visibles ici, mais qui ont des conséquences moyennées et plus discrètes sur les autres observables.
- Le flux varie suivant les diverses cellules du coeur. Même si les fissions ont lieu dans le sel combustible, les neutrons sortent des canaux et diffusent dans le graphite. Compte tenu de la quantité de graphite mise en jeu dans cette configuration (voir figure 4.7), de la répartition des fissions en bord de canal, et de la faible section efficace de capture du carbone, la recirculation des neutrons est importante. Un même neutron peut diffuser de nombreuses fois avant de ressortir du graphite, ce qui contribue à augmenter le flux dans le modérateur. Les manches en graphite, situées entre le sel et le reste du modérateur, sont dans une situation intermédiaire.
- Le flux décroît au cours de la vie du réacteur (-10 % environ) en raison de l'empoisonnement du coeur. Comme indiqué précédemment, le flux est ajusté pour garder une puissance thermique du coeur constante, exprimée par la relation :

$$P_{th} = \left\langle N_f \sigma_f \right\rangle . \phi . \varepsilon \tag{4.3}$$

avec N_f la quantité de matière fissile, σ_f la section efficace microscopique de fission et ε l'énergie dégagée par une fission. La quantité de matière fissile est elle-même ajustée pour conserver le réacteur critique, par la relation :

$$k = \frac{\left\langle \nu . \sigma_f N_f \right\rangle}{\left\langle \sigma_f N_f \right\rangle + \left\langle \sigma_c N_c \right\rangle} \tag{4.4}$$

où N_c est la quantité de matière capturante, σ_c la section efficace moyenne de capture et ν le nombre de neutrons émis par fission. De ces deux relations on peut tirer l'expression du flux :

$$\phi = \frac{P_{th}(\nu - 1)}{\varepsilon . \left\langle \sigma_c N_c \right\rangle} \tag{4.5}$$

Cette équation indique que l'empoisonnement du coeur a pour conséquence une diminution du flux, et non une augmentation du flux comme on aurait pu le penser. On vérifie d'ailleurs que l'augmentation du terme $\langle \sigma_c N_c \rangle$ est effectivement d'environ 10 %.

[2] Le sel combustible comprend en théorie le sel circulant dans les canaux, dans les plenums et dans le circuit externe. Pour le flux indiqué ici n'est pris en compte que le sel au sein du bloc modérateur.

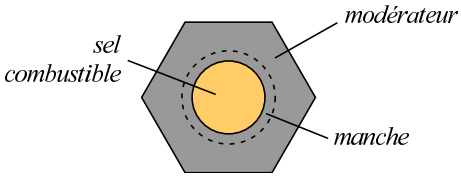


FIG. 4.7 – Schéma d'un hexagone du réseau.

Sections efficaces moyennes de l'ensemble du coeur Le tableau 4.3 rassemble les sections efficaces de réaction des principaux éléments du coeur au bout de 100 ans d'évolution. On peut constater aux sections efficaces de fission que le spectre neutronique est intermédiaire entre un spectre thermique et un spectre rapide, pour lesquels $<\sigma_{(n,f)}>$ vaut respectivement une centaine de barns et quelques barns (2 barns pour la fission du ^{239}Pu du réacteur BN800 [51]). De plus, on voit clairement la différence entre isotopes fissile et non fissile, différence atténuée en spectre rapide.

La couverture, composée de canaux de sel fertile dans des hexagones de graphite, apparaît comme légèrement plus thermalisée que le coeur. La quantité $<\sigma_{(n,\gamma)}\left(^{232}\text{Th}\right)>$ passe ainsi de 0.9 à 1.4 barns, et $<\sigma_{(n,f)}\left(^{233}\text{U}\right)>$ de 18 à 65 barns. Comme les canaux de la couverture sont plus gros que ceux du coeur (10 cm de rayon contre 8.5 cm en coeur), on pourrait s'attendre à une moins bonne thermalisation. Cependant, il n'y a que très peu de fissions dans la couverture et les neutrons qui y interagissent viennent en majorité du coeur. Ils ont ainsi obligatoirement traversé une grande épaisseur de graphite avant d'arriver dans les canaux de sel fertile.

Concernant le graphite, sa section efficace moyenne de capture, très faible, est également plus grande dans la couverture (0.29 mb contre 0.15 mb dans le coeur). Les manches sont, quant à elles, soumises à un flux de neutrons légèrement plus énergétiques en raison de leur proximité directe avec le sel combustible. $<\sigma_{(n,\gamma)}>$ est alors légèrement inférieure à celle du reste du modérateur (0.12 mb au lieu de 0.15 mb).

Le sel absorbe lui aussi des neutrons, par réaction (n,γ) sur le ^{7}Li et sur le ^{19}F. Des réactions (n,α) et (n,p) sur le ^{19}F, non mentionnées dans le tableau (respectivement 1.6 mb et 0.13 mb) contribuent fortement aux absorptions du sel. De plus, la première conduit à la formation d'^{16}O, élément fortement perturbateur du milieu fluorure (formation d'oxyde, précipitation...). Les PF restant dans le sel ont une section efficace moyenne de capture de 2.7 barns, de loin inférieure aux 8.4 barns des premiers instants du réacteur.

4.2.1.3 Taux de réaction

La grandeur qui caractérise le mieux le comportement du réacteur, tenant compte des compositions, des sections efficaces, du spectre neutronique et du niveau de flux, est le taux de réaction. Ce taux est calculé par la formule :

$$\tau = N.\int_E \sigma(E).\phi(E)dE \tag{4.6}$$

Elément / isotope	(n,f)		(n,γ)	
^{232}Th	11 mb	(3.9 mb)	900 mb	(1.4 b)
^{233}Pa	70 mb	(25 mb)	13 b	(41 b)
^{233}U	18 b	(65 b)	2.6 b	(9.2 b)
^{234}U	280 mb	(160 mb)	6.2 b	(36 b)
^{235}U	12 b	(43 b)	4.6 b	(12 b)
^{236}U	170 mb	(250 mb)	4.7 b	(16 b)
^{237}Np	280 mb	(120 mb)	17 b	(54 b)
^{238}Pu	1.6 b	(2.0 b)	7.0 b	(27 b)
^{239}Pu	31 b	(150 b)	20 b	(94 b)
^{6}Li	-	(-)	0.62 mb	(3.0 mb)
^{7}Li	-	(-)	0.73 mb	(3.5 mb)
^{19}F	-	(-)	0.72 mb	(1.1 mb)
PF	-	(-)	2.7 b	(1.8 b)
C	-	(-)	0.15 mb	(0.29 mb)

TAB. 4.3 – Sections efficaces des principaux éléments ou isotopes du coeur et de la couverture (entre parenthèses) après 100 ans d'évolution.

ou plus simplement à partir des valeurs moyennes :

$$\tau = N.\langle\sigma\rangle.\phi \tag{4.7}$$

Afin de comparer aisément un taux de réaction avec la quantité totale de réactions ayant lieu dans le réacteur, le taux de réaction est exprimé en neutrons / fission. Attention, le flux indiqué dans les équations 4.6 et 4.7 correspond au flux moyenné sur l'ensemble du sel combustible, et non seulement sur le sel au sein du bloc modérateur (car N prend en compte l'ensemble du sel et pas uniquement la partie irradiée). Sa valeur se monte ainsi à $6.84.10^{14}$ n.cm^{-2}.s^{-1} au lieu des $1.37.10^{15}$ n.cm^{-2}.s^{-1} indiqués sur la figure 4.6.

La figure 4.8 indique, partie de gauche, l'évolution des taux de fission des isotopes de l'uranium. On constate clairement l'apparition de l'^{235}U et sa contribution aux fissions (10 % de l'ensemble). Les contributions des autres éléments ne sont pas visibles à cette échelle. Sur la partie de droite sont représentés les taux de capture les plus importants (à l'exception de celui du ^{232}Th de 0.945 n/fission). La plupart d'entre eux dégradent la régénération puisque ne conduisant pas à la formation d'éléments fissiles. L'^{234}U peut être considéré comme un élément fertile, de même qu'une partie des TRU. Ainsi, son taux de capture ne doit pas être considéré comme une perte de neutrons, de la même manière que pour les captures sur le ^{232}Th. On voit sur ce graphique que les pertes viennent en grande majorité du combustible lui-même (^{233}U,^{235}U,^{236}U). Les captures sur les PF, qui coïncident -sans raison particulière- avec celles du ^{233}Pa, représentent une part minoritaire mais néanmoins significative comme on le verra dans le chapitre 7 concernant l'étude du retraitement.

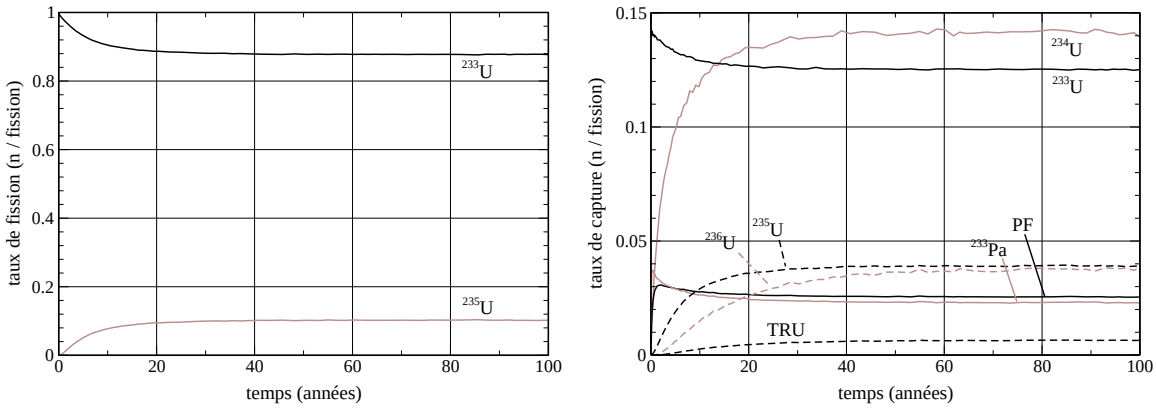


FIG. 4.8 – Taux de fission de l'uranium (à gauche) et principaux taux de capture hors thorium (à droite).

L'étude complète des taux de réaction de l'ensemble du réacteur est réalisée dans le tableau 4.4 sous la forme d'un bilan neutronique. Ce tableau comptabilise d'une part les neutrons créés dans le réacteur, et d'autre part les neutrons absorbés et les fuites, réunis par l'équation :

$$N_{creation} = k_{eff} \times \left(N_{absorptions} + N_{fuites}\right) \tag{4.8}$$

Les créations de neutrons sont en grande majorité le fruit des fissions, qui absorbent 1 neutron pour en réémettre ν. La valeur de ν dépend du combustible et du spectre neutronique. Dans notre cas de référence, on a $\nu = 2.482$ en moyenne, le ν en coeur n'étant pas le même que le ν dans la couverture en thorium. Quelques neutrons sont émis par réaction (n,2n) mais ces réactions restent marginales dans le bilan. Les réactions d'absorption sont quant à elles beaucoup plus variées : (n,γ), (n,α), (n,p), sans oublier (n,f) et (n,2n). Signalons que dans la modélisation que nous avons adoptée, une épaisse couche de B_4C protège la cuve de l'irradiation. Il n'y a ainsi aucune fuite dans notre système ($N_{fuites} = 0$), tous les neutrons étant capturés avant (dans la couverture ou le B_4C). De plus, pour des raisons de temps et de précision des calculs, la valeur finale du k_{eff} de notre simulation de référence n'est pas exactement égale à 1 et vaut en réalité 1.00180 ± 3.3 pcm.

L'analyse du tableau 4.4 révèle de nombreuses informations intéressantes. Comme précisé précédemment, l'^{233}U est le principal élément qui fissionne (87,1 %), suivi de l'^{235}U, le ^{232}Th et les autres isotopes de l'uranium (respectivement 10.1, 1.2 et 0.9 %). On peut remarquer également la contribution non négligeable (0.7 %) des fissions dans la couverture en thorium, et ce malgré l'extraction de l'uranium en 6 mois. Signalons que ces fissions dégagent du même coup 0.7 % de la puissance thermique totale du réacteur, soit 17.5 MW.

Les absorptions restantes de neutrons [3] sont réalisées à 63.9 % dans le ^{232}Th du coeur, et 5.7 % dans le ^{232}Th de la couverture, participant ainsi à la régénération du combustible. Toutes les autres

[3] Ne sont pas comptabilisées dans les calculs suivants les absorptions provoquant les fissions. La somme des absorptions "restantes" est donc égale à 1.482 n / fission.

absorptions, hormis celles formant un isotope fissile (cas de l'^{234}U), sont considérées comme parasites puisqu'elles dégradent la régénération. Les conséquences de ces captures parasites sont plus ou moins graves. Ainsi, les captures sur l'^{233}U et le ^{233}Pa ouvrent la voie à la formation des éléments plus lourds, très radiotoxiques et difficiles à gérer. Les captures dans le combustible lui-même, tous isotopes confondus, représentent 23.0 % des absorptions restantes. Les réactions dans le sel, en particulier la réaction (n,p) sur le^{19}F, contribuent pour 1.7 % à ces absorptions, tandis que l'impact des PF reste modéré. La faible quantité de TRU restant en coeur consomme plus de neutrons qu'elle n'en apporte, malgré la présence d'éléments fissiles. Cela tient au fait que le premier élément fissile de la chaîne (^{239}Pu) n'a pas le temps de se former et reste grandement minoritaire (voir tableau 4.2). Signalons enfin que les captures au sein du graphite (réflecteur ou modérateur) sont faibles pour cette configuration (0.7 % des absorptions restantes).

Le bilan total entre neutrons créés (2.487) et neutrons absorbés (1.002 + 1.482) n'est pas exactement respecté. Cela est dû à la valeur de k très légèrement différente de 1, à d'éventuels éléments chimiques d'importance mineure non pris en compte, et aux erreurs d'arrondis.

4.2.2 Observables indirectes

Après avoir vu les résultats que l'on obtient directement en sortie des codes de calcul, il reste à présenter toutes les informations que l'on peut tirer de ces résultats. Cela permet l'observation de "résultats indirects" dont on reparlera souvent au cours de cet ouvrage.

4.2.2.1 Taux de régénération et stock du combustible

Le principe du taux de régénération a déjà été présenté au chapitre 3 et seule la formule sera rappelée :

$$T_{reg} = \frac{\tau_{c,^{232}Th} - \tau_{c,^{233}Pa}}{\tau_{f,^{233}U} + \tau_{c,^{233}U}} \tag{4.9}$$

Dans le cas d'un réacteur avec une couverture en thorium, chaque terme du numérateur est la somme du terme relatif au coeur et du terme relatif à la couverture. Le taux de régénération peut alors lui-même être décomposé en :

$$T_{reg} = T_{reg_coeur} + T_{reg_couv} \tag{4.10}$$

avec :

$$T_{reg_coeur} = \frac{\tau_{c,^{232}Th_coeur} - \tau_{c,^{233}Pa_coeur}}{\tau_{f,^{233}U_total} + \tau_{c,^{233}U_total}} \text{ et } T_{reg_couv} = \frac{\tau_{c,^{232}Th_couv} - \tau_{c,^{233}Pa_couv}}{\tau_{f,^{233}U_total} + \tau_{c,^{233}U_total}} \tag{4.11}$$

Les taux de réaction, indiqués dans le tableau 4.4, conduisent à des valeurs pour T_{reg_coeur} et T_{reg_couv} de 0.928 et 0.074 respectivement, ce qui signifie un taux de régénération total de 1.002. On voit clairement le rôle joué par la couverture en thorium dans l'obtention d'une configuration régénératrice. L'étude d'une configuration sans couverture en thorium sera présentée au chapitre 6.

Réaction	Elément / isotope	Production	Absorption
(n,f)	^{233}U	2.162	0.871
	^{235}U	0.251	0.101
	^{232}Th	0.030	0.012
	autres U	0.022	0.009
	TRU	0.001	0.000
	U (couverture)	0.017	0.007
(n,2n)	^{232}Th	0.004	0.002
somme partielle		2.487	1.002
(n,γ)	Th	-	0.945
	Pa	-	0.024
	^{233}U	-	0.124
	^{234}U	-	0.140
	^{235}U	-	0.039
	^{236}U	-	0.037
	TRU	-	0.006
	PF	-	0.025
	Li	-	0.003
	^{19}F	-	0.006
(n,α)	^{19}F	-	0.014
(n,p)	^{19}F	-	0.001
(n,γ)	Th (couverture)	-	0.084
	autres NL (couverture)	-	0.002
	PF (couverture)	-	0.004
toutes	Li + F (couverture)	-	0.001
(n,α)	B_4C (protect. neutr.)	-	0.017
toutes	C (réflecteurs axiaux)	-	0.005
	C (reste)	-	0.005
somme partielle		0	1.482
somme totale		2.487	2.484

TAB. 4.4 – Bilan neutronique du réacteur de référence après 100 ans d'évolution. Tous ces taux de réaction sont donnés en neutrons / fission.

Signalons que la valeur obtenue ici est une valeur instantanée (à t = 100 ans), soumise aux fluctuations statistiques des calculs, telles que celles observables sur la partie droite de la figure 4.6. Si on fait abstraction de ces fluctuations, les taux de régénération de la configuration de référence se montent à 0.927 et 1.000 respectivement. Tous les taux de régénération présentés dans cet ouvrage sont obtenus après lissage.

Cette observable ne caractérise cependant qu'un instant du réacteur et non son histoire complète. Mais cet historique peut être pris en compte dans les "courbes de stock" que nous allons maintenant introduire. Ce résultat indirect permet de connaître la quantité de matière fissile, généralement de l'^{233}U, dont on a eu besoin (stock négatif) ou qu'on a accumulée (stock positif) lors du fonctionnement du réacteur. Ce résultat découle donc des quantités d'^{233}U introduites dans le réacteur par l'alimentation, de ^{233}Pa extrait au retraitement qui formera l'^{233}U, ainsi que celles d'^{233}U produit dans la couverture en thorium. De telles courbes de stock sont présentées sur la figure 4.9. On y voit, d'une manière différente de la précédente, l'intérêt de la couverture en thorium. Sans elle, une telle configuration nécessiterait plus de 7 tonnes d'^{233}U pour 100 années de fonctionnement, en plus de son inventaire initial [4].

La partie droite de la figure montre plus précisément les premières années de fonctionnement. La chute brutale initiale n'est en rien due aux performances de régénération du système. Elle est intrinsèquement liée au cycle du combustible utilisé. Dans le cycle thorium, la capture d'un neutron sur le ^{232}Th est suivie de deux désintégrations β^- de périodes respectives 22.3 minutes et 27.0 jours (contre 23.5 minutes et 2.36 jours pour le cycle ^{238}U\$^{239}$Pu). Ainsi au démarrage du réacteur, l'^{233}U est consommé par fission mais non régénéré par les captures sur le ^{232}Th à cause de la période du ^{233}Pa. Ce dernier voit sa quantité croître pendant une centaine de jours, avant de diminuer lentement en raison de l'empoisonnement du coeur qui réduit les captures sur le ^{232}Th. Pendant toute cette période, la formation de l'^{233}U est très inférieure à sa consommation, ce qui impose une alimentation externe de matière fissile. Précisons pour finir que ce besoin inévitable de matière fissile est pris en compte lors du calcul de l'inventaire nécessaire au démarrage d'un réacteur.

4.2.2.2 Spectre neutronique

Le flux neutronique présenté dans la partie 4.2.1.2 ne représente que la moyenne du nombre de neutrons traversant une surface d'un centimètre carré par seconde. Il n'indique pas directement quelle est la distribution en énergie de ces neutrons. Il est cependant possible d'obtenir cette distribution à partir des résultats fournis par MCNP.

La figure 4.10 présente cette distribution pour le système de référence, au démarrage du coeur (avec un combustible constitué d'^{233}U et de ^{232}Th uniquement) et après 100 ans d'évolution. Le spectre de la configuration de référence sera qualifié d'épithermique, puisque n'étant plus thermique

[4] En réalité en l'absence de couverture, le réflecteur en graphite permet la récupération d'une partie des neutrons quittant le coeur. Ainsi une configuration remplaçant la couverture par un réflecteur a des capacités de régénération du coeur légèrement supérieures.

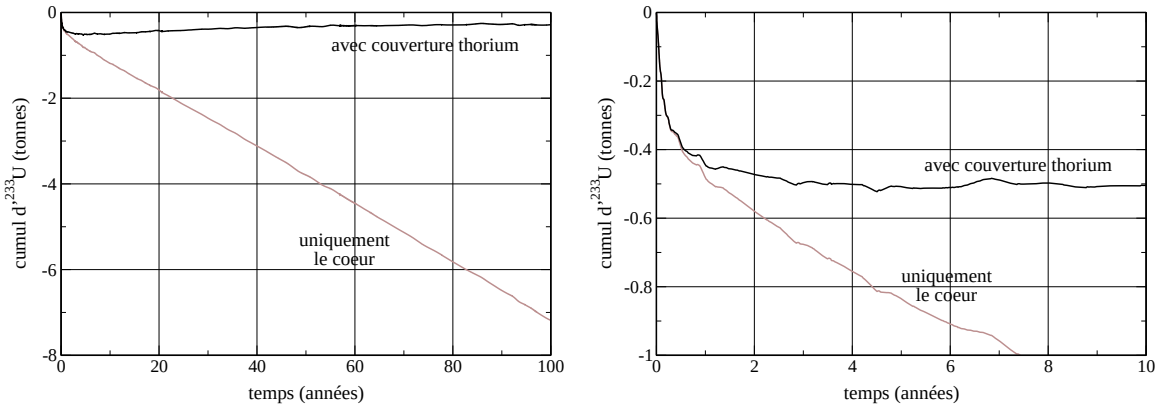


FIG. 4.9 – Stocks d'^{233}U pendant le fonctionnement du réacteur sur 100 ans (à gauche), zoom sur les 10 premières années (à droite).

(quasi-absence de bosse thermique) sans être complètement rapide (flux aux basses énergies non négligeable). Avant d'aller plus loin, expliquons brièvement la normalisation effectuée pour les spectres neutroniques et le lien entre spectre et flux de neutrons. Ce dernier, ϕ, est décomposé en un terme de spectre ou facteur de forme f et un coefficient de flux Φ, selon la relation : $\phi = f.\Phi$. Les spectres neutroniques présentés dans cet ouvrage sont normalisés en n.cm^{-2}.n_ source^{-1}.$d\ln(E)^{-1}$, ce qui correspond littéralement à des neutrons par centimètre carré pour un neutron envoyé en réacteur (appelé neutron source) et par unité de léthargie. Pour retrouver la valeur du flux total, la première étape consiste à faire une intégration logarithmique du spectre neutronique [5]. Le résultat doit ensuite être multiplié par le nombre de neutrons source envoyés chaque seconde dans le réacteur, soit $7.77.10^{19}$ fission.s^{-1} $\times$ 2.482 n.fission^{-1}. Ainsi pour la configuration de référence après 100 ans d'évolution, $f = 7.13.10^{-6}$ n.cm^{-2}.n_ source^{-1} et $\Phi = 1.93.10^{20}$ n_ source.s^{-1} ce qui amène à $\phi = 1.38.10^{15}$ n.cm^{-2}.s^{-1}. Ce résultat est cohérent avec ceux présentés précédemment sur la partie droite de la figure 4.6 (flux de neutrons moyen dans le sel et le graphite).

Le spectre neutronique est marqué de nombreux et profonds pics d'absorption. Ceux-ci sont dus aux résonances dans les sections efficaces microscopiques des éléments majoritaires du coeur. La partie droite de la figure 4.10 présente le spectre neutronique dans le domaine des basses énergies et indique l'isotope responsable de la déplétion du flux pour chaque résonance. Dans cette gamme d'énergie, les isotopes importants sont l'^{233}U pour sa fission et le ^{232}Th et l'^{234}U pour leur capture. Remarquons au passage l'absence des résonances dues à l'^{234}U, en particulier celle à 5 eV, dans le spectre au démarrage du réacteur. En effet cet isotope n'est pas initialement présent dans le coeur, et n'est pas encore formé par capture sur l'^{233}U. De plus, il est très important de noter que la résonance ayant la plus basse énergie est une résonance de fission (de l'^{233}U autour de 2 eV). A haute énergie, c'est la section efficace de capture du ^{19}F qui domine, avec plusieurs grandes résonances à 27, 49 et

[5] MCNP donne un taux de comptage dans des bins de largeur variable $\frac{f(E)}{d\ln(E)}$ et l'intégration effectuée doit prendre cet effet en compte.

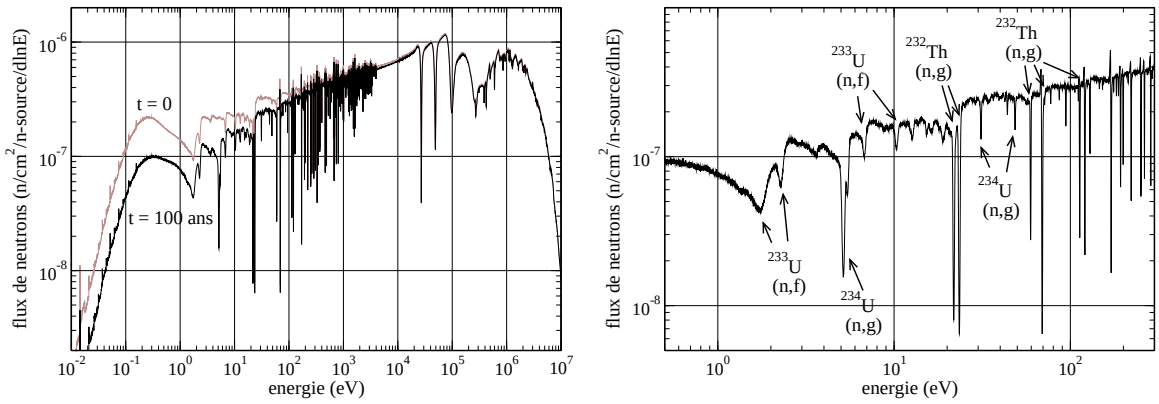


FIG. 4.10 – Spectres neutroniques du cas de référence au démarrage et après 100 ans d'évolution (à gauche). Zoom du spectre pour t = 100 ans dans le domaine de basse énergie (à droite).

97 keV, ainsi que sa section efficace de diffusion inélastique à partir de 115 keV (réaction à seuil) dont le maximum est atteint à 270 keV.

L'analyse des spectres neutroniques est vitale pour la compréhension de l'influence de petites perturbations sur l'ensemble du coeur. En particulier, les conséquences d'une légère variation de température ou de densité sont difficilement détectables, ou tout du moins compréhensibles, par d'autres moyens.

4.2.2.3 Taux de réaction microscopique

A partir du spectre de neutron (ou facteur de forme du spectre $f(E)$) et de la section efficace $\sigma(E)$, il est possible de construire un taux de réaction microscopique tel que : $\tau(E) = \sigma(E) \times f(E)$. Si le spectre permet de connaître la répartition en énergie des neutrons, il n'indique pas la répartition des réactions, ce que fait $\tau(E)$. Tel qu'il est calculé, ce taux est exprimé en barn.cm^{-2}.n_ source^{-1}.$d\ln(E)^{-1}$, mais il est plus clair d'exprimer ce taux en cm^{-3}.s^{-1}.$d\ln(E)^{-1}$. Pour cette renormalisation, on fait intervenir la concentration de l'élément en question n et le coefficient de flux Φ.

On constate sur la figure 4.11, dont la partie de gauche représente le taux de fission de l'^{233}U en fonction de l'énergie des neutrons, que malgré un spectre épithermique l'essentiel des fissions est réalisé dans la partie thermique. Il est possible, comme on l'avait fait pour le spectre, de retrouver la valeur du taux de réaction sur l'ensemble du coeur par une intégration logarithmique et une correction de volume : $\Gamma = V.\int_0^\infty \tau(E).d\ln E$ [6]. En particulier, il est utile de connaître l'importance neutronique d'une région du spectre. Cette grandeur représente la contribution à l'ensemble d'un taux de réaction des neutrons appartenant à un domaine d'énergie donné :

$$I_{E_1 \to E_2} = \frac{\int_{E_1}^{E_2} \tau(E).d\ln E}{\int_0^\infty \tau(E).d\ln E} \tag{4.12}$$

[6] Attention, V n'est pas ici le volume du sel, mais seulement de la cellule combustible considérée. Pour obtenir le taux de réaction de tout le combustible, il faut faire de même avec les autres cellules de sel, en particulier les plenums.

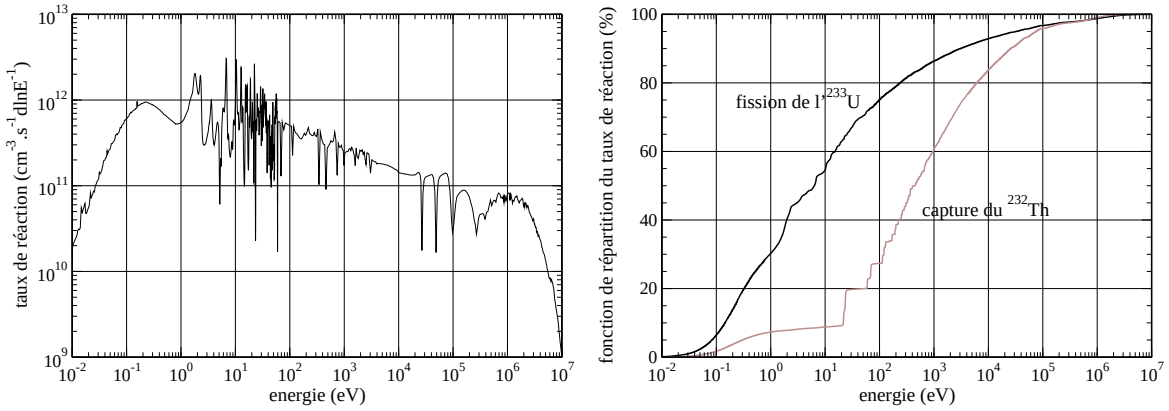


FIG. 4.11 – Taux de fission de l'^{233}U en fonction de l'énergie (à gauche). Fonction de répartition des taux de fission de l'^{233}U et de capture du ^{232}Th (à droite).

Par exemple, cette importance vaut pour la fission de l'^{233}U, 0.3 pour les neutrons d'énergie inférieure à l'eV, ou 0.15 pour les neutrons compris entre 1 et 3 eV (sur les premières résonances de fission). Cela signifie que 30 % des fissions de l'^{233}U sont produites par des neutrons dont l'énergie est inférieure à 1 eV, et 15 % entre 1 et 3 eV. On peut également tracer l'évolution de l'importance, ou fonction de répartition du taux de réaction, $I_{0\rightarrow x}(x)$, ce qui est fait sur la partie droite de la figure 4.11. On peut alors constater *de visu* la forte contribution des neutrons thermiques (50 % des fissions réalisées par des neutrons d'énergie inférieure à 7 eV). Pour les captures sur le ^{232}Th, l'impact des grandes résonances apparaît très nettement, avec près de 11% des captures dans les deux premières (autour de 23 eV).

Si le taux de réaction total Γ peut être calculé par cette méthode, de nombreuses imprécisions rendent cette évaluation approximative. Les sections efficaces proviennent de fichiers de données pouvant être extrêmement précis en raison des résonances. Cependant, la précision du spectre tel que calculé avec le code MCNP est rarement aussi bonne. Cette précision, fixée par l'utilisateur par la finesse du découpage en énergie, est cependant lourde de conséquences. En effet, outre les aspects purement techniques liés à la place mémoire, une multiplication par 10 de la finesse implique une division par 10 de la statistique dans chaque bin. Le temps de calcul doit alors être allongé pour pallier à cet effet et ainsi profiter de la finesse demandée. La figure 4.12 regroupe plusieurs résultats concernant ces divers points :

- Sur la partie gauche, est représenté le spectre neutronique dans deux domaines d'énergie différents. A basse énergie, la chute du niveau de flux due à la résonance de capture du ^{232}Th est parfaitement définie. En revanche, à énergie intermédiaire les résonances sont très mal résolues, ce qui introduit des erreurs dans le calcul d'intégration.
- Sur la partie droite, est montrée l'influence du découpage en énergie sur la partie à énergie intermédiaire du spectre. Le découpage classique, montré sur la partie de gauche, est de 1 000 bins par décade. On peut voir qu'avec un découpage dix fois moins précis, les résonances ont presque

entièrement disparu, le flux oscillant entre $5.6.10^{-7}$ et $5.8.10^{-7}$ n.cm^{-2}.n_ source^{-1}.$d\ln(E)^{-1}$. En revanche, une amélioration de la finesse d'un ordre de grandeur permet une bonne résolution de ces résonances : elles apparaissent beaucoup plus profondes que dans le cas standard, avec un minimum à $3.0.10^{-7}$ au lieu de $4.8.10^{-7}$ n.cm^{-2}.n_ source^{-1}.$d\ln(E)^{-1}$.

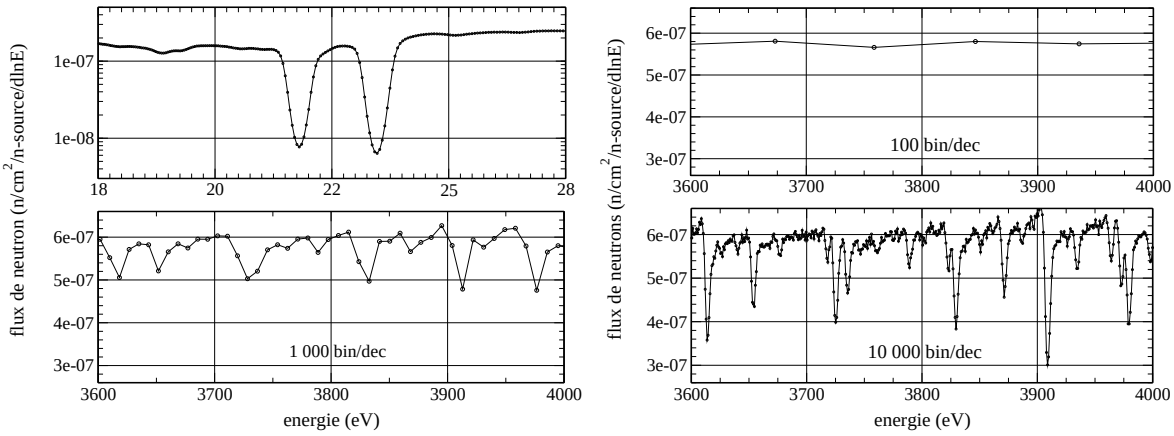


FIG. 4.12 – Zoom du spectre neutronique de la configuration de référence sur : une zone de résonances à basse énergie (en haut à gauche) et à énergie intermédiaire (en bas à gauche). Zoom à énergie intermédiaire de spectres neutroniques réalisés avec un découpage en énergie différent du cas standard : 100 bin/dec (en haut à droite) et 10 000 bin/dec (en bas à droite).

Si le niveau de flux dans une résonance n'est pas suffisamment creusé, le calcul d'intégration surévalue le taux de réaction. Ainsi, pour des finesses de 100, 1 000 et 10 000 bin/dec, le taux de capture volumique sur le ^{232}Th vaut respectivement $8.91.10^{16}$, $4.22.10^{16}$ et $3.92.10^{16}$ cm^{-3}.s^{-1}. La valeur la plus précise correspond à un taux de capture sur l'ensemble de la cellule (sel combustible hors plenums et circuit) de 2.27 kg/j, à comparer aux 2.25 kg/j obtenu par le code d'évolution. Si elle s'en rapproche, cette valeur n'est pas suffisamment précise pour mettre en évidence des effets fins. On restera prudent sur cette méthode d'intégration en la réservant à des domaines bien résolus et pour calculer des importances relatives, observables dont la précision n'est pas indispensable.

Tous ces problèmes n'affectent pas le calcul réalisé par le code MCNP. En effet, celui-ci n'effectue aucun découpage en bins mais traite l'énergie des neutrons et les sections efficaces de manière continue. Chaque réaction fait alors intervenir un neutron d'énergie précise et un noyau dont la section efficace est calculée spécifiquement à cette énergie.

4.2.2.4 Coefficient de température

Nous ne reviendrons pas sur le principe des coefficients de température, puisque cette observable fait partie des contraintes détaillées au chapitre précédent. Nous rappellerons seulement que, si l'on néglige les effets de corrélations, le coefficient total $\frac{dk}{dT})_{total}$ peut être décomposé en sous-coefficients :

$$\frac{dk}{dT}\Big)_{total} = \frac{\partial k}{\partial T}\Big)_{Doppler} + \frac{\partial k}{\partial T}\Big)_{densite} + \frac{\partial k}{\partial T}\Big)_{graphite} \tag{4.13}$$

Afin de minimiser les incertitudes statistiques, le calcul d'un coefficient de température requiert des temps de calcul beaucoup plus longs que ceux nécessaires à un calcul d'évolution. Les barres d'erreur sont ainsi réduites de quelques centaines de pcm à une dizaine, voire quelques pcm suivant l'importance du calcul et le temps qu'on y consacre.

Déterminer les 4 coefficients susnommés nécessite 5 calculs, l'un servant de référence aux 4 autres. Commençons par un bref rappel des opérations effectuées :

- coefficient total : élévation de 100 °C de la température du sel combustible et du modérateur, et changement de la densité du sel en conséquence
- coefficient Doppler : élévation de 100 °C de la température du sel, sans changement de sa densité
- coefficient de densité : changement de la densité du sel correspondant à un échauffement de 100 °C, sans changement de température
- coefficient de graphite : élévation de 100 °C de la température du modérateur

Rappelons que les températures du réflecteur ou de la couverture ne sont pas modifiées. Pour ce qui concerne la densité du sel combustible, nous prendrons comme coefficient de dilatation 10^{-3} /°C soit une densité à 730 °C de 4.2 au lieu de 4.3 [35].

t = 0			t = 100 ans		
calcul	k±dk (pcm)	$\frac{dk}{dT}$ (pcm/°C)	calcul	k±dk (pcm)	$\frac{dk}{dT}$ (pcm/°C)
référence	1.00080±2.3	-	référence	1.00180±3.3	-
total	0.99885±2.3	-1.95±0.03	total	0.99944±3.4	-2.35±0.05
Doppler	0.99418±2.3	-6.62±0.03	Doppler	0.99572±3.3	-6.08±0.05
densité	1.00473±2.3	+3.93±0.03	densité	1.00499±3.2	+3.19±0.05
graphite	1.00161±2.3	+0.81 ± 0.03	graphite	1.003232±3.2	+0.52±0.05

TAB. 4.5 – Coefficients de multiplication et coefficients de température associés, pour la configuration de référence à l'instant initial et après 100 ans d'évolution.

Le tableau 4.5 indique, au démarrage du réacteur et après 100 ans d'évolution, les valeurs des coefficients de multiplication avant et après perturbation. De ces valeurs sont alors tirés les différents coefficients de température. L'explication physique concernant les coefficients de température sera donnée au chapitre 5, lors de l'étude en fonction du rayon des canaux de sel. Nous verrons à ce moment apparaître plus clairement les mécanismes mis en jeu.

4.2.2.5 Décomposition d'un coefficient de température

La méthode suivante est une décomposition mathématique permettant de mieux comprendre les coefficients de température. Elle se base sur la décomposition d'un coefficient de température en diffé-

rentes contributions. Cette décomposition ne doit pas être confondue avec la décomposition classique en sous-coefficients (Doppler, densité et graphite) avec laquelle elle est orthogonale.

On débute par la relation liant le coefficient de multiplication k aux quantités de neutrons créées $\sum c_i$ et les quantités absorbées $\sum a_j$. Ici les indices représentent les contributions des différents matériaux (sel du coeur, sel des plenums, graphite, etc...) :

$$k = \frac{\sum c_i}{\sum a_j} \tag{4.14}$$

Après une perturbation, on a :

$$k + dk = \frac{\sum c_i(1+x_i)}{\sum a_j(1+y_j)} \tag{4.15}$$

avec x_i et y_j les perturbations relatives des créations et absorptions dans le matériau i ou j. L'équation 4.15 peut se décomposer de la sorte :

$$k + dk = \frac{\sum c_i}{\sum a_i} \times \frac{1 + \frac{\sum c_i x_i}{\sum c_i}}{1 + \frac{\sum a_j y_j}{\sum a_j}} \tag{4.16}$$

ce qui donne après développement limité :

$$dk = k\left[\frac{\sum c_i x_i}{\sum c_i} - \frac{\sum a_j y_j}{\sum a_j}\right] \tag{4.17}$$

On applique cette formule à :

- la cellule de combustible principal, c'est-à-dire le sel circulant dans les canaux du modérateur, qu'on appellera "sel thermalisé" : c_{sel_th}, x_{sel_th} et a_{sel_th}, y_{sel_th}
- la cellule de combustible secondaire, soit le sel dans les plenums : c_{sel_pl}, x_{sel_pl} et a_{sel_pl}, y_{sel_pl}
- la couverture : a_{couv}, y_{couv}
- le graphite (sauf les réflecteurs axiaux) : a_{gr}, y_{gr}
- les fuites (en réalité des captures dans le B_4C et les réflecteurs axiaux) : a_{esc}, y_{esc}

En posant $C = \frac{c}{\sum c_i}$ et $A = \frac{a}{\sum a_j}$, on arrive à la formule finale :

$$\begin{aligned} dk \;=\; & k\left[\left(C_{sel_th}.x_{sel_th} - A_{sel_th}.y_{sel_th}\right) + \left(C_{sel_pl}.x_{sel_pl} - A_{sel_pl}.y_{sel_pl}\right)\right. \\ & \left. - A_{couv}.y_{couv} - A_{gr}.y_{gr} - A_{esc}.y_{esc}\right] \end{aligned} \tag{4.18}$$

Les différents termes de l'équation 4.18 sont dotés d'un profond sens physique. Les cinq termes principaux décrivent l'impact de chaque zone du coeur sur le coefficient de température. De plus, C_{sel_th} représente la proportion de neutrons créés dans la zone de sel principale, directement liée à l'importance neutronique de cette zone. De même, A_{couv}, A_{gr} ou A_{esc} expriment les proportions de neutrons absorbés dans la couverture, les autres matériaux (principalement le graphite) ou perdus par les fuites. Si le facteur coefficient de multiplication k est généralement omis pour les valeurs de chaque

terme, il est indispensable pour respecter rigoureusement l'égalité de la somme. Pour la configuration standard, les résultats de cette décomposition sont indiqués dans les tableaux 4.6.

	C_{sel_th}	A_{sel_th}	C_{sel_pl}	A_{sel_pl}	A_{couv}	A_{gr}	A_{esc}
Proportion	94.5 %	89.0 %	5.5 %	6.2 %	3.9 %	0.3 %	0.7 %

Contribution (pcm / °C)	Doppler	densité	graphite	total
sel thermalisé	-5.9	+4.0	+0.5	-1.3
sel des plenums	-0.3	+0.2	+0.0	-0.1
couverture	+0.1	-0.8	+0.0	-0.7
graphite	+0.0	-0.1	+0.0	-0.1
fuites	+0.0	-0.2	+0.0	-0.2
total	-6.1	+3.2	+0.5	-2.4

TAB. 4.6 – Proportions de neutrons créés ou absorbés en fonction de la zone du coeur (en haut). Décomposition du coefficient de température total et de ses sous-coefficients (en bas). Rappelons que la somme des sous-coefficients n'est pas exactement égale au coefficient total en raison des incertitudes statistiques et des corrélations entre effets.

Le premier tableau nous apporte de nombreux renseignements, comme la proportion de neutrons créés dans le "sel thermalisé" (95 %), qui correspond aussi à la proportion des fissions. On y voit aussi la faible participation des captures dans le modérateur (0.3 %) ou des fuites (0.7 %) aux absorptions totales. Sur le second tableau, on peut particulièrement constater le rôle de la couverture en thorium. On voit ainsi qu'elle participe à hauteur de près de 30 % au coefficient de température total. De plus, cet effet est en grande partie dû à la dilatation du sel. On peut également voir que le coefficient graphite, caractéristique du réchauffement du modérateur, n'y engendre aucune variation, tout l'effet se retrouvant dans le sel thermalisé. On notera enfin le rôle ambigu joué par les plenums. Comme précisé précédemment, les coefficients de température, leurs causes et leurs contributions, seront expliqués au chapitre concernant l'étude en fonction du rayon des canaux (chapitre 5).

4.2.2.6 Tenue du graphite à l'irradiation

La durée de vie du graphite est liée au niveau de flux et à la dureté du spectre neutronique. Ne sont pris en compte que les neutrons dont l'énergie est supérieure à 50 keV. La durée de vie s'exprime par la formule suivante :

$$D = \frac{f_{limite}}{\phi.\rho} \tag{4.19}$$

avec f_{limite} la fluence limite au-delà de laquelle les dommages ne sont plus tolérables et valant 2.10^{22} n/cm^2 à 630 °C, ϕ le niveau de flux, et ρ la proportion de neutrons d'énergie supérieure à 50 keV, et définie par :

$$\rho = \frac{\int_{50keV}^{\infty} \phi(E)dE}{\int_{0}^{\infty} \phi(E)dE} \tag{4.20}$$

Pour la configuration de référence, le niveau de flux dans le graphite (indiqué sur la figure 4.6 partie de droite) vaut respectivement $1.43.10^{15}$ et $1.44.10^{15}$ n/cm^2/s dans les manches et dans le modérateur. L'écart sur la dureté du spectre neutronique est cependant plus important puisque, dans les manches, 29 % des neutrons ont une énergie supérieure à 50 keV, contre 25 % dans le reste du modérateur. Ces valeurs nous amènent à une durée de vie des manches et du graphite de 1.5 et 1.75 ans respectivement. Le graphite composant la structure de la couverture en thorium est, quant à lui, plongé dans un flux de $1.11.10^{14}$ n/cm^2/s légèrement plus thermalisé (ρ= 17 %) ce qui lui confère une durée de vie de près de 34 ans.

Ceci ne représente cependant qu'une valeur moyenne de l'ensemble du réacteur. Si la dureté du spectre varie a priori assez peu entre le centre et la périphérie du coeur, le niveau de flux est fortement dépendant de la distance au centre, comme il sera montré dans le paragraphe 4.2.2.7 sur les meshtallies. Ainsi, le graphite du centre est plus irradié que celui de la périphérie et sa durée de vie est raccourcie d'autant.

4.2.2.7 Meshtallies

Sous cette dénomination complexe se cache une méthode très utile permettant de connaître la répartition dans le coeur d'une grandeur, telle que le flux ou un taux de réaction. Cette méthode se base sur un découpage du coeur ou d'une partie du coeur en petits volumes élémentaires parallélépipédiques rectangles. Les résultats présentés dans cet ouvrage seront généralement le fruit d'un découpage d'un huitième du coeur, représentatif de l'ensemble en raison des symétries, en domaine de 1 cm x 1cm x 1cm. Une version modifiée de MCNP permet alors de déterminer le flux de neutrons ou les taux de réaction dans chacun de ces volumes élémentaires.

Une fois un calcul MCNP précis effectué, le logiciel AVS (Advanced Visual Systems [52]) permet de visualiser de différentes manières la matrice tridimensionnelle des résultats. La figure 4.13 représente ainsi la nappe de flux pour une coupe horizontale du coeur dans les différents matériaux du coeur (sel, graphite et sel + graphite). Le flux est évidemment maximum au centre du coeur et diminue presque linéairement avec la distance à l'axe central. Les vagues visibles sur la nappe de flux sont situées à l'emplacement des canaux de sel. Comme il était montré sur la partie droite de la figure 4.6 (flux de neutrons moyen dans le sel et le graphite), le flux est légèrement plus élevé dans le graphite que dans le sel, ce qu'on retrouve sur cette image. Le flux culmine à $3.6.10^{15}$ n/cm^2/s pour une moyenne, rappelons-le, de $1.44.10^{15}$ n/cm^2/s dans le graphite modérateur. Ce rapport entre flux maximum et flux moyen, d'une valeur d'environ 2.5, se répercute directement sur la durée de vie du graphite.

Signalons pour finir que cette méthode, très utile d'un point de vue qualitatif, est cependant très imprécise et difficile d'utilisation pour un usage quantitatif.

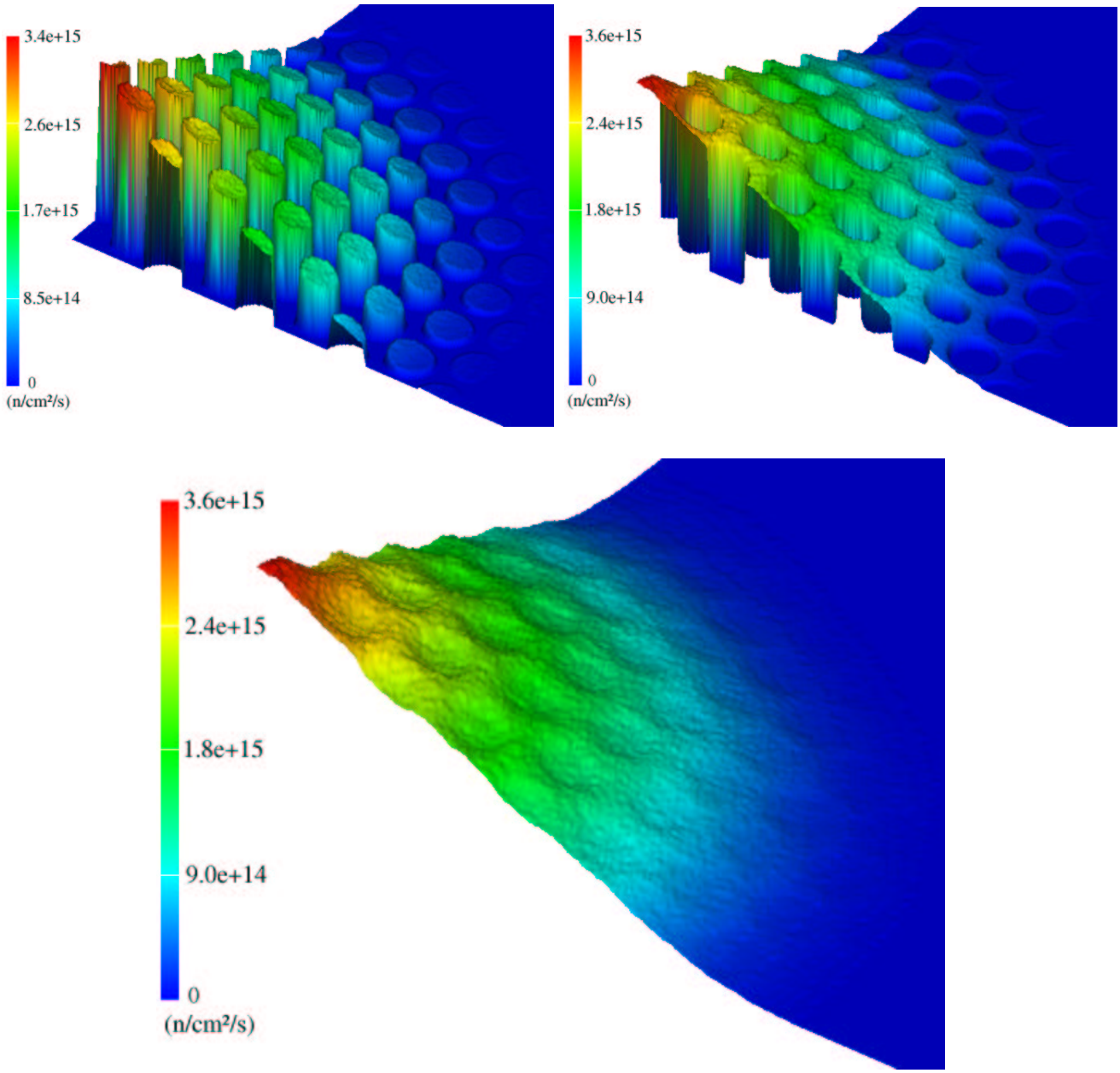


FIG. 4.13 – Flux de neutrons pour une coupe horizontale du réacteur : dans le sel (en haut à gauche), dans le graphite (en haut à droite), et dans les deux matériaux (en bas). En raison des symétries, le centre du coeur est situé dans le coin gauche de la coupe.

4.3 Approche par contrainte

Nous allons maintenant examiner les divers résultats présentés précédemment à la lumière des contraintes décrites au chapitre 3. Cela permettra d'évaluer au mieux les qualités du système de référence, avant d'entamer les études paramétriques.

4.3.1 Sûreté

Commençons par la contrainte la plus importante, à savoir la sûreté ou tout du moins l'étude des coefficients de température. Ceux de la configuration de référence sont indiqués dans le tableau 4.5. Le coefficient total atteint -2.35 $\pm$ 0.05 pcm/°C tandis que ceux concernant le sel et la densité se montent respectivement à -2.89 $\pm$ 0.07 pcm/°C et +3.19 $\pm$ 0.05 pcm/°C.

Le coefficient total, tout comme celui du sel, peut être considéré comme suffisamment négatif pour que les erreurs liées à l'évaluation des sections efficaces ne les rendent pas positifs. En revanche, ces coefficients sont relativement faibles et pourraient ne pas s'opposer à de très fortes excursions de température en situation accidentelle. Le coefficient de densité, tel qu'il est calculé, prend en compte une variation globale de la densité du sel. Cependant une variation locale (remontée d'une bulle ou chute d'un objet ou d'un élément de structure) peut avoir des effets similaires. Il est donc dommage d'avoir un tel coefficient de densité, même si ce n'est pas un point rédhibitoire.

4.3.2 Capacités de régénération

Le taux de régénération de la configuration de référence vaut 0.927 si l'on ne tient pas compte de la couverture, et 1.000 au total. Cela signifie que le coeur (sans la couverture) est sous-générateur et qu'il nécessite en permanence d'être alimenté en matière fissile. Ainsi, la criticité peut être obtenue en ajoutant la quantité adéquate d'uranium. Si le coeur seul était surgénérateur, il faudrait impérativement extraire l'uranium sans quoi la réactivité ne serait pas maintenue à 1. Une telle situation n'est pas favorable à la sûreté, puisqu'un arrêt de cette extraction conduit à un incident.

En revanche, la couverture en thorium permet de compenser cette sous-génération. Cette configuration a l'avantage de minimiser les transports de matière fissile, que ce soit des expéditions ou des approvisionnements. Il va de soi que le temps de retraitement de l'ensemble du coeur en 6 mois a été choisi comme référence pour cette raison (l'impact du temps de retraitement sur la régénération sera présenté au chapitre 7).

4.3.3 Tenue des matériaux

La durée de vie du graphite est estimée à 1.5 ans pour les manches et 1.75 ans pour le reste du modérateur. Ces temps sont calculés à partir d'une valeur de flux d'environ $1.44.10^{15}$ n/cm^2/s, mais le flux maximum est plus de 3 fois supérieur, ce qui se répercute directement sur la durée de vie du graphite le plus irradié. De plus, la quantité de graphite à retraiter par unité de temps ne doit pas être

négligée. D'après le tableau 4.2, le coeur de référence contient, hormis les réflecteurs et la structure de la couverture, 26.3 tonnes de graphite. Cela implique, dans le cas d'une optimisation idéale de la disposition du graphite, un flux à gérer de 17.5 tonnes par an.

Il est aisé d'imaginer la difficulté que représente le renouvellement du graphite du coeur. L'extraction des hexagones de la matrice peut en effet s'avérer délicate. Ce problème peut cependant être facilité par un changement de conception du coeur : des barreaux de graphite immergés dans une cuve de sel pourraient remplacer la matrice de graphite. Le remplacement de ces barreaux se ferait alors sans même ouvrir la cuve. Il convient évidemment d'étudier cette solution, tant d'un point de vue neutronique que de celui de la sûreté. En effet, comme nous le verrons au chapitre 6, le rapport de modération ne suffit pas à définir le spectre neutronique et le dimensionnement de tels barreaux peut s'avérer délicat. Ces structures sont également plus fragiles que la matrice, et de nouveaux scénarii d'incidents doivent alors être pris en compte. Malgré cette hypothétique solution, le flux de graphite à traiter reste élevé, et le remplacement tous les 6 mois du graphite le plus irradié peut entraîner des difficultés d'exploitation.

4.3.4 Inventaire initial nécessaire

Des figures 4.3 sur l'évolution de l'inventaire d'uranium, et 4.9 sur le stock d'^{233}U, on retire qu'il faut 1410 kg d'^{233}U pour démarrer le réacteur, et 510 kg pour les premières années, soit 1920 kg en tout. Afin de connaître l'acceptabilité de cet inventaire, il faut établir quelques éléments de comparaison.

En tant que réacteur de Génération-IV, le RSF a pour objectif d'être déployable dans le cadre d'une forte demande d'énergie électronucléaire. Comme l'^{233}U n'existe pas à l'état naturel, il doit être produit, en REP, EPR ou RNR, dans du MOX ou des couvertures thoriés. Ce type de production étant limité, il va de soi qu'un faible inventaire initial rendra le démarrage de chaque RSF plus facile, et le déploiement d'un parc entier plus souple et/ou rapide. Parmi les autres réacteurs de Génération-IV, beaucoup utilisent un spectre de neutrons rapide qui a pour conséquence des inventaires en matière fissile élevés. Bien que du plutonium ait été produit à l'échelle industrielle, les quantités requises pour un déploiement mondial sont supérieures aux réserves accumulées. Par exemple, le projet de l'European Fast Reactor (EFR) nécessite près de 6 tonnes de combustible (matière fissile uniquement). De plus, le combustible des RNR, une fois déchargé après 5 années en coeur, ne peut être traité immédiatement à cause de l'intense puissance thermique résiduelle. Un coeur neuf doit alors être chargé dans le réacteur. Le déchargement de ce second coeur verra alors le retour de la matière fissile du premier, et ainsi de suite. Au final, le recours à deux coeurs double l'inventaire en matière fissile pour le porter à 12 tonnes par réacteur. Les RSF ne sont pas soumis à ce problème puisque le sel peut être fluoré sans attendre le refroidissement du combustible, et la matière fissile renvoyée en coeur dans un délai très court.

Tel qu'il est représenté, l'inventaire nécessaire ne se répercute pas directement sur la facilité de déploiement. L'information manquante se rapporte à la quantité d'électricité produite par l'investisse-

ment d'un tel inventaire. Dans toutes nos études nous prévoyons une puissance électrique de 1 GWe pour les RSF, l'inventaire nécessaire est donc de 1.9 t/GWe. Ainsi l'EFR est prévu pour une puissance de 1470 MWe ce qui ramène son inventaire à environ 8 t/GWe. A contrario, le Gas Fast Reactor (GFR) d'une puissance de 300 MWe pour un inventaire nécessaire de 7 t a en réalité besoin d'environ 25 t/GWe pour se déployer [7]. En comparaison, l'inventaire de notre configuration semble assez faible ce qui constitue un atout de poids.

4.3.5 Faisabilité du retraitement

S'il est difficile d'affirmer que le retraitement choisi est faisable, il est cependant possible de dire qu'il l'est plus que celui du MSBR. Regardons plus en détail les changements apportés et leurs conséquences.

En tout premier lieu, le retraitement a été fortement ralenti, puisque le coeur est maintenant traité en 6 mois au lieu de 10 jours. Ce ralentissement a de nombreuses répercussions, en particulier sur le flux de sel à traiter. Les 20 m^3 de sel sont ainsi traités au rythme d'un peu plus de 100 L/j, contre 4 m^3/j pour les 40 m^3 de sel du MSBR. Un tel flux permet un découplage entre le coeur nucléaire et l'unité de retraitement. Celui-ci est en effet réalisé sur de petites quantités distinctes, et non en continu, ce qui est source de simplification. Cela permet un contrôle des opérations plus facile tout soustrayant le coeur à d'éventuels problèmes de l'unité de retraitement. C'est un avantage indéniable du point de vue de la sûreté globale du système coeur / unité de retraitement.

La fluoration du sel combustible en vue d'extraire l'uranium est une étape considérée comme presque validée. La réduction du flux à traiter va certes nécessiter une fluoration moins performante, mais cela n'induit pas d'avantage particulier. En revanche, les extractions réductrices suivant l'étape de fluoration bénéficient plus significativement de ce ralentissement. En particulier, comme il a été expliqué lors de la présentation du retraitement (partie 4.1.2), l'étape d'extraction réductrice des PF en présence de thorium est ici remplacée par plusieurs étapes : extraction du thorium, puis extraction des PF sans thorium, et enfin réinjection du thorium. Parmi ces étapes, seule la première semble être délicate, des PF pouvant être extraits avec le thorium par effet d'entraînement [8]. Les extractions de PF sont considérées comme totales lors de ce retraitement, contrairement au retraitement MSBR. On suppose en effet que le temps disponible pour effectuer les opérations chimiques (plusieurs mois) et la moindre complexité des procédés permettent d'atteindre une telle efficacité. Bien qu'elle soit de 100 % dans les calculs, une valeur plus réaliste (99 % ou 90 %) ne change pas fondamentalement le comportement du réacteur : il suffit à ce moment de modifier (de 1 % ou 10 %) le temps de retraitement.

Le stockage du Pa hors flux peut s'avérer délicat en raison de la puissance dégagée par sa décroissance. Il y a en permanence 16.4 kg de ^{233}Pa à l'extérieur du coeur, ce qui représente $1.26.10^{19}$ dés-

[7] Pour de tels réacteurs, la période de retraitement du combustible est beaucoup moins longue. Ainsi, il n'est pas nécessaire de multiplier l'inventaire par 2.

[8] Cela ne pose de problème que si une part significative des PF est entrainée avec le Th. Comme celui-ci est destiné à retourner en coeur, les PF l'accompagnant évitent simplement la suite du retraitement.

intégrations par seconde. En considérant 570 keV émis pour chacune d'elle, la puissance dégagée par le ^{233}Pa externe se monte à 1.1 MW. Le reste du sel, en particulier la fraction continuant dans l'unité de retraitement, est également très radioactif. Cependant, les périodes mises en jeu sont généralement beaucoup plus faibles (PF à vie courte) ou plus longues (actinides). Bien que 5 fois inférieure à celle engendrée par un retraitement rapide du Pa (tel que le retraitement du MSBR : 80 kg de ^{233}Pa hors coeur), il va de soi qu'une telle source de chaleur dans l'unité de retraitement doit être gérée.

4.3.6 Production de TRansUraniens

Le tableau 4.7 indique pour la configuration de référence la quantité de TRU présents à l'équilibre dans le coeur, le flux sortant au retraitement et les pertes lors de l'extraction des PF. Les TRU étant totalement retirés en 6 mois, le flux annuel est égal au double de l'inventaire en coeur. Les pertes au retraitement sont égales à 10^{-5} de l'inventaire en coeur par retraitement, soit 2.10^{-5} par an. Le flux normalisé en TWh est alors calculé sur la base d'une production annuelle de 7 TWh, soit un facteur de charge de 80 %.

Elément	Inventaire	Flux de sortie	Pertes au retraitement
Np	15 kg	4.3 kg / TWh	43 mg / TWh
Pu	2.8 kg	800 g / TWh	8 mg / TWh
Am	515 mg	150 mg / TWh	1.5 μg / TWh
Cm	105 mg	30 mg / TWh	300 ng / TWh
Bk	15 ng	4 ng / TWh	100.10^6 at / TWh
Cf	50 ng	15 ng / TWh	340.10^6 at / TWh

TAB. 4.7 – Quantité de TRU dans le cycle (en coeur, flux d'extraction, pertes au retraitement) après 100 ans d'évolution.

Les inventaires des TRU les plus lourds sont extrêmement faibles malgré l'irradiation pendant 100 ans, ceux-ci étant retirés régulièrement. Or ces éléments sont considérablement plus problématiques que le ^{237}Np ou le ^{238}Pu, comme expliqué précédemment (partie 3.1.6). Cependant le neptunium, et dans une moindre mesure le plutonium, sont retirés en grande quantité. Le ^{237}Np et le ^{238}Pu étant stables à cette échelle de temps, il s'en accumule respectivement 3 tonnes et environ 500 kg au bout de 100 années de fonctionnement. Les pertes au retraitement suivent la même loi que les flux d'extraction, ce qui signifie qu'elles sont beaucoup plus élevées pour le neptunium et le plutonium. Tous ces rejets doivent cependant être comparés aux autres filières proposées, ce qui est fait dans le tableau 4.8.

Cette option de retraitement, qui forme de grandes quantités de neptunium et de plutonium, n'a de sens que si ces matières sont gérées dans des réacteurs plus spécifiquement adaptés. En particulier, les réacteurs à spectre neutronique rapide sont de meilleurs incinérateurs, en raison du rapport $\frac{\sigma_{capture}}{\sigma_{fission}}$ moins favorable à la capture pour les neutrons de haute énergie. De plus, le combustible est moins complexe à fabriquer grâce à la faible teneur en TRU lourds. Si la gestion de ces matières chaudes

Type de réacteur	Np	Pu	Am	Cm
REP cycle ouvert	1.8 kg	25 kg	1.5 kg	250 g
REP cycle fermé	1.6 kg	40 g	4.3 kg	2.1 kg
RNR cycle ouvert	410 g	130 g	3.4 kg	13.3 kg
RNR cycle fermé	700 mg	140 g	6 g	1.5 g
RSF (TRU extraits)	4.3 kg	800 g	150 mg	30 mg

TAB. 4.8 – Quantité de TRU sortis du coeur par TWh pour différentes filières [53].

n'est pas possible dans d'autres réacteurs, alors un autre retraitement doit être envisagé, ce qui sera montré au chapitre 7.

Les pertes de thorium au retraitement représentaient dans le concept MSBR un sérieux problème. Bien qu'elles soient assez délicates à chiffrer, ces pertes sont elles aussi inversement proportionnelles à la vitesse de retraitement. Elles seront donc diminuées d'un facteur 18 (rapport entre 6 mois et 10 jours) par rapport au cas du MSBR.

4.3.7 Production de tritium

Dans le MSBR, la production de tritium provient principalement du lithium par les deux réactions suivantes :

$$\begin{cases} {}^{6}\text{Li+n} \longrightarrow \text{t} + \alpha \\ {}^{7}\text{Li+n} \longrightarrow \text{t} + \alpha + \text{n} \end{cases}$$

Elle a été évaluée à l'époque à 46 g/GWe/an par la réaction (n,t) sur le ^{6}Li et à 44 g/GWe/an par (n,nt) sur le ^{7}Li. Même présent en faibles quantités, le ^{6}Li a tout de même une contribution majeure. Les travaux plus récents sur le MSBR [9] l'ont cependant réévaluée à 150 g/an à l'équilibre (55 g/GWe/an par le ^{6}Li et 95 g/GWe/an par le ^{7}Li). Le ^{6}Li consommé est régénéré par réaction (n,α) sur le ^{9}Be du sel combustible, d'où une stabilisation de sa production d'équilibre. Au démarrage du réacteur, la production de tritium était bien supérieure : 385 g/GWe/an dont 290 par le ^{6}Li et toujours 95 par le ^{7}Li.

Le sel utilisé pour la configuration de référence, s'il contient toujours 0.005 % de ^{6}Li dans le lithium, est dépourvu de béryllium. Le ^{6}Li ne peut donc pas être régénéré et sa production de tritium à l'équilibre s'en retrouve fortement amoindrie. A l'équilibre, la production de tritium se monte à 110 g/GWe/an, contre 185 g/GWe/an initialement. Les différences par rapport aux productions du MSBR sont dûes au spectre neutronique plus rapide (un peu plus de production par le ^{7}Li mais beaucoup moins par le ^{6}Li). Ces valeurs sont inférieures aux 280 g/GWe/an des réacteurs CANDU et ne posent probablement pas de problèmes technologiques majeurs.

4.3.8 Aspects de thermohydraulique

Appliquons les équations 3.4 à 3.7 du chapitre précédent, concernant tout d'abord la relation entre ΔT et v. Les données concernant la configuration de référence et utilisées dans ces calculs sont rappelées dans le tableau 4.9.

Données	Valeur	Données	Valeur
ΔT	100 °C	ρ	4300 kg.m^{-3}
Cp	4.5 J.cm^{-3}.°C^{-1}	D	17 cm
P_{th}	2500 MW	μ	7.10^{-3} Pa.s
S	121 x 227 cm^2	H	3.20 m

TAB. 4.9 – Données utiles pour les calculs de thermohydraulique pour la configuration de référence.

L'équation 3.5 nous permet d'en déduire une vitesse d'écoulement de 2.0 m.s^{-1}. Le nombre de Reynolds peut alors être calculé, grâce à l'équation 3.6, et s'élève à $2.1.10^5$ ce qui nous situe très largement dans le domaine des écoulements turbulents. Enfin il reste à déterminer le coefficient de pertes de charge λ à l'aide du diagramme de Moody (figure 3.2 page 47), pour finalement obtenir la valeur des pertes de charges pour le passage dans la matrice de graphite. Nous supposerons ici que la rugosité ε est comprise entre 0 et $1/10^e$ de millimètre. Cela permettra d'encadrer les pertes de charges entre un cas idéal et un cas plutôt défavorable. Le λ obtenu est ainsi compris entre 0.016 et 0.019 et on peut constater le faible impact de la rugosité du graphite dans cette configuration.

En appliquant l'équation 3.7, les pertes de charges linéiques s'élèvent au maximum (cas rugueux) à 960 Pa/m, ce qui amène à 0.03 bar sur la hauteur totale du coeur. On vérifie ainsi que la taille des canaux de la configuration de référence ne pose aucun problème d'écoulement, du strict point de vue de la puissance mécanique nécessaire.

Ainsi, les pertes de charges occasionnées par l'écoulement du sel sont dominées par celles des échangeurs (non étudiées ici). Concernant l'extraction de la puissance thermique du coeur, les technologies actuellement disponibles pour les échangeurs de chaleur [54] laissent à penser qu'extraire une puissance de 2500 MWth avec 1/3 de 20 m^3 de sel est faisable [55].

4.3.9 Résistance à la prolifération

Dans le retraitement de référence, une fluoration extrait l'uranium à la première étape afin de ne pas laisser de combustible dans l'unité de retraitement et augmenter inutilement l'inventaire nécessaire. La fluoration est un procédé très efficace et il est tout à fait envisageable que 99.9 % de l'uranium retourne ainsi en coeur. En revanche, s'il ne reste plus d'uranium dans le sel, la décroissance du ^{233}Pa va former un uranium très fortement enrichi en ^{233}U. Cet uranium pur pourrait alors être récupéré par une simple fluoration similaire à la première. Un tel schéma de retraitement est très proliférant

et il convient de lui apporter quelques modifications. En particulier, l'extraction de l'uranium à la fluoration doit être incomplète (par exemple 99 %) pour qu'une partie de celui-ci accompagne le protactinium et dégrade la pureté de l'uranium formé. Notons que l'extraction du protactinium, si elle favorise la régénération, n'est pas indispensable en elle-même et sa suppression augmenterait grandement la résistance à la prolifération. Ce point sera discuté plus en détail dans le chapitre 7 traitant de l'influence du retraitement.

4.3.9.1 Dans le coeur

L'uranium du combustible est à l'équilibre fortement dégradé par la présence d'une proportion notable d'^{234}U (26 %), élément non fissile, et d'une faible quantité d'^{232}U (250 ppm [9] soit 950 g), précurseur d'un rayon γ de 2.6 MeV. En théorie, ces éléments n'apparaissent pas immédiatement après le démarrage du coeur, puisqu'il leur faut respectivement 15 et 4 ans pour atteindre 80 % de leur valeur d'équilibre. Cependant, l'^{233}U de l'inventaire initial du réacteur, obtenu à partir de ^{232}Th, contient obligatoirement de l'^{232}U [10] et de l'^{234}U. La dégradation isotopique de l'uranium combustible fait que la masse critique passe de 16 kg à 27.5 kg. Cette dégradation n'est cependant pas une protection très efficace.

L'^{232}U est anti-proliférant par la quantité de rayons γ de 2.6 MeV qu'il engendre. En supposant sa chaîne de décroissance à l'équilibre, après quelques années, on obtient une activité du ^{208}Tl égale à 790 TBq (21.3 kCi) sur l'ensemble du coeur, soit 200 GBq (5.6 Ci) par kilogramme d'uranium récupéré (contenant lui-même seulement 55 % d'^{233}U) [56]. Ce calcul ne prend pas en compte l'activité de toute la chaîne de désintégration, d'approximativement un ordre de grandeur supérieure mais dont les émissions sont de plus basse énergie.

4.3.9.2 Dans l'unité de retraitement

Dans l'unité de retraitement, pour une efficacité de fluoration de 99 %, sont sortis 210 g/jour d'uranium et 430 g/jour de protactinium. Cet uranium contient toujours de l'^{232}U (flux de 50 mg/jour) et le protactinium du ^{233}Pa (flux de 11 mg/jour) qui forme rapidement de l'^{233}U. L'uranium résiduel contient, avant décroissance du ^{233}Pa, la même proportion d'^{232}U soit 250 ppm, qui conduisent à la même activité du ^{208}Tl de 200 GBq.kg$_{U}^{-1}$. Après décroissance du ^{233}Pa, la proportion d'^{232}U chute à 100 ppm ce qui correspond à une activité de 80 GBq.kg$_{U}^{-1}$ (2.2 Ci.kg$_{^{233}U}^{-1}$).

Ce dernier calcul suppose cependant les descendants de l'^{232}U en équilibre avec leur noyau père. Comme le thorium, et a fortiori le ^{228}Th (premier descendant de l'^{232}U), ne suit pas le Pa dans l'unité de retraitement, l'activité n'atteint pas immédiatement la valeur mentionnée. Compte tenu de la période de 1.91 ans du ^{228}Th, et en négligeant celle du ^{224}Ra (3.66 jours), on retiendra que l'activité en rayonnement γ dans le stockage du Pa est, dans un premier temps, égale à 0.1 % de l'activité avant décroissance du ^{233}Pa (donc 200 MBq.kg$_{U}^{-1}$) pour chaque journée passée depuis la séparation Pa /

[9] Il s'agit de partie par million d'atomes d'uranium et non par million d'atomes de sel.

[10] Compte tenu de sa période de (68.9 ans), il n'est pas concevable que cet isotope disparaisse du combustible entre sa fabrication et son utilisation.

Th. Cela signifie également qu'extraire et stocker l'^{233}U (à des fins militaires) pose plus de problèmes que de l'extraire pour le réinjecter immédiatement en coeur (à la fluoration).

4.3.9.3 Dans la couverture

L'uranium présent dans la couverture n'a pas les mêmes propriétés que celui du coeur. La teneur en ^{234}U n'y est pas de 26 % mais de seulement 2.8 % en raison du faible flux de neutrons et de l'extraction assez rapide (6 mois) de la totalité de l'uranium. L'uranium peut donc être considéré comme relativement pur par rapport à celui du coeur. En revanche, la proportion d'^{232}U dans l'uranium est de 420 ppm, soit près de deux fois supérieure à celle du coeur. En effet, l'^{232}U est produit à partir du ^{232}Th, présent en grande quantité dans la couverture. En revanche, la quantité totale d'uranium est faible en raison de son extraction. Qui plus est, le ^{231}Pa n'est pas retiré par le retraitement ce qui conduit à un rapport ^{232}U/U plus élevé et une activité du ^{208}Tl de 350 GBq.kg$_U^{-1}$ (9.5 Ci.kg$_U^{-1}$).

4.4 Synthèse de l'étude de la configuration de référence

Récapitulons les caractéristiques de la configuration de référence du point de vue des différentes contraintes :

Sûreté : Le coefficient de température total de cette configuration atteint -2.35 $\pm$ 0.05 pcm/°C et peut être considéré comme suffisamment négatif. Son sous-coefficient concernant uniquement le sel est également négatif (-2.89 $\pm$ 0.07 pcm/°C), mais le sous-coefficient de densité est quant à lui fortement positif : +3.19 $\pm$ 0.05 pcm/°C. On considèrera cette configuration comme acceptable du point de vue de cette contrainte.

Capacités de régénération : Cette configuration a un taux de régénération de 1.000, grâce à son temps de retraitement en 6 mois. Elle respecte donc parfaitement notre volonté d'obtenir un réacteur iso-générateur, mais ne dispose pas de "réserve de régénération" utilisable.

Tenue des matériaux : Le modérateur est soumis à un flux moyen de $1.44.10^{15}$ n/cm^2/s, sachant que le flux maximum est plus de 3 fois supérieur. La durée de vie est estimée à 1.5 ans pour les manches et 1.75 ans pour le reste du modérateur. Un renouvellement -moyen- du graphite aussi fréquent constitue un handicap majeur de cette configuration. De plus, le flux de graphite à gérer se monte à 17.5 tonnes/an, ce qui accumulerait des stocks importants de graphite irradié.

Inventaire initial nécessaire : Le coeur a besoin de 1410 kg d'^{233}U pour être critique, auxquels il faut rajouter 510 kg pour couvrir la sous-génération des premiers temps. L'inventaire fissile nécessaire pour produire 1 GWe est donc légèrement inférieur à 2 tonnes ce qui, sans être totalement satisfaisant, est très acceptable.

Faisabilité du retraitement : Le retraitement envisagé, dit “lent”, est beaucoup plus simple que celui du projet MSBR. Le ralentissement du retraitement diminue sensiblement les flux de matière à traiter et permet, probablement, l’extraction du Th avant celle des PF. Ceci constitue une solution pour contourner le problème d’extraction des PF en présence de Th.

Production de TransUraniens : Les TRU étant extraits au retraitement, peu d’éléments très lourds sont formés. Cela signifie que la gestion de ces TRU dans des réacteurs plus adaptés est grandement facilitée par les faibles teneurs en Am, Cm ou Cf. Citons également la réduction significative (d’un facteur 18) des pertes de Th au retraitement, problème connu du projet MSBR.

Production de Tritium : Compte tenu de l’absence de Be, le ^{6}Li est rapidement consommé et ne peut produire de tritium de façon significative. Ainsi, cette production se monte à 110 g/GWe/an, soit un peu moins que les 150 g/GWe/an du MSBR [9] et beaucoup moins que les 280 g/GWe/an des réacteurs CANDU.

Aspects de thermohydraulique : Le sel circule dans les canaux de façon turbulente, à la vitesse raisonable de 2.0 m.s^{-1}. Les pertes de charge sont dominées par le frottement lors du passage dans les échangeurs, puisque la circulation dans les canaux n’engendre qu’un effet minime ($\Delta P = 30$ mbar). L’extraction de la puissance du coeur, à savoir 2500 MWth avec 1/3 des 20 m^3 de sel, semble faisable grâce aux nouvelles technologies d’échangeurs de chaleur [54, 55].

Résistance à la prolifération : L’^{232}U présent dans le combustible du coeur, dans la couverture, et même dans le stockage du protactinium, engendre des émissions de rayons γ de 2.6 MeV. L’activité du ^{208}Tl qui les émet vaut 200 GBq par kilogramme d’uranium récupéré dans le coeur, et 350 GBq.kg$_{\mathrm{U}}^{-1}$ dans la couverture. Bien que plus riche en ^{233}U, le stockage externe n’est pas proliférant puisqu’il n’est pas exempt d’^{232}U. L’activité du ^{208}Tl s’y monte tout de même à 80 GBq.kg$_{\mathrm{U}}^{-1}$ à l’équilibre.

Le présent chapitre a décrit dans le détail les propriétés de la configuration de référence. Les chapitres suivants vont présenter les différentes études réalisées à partir de cette configuration de référence. On s’intéressera tout d’abord à la taille des canaux de sel, déterminant le rapport de modération du coeur (chapitre 5), à la puissance spécifique et autres aspects géométriques (chapitre 6), au retraitement (chapitre 7) et enfin à la composition chimique du sel combustible (chapitre 8). Toutes ces études étant fortement liées à la configuration de référence, il convenait de bien connaître ses propriétés, géométriques comme neutroniques, ainsi que ses défauts et qualités.

Chapitre 5

Etude du rayon des canaux

5.1 Présentation de l'étude

5.1.1 Principe général

Le comportement d'un réacteur dépend fortement de son spectre neutronique, et ce spectre est déterminé par le pouvoir de modération global du coeur. Que ce soit par les atomes de carbone du graphite modérateur ou par les noyaux légers du sel, les neutrons perdent leur énergie de diverses manières. Nous allons dans ce chapitre nous concentrer sur la variation du rayon des canaux de sel. Comme la taille des hexagones est gardée constante, cette variation de rayon a un impact direct sur le rapport de modération. Nous allons parcourir l'ensemble des configurations, depuis celle ayant des très petits canaux jusqu'à celle où le graphite modérateur a complètement disparu du coeur. Ce faisant nous élargirons les études déjà menées sur le sujet dans une gamme de rayons plus restreinte [57].

Quelles vont être les variations des autres paramètres du coeur ? En effet, même si c'est scientifiquement plus correct, il n'est pas possible de ne modifier qu'un seul paramètre. En particulier, la variation du diamètre a un impact direct sur le volume de sel contenu dans un canal. Nous avons décidé dans cette étude de garder le volume de combustible constant car c'est un paramètre fondamental, comme il sera montré au chapitre 6. Le coeur nécessitant un nombre de canaux différent, cela se répercute finalement sur le diamètre du coeur, ainsi que sur sa hauteur pour garder l'orthorhombicité. La figure 5.1 regroupe les coupes horizontales de trois réacteurs type (réacteurs à spectre thermique, épithermique et rapide). Le tableau 5.1 présente quant à lui les dimensions de la matrice modératrice pour quelques configurations. La hauteur n'est pas toujours égale au double du rayon, puisque le rayon, ou plutôt le nombre d'hexagones, ne prend que des valeurs discrètes. L'ajustement du volume, prioritaire sur l'orthorhombicité, fixe alors la hauteur exacte nécessaire. Les caractéristiques de la couverture en thorium ne sont pas modifiées dans cette étude. On gardera donc deux couches d'hexagones avec des canaux de 10 cm de rayon contenant le sel fertile. Enfin, le retraitement du combustible est gardé constant d'une configuration à l'autre. Le retraitement des 20 m^3 de sel combustible se fait toujours en six mois, avec une extraction totale des PF, des TRU et du protactinium.

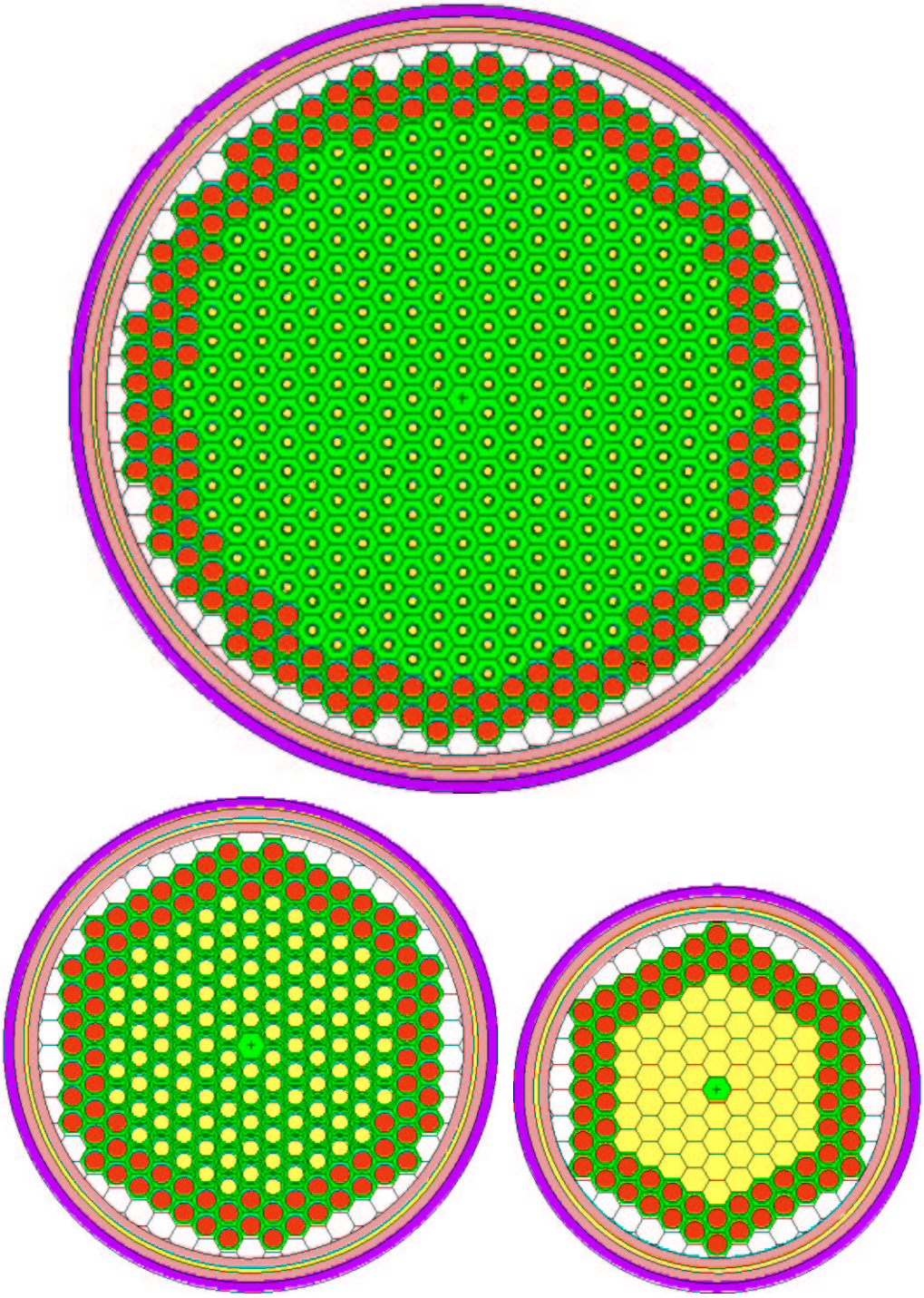


FIG. 5.1 – Coupe horizontale de trois réacteurs types : réacteur thermique avec r = 4 cm (en haut), réacteur épithermique avec r = 8.5 cm (en bas à gauche), réacteur rapide en “canal unique” (en bas à droite). Les réacteurs sont de tailles différentes afin de maintenir un volume de sel combustible constant de 20 m^3.

Rayon des canaux de sel (cm)	1	2	4	6	8.5	10	12	13.6
Rayon du bloc modérateur (m)	6.5	4.1	2.65	2.05	1.6	1.5	1.3	1.25
Nombre de canaux	2173	847	337	199	121	97	73	1
Hauteur du bloc modérateur (m)	13.0	8.4	5.3	4.0	3.2	3.0	2.8	2.6
Volume de sel (m^3)	20.0	19.9	20.1	20.3	20.0	20.3	20.0	20.2

TAB. 5.1 – caractéristiques du coeur en fonction du rayon des canaux.

Lorsqu'on enlève complètement le graphite du bloc modérateur, la notion de rayon de canaux n'a plus vraiment de sens. Ce qui est mentionné dans le tableau 5.1 représente le rayon du cercle dont la surface égale celle de l'hexagone entier. Par la suite, on se réfèrera à cette configuration un peu particulière par l'appellation "canal unique".

Face à ces problèmes techniques, pourquoi parler de rayon de canaux et pas de rapport de modération ? La définition de ce dernier n'est pas constante et universelle, puisqu'il est interprété tantôt comme un rapport entre volume de modérateur et volume de combustible, et tantôt comme un rapport entre nombre de noyaux modérateurs et nombre de noyaux fissiles. Pour le cas qui nous concerne, le sel combustible contient également des noyaux modérateurs dont il faudrait tenir compte. De plus, si la densité du graphite n'évolue pas, celle du sel varie avec la proportion de Noyaux Lourds (NL) et la température, ce qui complique le calcul et l'interprétation du rapport de modération. Enfin, ce rapport ne suffit pas à définir le comportement neutronique du coeur, puisqu'un même rapport peut aboutir à deux résultats différents, comme il sera montré au chapitre 6 dans la partie traitant de l'étude en fonction de la taille des hexagones. Ainsi, parler de rapport de modération n'a de sens que si l'on connaît également les autres caractéristiques du coeur (densité des matériaux, géométrie, etc...). Quitte à choisir un paramètre imparfait, nous lui préfèrerons le rayon des canaux, qui a l'avantage d'être moins abstrait et de ne pas entraîner d'erreurs d'interprétation. En Annexe B sont données des tables de correspondance pour plusieurs configurations.

5.1.2 Problème des grands rayons

Pour les configurations à grand rayon de canaux (à partir de r = 11 cm), nous avons dû procéder à un changement dans la géométrie du coeur. La figure 5.2 partie de gauche présente un schéma du quart supérieur droit du coeur dans la configuration "canal unique". On y voit le coeur, traversé de la barre centrale, la couverture en thorium ainsi que le réflecteur axial supérieur en graphite. Sur la partie droite on peut voir la répartition des fissions dans le même quart de coeur supérieur droit. Il apparaît très clairement que les fissions se produisent en majorité à proximité du réflecteur axial. Dans une telle configuration, le coeur est presque dépourvu de modérateur hormis les éléments légers du sel. Les sections efficaces moyennes de fission dans un flux aussi peu thermalisé sont alors faibles. En revanche, les réflecteurs en graphite, d'une épaisseur standard de 1.30 m, ont un pouvoir modé-

rateur beaucoup plus important que les noyaux légers du sel, ce qui conduit à des sections efficaces moyennes de fission plus élevées et un rassemblement des fissions à proximité des réflecteurs.

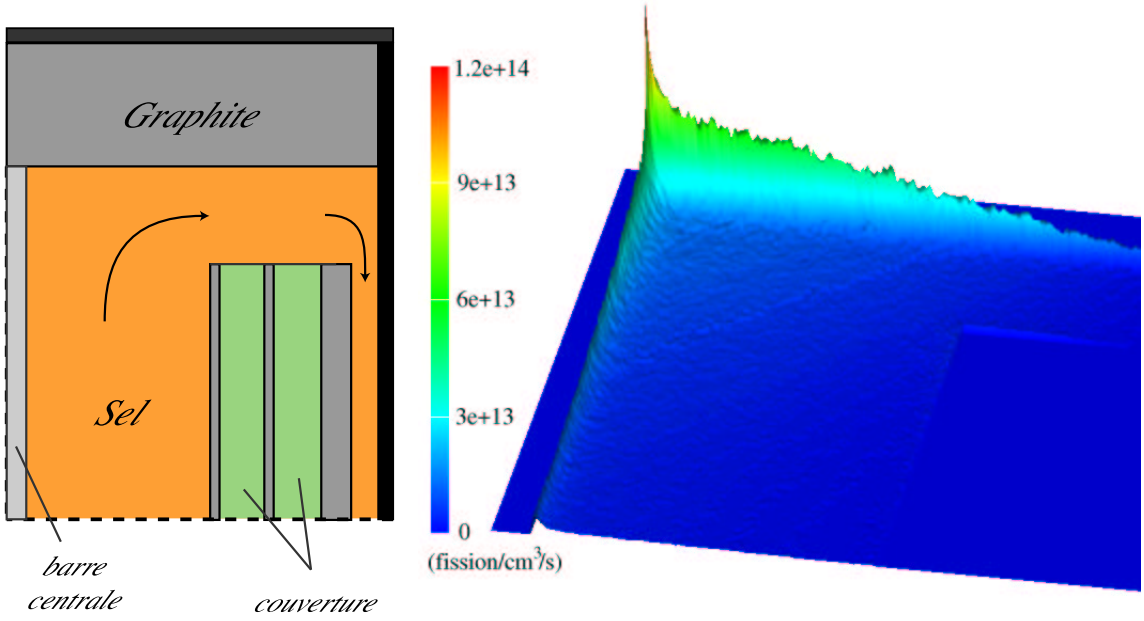


FIG. 5.2 – Schéma du quart supérieur droit du coeur dans la configuration en “canal unique” (à gauche). Répartition des fissions dans la même configuration (à droite).

Cette configuration étant un non-sens, elle doit être modifiée pour ramener les fissions au centre du coeur. Il faut pour cela supprimer le pouvoir modérateur des réflecteurs axiaux. Deux solutions sont possibles : utiliser des réflecteurs en graphite d’épaisseur plus faible, ou utiliser un matériau moins modérateur. La première solution a été simulée en ramenant l’épaisseur à 10 cm au lieu de 1.30 m et la deuxième en remplaçant le graphite par du ZrO_2. Le choix de ce matériau, au lieu par exemple de l’hastelloy, n’a pas une grande importance pour cette étude. L’efficacité de ces deux méthodes se voit clairement sur la figure 5.3. Celle-ci indique la répartition des fissions dans le quart supérieur droit du coeur, et l’on constate le retour des fissions au centre du réacteur dans les deux cas. De plus, la réduction du pouvoir modérateur des réflecteurs axiaux, et donc la répartition des fissions en coeur, sont peu dépendantes de la méthode utilisée. La barre centrale, toujours en graphite, occasionne elle aussi une thermalisation localisée. L’effet est cependant beaucoup moins important (maximum de 4.10^{13} fission/cm^3/s contre 12.10^{13} fission/cm^3/s précédemment) et moins problématique (maximum au centre du coeur au lieu de la périphérie).

Au vu des résultats de cette étude, on choisira par défaut, pour toutes les configurations peu thermalisées (en pratique toutes celles dont le rayon des canaux est supérieur ou égal à 11 cm), la solution des réflecteurs axiaux en ZrO_2. Certaines configurations comprennent des réflecteurs en ZrC au lieu du ZrO_2. Ces deux matériaux donnant des résultats similaires (lorsqu’ils sont utilisés de la sorte), et il n’est pas utile de les distinguer.

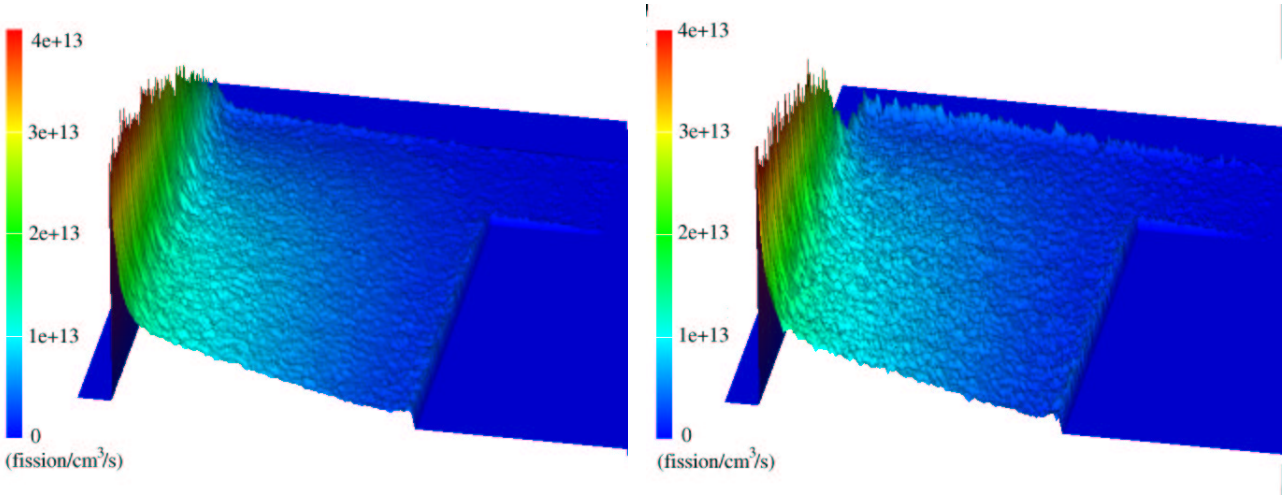


FIG. 5.3 – Répartitions des fissions dans le quart de coeur supérieur droit pour deux configurations : réflecteur axial mince en graphite (à gauche) et réflecteur axial en ZrO_2 (à droite).

5.2 Sûreté

L'impact du rayon des canaux sur les coefficients de température est présenté sur la figure 5.4. On peut constater une évolution complexe du coefficient total, elle-même liée à celles, tout aussi complexes, des différentes composantes densité, Doppler et graphite. Le coefficient total est négatif pour des valeurs de rayon supérieures à r = 7 cm, c'est-à-dire pour des spectres épithermique à rapide, ainsi que pour des rayons inférieurs à 1.5 cm qui correspondent à des configurations très thermalisées. Pour des réacteurs à spectre assez rapide (à partir de r = 11 cm), tous les coefficients de température sont négatifs ou presque nuls. Dans cette étude, les réacteurs à spectre neutronique thermalisé ne sont pas intrinsèquement sûrs et des solutions spécifiques devraient être appliquées pour rendre leur coefficient total négatif. Ces solutions sont diverses et variées, depuis l'introduction dans le graphite d'un poison consommable tel que l'erbium, jusqu'à une modification d'autres paramètres géométriques (asymétrie du coeur, taille du coeur et des hexagones). La première voie étant déjà étudiée [57], nous nous concentrerons sur ces autres paramètres géométriques dans le chapitre 6.

La compréhension des mécanismes sous-jacents de l'évolution des coefficients de température requiert l'analyse des spectres neutroniques. La figure 5.5 regroupe les spectres neutroniques de plusieurs configurations couvrant toute la gamme de l'étude. Il apparaît sur cette figure que l'on peut véritablement obtenir des spectres neutroniques très variés, depuis les configurations thermiques jusqu'aux rapides. A titre de comparaison sont indiqués les spectres de deux réacteurs d'un type différent des RSF, à savoir un REP et un RNR (à caloporteur sodium : BN800).

Comme on peut le constater, le spectre d'un REP [58, 59], communément qualifié de "thermique" est beaucoup plus dur que celui de la configuration à canaux de 2 cm de rayon. Dans un REP, le "rapport de modération" est très inférieur à celui de cette configuration, dont environ 2 % du volume seulement est occupé par le sel. On qualifiera par la suite cette configuration comme "très thermique",

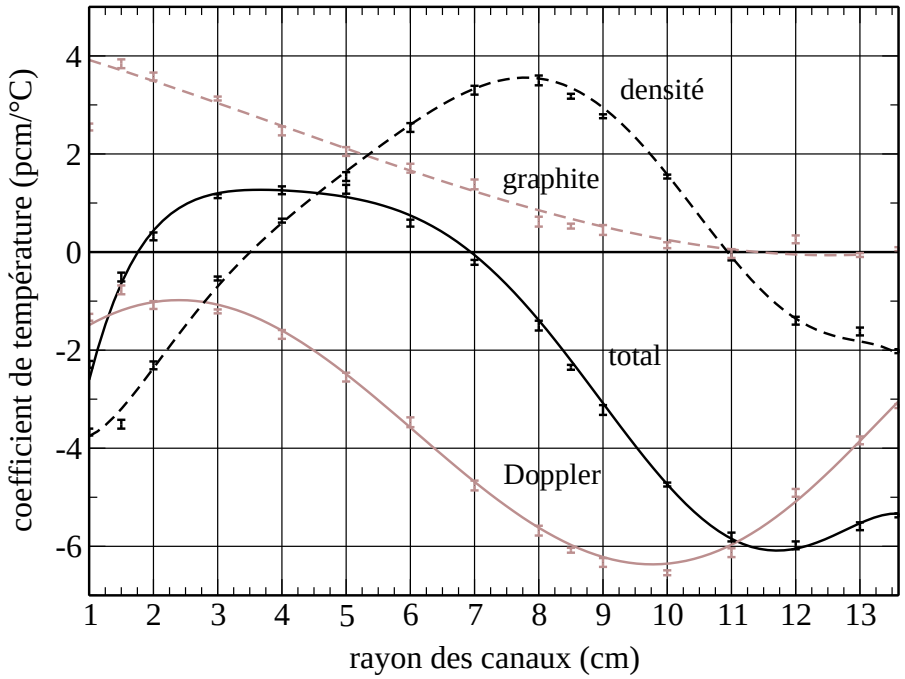


FIG. 5.4 – Impact du rayon des canaux sur les coefficients de température. Les courbes indiquées dans les figures de cet ouvrage ne sont que des polynômes de degré n (ou autres fonctions simples) destinés à aider la visualisation. Elles n'ont pas valeur de résultat.

par opposition aux configurations à canaux plus gros et dont le spectre se rapproche de celui du REP. Concernant les spectres rapides [51], il est difficile de se rapprocher des caractéristiques neutroniques des RNR en utilisant un sel de fluorure. En effet, le ^{19}F a une très grande section efficace de diffusion inélastique à haute énergie. Cette réaction, faisant perdre beaucoup d'énergie au neutron, creuse profondément le spectre neutronique entre 100 keV et 1 MeV. De plus, le sel contenant toujours des éléments légers, une bosse thermique, c'est-à-dire une accumulation de neutrons de basse énergie, est nettement visible.

Nous allons maintenant nous intéresser de près aux variations du coefficient de température total, en expliquant celles de chacun de ses sous-coefficients. Le coefficient de graphite sera traité en premier, en raison de la relative simplicité des phénomènes mis en jeu. Pour ces études, nous choisirons plusieurs configurations représentatives des divers spectres neutroniques : une configuration très thermalisée (r = 2 cm), une épithermique (r = 8.5 cm) et deux à spectre rapide (r = 12 cm et canal unique). Afin d'alléger les explications, on notera ces diverses configurations respectivement *r2*, *r8.5*, *r12* et *cu*.

Dans cette approche, on utilisera également les notations $x_{sel_th.}$, y_{gr}... définies dans la partie 4.2.2.5. Il est impératif d'être familiarisé avec ces notations avant de poursuivre. Rappelons brièvement leur signification :

– C_i et A_i représentent respectivement les proportions de neutrons créés et absorbés dans diverses cellules

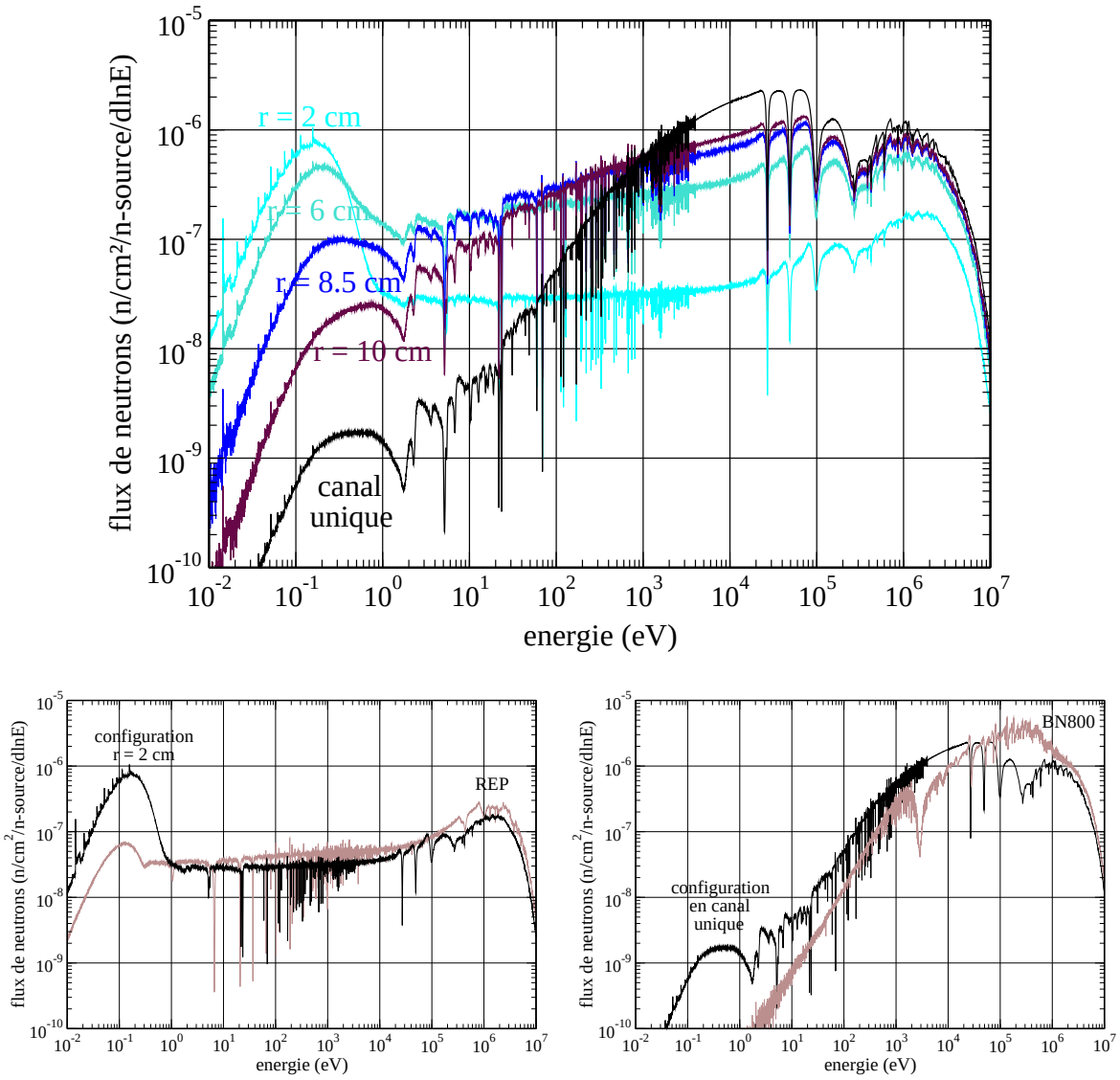


FIG. 5.5 – Spectres neutroniques en fonction du rayon des canaux (en haut). Comparaison d'un spectre thermalisé avec celui d'un REP (en bas à gauche) et d'un spectre rapide avec celui d'un RNR (en bas à droite).

– x_i et y_i représentent respectivement les variations de créations et d'absorptions de neutrons dans diverses cellules
– les cellules en question sont les suivantes : sel thermalisé (partie du sel contenue dans les canaux de graphite), sel des plenums, couverture, graphite et fuites (absorptions dans les réflecteurs axiaux et dans le B_4C autour du coeur)

Les valeurs de ces paramètres pour les configurations mentionnées dans les études suivantes sont présentées en Annexe C.

5.2.1 Coefficient graphite

Pour l'analyse de ce coefficient, nous choisissons comme configuration rapide *r12* puisque la configuration *cu* ne dispose pas de graphite au centre du coeur. Les coefficients de température dus au graphite, ainsi que leur décomposition en plusieurs contributions sont indiqués dans le tableau 5.2. Rappelons que ces contributions représentent la part apportée par une région du coeur (ou un matériau) au coefficient de température.

Lorsque la thermalisation du coeur évolue, on observe plusieurs effets, que l'on va classer en deux catégories : la contribution du sel thermalisé qui diminue fortement à mesure que le spectre devient plus rapide, et les contributions de la couverture et du graphite qui ne prennent de valeurs non négligeables que pour la configuration très thermalisée. Toutes les autres contributions ont des valeurs non significatives compte tenu des erreurs statistiques.

Contribution (pcm/°C)	*r2*	*r8.5*	*r12*
sel thermalisé	+2.61	+0.47	+0.11
sel des plenums	+0.10	+0.01	+0.05
couverture	-0.74	+0.01	+0.08
graphite	+1.60	+0.02	-0.02
fuites	-0.02	+0.01	-0.01
total	+3.53	+0.53	+0.21

TAB. 5.2 – Décomposition du coefficient de température dû au graphite. Données supplémentaires disponibles en Annexe C.

5.2.1.1 Contribution "sel thermalisé"

L'analyse des résultats pour la configuration *r2* nous indique, lors de l'échauffement du graphite, une augmentation des fissions dans le sel ($x_{sel_th.} = +3.5$ pcm/°C) alors que les captures restent plutôt constantes ($y_{sel_th.} = +0.8$ pcm/°C). Afin de déterminer l'origine de cette variation, nous allons nous intéresser à la partie thermique du spectre neutronique (voir figure 5.6, partie du haut). On constate que l'échauffement du graphite a pour conséquence de rehausser très légèrement l'énergie de la bosse thermique, ainsi que la quantité de neutrons la constituant (élévation du maximum). La raison du

premier effet est que l'énergie de cette bosse thermique est dépendante de la température du matériaux modérateur, et celle du deuxième effet sera donnée dans la partie 5.2.1.2.

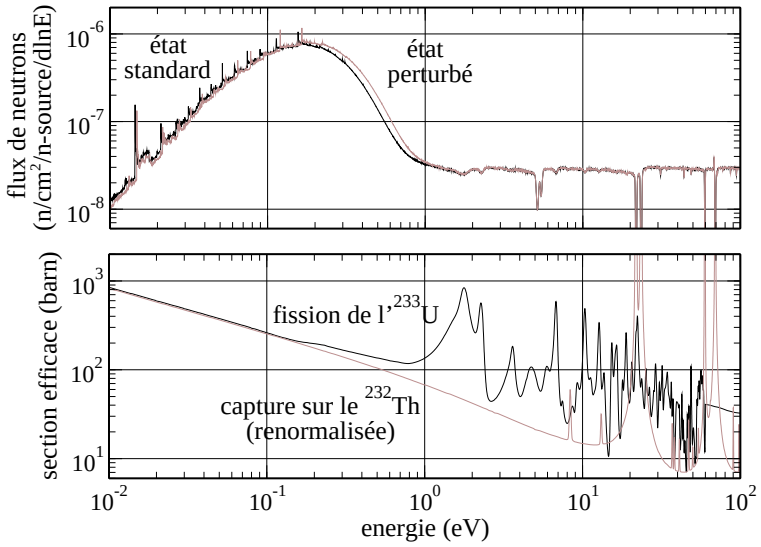


FIG. 5.6 – Spectres neutroniques à basse énergie après 100 ans d'évolution pour la configuration avec r = 2 cm, pour le cas standard et le cas avec échauffement du graphite (en haut). Sections efficaces de fission de l'^{233}U et section efficace renormalisée de capture du ^{232}Th (en bas).

Sur la partie basse de la figure 5.6 ont été représentées les deux sections efficaces microscopiques les plus importantes : $\sigma_{f,^{233}U}$ et $\sigma_{c,^{232}Th}$. Signalons que $\sigma_{c,^{232}Th}$ a été renormalisée (d'un facteur 71) de manière à ce que la partie thermique coïncide avec $\sigma_{f,^{233}U}$, afin de mieux visualiser le phénomène. $\sigma_{f,^{233}U}$ possède entre 0.2 eV et 1 eV une petite résonance, tandis que $\sigma_{c,^{232}Th}$ décroît linéairement (en échelle logarithmique). En raison de cette petite résonance, le déplacement de la distribution des neutrons thermiques va favoriser la fission de l'uranium aux dépends des captures dans le thorium [4]. Cet effet se traduit par un accroissement relatif des fissions ($x_{sel_th.} = +3.5$ pcm/°C) sur les captures ($y_{sel_th.} = +0.8$ pcm/°C).

Lorsque le spectre est moins thermalisé, la distribution des neutrons thermiques est moins importante, comme on peut le voir sur la figure 5.5 représentant l'ensemble des spectres neutroniques. Deux effets se conjuguent alors et conduisent à un coefficient de température dû au graphite plus faible voire nul :

– Le décalage de la distribution est moins important. La léthargie moyenne des neutrons thermiques augmente pour valoir 400 meV dans la configuration *r8.5* et 450 meV pour *r12*. L'impact d'un échauffement du graphite est ainsi beaucoup plus faible.
– L'importance relative de ce domaine d'énergie dans le bilan total est moindre : les neutrons d'une énergie inférieure à 1 eV participent à hauteur de 50 % aux fissions de l'^{233}U pour la configuration *r2*. Cette proportion tombe à 24 % pour *r8.5* et 0.4 % pour *r12*. Ainsi pour cette

dernière configuration, peu importe les perturbations occasionnées au spectre, cela n'aura pas d'impact sur le bilan total.

5.2.1.2 Contribution "graphite" et "couverture"

Rappelons que ces deux contributions, "graphite" et "couverture", participent respectivement à hauteur de +1.60 pcm/°C et -0.74 pcm/°C au coefficient du graphite en configuration *r2*. Lorsque le graphite est échauffé, les absorptions dans le carbone diminuent ($y_{gr} = -13$ pcm/°C), en raison de l'augmentation de l'énergie de la bosse thermique et de la diminution de la section efficace de capture avec l'énergie ; le modérateur devient ainsi légèrement plus transparent aux neutrons. Ces neutrons non capturés reviennent dans le sel thermalisé, occasionnant l'augmentation du nombre de neutrons thermiques et renforçant l'effet de sel thermalisé. Les neutrons supplémentaires se répartissent également dans la couverture ($y_{couv} = +27$ pcm/°C) et le sel des plenums (augmentation des fissions et des captures, $x_{sel_pl.} = +4.5$ pcm/°C et $y_{sel_pl.} = +3.2$ pcm/°C). Dans les configurations moins thermalisées, la diminution des captures dans le graphite, et donc leurs conséquences, sont beaucoup moins marquées.

5.2.1.3 Synthèse sur le coefficient graphite

Pour résumer, le coefficient de graphite tire sa source de l'évolution de la bosse thermique du spectre neutronique. Plus celle-ci est marquée et importante dans le bilan, plus le coefficient de graphite est positif. Ceci n'est évidemment valable que pour le cycle ^{232}Th/^{233}U. Ce dernier dispose en effet d'une résonance de fission à basse énergie, contrairement à la capture dans le ^{232}Th. Si d'autres résonances étaient situées à plus basse énergie, ce coefficient pourrait ne pas être positif. Ce constat donne par ailleurs naissance à des solutions telle que l'introduction d'^{167}Er (résonance à 0.5 eV) dans le graphite [57]. En revanche, ce genre de solution nécessite un renouvellement régulier du poison à l'intérieur du graphite, sans quoi le réacteur retrouve son sous-coefficient de température du graphite initial et positif.

5.2.2 Coefficient Doppler

Pour l'étude de ce coefficient, nous choisirons les configurations *r2*, *r8.5* et *cu*. Les coefficients de température dus à l'effet Doppler, ainsi que leurs contributions, sont rassemblés dans le tableau 5.3. Le principal effet provient sans conteste du sel thermalisé, une contribution secondaire étant apportée par le sel des plenums.

5.2.2.1 Principe de l'effet Doppler appliqué à la physique des réacteurs

Lorsque le sel est échauffé, l'énergie thermique des noyaux, et donc leur vitesse moyenne, augmentent. L'énergie d'un neutron interagissant avec un noyau, dans le système du centre de masse,

Contribution (pcm/°C)	*r2*	*r8.5*	*cu*
sel thermalisé	-0.66	-5.92	-2.58
sel des plenums	-0.21	-0.30	-0.71
couverture	-0.09	+0.12	-0.10
graphite	-0.23	+0.02	-0.00
fuites	+0.05	+0.01	-0.01
total	-1.13	-6.08	-3.20

TAB. 5.3 – Décomposition du coefficient de température dû à l'échauffement du sel sans dilatation. Données supplémentaires disponibles en Annexe C.

dépend principalement de l'énergie cinétique du neutron, mais également de celle du noyau. La température du sel introduit ainsi une incertitude sur l'énergie de la collision, incertitude d'autant plus forte que la température est élevée. Cela se répercute principalement sur les résonances dans les sections efficaces microscopiques. La figure 5.7, partie du haut, illustre l'effet d'élargissement des résonances situées entre 21 et 24 eV du ^{232}Th. Afin de visualiser correctement l'effet, l'écart de température a été volontairement surévalué (400 °C contre seulement 100 °C pour nos calculs). La déplétion du flux à l'endroit de la résonance est également affectée par l'effet Doppler. Le maximum de la section efficace étant diminué, le spectre sera moins creusé à l'énergie exacte de la résonance. L'effet inverse engendre une baisse du flux à proximité immédiate du maximum, comme le montre la partie du bas de la figure 5.7 qui représente le rapport entre le flux de neutrons avant et après échauffement du sel.

Les conséquences de la baisse du maximum de la section efficace de capture sont négligeables, la résonance étant toujours considérée comme un corps noir (aucun neutron ne peut en "ressortir"). Cependant, l'élargissement de celle-ci augmente la probabilité qu'un neutron d'énergie légèrement différente fasse une réaction. Cela se traduit alors directement par une augmentation des taux de réaction associés.

Les résonances qui ont un réel impact sur le coefficient de température sont en nombre limité, seuls les matériaux présents en coeur en quantité notable ayant une influence. Les plus importantes sont évidemment les résonances de capture sur le ^{232}Th ainsi que de fission sur l'^{233}U. Leur effet est parfaitement visible sur le flux neutronique (voir figure 5.5 ou pour plus de détails la figure 4.10 du chapitre 4). La proportion d'^{234}U et les caractéristiques de ses résonances (énergie, valeur, nombre) font de lui un autre isotope influent pour l'effet Doppler. Enfin, l'^{233}U n'est pas seulement fissile, mais capture également des neutrons. Les résonances de capture sont situées, pour des raisons d'ordre nucléaire, exactement aux mêmes énergies que celles de fission, réduisant un peu l'effet de ces dernières. Le ^{19}F dispose également de très grandes résonances de capture à haute énergie. On ne tiendra cependant pas compte de celles-ci car l'énergie supplémentaire apportée par le mouvement du noyau est négligeable comparée à la largeur de ces résonances (plusieurs keV).

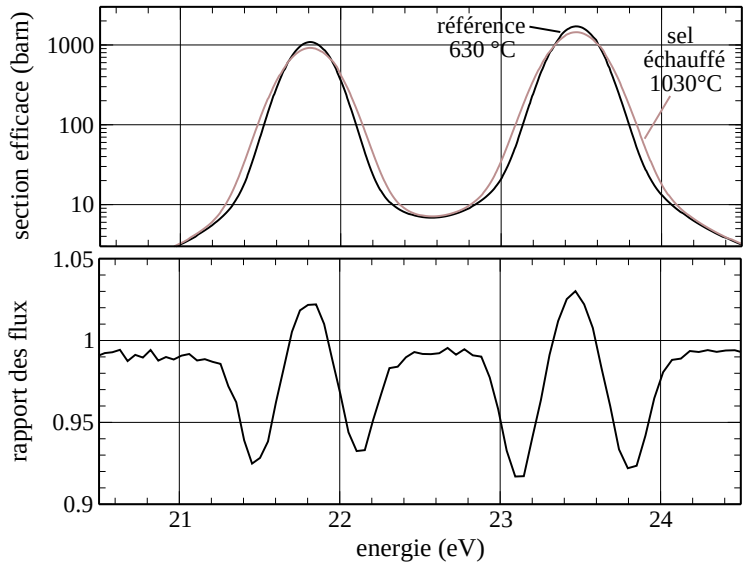


FIG. 5.7 – Effet Doppler sur les deux premières grandes résonances de capture du ^{232}Th pour une différence de température de 400 °C (en haut). Rapport dans la même gamme d'énergie entre les flux neutroniques après et avant échauffement du sel (en bas).

L'augmentation de température du sel et son effet sur les résonances font intervenir plusieurs paramètres : la valeur maximum de ces résonances, leur importance relative, et la modification du spectre. Nous allons expliciter dans le détail l'impact de chacun de ces paramètres.

5.2.2.2 Sections efficaces de fission de l'^{233}U et de capture du ^{232}Th

La figure 5.8 représente les sections efficaces microscopiques de fission de l'^{233}U et de capture du ^{232}Th. On peut clairement constater que les résonances du thorium ont une amplitude plusieurs ordres de grandeur supérieure à celles de l'uranium. Cela les rend beaucoup plus sensibles à l'augmentation de température. Si l'on pondère cet effet avec la proportion d'élément en coeur, l'effet Doppler sur les résonances du ^{232}Th a un impact beaucoup plus marqué que pour l'^{233}U.

Pour simplifier le raisonnement, nous allons fortement limiter le nombre de résonances à observer dans notre étude. Nous nous concentrerons sur une résonance du ^{232}Th située entre 22.8 et 24.1 eV (figure 5.7), ainsi que sur la première grande résonance de fission de l'^{233}U entre 1.0 et 2.0 eV. Bien entendu, le raisonnement effectué est généralisable à l'ensemble des résonances.

En supposant qu'un neutron ne peut quitter une énergie E que par absorption ou par diffusion, sa probabilité d'absorption est définie par :

$$p(E) = \frac{\Sigma_a}{\Sigma_a + \Sigma_s} \tag{5.1}$$

avec Σ_a et Σ_s les sections efficaces macroscopiques d'absorption et de diffusion ($\Sigma_i = N_i \sigma_i$). Evaluons cette probabilité pour les deux résonances choisies. La section efficace macroscopique de diffu-

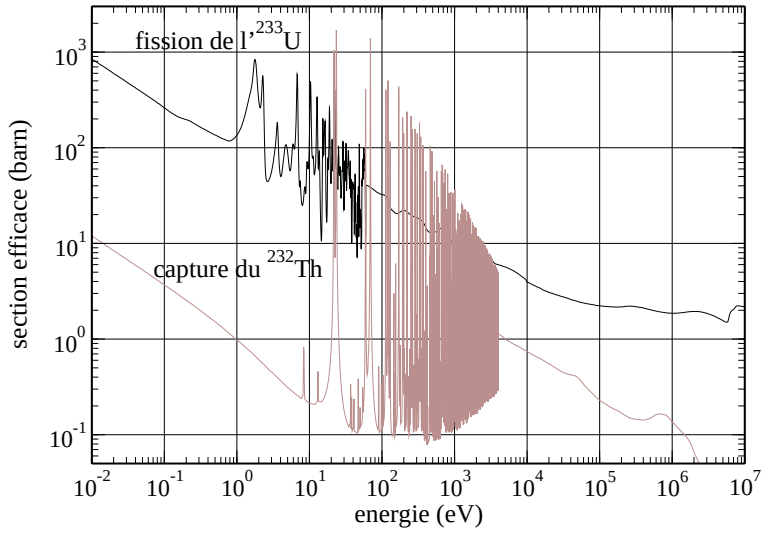


FIG. 5.8 – Sections efficaces microscopiques de fission de l'^{233}U et de capture du ^{232}Th.

	1.8 eV (^{233}U)	23.5 eV (^{232}Th)
Σ_s	0.291 cm^{-1}	1.778 cm^{-1}
Σ_a	0.275 cm^{-1}	10.225 cm^{-1}
p_s	51.4 %	14.8 %
p_a	48.6 % { 39.9 % fission ; 8.7 % capture }	85.2 %

TAB. 5.4 – Sections efficaces macroscopiques de diffusion et d'absorption, et probabilités associées, pour les deux résonances étudiées.

sion est calculée en prenant en compte les noyaux diffuseurs tels que le ^{19}F, le ^{7}Li mais aussi le ^{232}Th et l'^{233}U. Bien que présents en plus faible quantité, ces derniers noyaux disposent de résonances dans leurs sections efficaces de diffusion élastique, situées au même niveau que celles de fission ou de capture. On obtient alors les sections efficaces macroscopiques présentées dans le tableau 5.4, accompagnées des probabilités correspondantes. Les absorptions dans l'^{233}U peuvent engendrer des fissions ou des captures (à hauteur de 82.1 % et 17.9 % respectivement), ce qui explique la différenciation.

On voit ainsi l'effet plus fort des résonances du thorium (85.2 % des neutrons sont capturés) comparées à celle de l'uranium (39.9 % des neutrons font des fissions). Qui plus est, la diffusion sur le ^{232}Th à 23.5 eV, dans 14.8 % des cas, ne fait pas perdre suffisamment d'énergie au neutron (0.1 eV en moyenne) pour sortir de la résonance. La probabilité donnée est donc très fortement sous-évaluée et on peut assimiler la résonance à un corps noir dont aucun neutron ne peut sortir. Le principe de l'effet Doppler tel qu'expliqué précédemment peut s'appliquer. En revanche, pour l'uranium, l'effet est de moindre amplitude. L'augmentation du taux de réaction par l'élargissement de la résonance est cette fois-ci un peu atténuée par la diminution du maximum, dont l'effet n'est alors plus négligeable.

En définitive, compte tenu des caractéristiques des principaux éléments en présence, le Doppler est globalement négatif puisque l'évolution des captures l'emporte sur celle des fissions. Cependant l'importance relative du domaine d'énergie des résonances entre en ligne de compte. On remarquera tout de même l'absence de résonance dans la section efficace de fission de l'^{233}U au dessus de quelques dizaines d'eV. Au dessus de cette énergie se trouvent certainement un grand nombre de résonances, dont l'impact sur notre étude serait significatif. On retiendra que cette méconnaissance entraîne probablement une dégradation du sous-coefficient Doppler, plus particulièrement pour les configurations à spectre rapide.

5.2.2.3 Spectre neutronique et importance relative

L'importance relative est dépendante du niveau de flux dans lequel se situe la résonance, mais aussi de la forme générale du spectre. La figure 5.9 montre les taux de fission de l'^{233}U en fonction de l'énergie. L'importance relative de la résonance située autour de 1.5 eV est donnée dans le tableau 5.5, avec celle de capture sur le ^{232}Th située vers 23.5 eV. On peut voir que, dans la configuration *r2*, la contribution de cette résonance apparaît négligeable, bien qu'elle soit située dans un flux plus important qu'en configuration *r8.5* (cf. spectre sur la figure 5.5). Ceci est dû à l'importance considérable de la partie thermique du spectre (94.8 % des neutrons ont une énergie inférieure à 1 eV) qui amoindrit de ce fait les autres domaines énergétiques. L'optimum est atteint aux alentours de la configuration *r8.5*.

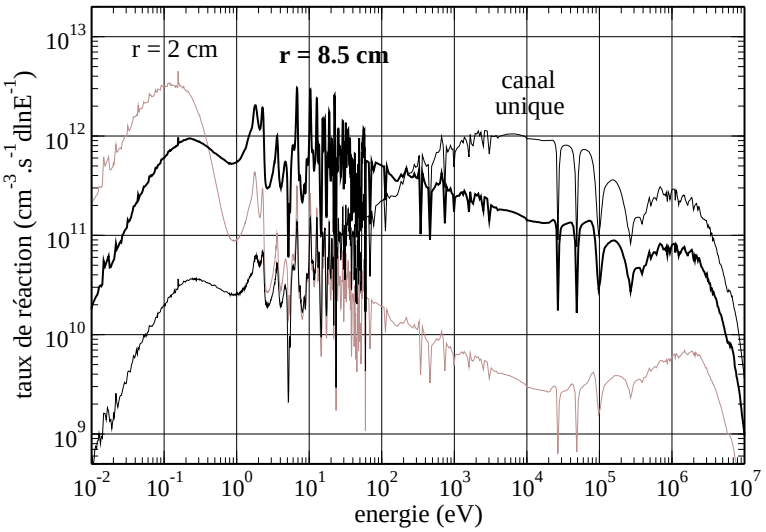


FIG. 5.9 – Taux de fission de l'^{233}U en fonction de l'énergie pour les trois configurations de réacteur.

Il va de soi qu'une résonance dont l'importance relative est négligeable ne pourra en aucun cas contribuer significativement à l'effet Doppler. Le tableau 5.5 montre qu'en première approximation l'effet de l'élévation de température sera plus important (donc le coefficient plus négatif) dans la configuration *r8.5* que dans les autres. Cet effet est bien constaté sur la figure 5.4.

Configuration	^{233}U	^{232}Th
r2	1.8 %	1.3 %
r8.5	10.0 %	5.4 %
cu	0.43 %	0.28 %

TAB. 5.5 – Importance relative de la résonance de fission de l'^{233}U située entre 1.0 et 2.0 eV, et de celle de capture du ^{232}Th située entre 22.8 et 24.1 eV.

En revanche, on peut constater un certain désaccord entre les données du tableau 5.5 pour les configurations *r2* et *cu*, et les valeurs données pour le coefficient Doppler dans la figure 5.4. En effet, le coefficient Doppler devrait être proche de 0 en configuration *cu* puisque, d'après le tableau, l'importance relative des résonances de fission (à 1.5 eV) comme de capture (à 23.5 eV) est négligeable. Cependant, ce raisonnement ne prend en compte que les premières résonances du ^{232}Th et de l'^{233}U. L'impact sur les autres résonances situées à plus haute énergie est, compte tenu des sections efficaces microscopiques (figure 5.8) et du spectre neutronique (figure 5.5), favorable au ^{232}Th. Cela explique le coefficient Doppler légèrement négatif.

5.2.2.4 Synthèse sur le coefficient Doppler

Ce coefficient, découlant de l'élargissement des résonances par l'agitation thermique, est négatif en cycle ^{232}Th/^{233}U en raison des propriétés des résonances de capture par rapport à celles de fission (cf. sections efficaces sur la figure 5.8). Comme l'amplitude du coefficient Doppler dépend de l'importance relative des résonances, et que celles-ci sont situées dans la zone épithermique, ce coefficient est en toute logique plus important pour les spectres épithermiques.

5.2.3 Coefficient densité

Intéressons-nous à présent au dernier sous-coefficient. La valeur du coefficient de température dû à la dilatation du sel, ainsi que les contributions des diverses régions du coeur, sont indiquées dans le tableau 5.6. De nombreuses informations peuvent être retirées de ce tableau pour chaque contribution. Pour n'en citer que quelques-unes, la contribution "sel thermalisé" subit de très fortes variations d'une configuration à l'autre, et forme la base du coefficient de densité. Enfin, les fuites sont plus importantes et la couverture absorbe beaucoup plus de neutrons dans un petit coeur à spectre rapide que dans un grand coeur à spectre modéré.

La dilatation du sel abaisse la proportion de noyaux de sel par rapport à ceux du modérateur. Il en résulte un sel combustible plus transparent aux neutrons, qui diffusent alors plus longtemps dans les autres matériaux. Comme pour l'effet Doppler, plusieurs phénomènes ont lieu simultanément au sein du réacteur lors de la dilatation du combustible. Nous allons essayer de voir comment ces divers phénomènes agissent sur la contribution du sel thermalisé, puis nous regarderons plus succinctement les autres contributions.

Contribution (pcm/°C)	*r2*	*r8.5*	*cu*
sel thermalisé	-0.4	+4.0	+0.5
sel des plenums	+0.2	+0.2	+0.4
couverture	-0.2	-0.8	-1.8
graphite	-1.9	-0.1	-0.6
fuites	-0.1	-0.2	-0.5
total	-2.4	+3.2	-2.0

TAB. 5.6 – Décomposition du coefficient de température dû à la dilatation du sel. Données supplémentaires disponibles en Annexe C.

5.2.3.1 Contribution “sel thermalisé”

Nous allons distinguer deux principales étapes dans la détermination de la valeur de cette contribution. Ces étapes traitent respectivement de l’évolution du spectre neutronique et des proportions de capture et fission dans le sel thermalisé.

Evolution du spectre neutronique : La diffusion plus importante dans le matériau modérateur a pour conséquence une thermalisation plus efficace. Ainsi, la distribution des neutrons thermiques s’en trouve augmentée (de +4 %), ainsi que toute la partie basse énergie du spectre, comme on peut le constater sur la figure 5.10 (partie du haut). Cette augmentation diminue progressivement quan d’énergie croît pour devenir nulle vers 10 keV. Comme pour le coefficient graphite, cette légère augmentation se situe dans une zone où la section efficace de fission de l’^{233}U est plus importante que celle de capture du ^{232}Th (figure 5.10, partie du bas). Cela se traduit alors par une augmentation des fissions au détriment des captures : $x_{sel_th.} = +2.0$ pcm/°C et $y_{sel_th.} = -2.2$ pcm/°C. Cet effet est différent pour les deux autres configurations.

Dans la configuration *r2*, l’augmentation n’est que de +2 % (au lieu de +4 %), et ne s’étend que jusqu’à 1 eV (contre plusieurs dizaines d’eV précédemment). Cette configuration est déjà très thermalisée et la diffusion accrue dans le modérateur n’a que peu d’influence sur le spectre. Or dans le domaine d’énergie concerné, la section efficace de fission est à peine supérieure à celle de capture. L’effet est donc bien inférieur à celui de l’échauffement du graphite où l’augmentation de la partie thermique du spectre atteignait +40 %. Il ne donne alors pas d’avantage significatif aux fissions par rapport aux captures : $x_{sel_th.} = -3.9$ pcm/°C et $y_{sel_th.} = -4.2$ pcm/°C.

La configuration *cu* n’a quant à elle plus de graphite en coeur. La diminution de la densité (et donc des absorptions) s’accompagne alors d’une augmentation globale du niveau de tout le spectre (de +1 à +2 % suivant l’énergie), un neutron pouvant diffuser plus longuement dans le sel. Un accroissement plus important (+4 %) est également visible dans la partie thermique du spectre, probablement dû au graphite entourant le coeur (structure de la couverture radiale). L’effet est en revanche complètement différent de ce qui se passait en configuration *r8.5* en raison de la faible importance neutronique de la

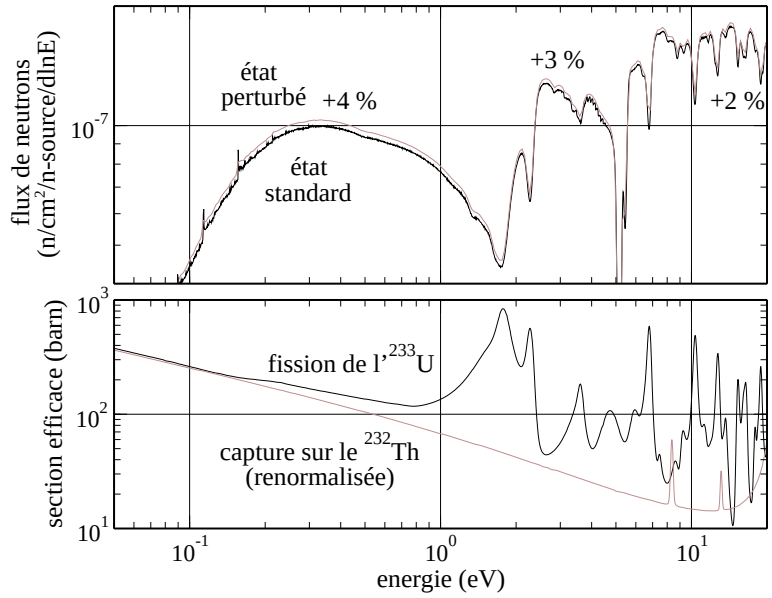


FIG. 5.10 – Spectres neutroniques à basse énergie après 100 ans d'évolution pour la configuration avec r = 8.5 cm, pour le cas standard et le cas avec dilatation du sel (en haut). Sections efficaces de fission de l'^{233}U et section efficace renormalisée de capture du ^{232}Th (en bas).

zone thermique du spectre. Une telle configuration avantage très légèrement les fissions par rapport aux captures : $x_{sel_th.} = -5.3$ pcm/°C et $y_{sel_th.} = -6.3$ pcm/°C.

Compte tenu des valeurs indiquées dans les précédents paragraphes, on s'attend à ce que le coefficient de densité soit : fortement positif pour la configuration *r8.5*, et nul pour les configurations *r2* et *cu*. Si le premier point est vérifié, il n'en est pas de même du suivant. Pire, deux résultats similaires (les $x_{sel_th.}$ et $y_{sel_th.}$ sont très proches entre *r2* et *cu*) donnent des coefficients de température différents : respectivement -0.4 et +0.5 pcm/°C pour le sel thermalisé.

Proportion des fissions et des captures dans le sel thermalisé : Le raisonnement tenu précédemment n'est valable que si la proportion de fission et de capture dans le sel thermalisé reste constante. Et ce n'est pas le cas. Rappelons que la contribution du sel thermalisé est donnée par l'équation :

$$\frac{1}{k} \times dk_{sel_th.} = C_{sel_th.} x_{sel_th.} - A_{sel_th.} y_{sel_th.} \tag{5.2}$$

avec $C_{sel_th.} = \frac{c_{sel_th.}}{\sum c_i}$ et $A_{sel_th.} = \frac{a_{sel_th.}}{\sum a_j}$ les proportions de créations et d'absorptions de neutron dans cette zone du coeur.

Le tableau 5.7 rassemble les valeurs concernant les trois configurations étudiées ici. On peut constater dans ce tableau qu'en configuration *r2*, malgré une évolution semblable des fissions et des captures, la contribution de cette partie du coeur est tout de même négative grâce à l'écart important entre proportions des fissions (93 %) et des captures (79 %) dans le sel thermalisé. A contrario, la configuration *cu*, similaire à *r2* en ce qu'elle est presque équilibrée entre fissions et captures, a une

contribution totale positive. Cette configuration n'a en effet qu'un plus faible écart entre proportions de fissions (80 %) et de captures (74 %).

Configuration	*r2*	*r8.5*	*cu*
$x_{sel_th.}$(pcm/°C)	-3.9	+2.0	-5.3
$C_{sel_th.}$	93 %	95 %	80 %
$y_{sel_th.}$ (pcm/°C)	-4.2	-2.2	-6.3
$A_{sel_th.}$	79 %	89 %	74 %
$dk_{sel_th.}$ (pcm/°C)	-0.4	+3.9	+0.5

TAB. 5.7 – Tableau récapitulatif de la contribution du sel thermalisé au coefficient de température dû à la densité.

5.2.3.2 Contributions des autres zones du coeur

Le sel étant plus transparent aux neutrons, ceux-ci circulent plus longtemps dans le modérateur et atteignent plus facilement les plenums, la couverture ou l'extérieur du réacteur. Les neutrons arrivant dans les plenums n'ont qu'un impact très modéré, les captures compensant les fissions. Tel n'est pas le cas de ceux arrivant dans la couverture ou s'échappant du coeur. Ceux-ci n'engendrent que des captures, ce qui implique des contributions négatives au coefficient de densité. Or, plus le coeur est petit, plus la couverture est soumise à un flux intense et les fuites importantes. Cela explique les valeurs élevées obtenues pour la configuration *cu* (-1.8 pcm/°C pour la couverture et -0.5 pcm/°C pour les fuites).

L'augmentation des diffusions dans le graphite se répercute également sur le taux de capture du modérateur. Or, la quantité de graphite en coeur dans la configuration à petit rayon de canaux est très supérieure à celle de la configuration *r8.5* (voir les représentations des coeurs sur la figure 5.1 ou les masses de modérateur dans le tableau 5.9). Les captures qui y ont lieu représentent 12 % des absorptions totales en *r2* contre seulement 0.3 % en *r8.5*, d'où la très faible contribution du graphite dans cette dernière configuration. En canal unique, il n'y a presque plus de graphite en coeur, mais le matériau utilisé pour les réflecteurs axiaux, à base de zirconium, absorbe davantage neutrons (1.2 % des absorptions totales) d'où une contribution non nulle.

5.2.3.3 Synthèse sur le coefficient de densité

La dilatation du sel augmente le nombre de neutrons diffusant dans le modérateur, ce qui a deux effets : d'une part, les neutrons revenant en coeur sont plus thermalisés, d'autre part, un plus grand nombre d'entre eux sont capturés dans le modérateur, la couverture, ou s'échappent du coeur. Pour les mêmes raisons que pour le coefficient de graphite, l'utilisation de l'^{233}U est défavorable pour le coefficient de densité en raison de sa résonance à basse énergie. En revanche, toutes les captures et les fuites supplémentaires améliorent ce coefficient.

Cette description évolue quelque peu en fonction du spectre neutronique :

– Une configuration à spectre thermique sera peu sensible à une thermalisation accrue, ce qui réduit fortement l'impact sur la résonance de l'^{233}U. De plus le matériau modérateur, présent en grande quantité pour obtenir ce spectre, capture beaucoup de neutrons et améliore significativement le coefficient de température. Ces coeurs, généralement volumineux, ne bénéficient pas d'effet dus aux captures dans la couverture ou aux fuites.
– Une configuration à spectre épithermique sera sensible à la thermalisation accrue, et a de ce fait un coefficient de densité fortement positif. De plus, le coeur ne contient pas assez de graphite et n'est pas assez petit pour contrebalancer l'effet précédent.
– Une configuration à spectre rapide sera très sensible à la thermalisation, mais le domaine thermique du spectre reste négligeable dans le bilan neutronique. Comme il ne contient que peu (voire pas) de modérateur, il est suffisamment petit pour que l'effet des captures dans la couverture ou des fuites améliore encore le coefficient de densité.

5.2.4 Visualisation du coefficient total de température

Ce coefficient, nous l'avons vu, dépend fortement de la dureté du spectre neutronique. Il est donc intéressant de le représenter en fonction de ce paramètre plutôt qu'en fonction du rayon des canaux. La "dureté du spectre" étant cependant une notion peu quantitative, nous allons lui substituer le paramètre de proportion d'^{233}U dans les NL. Cette solution n'est pas sans défaut mais conviendra parfaitement. Une table de correspondance entre rayon des canaux et proportion d'^{233}U est disponible en Annexe B.

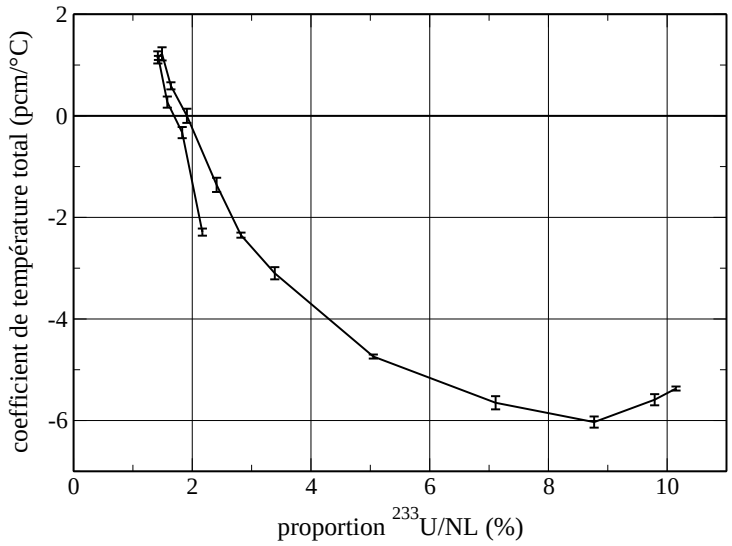


FIG. 5.11 – Impact de la proportion de matière fissile sur le coefficient de température total.

La figure 5.11 illustre cette nouvelle représentation de l'évolution du coefficient de température. On reconnaît les différents domaines visibles sur la figure 5.4, fortement déformés par la non-linéarité

de la correspondance entre rayon des canaux et proportion d'^{233}U. Nous réutiliserons cette visualisation dans plusieurs études, afin de comparer des configurations très différentes.

5.3 Capacités de régénération

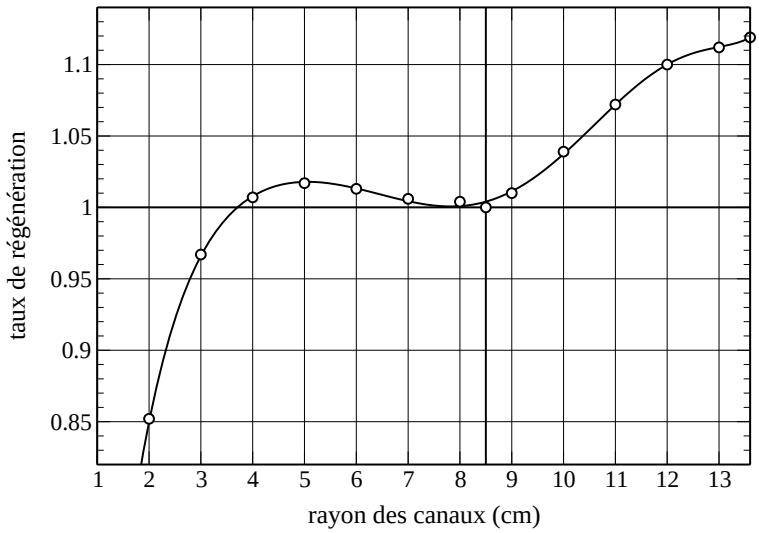


FIG. 5.12 – Impact du rayon des canaux sur le taux de régénération.

5.3.1 Neutrons disponibles et régénération

Le taux de régénération du système est fortement dépendant du rayon des canaux, comme on peut le voir sur la figure 5.12. L'évolution de ce taux est assez complexe mais s'explique assez facilement à partir du concept de neutrons disponibles. Ce nombre N_d est égal au nombre de neutrons restant après une fission, une fois la criticité et la régénération assurées.

Dans le réacteur, plusieurs éléments fissionnent, mais on ne prendra pour l'instant en compte que l'^{233}U pour expliquer la formule 5.3. Dans le cas réel à plusieurs isotopes fissiles, il faut moyenner les grandeurs telles que ν (nombre de neutrons émis par fission) et α (rapport des sections efficaces de capture et de fission : $\alpha = \frac{\sigma_c}{\sigma_f}$) sur l'ensemble de ces noyaux suivant leur taux de fission. En coeur, un neutron qui engendre une fission libère de ce fait $\nu_{^{233}\mathrm{U}}$ neutrons en moyenne. Pour que la réaction en chaîne soit stable, il faut qu'un de ces neutrons engendre une fission. Cependant, compte tenu de la section efficace de capture non nulle de l'^{233}U, celui-ci doit absorber $1+\alpha$ neutrons pour produire une fission. De plus, assurer la régénération nécessite de renouveler les $1+\alpha$ noyaux d'^{233}U (fissionnés ou transformés en ^{234}U) en capturant $1+\alpha$ neutrons dans le ^{232}Th. On a alors :

$$N_d = \nu - 2 \times (1 + \alpha) \tag{5.3}$$

Ces N_d neutrons disponibles peuvent être absorbés dans la matière fertile (surgénération) ou dans les produits de fission, les autres isotopes de l'uranium, le Pa... (absorptions parasites). Ainsi, si $N_d - \sum abs_parasites \geq 0$, le réacteur est surgénérateur. Dans le cas contraire, l'hypothèse d'isogénération utilisée pour le calcul de N_d n'était pas valable, le réacteur est alors sous-générateur.

La valeur du paramètre α dépend du spectre neutronique, et donc du rayon des canaux. Ses valeurs vont de 0.104 (en configuration *r1*) à 0.121 (en *cu*), en passant par un maximum de 0.143 pour la configuration de référence. Ces variations se répercutent sur le nombre de neutrons disponibles, comme indiqué sur la figure 5.13. On constate, a posteriori, que la configuration de référence est la plus mauvaise de ce point de vue, et qu'un fonctionnement en spectre très thermalisé ou rapide fait gagner de 25 à 35 % de neutrons disponibles. Cependant le devenir de ces neutrons est également dépendant de la configuration du réacteur, et l'impact du rayon des canaux sur les taux de réaction doit être étudié.

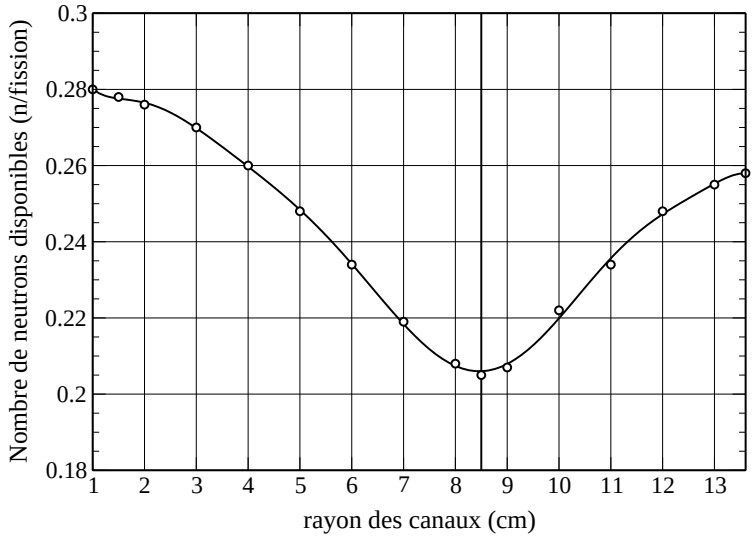


FIG. 5.13 – Impact du rayon des canaux sur le nombre de neutrons disponibles.

5.3.2 Evolution des captures parasites

Paradoxalement on ne s'intéresse pas aux trois taux de réaction les plus importants, à savoir la fission de l'^{233}U, et la capture sur le ^{232}Th et l'^{233}U. En effet, ces taux sont déjà comptabilisés dans le calcul de neutrons disponibles. Pour le reste, nous nous intéresserons particulièrement aux captures, ou plus largement aux absorptions, dans le graphite (modérateur comme réflecteur [1]), dans les autres isotopes de l'uranium, dans les PF, etc... Les variations de ces différents taux d'absorption sont regrou-

[1] Dans les configurations à grand rayon de canaux est également prise en compte la capture sur le zirconium du ZrO_2 composant les réflecteurs axiaux.

pées sur la figure 5.14. Les bilans neutroniques détaillés des configurations *r4* [2] et *cu* sont présentés dans le tableau 5.8. Rappelons que celui de la configuration de référence est disponible au chapitre 4, page 73.

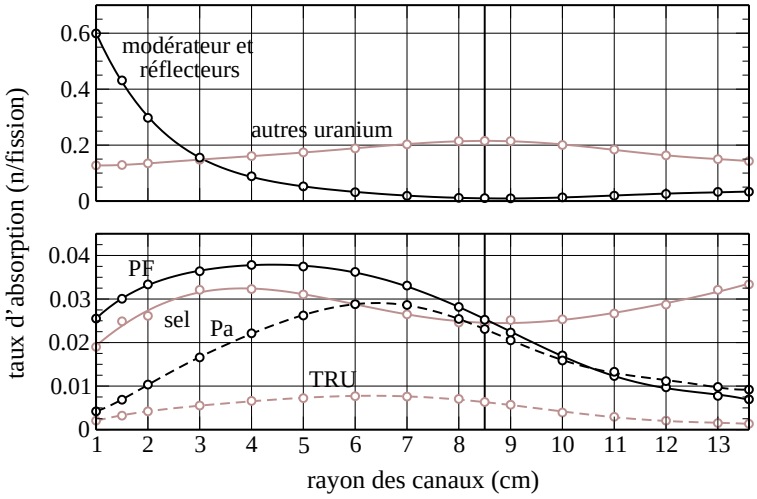


FIG. 5.14 – Impact du rayon sur les taux d'absorption parasites principaux.

La première source de capture parasite est le modérateur en graphite. Bien qu'elle ne soit pas la plus importante, en moyenne sur l'ensemble des configurations étudiées, c'est elle qui marque le plus profondément le taux de régénération. Pour les configurations très thermalisées (*r1* ou *r2*), cette contribution suffit à rendre le réacteur sous-générateur, en dépassant à elle seule le nombre de neutrons disponibles. Comme on peut le voir sur la coupe horizontale des coeurs (figure 5.1), le graphite occupe une écrasante majorité de l'espace et les neutrons y diffusent longuement. Malgré sa très faible section efficace de capture, celle-ci finit par l'emporter sur toutes les autres absorptions parasites. On constate également une légère remontée pour les configurations à grand rayon de canaux. Celle-ci est due à deux phénomènes. D'une part, le durcissement du spectre et la diminution du volume global du coeur ont tous deux pour conséquence une augmentation des diffusions, et donc des captures, dans les réflecteurs axiaux. D'autre part, l'utilisation de zirconium pour ces réflecteurs, dont la section efficace moyenne de capture (tous isotopes confondus) est environ 30 fois supérieure à celle du carbone, augmente encore ces absorptions.

Les captures dans les autres isotopes de l'uranium se font en majorité (entre 60 et 75 %) dans l'^{234}U. Si l'on excepte la réaction de fission sur cet isotope, ainsi que sa formation par capture sur le ^{233}Pa, son taux de capture est égal à celui de l'^{233}U. On rejoint alors la remarque sur la variation du taux de capture de l'^{233}U, c'est-à-dire du paramètre $\alpha_{^{233}\mathrm{U}}$, qui atteint un maximum pour la configuration de référence *r8.5*. Par contre, contrairement aux captures sur l'^{233}U, celles sur l'^{234}U engendrent un isotope fissile et ne peuvent être considérées comme des captures parasites.

[2] Lors de l'analyse des coefficients de température, la configuration *r2* (très thermalisée) a permis de mettre en lumière les phénomènes mis en jeu. Pour ce qui est du bilan neutronique, on lui préfère une configuration moins "extrême" dont le taux de régénération est supérieur à 1.

		r = 4 cm		canal unique	
Réaction	Elément / isotope	Production	Absorption	Production	Absorption
(n,f)	^{233}U	2.202	0.885	2.205	0.882
	^{235}U	0.242	0.100	0.170	0.070
	^{232}Th	0.015	0.007	0.039	0.017
	autres U	0.009	0.004	0.055	0.022
	TRU	0.003	0.001	0.000	0.000
	U (couverture)	0.008	0.003	0.023	0.009
(n,2n)	^{232}Th	0.002	0.001	0.003	0.001
somme partielle		2.481	1.001	2.495	1.001
(n,γ)	Th	-	0.943	-	1.016
	^{233}Pa	-	0.022	-	0.009
	^{233}U	-	0.101	-	0.106
	^{234}U	-	0.121	-	0.096
	^{235}U	-	0.020	-	0.025
	^{236}U	-	0.019	-	0.021
	TRU	-	0.007	-	0.001
	PF	-	0.038	-	0.007
	Li	-	0.015	-	0.000
	^{19}F	-	0.008	-	0.010
(n,α)	^{19}F	-	0.008	-	0.020
(n,p)	^{19}F	-	0.001	-	0.002
(n,γ)	Th (couverture)	-	0.076	-	0.110
	autres NL (couverture)	-	0.001	-	0.003
	PF (couverture)	-	0.001	-	0.007
toutes	Li + F (couverture)	-	0.002	-	0.001
(n,α)	B_4C (protect. neutr.)	-	0.008	-	0.024
toutes	C ou Zr (réflecteurs axiaux)	-	0.007	-	0.033
	C (reste)	-	0.082	-	0.000
somme partielle		0	1.480	0	1.491
somme totale		2.481	2.481	2.495	2.492

TAB. 5.8 – Bilan neutronique des configurations de réacteur *r4* et *cu* après 100 ans d'évolution. Tous ces taux de réactions sont donnés en neutrons / fission.

La contribution des PF à l'ensemble des absorptions est relativement faible grâce au retraitement chimique associé au RSF. Celui-ci permet l'établissement d'un équilibre aux alentours de 210 kg de PF, soit la production de 80 jours seulement (pour 2.5 GWth). Bien évidemment, leur taux de capture décroît avec le durcissement du spectre, en raison de la diminution globale des sections efficaces avec l'énergie. Cette réduction atteint un facteur 6 entre la configuration *r4* et *cu*. Pour les configurations très thermalisées, on constate également une réduction du taux de capture. Cet effet résulte de la variation du flux neutronique, qui diminue à mesure que le spectre se thermalise, comme on le verra dans la partie suivante sur la tenue des matériaux. Le maximum du taux de capture des PF indique le moment où la diminution du flux l'emporte sur l'augmentation des sections efficaces.

Le ^{233}Pa a un rôle un peu particulier puisqu'il est l'élément intermédiaire entre le ^{232}Th fertile et l'^{233}U fissile. Ainsi, chaque ^{233}Pa qui capture ne formera pas d'^{233}U d'une part, et fait perdre un neutron à l'ensemble d'autre part. Comme le concept de neutrons disponibles ne prend pas en compte cette capture sur l'élément intermédiaire, l'impact de ce taux sur l'ensemble est doublé. Le protactinium aquiert ainsi une importance légèrement plus grande que les PF.

Contrairement aux autres matériaux, les absorptions dans le sel atteignent leur valeur maximum pour la configuration la moins thermalisée. Ceci est dû aux réactions (n,γ) et (n,α) sur le ^{19}F. Pour cet isotope, les grandes résonances de capture et le seuil en énergie d'émission de particules α favorisent les absorptions aux grandes énergies de neutrons.

Enfin, les TRU suivent une évolution similaire à celle des PF : les sections efficaces moyennes d'absorption augmentent lorsque le spectre devient thermique, mais la diminution du flux finit par l'emporter sur l'augmentation de ces sections efficaces.

En sommant ces contributions, ainsi que celles que nous avons volontairement ignorées ici, on obtient l'ensemble des captures parasites. Cette courbe peut alors être soustraite à celle des neutrons disponibles pour indiquer le nombre de neutrons participant à la surgénération. Il est difficile d'obtenir exactement la courbe du taux de régénération par une telle méthode, mais elle permet cependant de s'en approcher fortement, ce qui montre que les principaux phénomènes mis en jeu sont appréhendés.

De cette étude, nous pouvons retenir trois grands types de configuration de réacteur. Les configurations à spectre très thermalisé sont fortement sous-génératrices en raison des captures dans le modérateur. De plus, une telle sous-génération est irrécupérable, que ce soit avec des couvertures fertiles ou un retraitement plus efficace. Les configurations à spectre thermique et épithermique ont un taux de régénération voisin de 1, et sont par là même acceptables. Les configurations à spectre rapide sont, quant à elles, assez fortement surgénératrices. Les neutrons disponibles pour cette surgénération constituent une marge de manoeuvre très appréciable (retraitement moins efficace, absence de couverture en thorium, incertitudes des bases de données...).

5.4 Tenue des matériaux

5.4.1 Evolution du flux de neutrons

Pour connaître l'évolution de la tenue à l'irradiation du graphite, intéressons-nous tout d'abord à la variation du flux neutronique. En effet, rappelons que la durée de vie du graphite est proportionnelle à la fluence limite et inversement proportionnelle au niveau de flux et à la proportion de neutrons d'énergie supérieure à 50 keV. L'évolution de ces deux dernières grandeurs est indiquée sur la figure 5.15.

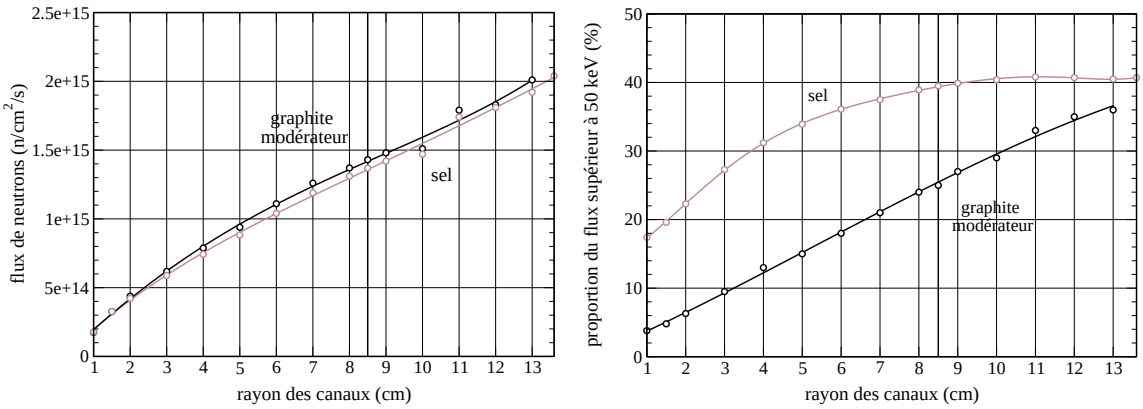


FIG. 5.15 – Impact du rayon des canaux sur le flux de neutrons dans le graphite modérateur et dans le sel circulant dans les canaux (à gauche), ainsi que sur la proportion de neutrons dont l'énergie est supérieure à 50 keV dans ces deux matériaux (à droite).

Regardons de plus près le flux de neutrons, qui croît à mesure que le coeur est moins thermalisé. Cette variation résulte simplement de l'augmentation de la quantité de noyaux fissiles N_f avec la diminution des sections efficaces de fission σ_f. Pour s'en convaincre, analysons cette variation pour le passage d'une configuration très thermalisée à une épithermique (par exemple *r2* et *r*8.5). Compte tenu du changement de géométrie (volume du modérateur, compacité du coeur) et de sections efficaces (de fission et de capture), la quantité d'^{233}U nécessaire pour atteindre la criticité est multipliée par 2.6 entre ces deux configurations. Comme la section efficace de fission a diminué d'un facteur 9, le taux de fission $\tau_f = N_f \sigma_f \phi$ devrait perdre plus de 70 % de sa valeur, ce qui est impossible. Etant relié directement à la puissance thermique du coeur, ce taux de fission doit demeurer constant et le flux est alors ajusté en conséquence (d'un facteur 3.5 environ).

Comme le montrent les spectres neutroniques (donnés dans la figure 5.5), la diminution du volume de modérateur a un impact fort sur le durcissement du spectre. Les noyaux légers du sel ne suffisent donc absolument pas à maintenir un pouvoir modérateur significatif. La partie droite de la figure 5.15 présente la fraction de neutrons énergétiques, dans le sel comme dans le graphite modérateur. Concernant le sel, on constate une saturation à partir des configurations épithermiques. En réalité, cette observable ne traduit pas la dureté d'un spectre neutronique, mais uniquement le poids de la

partie rapide. Quand la partie thermique du spectre est faible, ce qui s'y passe n'a plus d'impact sur cette proportion qui reste alors autour de 40 %. Dans le graphite la situation est tout autre. Le volume du graphite diminuant avec l'élargissement des canaux, les neutrons y diffusent moins longtemps avant de retourner dans le combustible. Il y a alors harmonisation entre le spectre dans le graphite et celui dans le sel.

5.4.2 Durée de vie du graphite

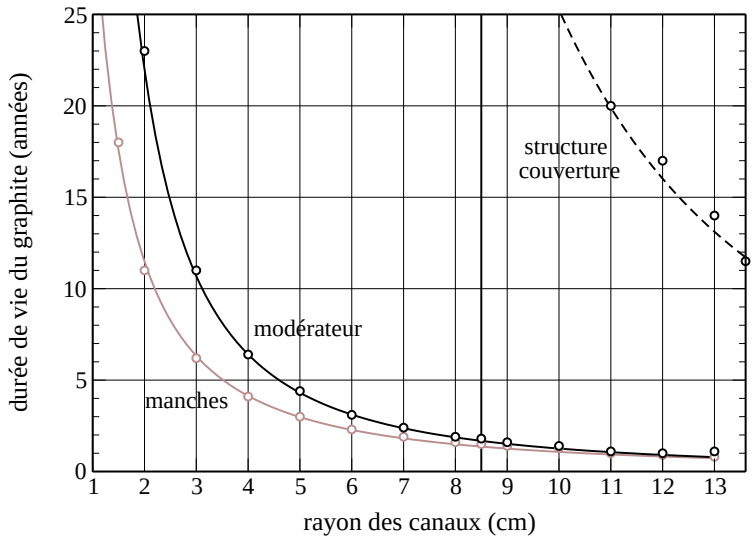


FIG. 5.16 – Impact du rayon des canaux sur la durée de vie du graphite.

Si l'on s'intéresse maintenant à la tenue du graphite sous irradiation (représentée sur la figure 5.16), on constate sans surprise la très forte diminution de sa durée de vie avec le durcissement du spectre. Rappelons également que les durées de vie mentionnées sont des valeurs moyennes. Comme on l'a vu sur la visualisation de la nappe de flux dans la configuration de référence (figure 4.13 du chapitre 4), le graphite du centre est environ deux à trois fois plus irradié que la moyenne, et sa durée de vie est ainsi raccourcie. Pour les autres configurations, ce rapport entre flux maximum et flux moyen évolue peu.

A la lumière de ce problème, les configurations épithermiques et rapides sont grandement défavorisées. Notons toutefois l'intérêt évident que représente la configuration avec un unique canal de sel, dépourvue de graphite dans les régions de flux intense.

5.4.3 Flux de graphite à traiter

Considérant les problèmes que représente la gestion du graphite irradié, il est intéressant de compléter les résultats précédents par l'étude de la quantité de graphite à gérer. Pour ce faire, on va tout d'abord se baser sur la durée de vie moyenne du graphite, en supposant que le graphite le plus irradié

peut être réutilisé en coeur dans un flux neutronique plus faible. De plus on va considérer que les manches ont les mêmes propriétés que le reste du modérateur. Ce sont évidemment des hypothèses optimistes, mais qui suffiront à cette analyse simplifiée.

Les configurations à petits canaux nécessitent, à volume de combustible constant, une quantité de graphite sans commune mesure avec les configurations épithermiques. Le tableau 5.9 dresse la liste des masses de graphite constituant le bloc modérateur et la couverture pour diverses configurations. Rappelons que la configuration *r12* dispose de réflecteurs axiaux en ZrO_2, mais que son bloc modérateur est toujours en graphite.

Configuration		*r1*	*r1.5*	*r2*	*r4*	*r6*	*r8.5*	*r10*	*r12*	*cu*
Masse (t)	mod.	3000	1350	750	175	70	26	15	5	-
	couv.	230	130	90	45	23	15	14	11	8.5

TAB. 5.9 – Impact du rayon des canaux sur la masse de graphite du bloc modérateur (hors barre centrale) et de la couverture.

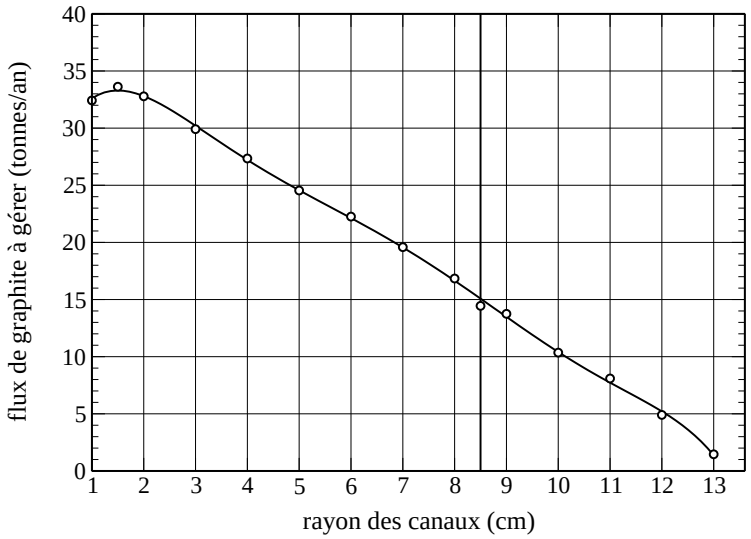


FIG. 5.17 – Impact du rayon des canaux sur le flux de graphite à gérer (en comptant uniquement le bloc modérateur).

Par le rapport entre la masse de graphite dans le modérateur et sa durée de vie moyenne, on obtient le flux de sortie moyen pour le graphite, représenté sur la figure 5.17. Le graphite composant les réflecteurs radiaux (structure de la couverture) et axiaux n'a pas été pris en compte dans ce calcul, en raison de leur durée de vie bien plus longue. La couverture constitue cependant la principale contribution au flux de sortie de la configuration *cu* avec 750 kg/an (non représenté sur la figure 5.17 car ne faisant pas partie du bloc modérateur).

Comme on le voit sur la figure, les configurations dont le graphite doit être changé le plus souvent sont les plus écologiques, avec un flux annuel à traiter de quelques tonnes seulement, contre

quelques dizaines de tonnes pour les configurations très thermalisées. Cela apporte un contrepoids non négligeable aux avantages des configurations thermalisées en terme de tenue du graphite. Enfin, la configuration *cu* se distingue encore par son très faible flux de graphite à traiter (soit 750 kg/an, comme expliqué précédemment).

5.5 Inventaire initial nécessaire

La quantité de matière fissile nécessaire dans le réacteur est dictée par le besoin d'atteindre la criticité. Cela s'exprime par :

$$k = \frac{c}{a} = \frac{\langle \nu . N_f \sigma_f \rangle}{\langle N_f \sigma_f \rangle + \langle N_c \sigma_c \rangle} \tag{5.4}$$

avec c et a les créations et absorptions de neutrons, N_f et σ_f la quantité totale de matière fissile et la section efficace de fission, et N_c et σ_c la quantité totale de matière capturante et la section efficace associée. Pour cette étude, on peut supposer que seul l'^{233}U est fissile (98.7 % des fissions au démarrage du réacteur) et que seul le ^{232}Th capture des neutrons (88.9 % au démarrage). Ainsi la masse critique est donnée par :

$$N_f = \frac{N_c}{\nu - 1} \times \frac{\sigma_c}{\sigma_f} \tag{5.5}$$

L'équation 5.5 n'est cependant qu'une tendance, le raisonnement étant simpliste. Appliquée à la configuration de référence, celle-ci donne une masse critique de 1 160 kg au lieu de 1 430 kg. Cependant, cela va nous permettre de comprendre l'évolution de l'inventaire nécessaire indiquée sur la figure 5.18. Comme mentionné dans la description de cette contrainte, l'inventaire nécessaire s'obtient en cumulant l'inventaire initial (masse critique) et le surplus de matière fissile indispensable aux premiers temps de fonctionnement (quelques centaines de kilogrammes).

Sur la figure 5.19 sont indiqués, d'une part les sections efficaces de fission de l'^{233}U et de capture du ^{232}Th, et d'autre part le rapport de ces deux grandeurs (qui correspond à l'évolution de N_f si l'on suppose N_c constant)). Pour des raisons de visibilité, σ_c a été renormalisée (multiplication par un facteur 68) afin de correspondre à σ_f pour les configurations thermalisées. On constate aisément les très grandes similitudes entre l'évolution du rapport des sections efficaces et celle de l'inventaire (figure 5.18). Pour être plus précis, il faudrait alors tenir compte des variations de N_c (en particulier celles dans le modérateur pour les configurations à petits canaux) et introduire un terme de fuites neutroniques (pour les configurations à grands canaux).

5.6 Faisabilité du retraitement

Lorsque l'on s'intéresse à l'impact du rayon des canaux sur cette contrainte, il faut bien préciser que le temps de retraitement est gardé constant. Ce paramètre, ainsi que d'autres associés au retraitement, seront bien sûr étudiés, mais cela ne sera montré qu'au chapitre 7.

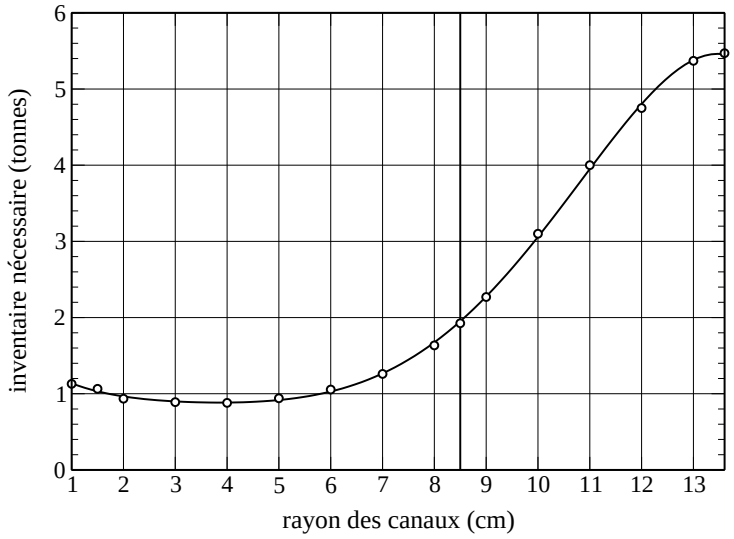


FIG. 5.18 – Impact du rayon des canaux sur l'inventaire initial nécessaire.

Hormis la vitesse d'extraction, la faisabilité du retraitement dépend de la composition du sel combustible. Or cette composition est assez proche d'une configuration à l'autre. La production de PF, et donc les concentrations d'équilibre, sont identiques. Le protactinium voit sa formation diminuée dans les configurations très thermalisées, en raison du très faible taux de capture sur le ^{232}Th. De même, la production de TRansUraniens est dépendante du spectre, avec un maximum autour de la configuration de référence, en raison de l'évolution du rapport $\alpha_{^{233}U}$.

Ces perturbations sont cependant négligeables. La faisabilité du retraitement, à vitesse d'extraction constante, ne dépend donc pas du rayon des canaux.

5.7 Aspects de thermohydraulique

L'écoulement du sel dans les canaux étant fortement dépendant de la taille desdits canaux, regardons de plus près comment évoluent les différents paramètres thermohydrauliques de notre système. Toutes ces grandeurs sont rassemblées dans le tableau 5.10. Signalons toutefois que les calculs de la configuration *cu* ont été réalisés sans prendre en compte l'existence de la barre centrale (qui modifie certainement l'écoulement).

La vitesse d'écoulement du sel dépend du rayon des canaux en raison des changements géométriques du coeur (hauteur et diamètre). Elle évolue ainsi entre 1.6 m/s en configuration *cu* et plus de 8 m/s en *r1*. Le calcul du nombre de Reynolds montre que, même dans une configuration à petits canaux, l'écoulement est très largement turbulent [3]. Cela est dû principalement aux vitesses d'écoulement mises en jeu qui, pour la configuration *r1*, devraient être 50 fois inférieures pour obtenir un écoulement laminaire. Les coefficients de pertes de charge λ ont été calculés en prenant deux rugosi-

[3] Rappelons que la limite entre écoulement laminaire et écoulement turbulent se situe à des valeurs de *Re* voisines de 3000.

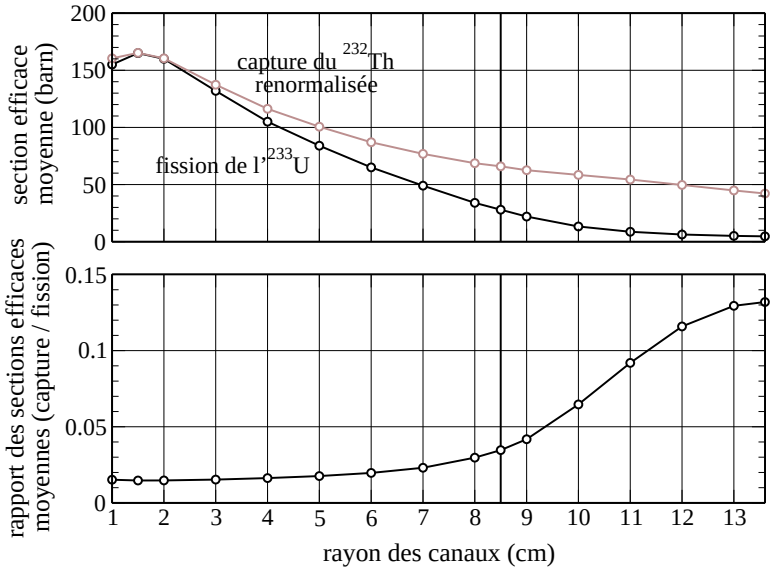


FIG. 5.19 – Impact du rayon des canaux sur les sections efficaces de fission de l'^{233}U et de capture renormalisée du ^{232}Th (en haut). Rapport entre section efficace de capture et de fission (en bas).

Configuration	*r1*	*r1.5*	*r2*	*r4*	*r6*	*r8.5*	*r10*	*r12*	*cu*
v (m/s)	8.1	6.2	5.2	3.3	2.5	2.0	1.8	1.7	1.6
Re (x10^5)	1.0	1.1	1.3	1.6	1.8	2.1	2.2	2.5	25
λ_{min}	0.018	0.017	0.017	0.016	0.016	0.016	0.015	0.015	0.010
λ_{max}	0.032	0.028	0.027	0.022	0.021	0.019	0.019	0.018	0.011
ΔP_{min} (bar)	16.5	4.6	2.1	0.25	72.10^{-3}	27.10^{-3}	16.10^{-3}	11.10^{-3}	-
ΔP_{max} (bar)	29.3	7.6	3.2	0.34	94.10^{-3}	32.10^{-3}	20.10^{-3}	13.10^{-3}	-

TAB. 5.10 – Impact du rayon des canaux sur les grandeurs thermohydrauliques.

tés différentes pour les parois de graphite (0 et $1/10^e$de millimètre). Cela permet ainsi de borner les pertes de charge dues au passage du sel dans les canaux, la valeur inférieure étant donnée pour un graphite parfaitement lisse. Comme on peut le constater, ces pertes de charge atteignent des valeurs très élevées dans les configurations à très petits canaux, qui semblent alors difficilement envisageables.

Il faut ajouter, aux pertes de charge indiquées dans le tableau 5.10, celles correspondant à la traversée des échangeurs. Ces pertes de charge sont identiques pour toutes les configurations et semblent être de l'ordre de quelques bars [55]. On considérera que l'écoulement du sel ne pose de problème sérieux que pour les configurations dont le rayon des canaux est inférieur à 2 cm.

5.8 Production de TRansUraniens

La quantité de TRU formés en coeur et extraits au retraitement est dépendante du spectre neutronique et donc du rayon des canaux. La figure 5.20 présente les inventaires en coeur pour différentes

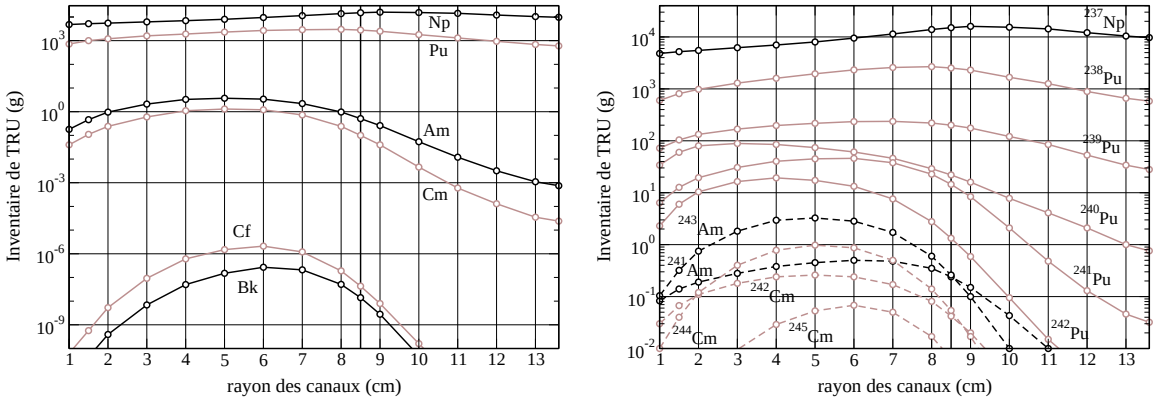


FIG. 5.20 – Impact du rayon des canaux sur les inventaires de TRansUraniens, par élément chimique (à gauche) et par isotope (à droite).

configurations. Rappelons que dans ce retraitement les TRU sont extraits en 6 mois, et que le flux de sortie annuel est égal au double de l'inventaire [4]. De même, les pertes au retraitement s'obtiennent avec le taux de 10^{-5} de l'inventaire en coeur par retraitement (pour plus de détails, se reporter à la présentation du retraitement de référence dans la section 4.1.2), soit 2.10^{-5} par an.

Sur la partie de gauche de la figure, montrant les inventaires par élément chimique, on voit clairement que ceux-ci sont rassemblés deux à deux. Cet étrange effet est imputable au nombre d'isotopes "relativement stables" formés. Le Pu peut former en proportion non négligeables cinq isotopes, contre seulement deux pour l'américium. De même le curium forme de manière significative cinq isotopes, contre seulement un seul -de courte durée de vie- pour le berkélium. Cet effet est d'ailleurs clairement visible entre le Pu et l'Am sur la partie droite de la figure. L'évolution des inventaires met en jeu des phénomènes différents suivant les spectres neutroniques :

- Pour les configurations (très) thermalisées, les sections efficaces de capture (isotopes non fissiles) ou de fission (isotopes fissiles) sont très importantes. Les inventaires se stabilisent donc à des valeurs relativement faibles, et une partie non négligeable des TRU disparaissent par fission avant d'être extraits par le retraitement.
- Pour les spectres rapides le phénomène est inversé, puisque les sections efficaces d'absorptions des TRU sont très faibles. Cette fois, les inventaires de TRU ne sont pas limités par les fissions mais par le retraitement, très peu d'éléments lourds ayant le temps de se former.
- Les spectres épithermiques sont évidemment dans une situation intermédiaire. Les TRU parviennent à capturer suffisamment de neutrons pour former des éléments très lourds, mais les disparitions sont trop faibles pour limiter l'inventaire.

Précisons que ce raisonnement est valable en raison de l'extraction des TRU en 6 mois. Dans le cas d'un mode auto-incinérateur (que nous étudierons au chapitre 7), l'extraction des TRU ne vient plus court-circuiter les captures neutroniques ou les fissions.

[4] L'inventaire doit donc être multiplié par $\frac{2}{7}$ pour obtenir un flux de sortie par TWh (en comptant 7 TWh / an).

Par rapport à la configuration de référence, analysée en détail au chapitre 4, on peut signaler que, en dehors des cas extrêmes (comme les configurations très thermalisées), les configurations plus thermalisées permettent de réduire sensiblement la production de neptunium et de plutonium, au détriment de la production d'éléments plus lourds. Cette contrepartie est cependant peu contraignante compte tenu des faibles masses mises en jeu. Une configuration au spectre plus rapide permet en revanche une meilleure incinération des TRU, avec une réduction de la production de chacun d'eux (d'un facteur 1.5, 4.6, 515 et 5250 pour le Np, le Pu, l'Am et le Cm par rapport à la configuration *r8.5*).

5.9 Production de tritium

La quantité de tritium produite dépend du spectre neutronique utilisé, comme le montre le tableau 5.11. Compte tenu de leur section efficace microscopique, le ^{6}Li et le ^{7}Li réagissent de manière opposée à un durcissement du spectre. Comme le ^{6}Li disparaît en quelques centaines de jours, les configurations thermalisées produisent globalement beaucoup moins de tritium que les configurations rapides.

Configuration		*r4*	*r8.5*	*cu*
initial	^{6}Li	240	75	10
(g/GWe/an)	^{7}Li	60	110	160
après 100 ans	^{6}Li	-	-	-
(g/GWe/an)	^{7}Li	60	110	160

TAB. 5.11 – Impact du rayon des canaux sur la production de tritium.

5.10 Résistance à la prolifération

Voyons à présent comment le spectre neutronique influe sur cette contrainte, et en particulier sur la quantité d'^{232}U. Cet isotope est formé à partir de la réaction (n,2n) sur le ^{232}Th et l'^{233}U (voir section 3.1.9 pour plus de détails). Or ces réactions disposent d'un seuil en énergie assez élevé, et requièrent des neutrons très rapides (voir figure 5.21 partie de gauche). Cependant, même pour un spectre de neutrons dit "thermique", on a une grande quantité de neutrons de haute énergie. Ainsi, il y a formation d'^{232}U dans le sel combustible pour toutes les configurations. On observe en revanche des différences significatives dans les spectres neutroniques du sel de la couverture.

La partie droite de la figure 5.21 montre la proportion d'^{232}U dans l'uranium à l'équilibre, pour le sel du coeur et celui de la couverture. Les variations observées dans le sel du coeur sont bien loin de ce que l'on peut attendre par analyse des spectres. En effet, plusieurs effets se rajoutent :

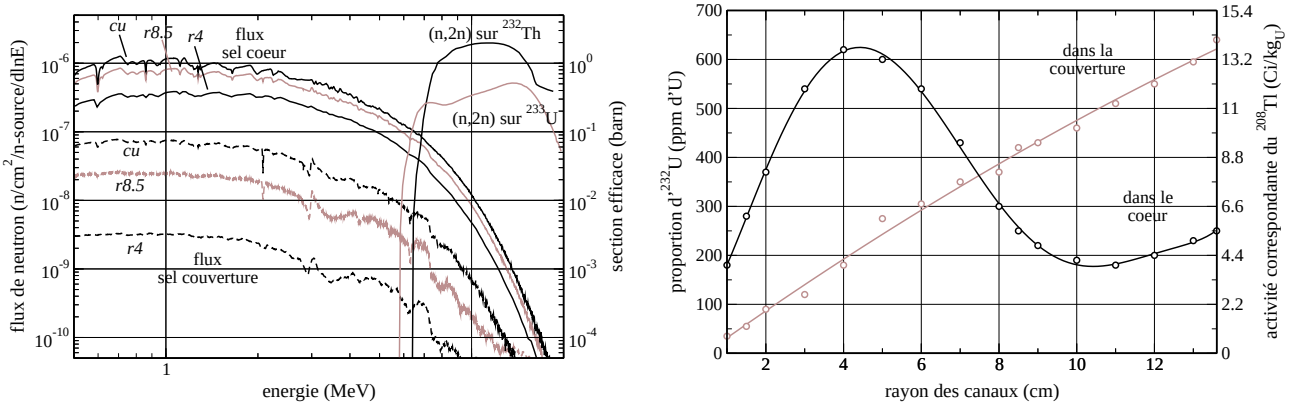


FIG. 5.21 – Partie haute énergie du spectre neutronique dans le sel du coeur et de la couverture pour quelques configurations comparée à la section efficace microscopique de réaction (n,2n) sur le ^{232}Th (à gauche). Impact du rayon des canaux sur la proportion d'^{232}U dans l'uranium total (et l'activité associée du ^{208}Tl) pour le sel du coeur et de la couverture (à droite).

- Les inventaires fissiles des configurations thermiques sont très inférieurs à ceux des configurations rapides. Ainsi, une formation identique d'^{232}U engendrera une plus forte proportion par rapport à l'uranium dans le premier cas. Cela explique la très forte proportion d'^{232}U pour ces configurations.
- Les configurations très thermalisées nécessitent un inventaire jusqu'à 50 % plus important que les configurations thermalisées, en raison des captures dans le modérateur. A cela s'ajoute la diminution des réactions (n,2n), d'un facteur 2 entre *r4* et *r1*.
- L'^{232}U obtenu peut, dans des proportions grossièrement équivalentes, fissionner ou capturer un neutron. Or les maximums de ces taux de capture sont obtenus aux alentours des configurations *r6* et *r7*. Cet effet participe ainsi à la brusque chute de la proportion d'^{232}U en coeur.

Loin d'être proliférantes, les configurations thermalisées produisent une large quantité d'^{232}U par rapport à leur inventaire de matière fissile. A titre de comparaison, la configuration de référence et ses 250 ppm d'^{232}U engendre une activité de rayons γ de 2.6 MeV de 200 GBq.kg$_U^{-1}$. Se reporter à la partie 4.3.9 pour plus d'informations sur le sujet.

En ce qui concerne la proportion d'^{232}U dans le sel fertile de la couverture, les choses sont radicalement différentes : le flux à haute énergie est bien plus faible lorsque le spectre se thermalise, tandis que la quantité d'uranium présent dans la couverture est globalement équivalente. Ainsi, les configurations thermiques forment moins d'^{232}U dans la couverture que les configurations rapides.

5.11 Synthèse de l'étude du rayon des canaux

De toute cette étude en fonction du rayon des canaux, nous mettrons particulièrement en lumière les quatre contraintes principales quantitatives que sont le coefficient de température total, le taux de régénération, la tenue du graphite et l'inventaire initial. Les différentes influences du rayon sur ces

contraintes sont rassemblées sur la figure 5.22. Le tableau 5.12 récapitule quant à lui, de manière qualitative, les avantages et inconvénients des diverses configurations de réacteurs possibles.

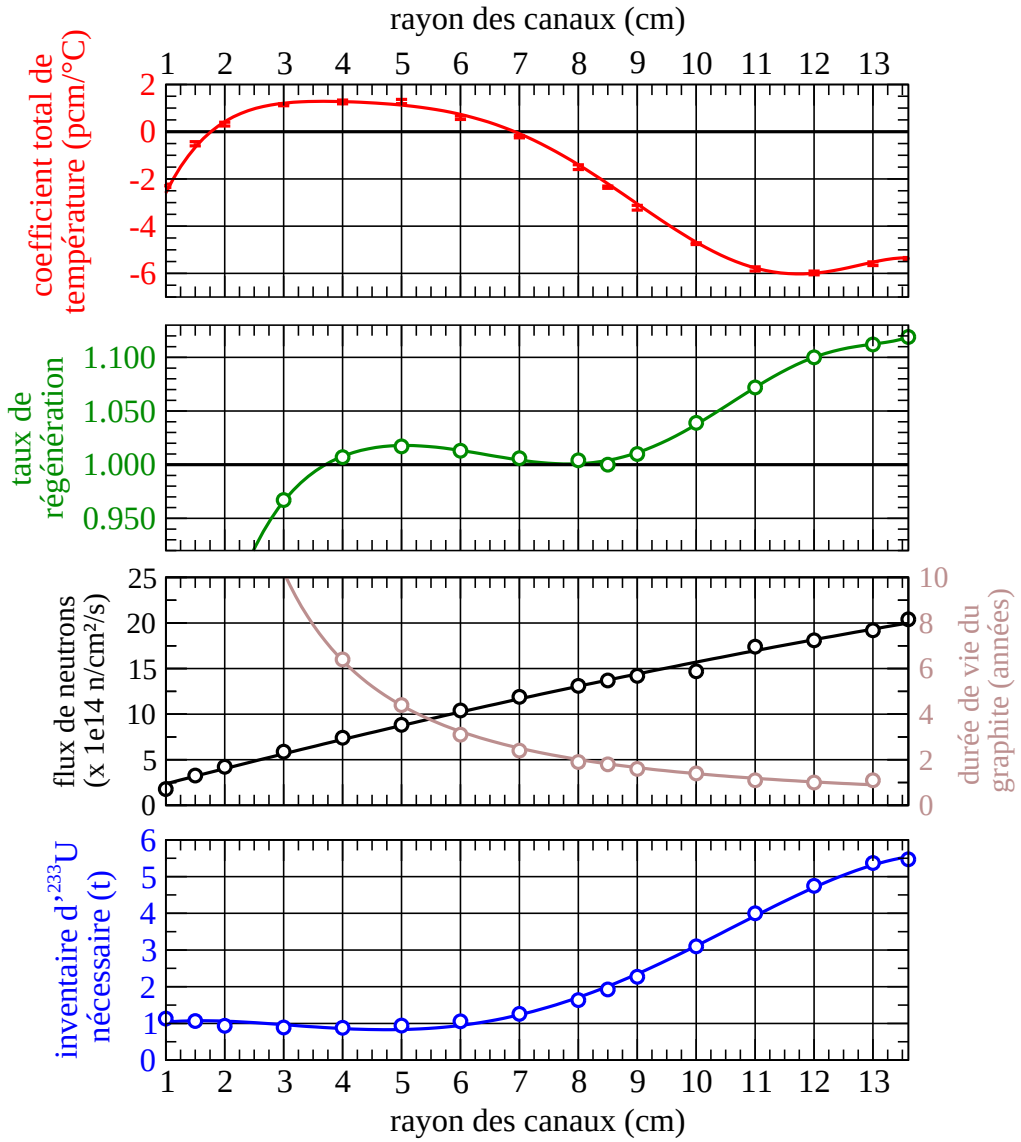


FIG. 5.22 – Figure récapitulative de l'impact du rayon des canaux sur plusieurs contraintes : coefficient de température total (en haut), taux de régénération (milieu haut), flux de neutrons dans le sel du coeur et durée de vie du graphite modérateur (milieu bas) et inventaire initial nécessaire (en bas) (Configuration : rayon variable, hexagones de 15 cm, 20 m^3 de sel, retraitement en 6 mois, 630 °C, 22 % de $(NL)F_4$).

Il ressort de cette étude que les configurations à spectres épithermique ou rapide ont un net avantage, et ce dans plusieurs domaines clés, puisque l'on peut obtenir un système à la fois sûr et largement surgénérateur. En revanche, le remplacement du graphite est problématique pour les configurations à spectre épithermique. La configuration à spectre rapide dépourvue de modérateur présente ici de nombreux avantages et n'a que son inventaire initial comme inconvénient. Elle constitue de fait une

Contraintes	Configuration			
	spectre très thermique	spectre thermique	spectre épithermique	spectre rapide (canal unique)
Sûreté (coefficients de température)	- coeff. total légèrement négatif - coeff. densité négatif	- coeff. total légèrement positif - coeff. densité positif	- coeff. total négatif - coeff. densité positif	- coeff total négatif - coeff. densité négatif
Capacités de régénération	très mauvaises	mauvaises à bonnes	bonnes à très bonnes	très bonnes
Irradiation du graphite	- vie longue - flux à traiter importants	- vie longue - flux à traiter moyens	- vie courte - flux à traiter faibles	peu de problèmes
Inventaire fissile	modéré	modéré	modéré à important	important
Thermo-hydraulique	pertes de charges totales très élevées	pertes de charges des échangeurs	pertes de charges des échangeurs	pertes de charges des échangeurs
Production de TRU	très faible	modérée	faible	très faible
Production de tritium	très faible	faible	faible à modérée	modérée
Résistance à la prolifération (formation d'^{232}U)	- coeur : bonne - couverture : faible	- coeur : très bonne - couverture : bonne	- coeur : bonne - couverture : très bonne	- coeur : bonne - couverture : très bonne

TAB. 5.12 – Synthèse des résultats concernant les différentes configurations possibles de réacteurs en fonction des contraintes.

voie de recherche très intéressante.

Toute cette étude repose sur la variation du rayon des canaux de sel, pour une taille d'hexagone de 15 cm, un volume de sel de 20 m^3, une puissance totale de 2500 MWth, etc... Il convient maintenant d'étudier l'impact de ces autres paramètres sur les contraintes. Compte tenu de l'importance du rayon des canaux, nous avons essayé, autant que possible, de garder ce paramètre variable dans les autres études.

Chapitre 6

Etude de la puissance spécifique, de la taille des hexagones et des autres paramètres géométriques

6.1 Puissance spécifique

La puissance spécifique, ou puissance volumique, représente la puissance déposée par les réactions nucléaires par unité de volume de combustible. Pour la configuration de référence, les 20 m^3 de sel reçoivent 2500 MW ce qui correspond à une puissance spécifique de 125 $W.cm^{-3}$. Toutefois, seul le sel circulant dans les canaux est véritablement échauffé, or son volume représente environ la moitié du total (puisqu'on ne tient pas compte des plenums). On considèrera donc que la puissance spécifique de la configuration de référence se monte à 250 $W.cm^{-3}$. Ce paramètre est un aspect fondamental du design d'un réacteur et a un impact important sur les contraintes.

Il existe deux manières de faire évoluer ce paramètre : soit en modifiant le volume du combustible, soit en faisant varier la puissance thermique totale du réacteur. Ces deux options donnent des résultats assez similaires. Nous allons nous concentrer sur la première approche, avant d'étudier plus succinctement la deuxième.

6.1.1 Etude du volume de combustible

Nous allons étudier l'impact de la variation du volume de sel sur les contraintes. Pour ce faire, on diminue ou augmente la taille du coeur, tout en gardant la plupart des autres paramètres (et en particulier le pas du réseau modérateur et la puissance thermique) constants. Le temps de retraitement est quant à lui modifié, afin que les performances du retraitement soient identiques d'une configuration à l'autre. En effet, retraiter en 6 mois un coeur contenant 20 m^3 de sel est équivalent à retraiter en 1 an un coeur de 40 m^3 du point de vue des flux de matières (en particulier le flux de thorium) à traiter.

6.1.1.1 Sûreté

La figure 6.1 représente la variation du coefficient de température total en fonction du volume de sel combustible, pour un rayon de canal de 8.5 cm. Une amélioration de ce coefficient est visible à mesure que le volume du coeur se réduit. Sa décomposition en différentes contributions, indiquée dans le tableau 6.1, met en lumière une variation sensible du rôle de la couverture. Dans le même temps, la contribution du sel thermalisé n'est presque pas perturbée par le changement de volume.

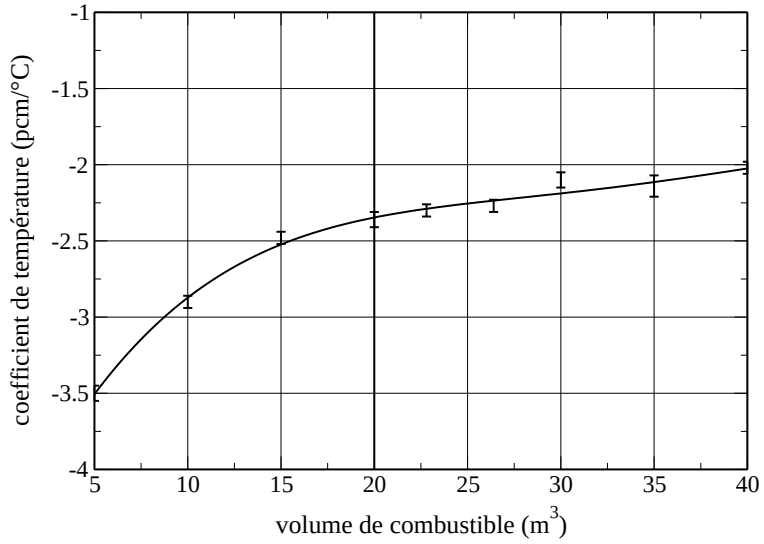


FIG. 6.1 – Impact du volume de combustible sur le coefficient de température. Les courbes indiquées dans les figures de cet ouvrage ne sont que des polynômes de degré n (ou autres fonctions simples) destinés à aider la visualisation. Elles n'ont pas valeur de résultat.

Contribution (pcm/°C)	5 m^3	10 m^3	15 m^3	20 m^3	30 m^3	40 m^3
sel thermalisé	-1.5	-1.4	-1.4	-1.3	-1.3	-1.3
sel des plenums	+0.3	+0.1	-0.0	-0.1	-0.1	-0.1
couverture	-1.6	-1.1	-0.8	-0.7	-0.5	-0.5
graphite	-0.2	-0.1	-0.1	-0.1	-0.1	-0.1
fuites	-0.4	-0.3	-0.2	-0.2	-0.1	-0.1
total	-3.5	-2.9	-2.5	-2.4	-2.1	-2.0

TAB. 6.1 – Impact du volume de combustible sur la décomposition du coefficient de température total par zone du coeur.

Changer la taille du coeur ne modifie pas la forme du spectre neutronique. Or, comme on l'a vu au chapitre 5, la réaction du sel est fortement dépendante du spectre. Cela explique que la contribution "sel thermalisé" soit constante d'une configuration à l'autre. En revanche, le nombre de neutrons atteignant la couverture (et dans une moindre mesure, quittant le réacteur) est de toute évidence lié

à la taille du coeur. Un petit coeur verra donc augmentée cette proportion, qui peut être assimilée à des fuites, ce qui améliore le coefficient de température lié à la densité et donc le coefficient de température total. Le phénomène est similaire à celui mis en évidence au chapitre précédent sur le coefficient de densité de la configuration avec un unique canal de sel, coeur naturellement plus petit puisque ne comportant pas de graphite.

On retiendra pour cette contrainte qu'il est possible d'améliorer un peu le coefficient de température total en réduisant drastiquement la taille du coeur. Dans les autres cas, l'évolution peut être considérée comme négligeable.

Si l'on représente le coefficient de température total en fonction de la proportion d'^{233}U (figure 6.2), on constate que la taille du réacteur importe peu : quel que soit le volume de sel, le coefficient de température obéit aux même lois. Ainsi, une fois connue la proportion d'^{233}U nécessaire pour atteindre la criticité, le coefficient de température est déterminé avec une assez bonne précision (mis à part pour les forts enrichissements en matière fissile pour lesquels des écarts apparaissent).

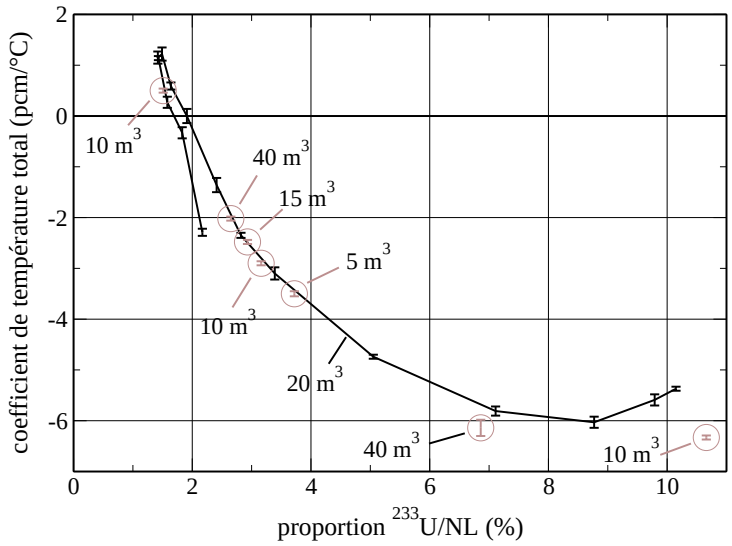


FIG. 6.2 – Impact de la proportion de matière fissile sur le coefficient de température total pour plusieurs tailles de réacteur.

6.1.1.2 Capacités de régénération

La figure 6.3 présente l'impact du volume de sel sur les capacités de régénération. Celles-ci sont assez fortement dégradées par une réduction de la taille du coeur. Le tableau 6.2 dresse le bilan des principales absorptions parasites et permet de comprendre l'évolution du taux de régénération. Les taux d'absorption de l'^{234}U et de l'^{232}U n'ont pas été comptabilisés. Ces isotopes étant des isotopes fertiles, leur taux de capture ne peut pas être considéré comme parasite. Rappelons aussi qu'un taux de réaction i s'exprime par $\tau_i = N_i . \langle \sigma_i \rangle . \phi$. Or ϕ est inversement proportionnel au volume de combustible

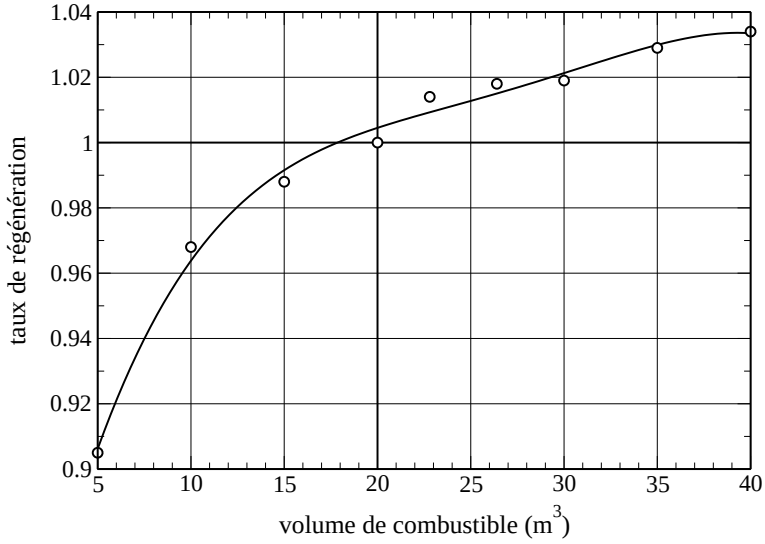


FIG. 6.3 – Impact du volume de combustible sur le taux de régénération.

Taille du coeur	5 m^3	10 m^3	20 m^3	30 m^3	40 m^3
Puissance spécifique (W/cm^3)	1 000	500	250	167	125
U (sauf ^{234}U)	0.192	0.199	0.200	0.199	0.198
Pa	0.032	0.030	0.023	0.018	0.015
PF	0.019	0.023	0.025	0.026	0.027
sel	0.022	0.023	0.024	0.025	0.025
graphite	0.005	0.005	0.005	0.005	0.006
fuites	0.058	0.032	0.022	0.014	0.007
total	0.328	0.312	0.299	0.287	0.278
taux de régénération	0.905	0.968	1.000	1.019	1.034

TAB. 6.2 – Impact du volume de combustible sur les taux d'absorptions parasites et le taux de régénération.

et est donc deux fois plus élevé pour un coeur deux fois plus petit. Si l'on suppose que $\langle \sigma_i \rangle$ est constant (les spectres neutroniques sont peu changés), il ne reste plus qu'à s'interroger sur la variation d'inventaire des éléments capturants.

La principale contribution à la perte de régénération quand on diminue la taille du réacteur vient de l'augmentation des fuites (absorption dans le B_4C et les réflecteurs axiaux), qui passent de 0.007 n/fission à 0.058 n/fission. Le comportement des PF et du Pa est radicalement différent. L'inventaire des premiers est fixé par le retraitement, et la variation du temps de retraitement avec le volume de combustible compense exactement celle du flux. Leur taux de capture ne varie que grâce à quelques effets de spectre. En revanche l'inventaire du Pa est principalement limité par sa décroissance radioactive, et varie donc peu d'une configuration à l'autre. Soumis à un flux très différent, le Pa capture beaucoup plus de neutrons dans les petits coeurs.

Pour résumer, la dégradation du taux de régénération lors d'une réduction du volume du coeur est due principalement à deux causes : l'augmentation des fuites et de la puissance spécifique (effet négatif sur le Pa). Compte tenu des variations du taux de régénération, jouer sur la taille du réacteur permet soit de rattraper une configuration légèrement sous-génératrice, soit de valoriser une surgénération peu utile.

6.1.1.3 Tenue des matériaux

Comme la durée de vie est inversement proportionnelle au niveau de flux, elle est fortement dépendante du volume de combustible. Si l'on considère les perturbations du spectre comme négligeables, le graphite résistera deux fois moins longtemps à l'irradiation pour un coeur contenant 10 m^3 de sel, mais deux fois plus longtemps pour un coeur de 40 m^3. Ceci est valable quelle que soit la configuration choisie. En revanche, le flux de graphite à traiter est constant, la masse totale de graphite étant proportionnelle au volume du coeur.

De ce point de vue, et compte tenu de la courte durée de vie du graphite, il semble difficile de réduire la taille de coeur. Sans que cela n'apporte une solution satisfaisante, un doublement de la taille du coeur permet de soulager quelque peu cette contrainte. On notera au passage que tout ce raisonnement n'est pas adapté à la configuration à canal unique de sel.

6.1.1.4 Inventaire nécessaire

Comme on l'a vu au chapitre précédent, la quantité de matière fissile nécessaire pour atteindre la criticité est définie comme une proportion de la quantité de matière fertile. Ainsi, si l'on néglige les effets annexes tels que les fuites, la composition chimique du sel combustible est toujours la même et l'inventaire est alors proportionnel au volume. Comme on peut le voir sur la figure 6.4, ce n'est pas exactement le cas puisqu'une réduction de la taille d'un facteur deux entraîne une diminution de l'inventaire de seulement 40 % (au lieu de 50 %).

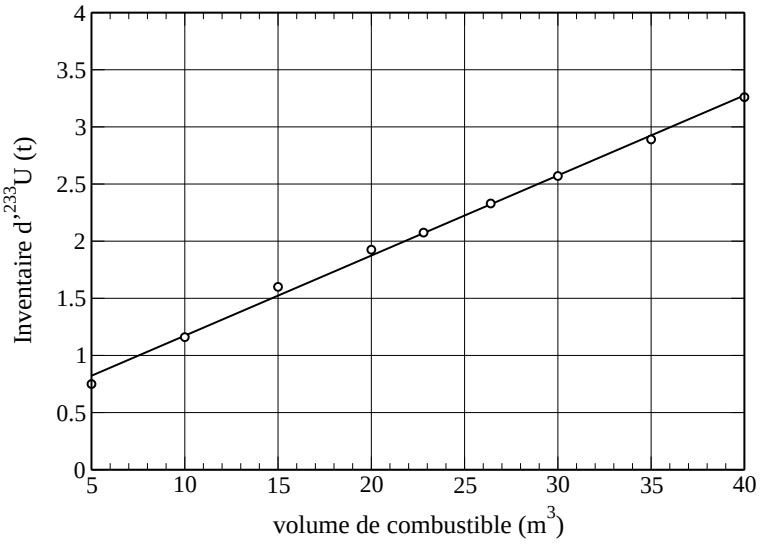


FIG. 6.4 – Impact du volume de combustible sur l'inventaire de matière fissile nécessaire.

La réduction de la taille du réacteur est évidemment une méthode très efficace pour réduire l'inventaire en coeur. Cela peut s'avérer particulièrement utile pour les configurations rapides nécessitant beaucoup de matière fissile.

6.1.1.5 Thermohydraulique

La contrainte de thermohydraulique est très perturbée par un changement de volume de sel. En effet, la quantité de chaleur à évacuer est constante mais la quantité de fluide caloporteur disponible varie. En premier lieu, la vitesse de circulation du sel dépend des caractéristiques géométriques du coeur. Pour clarifier le raisonnement on posera f_T le facteur de changement de taille du coeur ($f_T = \frac{V}{V_{ref}}$) et f_S celui de changement de puissance spécifique ($f_S = f_T^{-1}$). On rappelle également les équations 3.5, 3.6 et 3.7 :

$$\Delta T = \frac{1}{C_p} \times \frac{P_{th}}{S.H} \times \frac{H}{v} \tag{6.1}$$

$$Re = \frac{\rho.v.D}{\mu} \tag{6.2}$$

$$\frac{\Delta P}{H} = \frac{\lambda}{D} \times \frac{1}{2}\rho v^2 \tag{6.3}$$

Ainsi :

– D'après la première équation, la vitesse est inversement proportionnelle à la surface de l'ensemble des canaux de sel. Or cette surface est liée au volume du coeur, orthorhombicité oblige,

et son évolution est en $f_T^{\frac{2}{3}}$ (de la même manière la hauteur du coeur suit une loi en $f_T^{\frac{1}{3}}$). On a donc pour la vitesse une variation en $f_T^{-\frac{2}{3}}$.

- Le nombre de Reynolds *Re* étant proportionnel à la vitesse, il suit la même évolution. Signalons tout de même qu'il est très peu probable qu'une augmentation de taille soit suffisante pour atteindre le régime laminaire (*Re* inférieur à 2 000).
- Finalement, les pertes de charges sont proportionnelles au carré de la vitesse et à la hauteur du coeur. On considèrera en effet comme négligeables les variations du coefficient de pertes de charge λ. Cela nous amène à une variation des pertes de charge selon $\left(f_T^{-\frac{2}{3}}\right)^2 . f_T^{\frac{1}{3}} = f_T^{-1} = f_S$, c'est-à-dire proportionnellement à la puissance spécifique. Ainsi, une division par deux du volume du coeur induit un doublement des pertes de charge liées au passage du sel en coeur. Si elle ne pose généralement pas de problème, cette contrainte rend délicate une réduction de volume dans le cas des configurations thermalisées (pour lesquelles les pertes de charge sont déjà élevées).

Concernant l'extraction de la puissance thermique du coeur, il est difficile de donner une aussi simple relation d'échelle. Disons simplement que, voulant obtenir la même différence de température, il faut une surface d'échange identique. Or, le volume de sel externe subit la même variation que le volume total (conservation du rapport 1/3 pour le volume externe). Si le volume de sel dans les échangeurs est réduit, cela signifie une réduction de la taille de ses canaux, et une augmentation substantielle des pertes de charge. A l'inverse, un coeur plus grand permet d'atténuer un éventuel problème d'extraction de la chaleur par les échangeurs [55].

6.1.2 Etude de la puissance totale

Après avoir étudié l'influence de la puissance spécifique obtenue par une variation du volume de combustible, penchons-nous à présent sur l'option d'une variation de la puissance totale.

Sûreté : L'effet de ce paramètre sur la sûreté est absolument négligeable. Quelle que soit la puissance étudiée (moitié à double), les coefficients de température totaux sont identiques (écarts inférieurs à la marge d'erreur statistique de 0.14 pcm/°C).

Capacités de régénération : L'évolution des taux de régénération en fonction de la puissance totale du coeur est très similaire à ce qu'elle était avec l'option précédente. Les taux d'absorption parasites pour diverses puissances de réacteur, ainsi que le taux de régénération associé, sont rassemblés dans le tableau 6.3. Beaucoup de ces taux sont indépendants de la puissance, et en particulier le taux de capture dans les PF et le taux de fuite [1]. On retiendra l'évolution des captures du Pa, pour les mêmes

[1] L'écart observé sur le taux de fuite entre la configuration de référence (2500 MWth) et les autres est dû à une petite différence dans la densité du sel de la couverture fertile. L'impact de cette erreur peut être considéré comme faible.

raisons qu'énoncé précédemment, et celle des captures de l'uranium, en raison d'effets de spectre (variation des rapports α).

Puissance totale (MWth)	10 000	5000	3333	2500	1667	1250
Puissance spécifique (W/cm^3)	1 000	500	333	250	167	125
U (sauf ^{234}U)	0.210	0.205	0.203	0.200	0.201	0.196
Pa	0.047	0.035	0.028	0.023	0.017	0.014
PF	0.023	0.024	0.025	0.025	0.025	0.026
sel	0.023	0.023	0.024	0.025	0.025	0.025
graphite	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.006
fuites	0.018	0.017	0.017	0.022	0.016	0.016
total	0.326	0.310	0.302	0.300	0.289	0.283
taux de régénération	0.922	0.972	0.993	1.000	1.021	1.032

TAB. 6.3 – Impact de la puissance totale sur les taux d'absorptions parasites et le taux de régénération.

Autres contraintes : La tenue du graphite et l'inventaire nécessaire (pour 1 GWe produit) réagissent sensiblement de la même manière que précédemment. Les équations de la thermohydraulique mènent, quant à elles, à des résultats très différents. Alors que, pour la première option, la vitesse et les pertes de charge varient respectivement comme $f_S^{\frac{2}{3}}$ et f_S, elles suivent des lois en f_S et f_S^2 avec la deuxième option. Une augmentation de la puissance spécifique par cette méthode est encore plus contraignante que précédemment, en particulier pour les configurations thermalisées.

6.1.3 Synthèse sur l'étude de la puissance spécifique

L'étude réalisée, illustrée par la figure 6.5, présente l'impact de la variation de puissance spécifique sur les contraintes, pour la configuration *r8.5*. Qu'en est-il pour les configurations plus thermalisées ou plus rapides ? Pour certaines contraintes, telles que la tenue du graphite, l'inventaire ou la thermohydraulique, le spectre neutronique n'est pas un paramètre central. L'évolution du coefficient de température est en revanche légèrement plus forte en configuration rapide en raison de sa taille naturellement faible. Pour cette même raison, la perte de régénération par réduction de la taille est beaucoup plus importante pour une telle configuration.

L'augmentation de la puissance spécifique offre l'avantage de réduire l'inventaire en matière fissile par GWe produit. Cela est particulièrement utile pour les configurations à spectre rapide. Ces configurations peuvent en outre supporter une perte de régénération conséquente avant de devenir sous-génératrices. En revanche, la dégradation du graphite devient encore plus problématique, sauf pour la configuration *cu* qui n'a pas de bloc modérateur. Les configurations thermalisées n'ont, quant à elles, pas de problème d'inventaire mais de sûreté. L'amélioration des coefficients de température

apportée de cette manière n'est cependant pas suffisante. Enfin, quelle que soit la configuration, abaisser la puissance spécifique peut être intéressant pour faciliter l'extraction de la puissance thermique du coeur, ceci au détriment de l'inventaire de matière fissile.

Un autre aspect, dont nous n'avons pas parlé jusqu'à présent, concerne les études dynamiques de sûreté. Sans entrer dans les détails, en cas d'arrêt des pompes, plus le volume de sel à chauffer est grand, plus lente sera l'élévation de température. Les coeurs à faible puissance spécifique subiront donc des variations moins brutales. Ceci ne constitue cependant que de grossières indications, ce domaine restant largement à étudier.

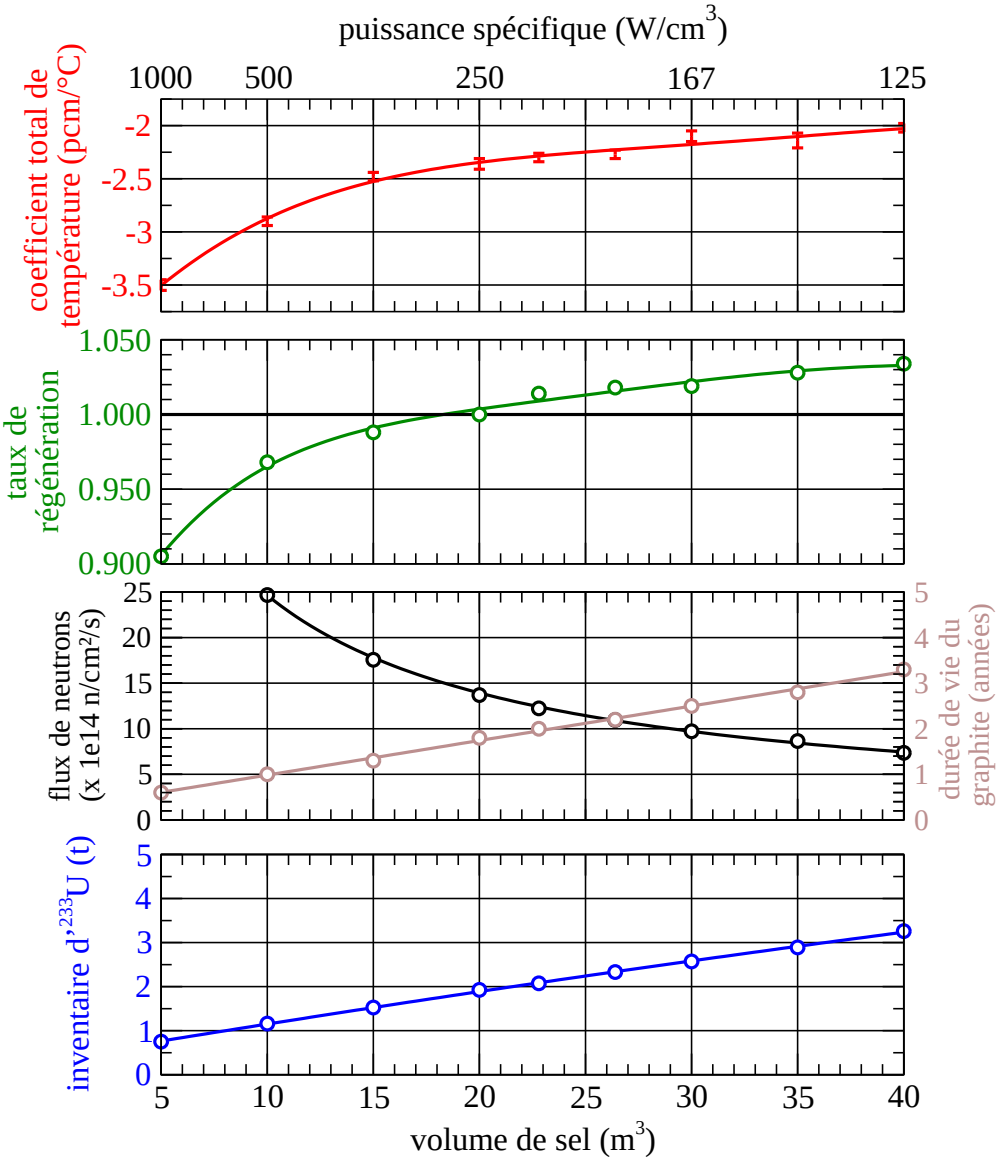


FIG. 6.5 – Figure récapitulative de l'impact du volume de combustible (ou de la puissance spécifique par variation du volume) sur plusieurs contraintes : coefficient de température total (en haut), taux de régénération (milieu haut), flux de neutrons dans le sel du coeur et durée de vie du graphite modérateur (milieu bas) et inventaire initial nécessaire (en bas) (Configuration : rayon de 8.5 cm, hexagones de 15 cm, volume de sel variable, temps de retraitement variable, 630 °C, 22 % de $(NL)F_4$).

6.2 Taille des hexagones

Toutes les études présentées jusqu'à présent ont été réalisées avec un bloc modérateur constitué d'un réseau d'hexagones de graphite de 15 cm de côté. Or, ce paramètre peut être modifié et avoir une influence sur le comportement du réacteur. Nous avons donc étudié trois autres tailles d'hexagones (5 cm, 10 cm et 20 cm) pour plusieurs tailles de canaux. On notera ces trois groupes de configurations *h5*, *h10* et *h20* par opposition à la référence *h15*. Ainsi, une configuration avec des hexagones de 5 cm de côté et des canaux de 1 cm de rayon sera appelée *h5-r1*. Cette configuration a le même rapport de modération que la configuration *h15-r3*. Afin de faciliter la compréhension de phénomènes mis en jeu, l'abscisse des courbes présentées sera renormalisée respectivement par un facteur 3, $\frac{3}{2}$ et $\frac{2}{3}$ pour les trois tailles d'hexagones, de manière à être comparables aux configurations *h15* sur un graphique en fonction du rayon des canaux. Précisons que la modification de la taille des hexagones s'accompagne d'une variation de leur nombre, mais pas du volume de sel ou de la hauteur du coeur.

6.2.1 Sûreté

Commençons par l'étude de l'impact de la taille des hexagones sur le coefficient de température total. La figure 6.6 présente les variations de ce coefficient en fonction du rayon des canaux pour différentes tailles d'hexagones. Des différences très nettes apparaissent, avec un écart pouvant dépasser les 4 pcm/°C entre les ensembles de configurations *h5* et *h20*. Ainsi, comme il avait été dit au début du chapitre précédent, un même rapport de modération peut conduire à un comportement neutronique très différent.

On notera au passage qu'une homogénéisation du coeur, avec des tailles d'hexagones plus petites, conduit à de meilleurs coefficients de température. Le MSBR, lorsqu'il fut conçu, était donné avec un coefficient de température négatif, alors que la réévaluation lui a attribué une valeur positive [4, 9]. Comme on le voit sur cette figure, l'écart est très probablement dû au fait que les calculs réalisés à l'époque supposaient l'homogénéité du coeur.

Afin de mieux comprendre quelles différences ce paramètre induit sur le transport des neutrons, intéressons-nous à l'évolution des spectres neutroniques de configurations très thermique, épithermique et rapide (par exemple *h15-r2*, *h15-r6* et *h15-r11* respectivement). La figure 6.7 (partie centrale) présente les spectres neutroniques de la configuration *h15-r6* ainsi que de la configuration *h5-r2* de même rapport de modération. Dans le cas des petits hexagones, la partie thermique et la partie rapide du spectre sont réduites. On assiste alors à une sorte d'homogénéisation en énergie du spectre neutronique. Pour les configurations peu thermalisées (partie droite de la figure) la situation est similaire, mais la réduction du flux est très importante dans la partie thermique, et faible pour la partie rapide. A contrario, dans les configurations très thermalisées (partie gauche de la figure), seule la partie rapide du spectre est significativement amoindrie.

Plus les hexagones sont gros et plus la démarcation entre zone thermalisée (graphite) et zone rapide (sel combustible) est importante. Ainsi, pour de gros hexagones et à rapport de modération

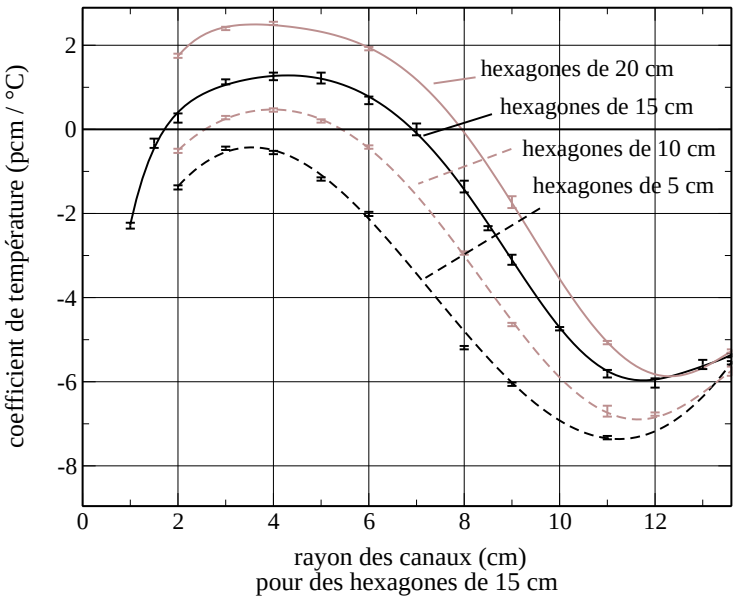


FIG. 6.6 – Impact de la taille des hexagones sur le coefficient de température total en fonction du rayon des canaux (abscisses renormalisées d'un facteur 3 pour *h5*, $\frac{3}{2}$ pour *h10*, $\frac{2}{3}$ pour *h20*).

donné, les neutrons créés dans le sel ont quelques difficultés à rencontrer le graphite (partie rapide forte). De la même manière, les neutrons circulant dans le graphite peinent à retourner dans le sel (partie thermique forte). Cela conduit naturellement à un renforcement des deux zones extrêmes du spectre et une modification notable des sous-coefficients de température. L'étude de ceux-ci, dont les résultats sont rassemblés sur la figure 6.8, montre que le coefficient Doppler apporte la principale contribution à la perturbation pour les configurations thermiques et épithermiques, mais que ce rôle est tenu par le coefficient de graphite pour les configurations très thermalisées.

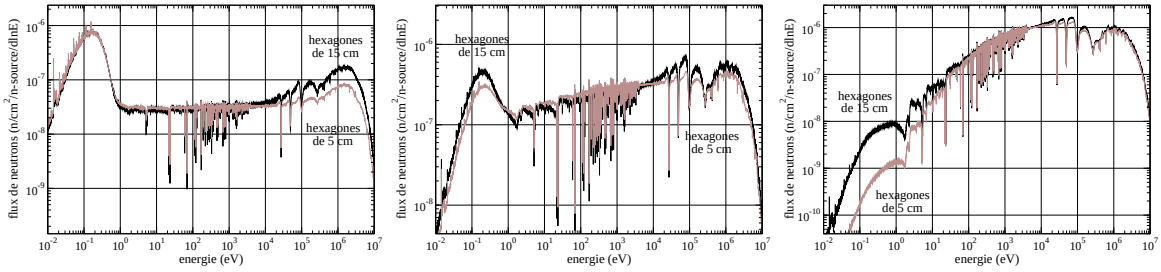


FIG. 6.7 – Spectres neutroniques pour les configurations thermiques *h15-r2* et *h5-r0.66* (à gauche), épithermiques *h15-r6* et *h5-r2* (au centre) et les configurations rapides *h15-r11* et *h5-r3.66* (à droite).

6.2.1.1 Coefficient de densité

Le coefficient de température lié à la dilatation du sel combustible (présenté sur la partie gauche de la figure 6.8) ne subit pas de variation majeure en fonction de la taille des hexagones. Bien que

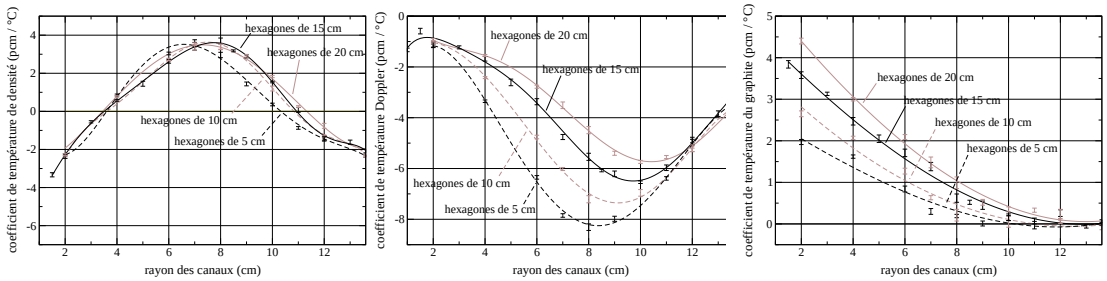


FIG. 6.8 – Impact de la taille des hexagones sur le coefficient de température de densité (à gauche), Doppler (au centre) et graphite (à droite) en fonction du rayon des canaux.

l'écart puisse atteindre jusqu'à 1 pcm/°C, il est raisonnable de considérer le coefficient de densité comme indépendant de la taille des hexagones.

6.2.1.2 Coefficient Doppler

L'évolution générale du coefficient en fonction du rayon des canaux est tout à fait semblable pour les différentes tailles d'hexagones. On remarque cependant deux domaines : les domaines rapide et très thermalisé où les coefficients sont indépendants de la taille des hexagones, et le domaine thermique à épithermique où ils varient fortement.

Commençons par étudier le cas des configurations épithermiques. La comparaison des spectres neutroniques a montré un affaiblissement de la partie thermique et rapide du spectre avec l'homogénéisation du coeur. Enoncé autrement, la zone épithermique du spectre est renforcée, or cette zone a une importance centrale dans les mécanismes engendrant le coefficient Doppler (pour plus de détails, se reporter à la partie 5.2.2). Afin de constater quantitativement cet effet, nous allons nous intéresser à l'importance relative de la zone comprise entre 1 eV et 10 keV. Les valeurs indiquées dans le tableau 6.4 montrent la forte progression de l'importance relative de ce domaine d'énergie, tant pour la fission de l'^{233}U que pour la capture du ^{232}Th.

	Fission (^{233}U)	Capture (^{232}Th)
h20-r8	27 %	47 %
h15-r6	31 %	52 %
h10-r4	36 %	58 %
h5-r2	43 %	67 %

TAB. 6.4 – Importance relative du domaine d'énergie compris entre 1 eV et 10 keV pour diverses configurations épithermiques de même rapport de modération.

Dans le cas de configurations peu thermalisées, et comme l'indiquent les spectres neutroniques, ce domaine d'énergie ne voit pas son importance relative varier significativement (de 75 % à 77 % pour la fission de l'^{233}U par exemple) avec l'homogénéisation du coeur. Le coefficient dû à l'effet

Doppler est donc sensiblement identique quelle que soit la taille des hexagones. L'effet est le même pour les configurations très thermalisées pour lesquelles l'importance relative de la fission de l'^{233}U varie de 4.8 % à 5.2 % entre les configurations *h15-r2* et *h5-r0.66*.

6.2.1.3 Coefficient du graphite

Le coefficient de température lié à l'échauffement du graphite est en général dû majoritairement à la contribution "sel thermalisé". Les fissions augmentent au sein du sel en raison du décalage de la distribution thermique des neutrons. Pour les mêmes raisons, le graphite absorbe moins de neutrons lorsque celui-ci est échauffé, ce qui détériore encore plus le coefficient de température (voir partie 5.2.1 pour plus de détails).

Contribution (pcm/°C)	*h5-r0.66*	*h10-r1.33*	*h15-r2*	*h20-r2.66*
sel thermalisé	+2.2	+2.4	+2.6	+2.7
graphite	+0.5	+1.0	+1.6	+2.3
total	+2.1	+2.8	+3.5	+4.4

TAB. 6.5 – Impact de la taille des hexagones sur le coefficient du graphite et ses deux principales contributions, pour des configurations de même rapport de modération.

Lorsque la taille des hexagones varie, ces deux contributions évoluent conjointement. Le tableau 6.5 indique ces contributions et le coefficient de graphite de plusieurs configurations très thermalisées de même rapport de modération que *h15-r2*. A mesure que les hexagones deviennent plus petits, ces deux contributions sont réduites, en particulier celle du graphite qui chute d'un facteur 3 entre *h15* et *h5*. Intéressons-nous de plus près à cette contribution.

En plus de son rôle modérateur, le bloc de graphite joue un rôle de réflecteur et de réservoir de neutrons, ce qui engendre un coefficient de température positif lorsqu'il est échauffé. Plus les hexagones sont gros, plus les canaux sont espacés et le bloc de graphite massif, ce qui renforce ses propriétés de réservoir et réflecteur de neutrons. A contrario, de petits hexagones engendrent une meilleure répartition des canaux de sel et une quantité de graphite inférieure entre ceux-ci. Ainsi le réchauffement du graphite, qui se traduit d'ordinaire par un afflux de neutrons du graphite vers le sel, voit cet effet amplifié dans les configurations à gros hexagones. Cela explique pourquoi la contribution du graphite subit des variations aussi importantes (de +0.5 à +2.2 pcm/°C entre *h5* et *h20*).

De plus, comme ces neutrons étaient absorbés dans le sel, la contribution du sel thermalisé est légèrement affectée. Tout neutron supplémentaire dans le sel vient renforcer sa contribution, qui est positive (de +2.3 à +3.0 pcm/°C entre *h5* et *h20*). En caricaturant, on peut dire qu'au lieu de faire des captures dans le graphite, les neutrons font des fissions dans le sel (double effet positif).

6.2.1.4 Visualisation du coefficient total de température

Comme précédemment, on visualise l'évolution du coefficient de température en fonction de l'enrichissement en ^{233}U pour les différentes tailles d'hexagones. On constate, sur la figure 6.9, qu'on s'écarte très nettement de la courbe de référence. Comme expliqué plus haut, les mécanismes mis en jeu (hétérogénéité / homogénéité) ont une influence sur le spectre qui est plus complexe que la simple thermalisation. Signalons au passage que la redescente moins prononcée des courbes (pour les faibles enrichissements) est due au fait que les configurations équivalentes à *h15-r1.5* et *h15-r1* n'ont pas été étudiées.

Les nouvelles courbes obtenues ont la même allure que la précédente, et l'on peut supposer que les phénomènes globaux sont similaires. On obtient par cette étude une nouvelle série de courbes permettant de "prédire" les coefficients de température en fonction de diverses tailles d'hexagones.

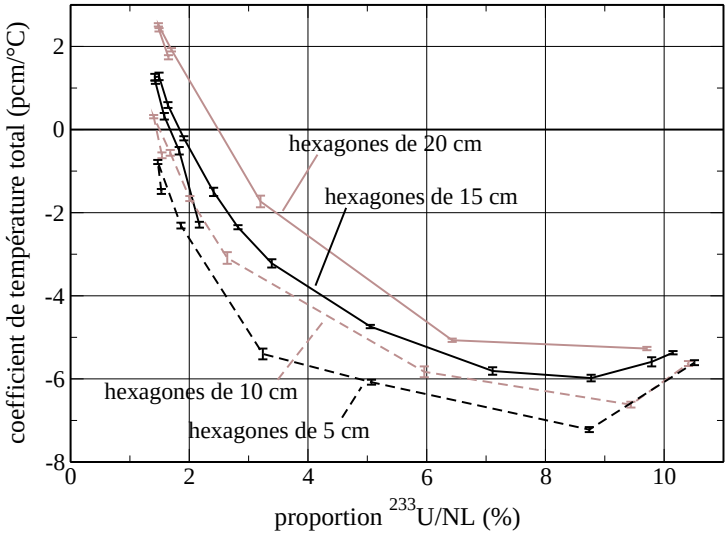


FIG. 6.9 – Impact de la taille des hexagones sur le coefficient de température total en fonction de la proportion de matière fissile.

6.2.2 Capacités de régénération

La figure 6.10 présente les résultats concernant l'impact de la taille des hexagones sur le taux de régénération. On constate en premier lieu que les lois générales sont conservées, comme le fort taux de capture dans le graphite des configurations très thermalisées qui détériore les capacités de régénération. On notera que trois régimes de fonctionnement se distinguent : le domaine thermique (régénération meilleure pour les petits hexagones), le domaine épithermique (régénération inférieure), et le domaine rapide (régénération similaire).

Puisque la chute du taux de régénération aux petits rayons est due au taux de capture du graphite, intéressons-nous à ses variations avec la taille des hexagones. Pour la configuration *h15-r2*, ce taux s'élevait à 0.297 n/fission (cf. figure 5.14 page 114). Pour une taille d'hexagones de 20 cm, 10 cm

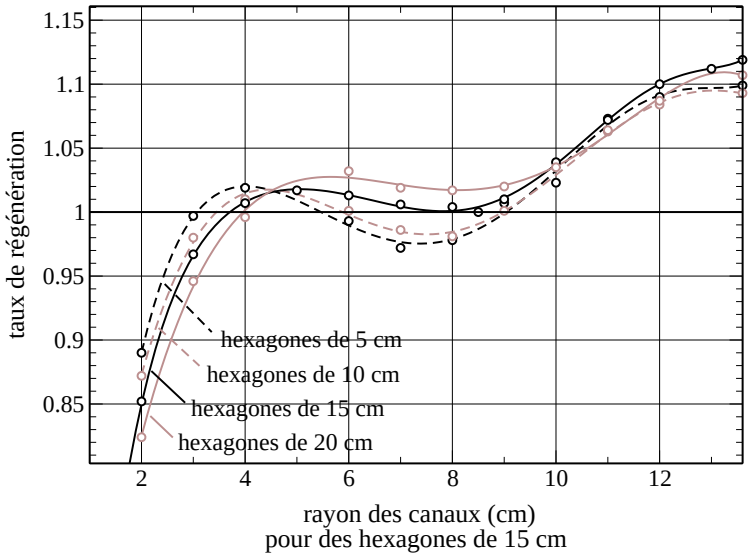


FIG. 6.10 – Impact de la taille des hexagones sur le taux de régénération en fonction du rayon des canaux (abscisses renormalisées d'un facteur 3 pour *h5*, $\frac{3}{2}$ pour *h10*, $\frac{2}{3}$ pour *h20*).

et 5 cm, ce taux se monte respectivement à 0.326, 0.273 et 0.253 n/fission. Cet effet illustre une nouvelle fois que la meilleure répartition des canaux de sel limite les diffusions intempestives, et donc les captures, dans le graphite.

L'effet inverse pour les configurations épithermiques n'est pas dû à une variation d'un taux de capture parasite. L'explication se trouve dans l'évolution du nombre de neutrons disponibles, elle-même dictée par celle du paramètre $\alpha_{^{233}U}$, rapport entre section efficace de fission et de capture de l'^{233}U. Si, en fonction de la taille des hexagones, ce rapport prend des valeurs très proches en rapide, et assez proche en thermique, ce n'est pas le cas dans le domaine épithermique. Ainsi, pour les configurations de même rapport de modération *h20-r12*, *h15-r8*, *h10-r5.33* et *h5-r2.66*, ce paramètre vaut respectivement 0.135, 0.141, 0.147 et 0.151. Ainsi, les configurations à petits hexagones voient les captures dans l'^{233}U amoindrir leurs capacités de régénération.

Enfin, pour les configurations à spectre rapide, les taux de régénération sont plus ou moins identiques puisque le graphite n'y joue qu'un rôle marginal. Les légères différences observables ne sont dues qu'à des écarts inévitables dans les géométries (volume difficile à fixer, barre centrale et couverture fertile différentes...).

6.2.3 Aspects de thermohydraulique

Quelle que soit la taille des hexagones, la géométrie générale du coeur (diamètre et hauteur) est invariante. Ainsi, la vitesse d'écoulement nécessaire pour évacuer la puissance est indépendante de ce paramètre géométrique. En revanche, l'équation des pertes de charge ($\frac{\Delta P}{H} = \frac{\lambda}{D} \times \frac{1}{2}\rho v^2$) fait intervenir le diamètre des canaux, au dénominateur et dans le coefficient de pertes de charge λ. Pour simplifier

le raisonnement, on supposera les variations de λ négligeables, ce qui est particulièrement vrai si la rugosité des parois est minimisée (très inférieure à $1/10^e$ de mm).

Ainsi, les configurations très thermalisées, dont les pertes de charge pouvaient déjà être élevées, sont pénalisées par une réduction de la taille des hexagones. Celles-ci sont en effet multipliées par 3 pour les configurations *h5* par rapport aux *h15*, à rapport de modération constant. On retiendra l'exemple de la configuration *h5-r0.66*, dont les pertes de charge pour le passage du sel dans les canaux peuvent aller jusqu'à 10 bars.

6.2.4 Tenue du graphite

La tenue du graphite est légèrement affectée par la taille des hexagones. Si le niveau de flux évolue très peu, le spectre est assez dépendant de ce paramètre. Cependant, ces variations sont assez faibles et conduisent à une modification de la durée de vie du graphite inférieure à 30 %. En revanche, la distance inter-canaux influe fortement sur la température maximum atteinte par le graphite et donc sa fluence maximum.

Au final, modifier la taille des hexagones n'est pas vraiment une solution permettant de résoudre efficacement les problèmes d'irradiation du graphite. Signalons cependant qu'une augmentation de la taille des hexagones simplifie légèrement les opérations de remplacement, à la fois par une diminution du nombre de pièce à remplacer, et par une meilleure tenue mécanique de chaque pièce.

6.2.5 Inventaire nécessaire

L'évolution du spectre neutronique en fonction de la taille des hexagones a un impact sur la quantité de matière fissile nécessaire à l'obtention de la criticité. La figure 6.11 présente cet inventaire en fonction du rayon des canaux pour différentes tailles d'hexagones.

Comme on peut le voir sur les spectres neutroniques (figure 6.7), la distribution des neutrons de basse énergie des configurations thermiques n'est pas dépendante de la taille des hexagones. Toutes les configurations thermalisées nécessitent ainsi le même inventaire de matière fissile. En revanche, cette distribution se réduit sensiblement avec l'homogénéisation du coeur pour les configurations épithermiques et rapides. Or, son importance neutronique est encore élevée pour les configurations épithermiques et il s'ensuit une diminution importante de la section efficace moyenne de fission pour les petites tailles d'hexagones. Pour les configurations rapides, l'impact de cette partie du spectre neutronique sur le bilan total est beaucoup plus faible, d'où des valeurs d'inventaire nécessaire plus proches. Signalons également qu'une différence dans les simulations entre les configurations classiques (*h15*) et les configurations à taille d'hexagone modifiée entraîne une légère erreur sur l'inventaire. En toute logique, l'inventaire de la configuration *h15-cu* devrait être compris entre celui des configurations *h10-cu* et *h20-cu*.

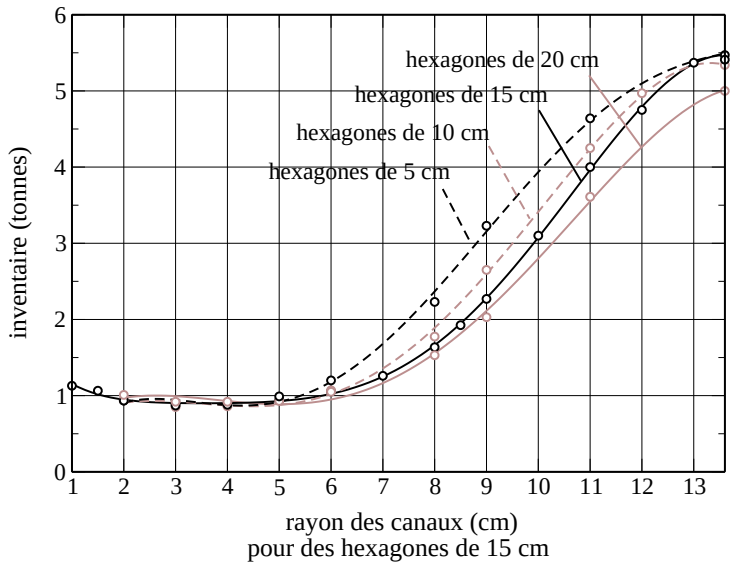


FIG. 6.11 – Impact de la taille des hexagones sur l'inventaire nécessaire en fonction du rayon des canaux (abscisses renormalisées d'un facteur 3 pour *h5*, $\frac{3}{2}$ pour *h10*, $\frac{2}{3}$ pour *h20*).

6.2.6 Synthèse sur l'étude de la taille des hexagones

Une réduction de la taille des hexagones a l'avantage d'améliorer fortement les coefficients de température (particulièrement les sous-coefficients Doppler et graphite). Il est ainsi possible d'obtenir des configurations thermalisées dont le coefficient de température total est -faiblement- négatif. Qui plus est, la régénération est améliorée pour ces configurations, contrairement à celles à spectre épithermique. Compte tenu de la dégradation de la sûreté, une augmentation de la taille des hexagones n'est possible que pour les configurations rapides. Cela peut alors permettre certaines simplifications d'ordre technologique, ainsi qu'une légère diminution d'inventaire.

6.3 Couverture en thorium

La couverture en thorium a été conservée pendant toutes les études présentées jusqu'à maintenant (ainsi que celles présentées après cette section), ce qui a permis d'obtenir des performances de régénération souvent très acceptables. Cependant le recours à cette solution complique quelque peu la conception et l'exploitation du réacteur, et il serait évidemment préférable de s'en passer. Etudions donc l'impact réel de cette couverture en thorium sur les différentes contraintes, en revenant à la taille classique d'hexagones (15 cm de côté).

6.3.1 Capacités de régénération

Commençons par la contrainte motivant la mise en place d'une couverture fertile autour d'un réacteur : la récupération des neutrons de fuite en vue d'améliorer la régénération. Le taux de régéné-

ration peut être décomposé en un taux concernant la régénération du coeur seul et un taux concernant le système complet (coeur + couverture). La figure 6.12 présente le taux de régénération en fonction du rayon des canaux, pour un système sans et avec couverture (ce dernier étant subdivisé en deux courbes, suivant que la couverture est comptabilisée ou non).

Comme décrit au début du chapitre 5, les grands rayons de canaux nécessitent un changement de la composition des matériaux afin d'éviter que les fissions ne désertent le coeur pour se masser à proximité des réflecteurs. Avec une configuration sans couverture en thorium, le réflecteur radial en graphite peut amener une telle perturbation. Il a donc été lui aussi remplacé par un réflecteur à base de zirconium pour les configurations à spectre rapide.

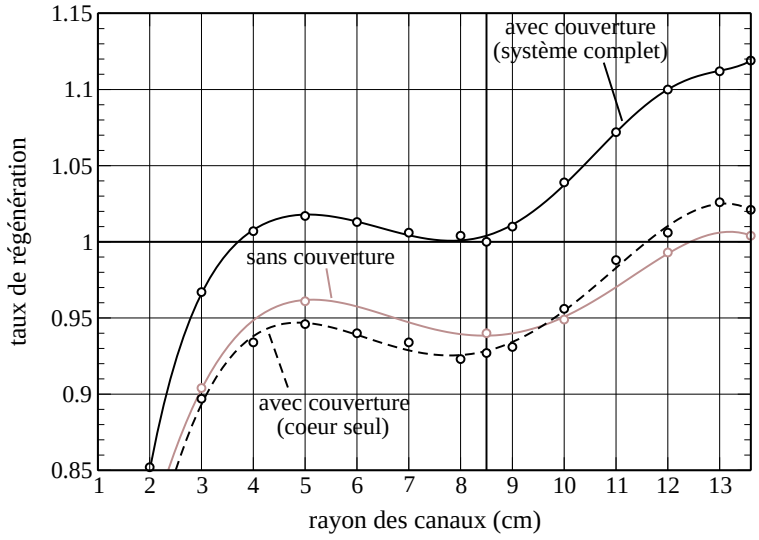


FIG. 6.12 – Impact de la présence d'une couverture en thorium sur le taux de régénération en fonction du rayon des canaux.

Remarquons tout d'abord que, dans le système comprenant une couverture fertile, la part de régénération apportée par celle-ci est légèrement plus importante pour les configurations à grands rayons de canaux. L'écart des taux de régénération approche les 0.120 en configuration *cu*, mais décroît graduellement jusqu'à 0.060 en *r2*. Ceci est probablement dû à la quantité de neutrons arrivant dans la couverture. Ce flux est beaucoup plus intense dans le petits coeurs (configuration *cu*) que dans les grands (configuration *r2*).

La comparaison avec la régénération d'un système sans couverture montre deux régimes de fonctionnement différents. Pour les configurations thermiques et épithermiques, celle-ci est supérieure à la régénération "coeur seul", mais l'effet inverse est observé pour les configurations à spectre rapide. Parmi les configurations présentées, trois types de "réflecteurs radiaux" sont utilisés : un réflecteur en graphite, un réflecteur en ZrC, et une structure en graphite contenant un sel fertile. Ces trois types ont des propriétés de réflexion et d'absorption de neutrons différentes. Le graphite constitue le meilleur

réflecteur tandis que le ZrC est le pire [2]. Les configurations à spectre thermique, échangeant une couverture fertile contre un réflecteur en graphite, ont plus de neutrons revenant en coeur ce qui améliore le taux de régénération. En revanche, pour les configurations rapides, la couverture est remplacée par un matériau moins diffuseur, d'où la perte de régénération.

De ces résultats ressort une autre conclusion. Dans ces conditions, seules les configurations rapides permettent d'obtenir la régénération sans utiliser de couverture fertile. Un réacteur avec un unique canal de sel aurait ainsi l'avantage d'être d'une très grande simplicité. Mis à part pour ces configurations, l'écart à l'iso-génération dépasse généralement 0.05, ce qui est difficilement rattrapable. En particulier, un changement de la puissance spécifique du coeur ne peut suffire. Le chapitre suivant permettra de connaître la marge de manoeuvre disponible par le retraitement, et de confirmer par exemple qu'un réacteur à spectre épithermique et sans couverture peut être surgénérateur, mais uniquement grâce à un retraitement très efficace (comme celui du MSBR).

6.3.2 Autres contraintes

Comme on peut le voir sur la figure 6.13, la présence d'une couverture fertile n'apporte absolument rien de nouveau en terme de sûreté. Les effets observables pour une même configuration ne dépendent que du changement du spectre neutronique, entraîné par l'absence ou la présence de couverture fertile. Ces changements n'engendrent cependant pas de différences significatives sur l'inventaire de matière fissile nécessaire. Quant à l'étude concernant la prolifération de matière fissile, celle-ci a été exposée précédemment (partie 4.3.9).

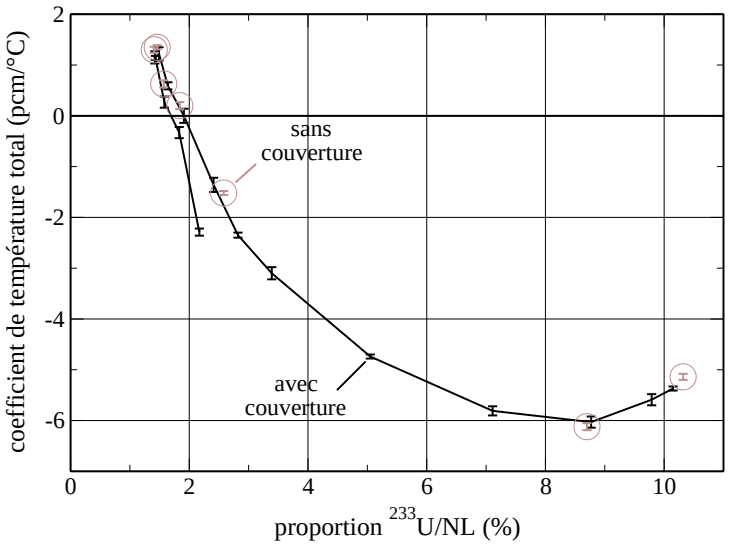


FIG. 6.13 – Impact de la présence d'une couverture en thorium sur le coefficient de température total en fonction de la proportion de matière fissile.

[2] Si le sel fertile, riche en noyaux lourds, est plus absorbant que le ZrC, il ne faut pas oublier que la structure de la couverture, en graphite, permet de réfléchir une partie des neutrons sortant du coeur.

6.3.3 Type de couverture

La couverture utilisée dans toutes nos études est constituée d'hexagones de 15 cm de côté (ou identiques à ceux du coeur lorsqu'ils sont de taille différente). Chaque hexagone en graphite est percé d'un canal de 10 cm de rayon contenant du sel fertile, de composition 78% LiF - 22% ThF_4. Il existe bien d'autres manières de concevoir une couverture fertile. D'un point de vue neutronique, les résultats seraient probablement assez similaires, avec bien sûr des variations de taux de régénération en fonction de l"'efficacité" de la couverture. En revanche, ces solutions se différencient sur le plan de la faisabilité technologique, chacune ayant ses caractéristiques propres.

L'utilisation d'un sel fertile liquide, similaire à celui du coeur, facilite l'étape de récupération de l'^{233}U (par fluoration). De plus, cet ^{233}U fissionne et forme des PF qui dégradent petit à petit l'efficacité de cette couverture. Un sel fertile liquide facilite l'injection d'une partie de la couverture en coeur, une fois trop chargée de PF. D'un point de vue technologique, cette couverture peut être composée d'un "circuit" de sel fertile. Un tel circuit n'a cependant pas besoin de pompe ou d'échangeur de chaleur, et on ne peut pas vraiment parler de réacteurs à double circuit. L'autre solution consiste à utiliser des "ampoules" de graphite scellées, contenant le sel fertile. Chaque ampoule est alors indépendante des autres et peut être retirée et échangée le moment venu.

Le recours à une couverture solide peut se faire par l'utilisation de barreaux de ThO_2. Plus encore que les ampoules, ces barreaux peuvent être aisément retirés et remplacés. Par contre, la très forte densité du ThO_2 fait craindre qu'une telle technologie ne nécessite des quantités de Th très importantes pour entourer efficacement le coeur. De plus, l'^{233}U formé se concentre en surface où il a alors plus de chance de provoquer des fissions, dégradant l'objectif premier de la couverture fertile.

Les investigations dans ce domaine n'ont cependant pas été très poussées, et il faudrait peut être réaliser d'autres études sur le sujet.

6.4 Découpage du coeur en zones

6.4.1 Présentation de l'étude

Dans nos diverses études, le rayon des canaux est gardé identique dans tout le coeur. Or il est possible de découper le coeur en plusieurs zones se différenciant par leur rayon de canal. Une exploration rapide avait été menée sur la configuration du MSBR [4, 9], et nous allons pouvoir élargir et généraliser cette analyse.

Evidemment, découper le réacteur en zones complique le problème. Avec deux zones de modération, deux paramètres sont ajoutés au problème : le rayon des canaux de la deuxième zone, et la proportion de ces zones. Nous nous en remettrons donc directement à la proportion d'^{233}U dans la matière fissile. Evidemment, une telle réduction de paramètre s'accompagne bien sûr d'un fort recouvrement des valeurs : deux configurations assez différentes peuvent aboutir à la même proportion de matière fissile. Les tables disponibles en Annexe B indiquent la correspondance entre les différentes configurations étudiées et la proportion de matière fissile. Signalons que le domaine d'étude des confi-

gurations à deux zones est moins large car il est difficile d'obtenir des configurations extrêmes (telle *r1* ou *cu*) par une moyenne de plusieurs zones de modération.

6.4.2 Sûreté

L'influence du spectre neutronique sur le coefficient de température est représentée sur la figure 6.14. On se rend compte que les configurations à deux zones de modération obéissent aux mêmes lois que les configurations à une zone, puisque leurs résultats sont superposés aux autres. Cela signifie que la répartition des zones n'a aucune importance pour l'étude des coefficients de température.

6.4.3 Capacités de régénération

Le taux de régénération dépendant d'autres paramètres que la simple dureté du spectre (fuites, absorptions dans le modérateur, etc...), la corrélation avec la proportion d'^{233}U est moins forte, comme on peut le constater sur la figure 6.15. Si l'évolution est globalement similaire, quelques différences apparaissent. On voit qu'il est possible d'améliorer légèrement la régénération (par exemple pour une proportion de 3.04 % d'^{233}U) ou de la détériorer (par exemple pour une proportion de 7.65 %).

Les fissions se situent préférentiellement dans les zones à petits canaux, en raison de l'augmentation des sections efficaces. Lorsqu'une telle zone est située en périphérie, ce qui est le cas des deux exemples susmentionnés, le flux de neutrons s'échappant du coeur est augmenté. La couverture en thorium récupère une partie de ces neutrons, ce qui améliore les capacités de régénération. En revanche, si le flux est trop important, la couverture fertile ne suffit plus et les neutrons sont massivement capturés dans les protections neutroniques situées derrière, détériorant alors le taux de régénération.

6.4.4 Tenue des matériaux

D'ordinaire, la nappe de flux à une forme de paraboloïde ou de cône, et le maximum de flux se situe dans la partie centrale. Pour des réacteurs à plusieurs zones de modération, la nappe de flux peut avoir une forme très différente. Dans une zone à petits canaux, les sections efficaces moyennes de fission sont plus importantes. Si une telle zone, dite "fissile", est située en périphérie du coeur, la nappe de flux est plus uniforme, comme on peut le constater sur la figure 6.16. Les configurations simulées ici comportent une zone centrale avec des canaux de 10 cm de rayon, et une zone externe avec des canaux de rayon variable : respectivement 10 cm, 8 cm, 6 cm et 4 cm. Ces configurations disposent d'un rapport de modération global différent, et donc d'un flux moyen différent. Ainsi, les valeurs de flux mentionnées sur la figure ne sont là qu'à titre indicatif, mais ne peuvent pas servir d'élément de comparaison.

Comme on peut le constater, il est possible de définir des configurations dont la nappe de flux, et donc l'irradiation, est assez uniforme. Si cela ne résout pas les problèmes posés par la courte durée de vie moyenne du graphite, un découpage du coeur apporte cependant une avancée positive.

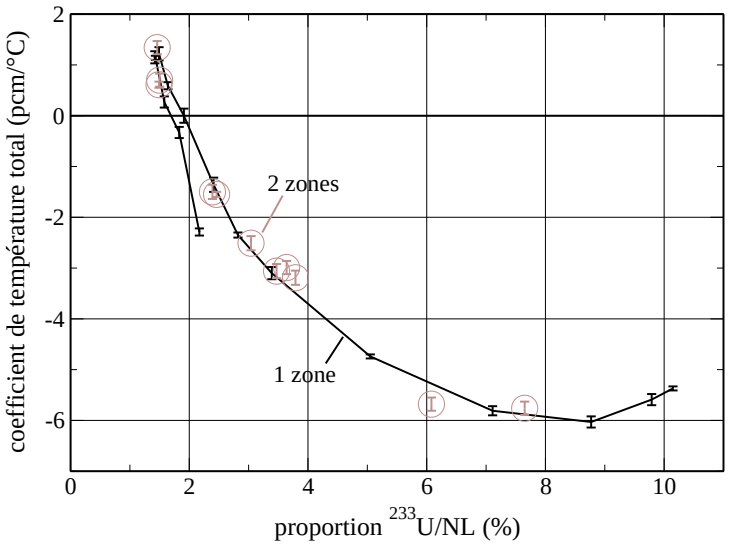


FIG. 6.14 – Impact du découpage en zones de modération différente sur le coefficient de température total en fonction de la proportion de matière fissile.

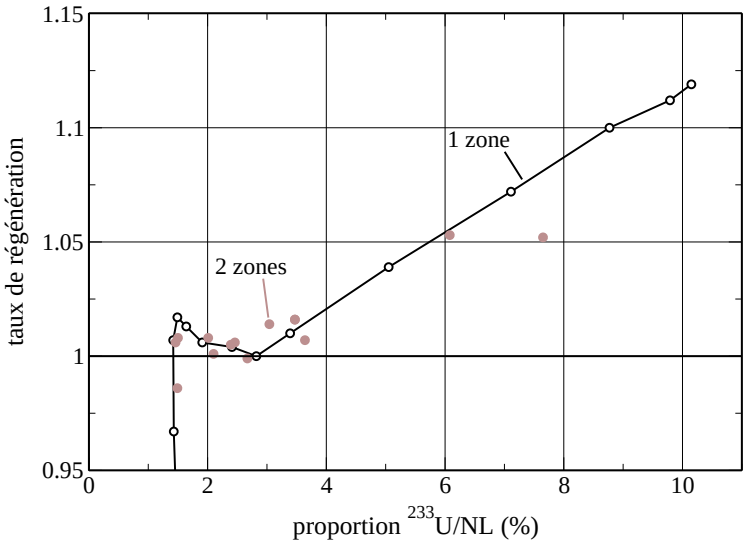


FIG. 6.15 – Impact du découpage en zones de modération différente sur le taux de régénération en fonction de la proportion de matière fissile.

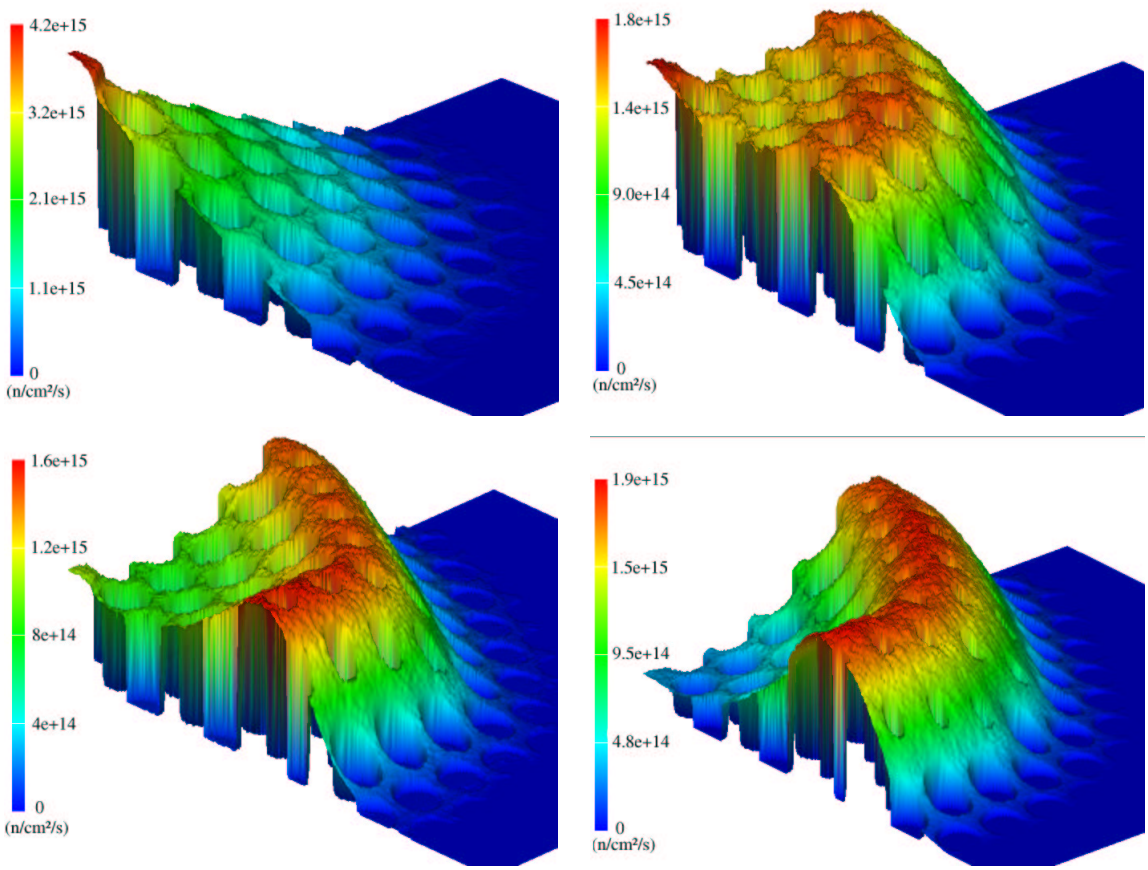


FIG. 6.16 – Flux de neutrons dans le graphite pour une coupe horizontale du réacteur pour des configurations de réacteur dont le rayon de canal de la zone interne est de 10 cm, et celui de la zone externe de 10 cm (en haut à gauche), 8 cm (en haut à droite), 6 cm (en bas à gauche) et 4 cm (en bas à droite). En raison des symétries, le centre du coeur est situé dans le coin gauche de la coupe.

6.5 Orthorhombicité du coeur

L'orthorhombicité imposée comme hypothèse de départ n'est pas obligatoire pour le bon fonctionnement d'un réacteur. Celle-ci avait pur but de minimiser les fuites neutroniques et de maximiser la régénération. Le réacteur disposant par défaut d'une couverture en thorium, les fuites radiales sont pour la plupart valorisées. Les captures dans la couverture participent à la régénération du combustible, mais elles sont comptabilisées comme des fuites en ce qui concerne la sûreté et le calcul des coefficients de température. Ainsi, des réacteurs asymétriques pourraient avoir un avantage de ce point de vue.

Nous avons étudié le comportement de quelques réacteurs étirés (plus hauts que larges) et non aplatis (plus larges que hauts) pour maximiser les fuites allant dans la couverture radiale et non dans les réflecteurs axiaux. L'objectif est d'essayer de rendre sûres les configurations thermalisées, par une autre méthode que la réduction du paramètre de maille du réseau modérateur. Le tableau 6.6

présente le résultat d'une telle étude pour les configurations *r6* et *r4*. L'asymétrie est mentionnée par la comparaison de la hauteur H et du diamètre D du coeur.

	r6 H = D	*r6* H = 2.5 D	*r4* H = D	*r4* H = 2.5 D
Coeff. de température (pcm/°C)	+0.59	+0.27	+1.26	+0.93
τ_{reg} coeur seul	0.940	0.897	0.934	0.894
τ_{reg} coeur + couverture	1.013	1.023	1.007	1.007

TAB. 6.6 – Impact de l'asymétrie du coeur sur le coefficient de température et le taux de régénération (erreur statistique de $\frac{dk}{dT}$ inférieure à 0.05 pcm/°C).

On peut constater que l'amélioration du coefficient de température est très faible, en passant à un réacteur fortement asymétrique. En analysant les différentes contributions, on se rend compte que cette amélioration est due pour trois quarts aux fuites et absorptions dans la couverture, et pour un quart à un durcissement du spectre. La régénération est quant à elle découplée entre le coeur et le système coeur + couverture. En toute logique, la régénération du coeur seul diminue lorsqu'on quitte l'état orthorhombique. Cette diminution du taux de régénération s'élève ici à plus de 0.04. En revanche, la couverture rattrape cette perte. On constate même une légère amélioration pour la configuration *r6*, due à la diminution des fuites dans les réflecteurs axiaux (qui engendrent des absorptions dans le graphite ainsi que dans les protections neutroniques situées derrière).

Le changement des caractéristiques géométriques du coeur a une influence notable sur la vitesse d'écoulement du sel et les pertes de charge engendrées. La vitesse d'écoulement varie d'un facteur $n^{\frac{2}{3}}$ (avec n le paramètre d'asymétrie tel que : H = n.D) et les pertes de charge évoluent comme n^2. Une telle solution n'est donc ni très utile (pas de gain de régénération et gain de sûreté faible), ni très possible (pertes de charge trop élevées) pour les configurations thermalisées.

6.6 Synthèse des études de la puissance spécifique, de la taille des hexagones et d'autres paramètres géométriques

Contrairement au précédent, ce chapitre a vu l'étude de nombreux paramètres, ce qui engendre une quantité d'informations pour le moins variées. Devant une telle diversité, tentons de clarifier un peu les choses :

Puissance spécifique : Augmenter la puissance spécifique dégrade les capacités de régénération du système et rend plus difficile la circulation du sel et l'extraction de la chaleur dans les échangeurs. En contrepartie, l'inventaire nécessaire par GWe est réduit. Suivant la méthode employée pour augmenter la puissance spécifique, la sûreté peut être un peu améliorée (diminution de la taille) ou être inchangée (augmentation de la puissance totale).

Taille des hexagones : La diminution de la taille des hexagones entraîne une forte amélioration des coefficients de température. En particulier, c'est la méthode la plus intéressante permettant d'obtenir des coefficients de température négatifs pour les configurations thermalisées. Qui plus est, aucune contrepartie réellement négative ne vient atténuer l'intérêt de cette solution. On notera simplement la complexité technologique accrue liée à l'utilisation de petits hexagones.

Couverture en thorium : La mise en place d'une couverture fertile permet de gagner entre 0.060 et 0.120 sur le taux de régénération suivant la taille du réacteur. Sans cette couverture, seules les configurations à spectre rapide sont régénératrices avec un retraitement du combustible en 6 mois. L'impact de la présence de couverture sur les autres contraintes peut être considéré comme faible.

Découpage du coeur en zones : Le coefficient de température d'un réacteur dépend de son spectre neutronique, mais pas d'une éventuelle différence dans le rayon des canaux suivant la zone du coeur. La variation des capacités de régénération est généralement assez faible mais peut parfois être fortement négative. Sans exclure cette possibilité, il n'est pas vraiment envisageable d'améliorer significativement le taux de régénération par cette méthode. Enfin, la nappe de flux peut être modelée par un découpage idoine du coeur, et en particulier être aplatie de manière à uniformiser la dégradation du graphite.

Orthorhombicité du coeur : Un réacteur plus haut que large favorise les fuites de neutrons par les parois latérales du coeur. Cela améliore le coefficient de température ainsi que les capacités de régénération du système. Cependant, le gain est minime pour l'un comme pour l'autre, rendant peu intéressante cette option. On notera aussi la difficulté supplémentaire que représentent la circulation du sel et l'extraction de la puissance thermique du coeur. Compte tenu de ces résultats, une étude de configurations de réacteurs plus larges que hauts, permettant de soulager cette dernière contrainte sans porter gravement préjudice aux deux autres, est à envisager.

Ces résultats permettent d'ajuster une configuration de manière à la rendre plus acceptable. En effet, une fois défini le spectre neutronique, on peut par exemple jouer sur la puissance spécifique pour modifier "à sa guise" l'inventaire et les capacités de régénération. Il convient donc de garder ces résultats en tête lors des autres études, afin de se souvenir de la marge de manoeuvre dont on dispose.

Chapitre 7

Etude du retraitement

Outre ses problèmes de sûreté, le MSBR souffrait également de la complexité de son retraitement chimique. Les précédentes études ont permis de comprendre et de trouver des solutions aux problèmes des coefficients de température. Nous allons maintenant nous attacher à analyser l'impact du retraitement sur les différentes contraintes et en particulier sur le taux de régénération. Nous nous baserons pour cette étude sur la configuration de référence, mais également sur d'autres configurations dont le spectre neutronique est très différent (*r4* et *cu*). Rappelons que, pour le retraitement de référence (voir schéma du retraitement lent page 61), la totalité du volume du coeur est traitée en 6 mois. Lors de ce retraitement, la totalité des PF ainsi que des TRU sont extraits du sel et le ^{233}Pa est stocké hors flux. Sauf mention contraire explicite, le bullage reste présent et constant dans toutes ces études.

7.1 Absorptions parasites

Analysons tout d'abord l'impact des différents PF sur le comportement neutronique du coeur. On se place pour cette étude dans la configuration de référence. Les PF n'ont évidemment pas tous la même contribution au taux de capture parasite. La partie gauche de la figure 7.1 indique quels sont, parmi les isotopes restant après le bullage, ceux qui détériorent le plus le bilan neutronique. On voit une nette prédominance du ^{149}Sm sur tous les autres PF, suivi par le ^{147}Pm, le ^{147}Nd, le ^{151}Sm, le ^{145}Nd et le ^{145}Sm... Le xénon et tous les autres éléments partant au bullage sont présents en trop petites quantités pour être gênants. Lorsque l'on s'intéresse aux aspects physico-chimiques, il est plus pertinent de rassembler ces taux de capture par élément et non par isotope, ce qui est fait sur la partie droite de la figure. Comme on pouvait le constater précédemment, certains éléments rassemblent plusieurs isotopes fortement capturants, en particulier le samarium qui est toujours le PF le plus perturbateur. Les autres éléments gênants, tel le néodyme ou le praséodyme, appartiennent à la même famille chimique des lanthanides. Cette famille a été représentée avec la même couleur, ce qui permet de se rendre compte clairement de leur écrasante contribution à l'empoisonnement des PF. Parmi les autres PF capturants, on remarquera la participation notable du zirconium, qui constitue plus de 50 % des captures hors lanthanides.

Signalons que ces répartitions diffèrent suivant le spectre neutronique, mais que l'ordre des premiers éléments perturbateurs reste inchangé et le rôle des lanthanides toujours prépondérant.

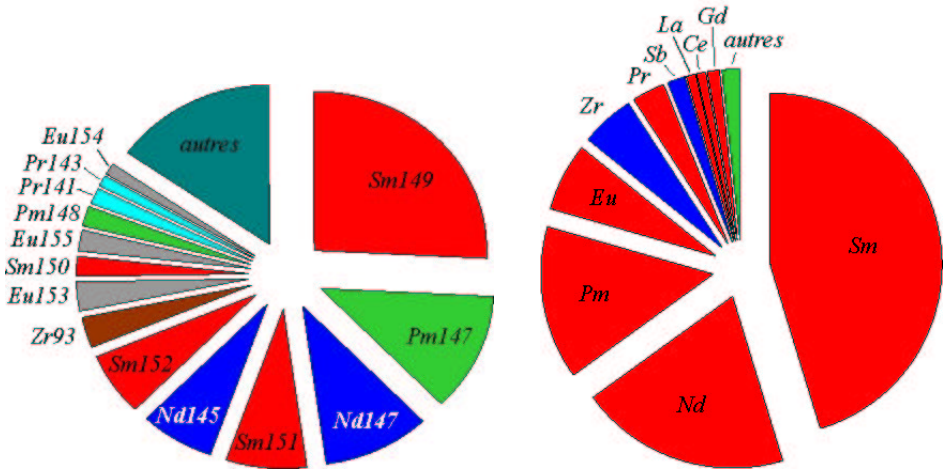


FIG. 7.1 – Répartition du taux de capture dans les PF par isotope (à gauche) et par élément chimique (à droite) pour la configuration de référence.

7.2 Temps de retraitement

Le premier paramètre du retraitement qu'il est intéressant d'analyser est le temps mis pour traiter l'ensemble du volume du coeur. Signalons dès à présent qu'une éventuelle accumulation de PF, dû à un retraitement très lent ou inexistant, peut engendrer des perturbations chimiques au sein du sel : au-delà d'un certain seuil (quelques pourcents molaires), ceux-ci -ou une partie de ceux-ci- peuvent précipiter. En l'absence de retraitement (autre que le bullage), les lanthanides s'accumulent à raison de 1.7 % molaire par dizaine d'années [1] [60]. La précipitation qui suivrait une sursaturation du sel peut être considérée comme une bonne ou une mauvaise chose suivant qu'elle est un danger ou un nouveau moyen d'extraction. Dans tous les cas, le fonctionnement dans ces conditions d'un réacteur sur plusieurs dizaines d'années n'est que théorique et les résultats donnés à ces temps longs doivent être considérés comme hypothétiques.

7.2.1 Impact sur les capacités de régénération

7.2.1.1 Configuration de référence

La variation du temps de retraitement se répercute sur la quantité de PF en coeur, comme on peut le voir sur le tableau 7.1. Selon toute attente, cet inventaire est proportionnel au temps de retraitement. Cela se répercute alors sur le taux de capture des PF, qui est finalement l'observable la

[1] Dans ce calcul est réalisé le rapport entre la quantité de $(Ln)F_2$ et la quantité cumulée de LiF, $(NL)F_4$ et $(PF)F_2$.

Temps de retraitement	Inventaire de PF	Temps de retraitement	Inventaire de PF
3 mois	105 kg	4 ans	1 645 kg
6 mois	210 kg	8 ans	3 280 kg
1 an	420 kg	16 ans	6 530 kg
2 ans	830 kg	32 ans	12 300 kg

TAB. 7.1 – Impact du temps de retraitement sur l'inventaire de PF en coeur.

plus intéressante. La figure 7.2 illustre l'évolution du taux de capture des PF pour la configuration de référence et d'autres temps de retraitement. On constate une plus grande absorption parasite pour les retraitements les plus lents. L'effet n'est cependant pas proportionnel, puisqu'un doublement du temps de retraitement ne se traduit que par une augmentation des captures de 50 à 60 %. En effet, une forte accumulation de PF dans le sel modifie le spectre neutronique, comme indiqué sur la figure 7.3 (partie de gauche). Cela se traduit par une baisse des sections efficaces moyennes de capture des PF (d'un facteur voisin de 2 entre le retraitement en 3 mois et celui en 2 ans), comme on peut le constater sur la partie droite de la figure. Ce taux de capture est relativement faible pour la configuration de référence par rapport aux autres absorptions parasites (voir le bilan neutronique de la configuration de référence, page 73), mais il n'est pas négligeable pour autant et une forte augmentation nuit aux capacités de régénération du système.

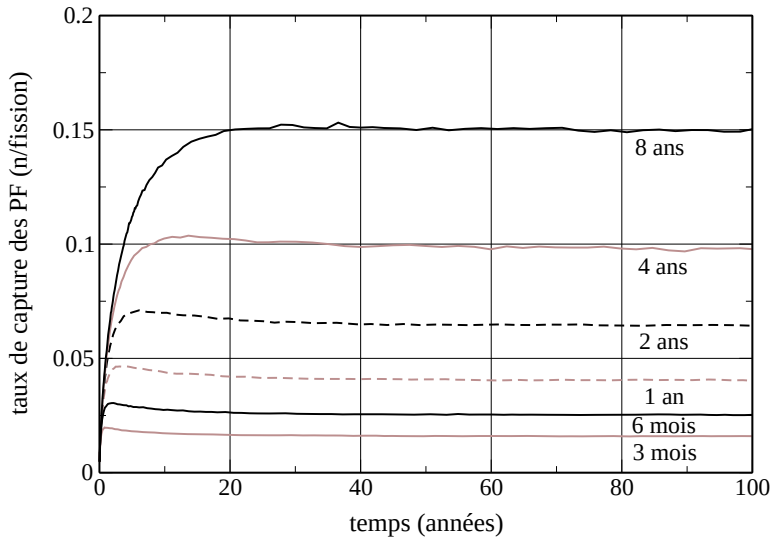


FIG. 7.2 – Impact du temps de retraitement (en configuration *r8.5*) sur le taux de capture des PF.

La figure 7.4 présente l'impact du temps de retraitement sur le taux de régénération, pour la configuration de référence et trois autres configurations (*r2*, *r4* et *cu*). Les premiers points, à 10 jours, représentent le taux de régénération avec le retraitement MSBR. Signalons que ce retraitement est particulier, puisque le Pa est effectivement extrait en 10 jours, mais que les lanthanides ne le sont

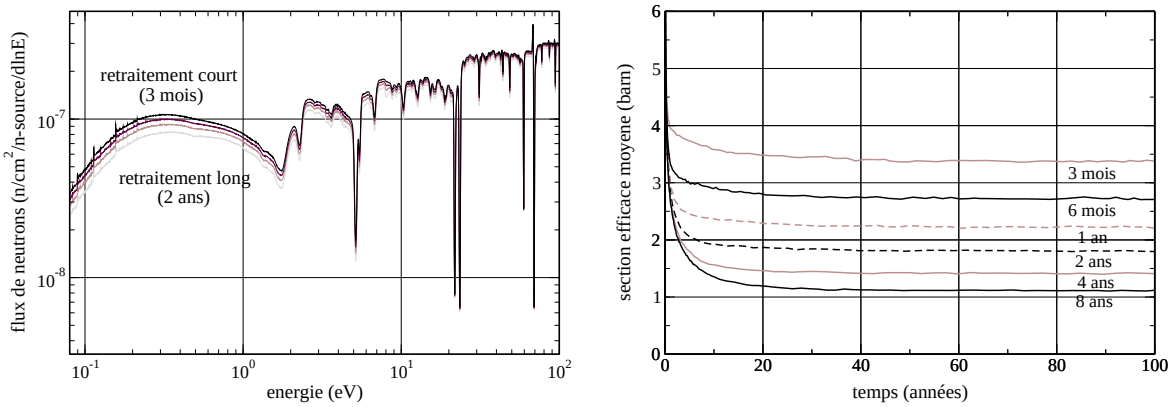


FIG. 7.3 – Impact du temps de retraitement sur le spectre neutronique (à gauche) et la section efficace moyenne de capture des PF (à droite) pour la configuration de référence.

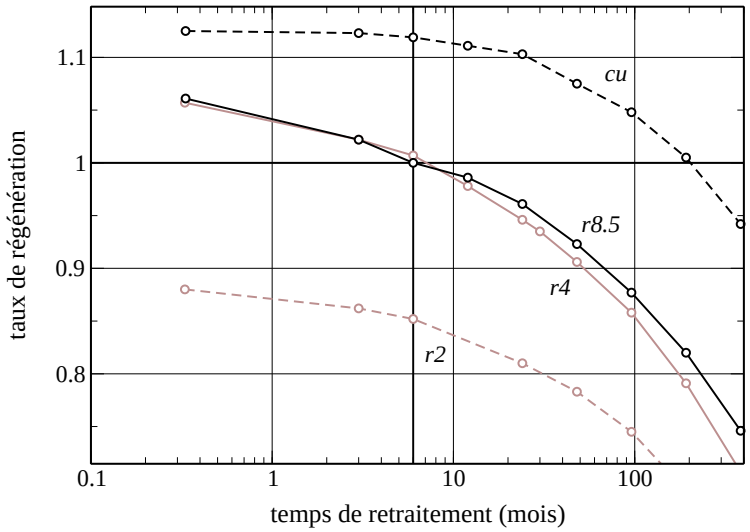


FIG. 7.4 – Impact du temps de retraitement sur le taux de régénération pour plusieurs configurations de réacteur.

qu'en 50. Considérant la préséance du Pa sur les PF pour ce retraitement, il a été pris en compte comme un retraitement en 10 jours.

Intéressons-nous plus particulièrement à l'évolution du taux de régénération pour des temps de retraitement inférieurs à quelques années. Pour la configuration *r8.5* la perte de régénération s'élève à environ 0.020 pour chaque doublement du temps de retraitement. A moins de l'extraire en 10 jours, le ^{233}Pa ne joue qu'un rôle secondaire dans cette dégradation : l'inventaire hors-coeur de protactinium est diminué par un ralentissement du retraitement, mais cela n'a que peu d'impact sur l'inventaire en coeur et son taux de capture parasite. L'inventaire en coeur de ^{233}Pa passe en effet de 67 kg à 84 kg entre les retraitements en 3 mois et en 2 ans. Son taux de capture n'évolue que peu, de 0.021 à 0.023 n/fission, en raison du durcissement du spectre.

7.2.1.2 Autres configurations

Qu'en est-il pour les configurations au spectre plus rapide ou plus thermalisé ? La quantité de PF accumulée en coeur est totalement indépendante du spectre neutronique. En revanche, leur section efficace moyenne de capture varie fortement, ce qui se répercute directement sur leur taux de capture, et donc leur empoisonnement. Il apparaît sur la figure 7.4 que la configuration avec un unique canal de sel est bien meilleure de ce point de vue. Cependant cela était connu depuis l'étude en fonction du rayon des canaux (chapitre 5). On s'intéressera donc principalement à la pente des courbes représentées plutôt qu'à leur position respective.

La perte de régénération occasionnée par un doublement du temps de retraitement est plus faible pour la configuration *cu*. Celle-ci atteint en effet 0.007 par doublement, soit une valeur trois fois inférieure à celle de la configuration *r8.5*. Dans un spectre rapide, l'accumulation des PF détériore moins fortement le bilan neutronique en raison de leur section efficace moyenne plus faible, ce qui autorise des retraitements très lents. Signalons que dans cette configuration, la variation du taux de capture du ^{233}Pa est extrêmement faible, rendant presque inutile son extraction.

Paradoxalement, pour les configurations plus thermalisées que *r8.5*, la perte par doublement semble diminuer au lieu d'augmenter. On s'attendrait en effet à voir les PF plus fortement empoisonner le coeur dans des spectres neutroniques plus thermiques. La configuration *r2* a un taux de régénération médiocre en raison des très nombreuses captures parasites dans le graphite modérateur. Par rapport à celles-ci, les captures dans les PF ne jouent qu'un rôle mineur, pour un retraitement très rapide comme pour un retraitement un peu plus lent (jusqu'à 2 ans).

7.2.2 Rejets et pertes au retraitement

7.2.2.1 Configuration de référence

Comme il a été dit lors de l'évaluation de la configuration de référence, le ralentissement du retraitement par rapport au concept MSBR réduit significativement rejets comme pertes [2]. En ce qui concerne le thorium, les pertes sont inversement proportionnelles au temps de retraitement, favorisant grandement les plus lents. Le cas des TRansUraniens est légèrement plus complexe puisque dépendant aussi de la composition du coeur, composition d'autant plus riche en TRU que le retraitement est lent.

Pour connaître ces rejets et ces pertes, il faut connaître l'inventaire de TRU en coeur, le taux d'extraction ou de rejet et le temps de retraitement. Rappelons que, pour ce qui nous concerne, l'extraction des TRU est totale (efficacité égale à 1) et que le taux de pertes se monte à 10^{-5} de l'inventaire en coeur par retraitement.

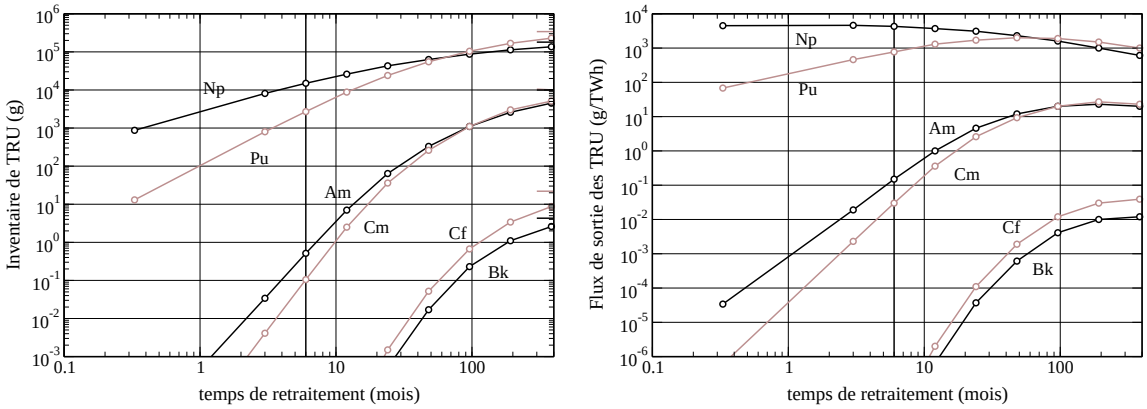


FIG. 7.5 – Impact du temps de retraitement sur l'inventaire de TRU (à gauche) et les rejets associés (à droite).

La figure 7.5 représente, pour la configuration de référence, l'impact du temps de retraitement sur la production et les rejets de TRU. Signalons que des tableaux d'inventaires de TRU, plus complets et précis, sont disponibles en Annexe D pour un temps de retraitement infini (i.e pas de retraitement). Lorsque le retraitement se ralentit, les TRU disposent de plus de temps pour capturer des neutrons et former des éléments plus lourds. Les inventaires de tous ces éléments augmentent donc avec le temps de retraitement. On note une augmentation beaucoup plus forte des éléments de masse élevée, qui atteignent alors des proportions significatives. La limite pour une configuration sans retraitement des TRU (temps de retraitement infini) est donnée pour chaque élément par un tiret sur l'échelle de droite [3]. Attention, les TRU n'y sont pas obligatoirement à l'équilibre puisque ces valeurs ne sont données qu'après 100 années d'évolution du coeur.

[2] Rappelons que les rejets sont constitués des TRU extraits volontairement du combustible, tandis que les pertes concernent la fraction extraite involontairement avec les PF. Les rejets sont nuls si les TRU sont réinjectés en coeur lors du retraitement.

[3] Ces indicateurs de limite ne sont pas présents sur le graphique de droite. En effet, sans retraitement le flux de sortie de TRU devient nul, tout comme les pertes au retraitement.

Les flux de sorties des TRU évoluent également à la hausse, à l'exception de celui du neptunium qui diminue légèrement. Pour le Pu, et surtout les TRU plus lourds, la variation, parfois considérable, de l'inventaire l'emporte sur le ralentissement du retraitement. Les solutions à retraitement lent sont, de ce point de vue, un intermédiaire médiocre entre une configuration auto-incinératrice (réinjection des TRU) et une configuration visant à minimiser la production de TRU lourds (extraction rapide des TRU).

7.2.2.2 Autres configurations

Les deux graphiques de la figure 7.6 indiquent la variation des inventaires de TRU pour les configurations *r4* et *cu* avec le temps de retraitement. Comme précédemment, l'Annexe D rassemble des résultats quantitatifs concernant les inventaires de TRU pour ces deux configurations (pour un cas sans retraitement). Les flux de sortie et les pertes au retraitement peuvent être directement obtenus à partir de ces inventaires, de la même manière que pour la configuration *r8.5*. On comparera donc ces graphiques à la partie gauche de la figure 7.5.

Signalons qu'en configuration canal unique, les équilibres sont beaucoup plus longs à atteindre, et 100 années d'évolution n'y suffisent pas. Les valeurs indiquées sont donc inférieures à la valeur d'équilibre, de plus d'un ordre de grandeur pour les TRU les plus lourds (en particulier le Cf). Cela signifie également qu'un calcul effectué "à l'équilibre" surévalue grandement les quantités que l'on peut raisonnablement avoir. Compte tenu du temps de fonctionnement d'une filière, 100 années d'évolution semblent très suffisantes.

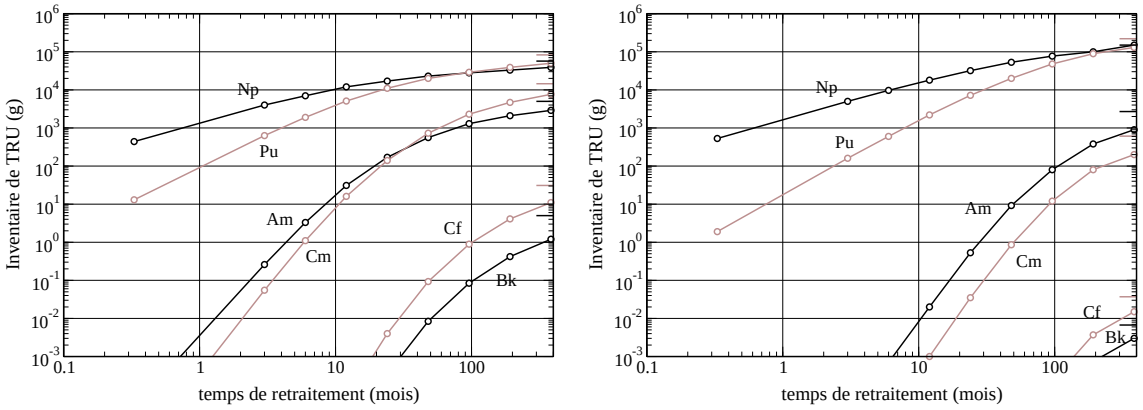


FIG. 7.6 – Impact du temps de retraitement sur l'inventaire de TRU dans la configuration *r4* (à gauche) et *cu* (à droite).

L'évolution des inventaires en fonction du temps de retraitement varie d'une configuration à l'autre : plus le spectre est rapide, et plus les TRU s'accumulent lorsque le retraitement se ralentit. A titre d'exemple, entre un retraitement en 6 mois et en 32 ans, l'inventaire d'Am en coeur bondit respectivement de 3, 4, et 6.5 ordres de grandeurs pour les configurations *r4*, *r8.5* et *cu*. Ces différences viennent des temps de mise à l'équilibre des TRU, fortement variables en fonction du spectre

neutronique. On voit pour la configuration *r4* que l'inventaire en Am arrive proche de sa limite (dernier point proche du tiret [4]) avec le retraitement en 32 ans, alors qu'il continue de croître fortement en *cu* (dernier point loin du tiret). Ces différences ne suffisent cependant pas à combler les écarts entre ces configurations, et celles à spectre rapide restent intéressantes selon ce critère.

Intéressons-nous maintenant, non plus à l'évolution en fonction du temps de retraitement, mais à la quantité de TRU formés pour un temps de retraitement infini. Contrairement à l'étude en fonction du rayon des canaux (partie 5.8), nous sommes maintenant en mode auto-incinérateur. Les inventaires des TRU ne sont alors plus limités par l'extraction de ces éléments mais par les réactions et les décroissances. Plusieurs phénomènes amènent à des inventaires plus faibles en configuration rapide. Le rôle des décroissances radioactives est renforcé lorsque les sections efficaces de réaction sont faibles, c'est-à-dire quand le spectre est rapide. Cet effet est particulièrement significatif pour le ^{241}Pu et le ^{244}Cm, mais ne suffit pas à expliquer les écarts observés. Le spectre neutronique a aussi une influence sur le rapport α des différents isotopes. Ainsi, les TRU fissionnent plus en spectre rapide qu'en spectre thermique. C'est cependant encore insuffisant pour expliquer la faible production de TRU lourds de la configuration *cu* (pour plus d'informations, se reporter à l'Annexe D). Comme il avait été dit précédemment, le temps nécessaire pour atteindre l'équilibre est très long en spectre rapide en raison de la faiblesse des sections efficaces de capture. Ainsi, après 100 années de fonctionnement, seule une partie du Cm ou du Cf a été formé. Ces trois facteurs (renforcement des décroissances, meilleure incinération et inventaire inférieur à la valeur d'équilibre) permettent d'expliquer la très faible quantité de TRU formés en spectre rapide.

7.2.3 Impact sur les autres contraintes

La variation du coefficient de température en fonction du temps de retraitement est minime mais significative. Celui-ci passe ainsi de -2.22 pcm/°C (retraitement en 10 jours) à -2.17 pcm/°C (sans retraitement), en passant par un minimum de -2.67 pcm/°C pour un retraitement de 8 ans. Le durcissement du spectre pendant l'apparition des PF est probablement la cause de ce léger phénomène. Bien que l'effet soit un peu plus sensible dans le cas d'un spectre rapide (écart de 0.9 pcm/°C entre un retraitement en 3 mois et aucun retraitement), on retiendra surtout que ce paramètre n'a pas un impact décisif sur cette contrainte.

Avec un retraitement plus long, la prolifération est défavorisée en raison de la présence des TRU, et le flux de matière à retraiter est réduit. Les autres contraintes, telles que la tenue du graphite ou l'inventaire initial, ne sont pas ou peu affectées par le retraitement.

7.2.4 Suppression du retraitement

Si l'on poursuit la logique du ralentissement du retraitement à l'extrême, on en vient à supprimer complètement celui-ci. Rappelons qu'alors, seul le bullage d'hélium dans le coeur et la couverture,

[4] Rappelons que ce tiret symbole la limite de la courbe pour un temps de retraitement infini. Il ne faut pas confondre cette limite (temps de retraitement infini) avec l'équilibre de la composition (temps d'évolution infini).

ainsi que la gestion de l'uranium de celle-ci (par fluoration), sont retenus. Ce cas constitue une solution à part qui doit être décrite spécifiquement. Comme aucun état d'équilibre n'est atteint, le taux de régénération ne cesse de décroître. On lui préfèrera donc le concept de cumul de matière fissile, représenté sur la figure 7.7 pour la configuration *r8.5* et *cu*.

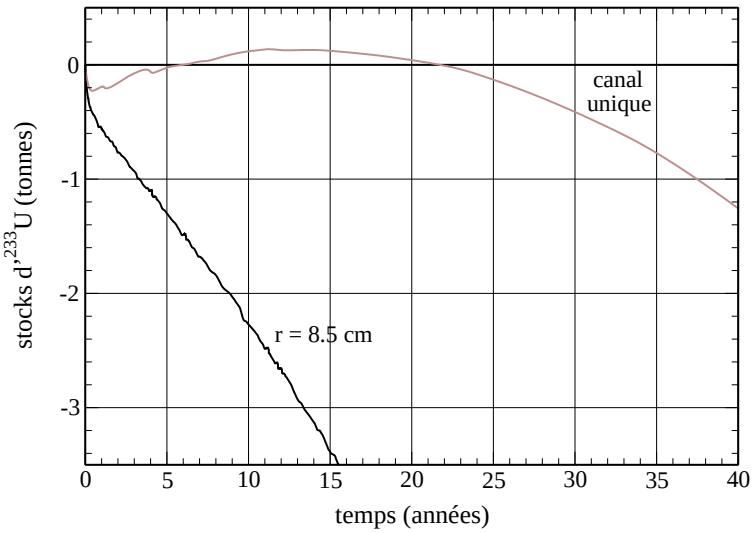


FIG. 7.7 – Stocks cumulés d'^{233}U pour la configuration *r8.5* et *cu* sans retraitement des PF, du Pa ou des TRU.

La configuration *r8.5* est fortement sous-génératrice, nécessitant environ 1 tonne d'^{233}U tous les 5 ans. Cette solution n'est évidemment pas acceptable. En revanche, la configuration *cu*, ordinairement fortement surgénératrice, supporte plus longtemps l'accumulation de PF en coeur. Ainsi cette configuration tient elle 25 ans sans nécessiter une réelle alimentation en matière fissile (la chute initiale du cumul est prise en compte dans l'inventaire). Il est tout à fait envisageable que le sel soit remplacé après cette période par un sel neuf, une simple fluoration permettant de transférer facilement l'inventaire fissile de l'un à l'autre. Rappelons que, sans retraitement, l'accumulation des PF dépasse en quelques dizaines d'années la limite de solubilité [60] et qu'un fonctionnement plus long dans ces conditions n'est que théorique. Précisons que si la précipitation des PF est maîtrisée et sert de retraitement lent, le cumul d'^{233}U reste positif.

Un tel réacteur simplifie considérablement le retraitement tout en gardant des capacités de régénération très satisfaisantes pendant les premières dizaines d'années. Son coefficient de température total est toujours fortement négatif, atteignant -4.6 $\pm$ 0.1 pcm/°C après 25 années d'évolution, de même que son coefficient de densité, de -2.3 $\pm$ 0.1 pcm/°C. Le retraitement ne changeant que peu le flux neutronique, la contrainte de tenue du graphite n'est pas affectée, et la durée de vie de celui-ci reste très bonne en raison de l'absence de bloc modérateur. Il va de soi qu'un tel système est beaucoup moins proliférant, puisque le combustible n'est pas sorti du coeur (pour la contribution de la couverture à la prolifération, se reporter à la partie 4.3.9.3). Son inventaire reste cependant caractéristique d'un spectre rapide, avec 5.5 tonnes d'^{233}U nécessaires.

7.2.5 Synthèse

Nous pouvons constater par cette étude la marge de manoeuvre qu'autorise le retraitement du combustible en terme de régénération. On constate par exemple que le retraitement ne peut en aucun cas rendre régénératrices les configurations très thermalisées, mais qu'il est presque superflu pour la configuration avec un unique canal de sel.

Au vu du fort taux de régénération et du plus faible impact des PF pour les configurations à spectre rapide, il est intéressant d'utiliser pour de tels réacteurs des temps de retraitement extrêmement longs, voire pas de retraitement du tout. La précipitation des lanthanides devient dans ce cas un point essentiel à comprendre et maîtriser.

La formation et l'extraction de TRU lourds sont favorisées par les retraitements lents. Le Np et le Pu ont alors le temps de capturer des neutrons pour former ces éléments très lourds. Attention toutefois, cette conclusion n'est valable que parce que les TRU sont enlevés à chaque retraitement. Dans le cas contraire, l'inventaire de TRU atteint approximativement la même valeur d'équilibre (pour un temps de retraitement infini), mais les pertes au retraitement diminuent lorsque le retraitement se ralentit.

7.3 Eléments extraits

Au lieu de jouer sur le temps total de retraitement, on s'intéresse ici à l'importance d'un élément (ou un type d'éléments) sur les contraintes. Ainsi, l'impact d'un retraitement n'extrayant pas tous les éléments, contrairement à celui de la configuration de référence, est connu.

7.3.1 TRansUraniens

Etudions tout d'abord l'impact des TRU sur les capacités de régénération et les coefficients de température. D'après le schéma du retraitement (figure 4.2 page 61), cette option signifie que le Np partant à la fluoration et les TRU extraits avec le protactinium, sont redirigés vers le coeur. Ces derniers doivent cependant attendre la complète transformation du ^{233}Pa en ^{233}U. Les variations du taux de régénération et des coefficients de température en fonction de la destination des TRU sont indiquées sur le tableau 7.2.

Le passage en mode auto-incinérateur coûte pour une configuration thermique ou épithermique un peu plus de 0.010 sur le taux de régénération. Leur taux de capture s'élève pour la configuration *r8.5* à 0.095 n/fission au lieu de 0.006 avec le retraitement de référence. Comme certains d'entre eux fissionnent (en émettant plus de neutrons que l'^{233}U), leur contribution totale, bien que négative, ne reflète pas leur fort taux de capture. Cette perturbation est justement réduite en spectre rapide (perte de 0.004 du taux de régénération), où tous les éléments deviennent plus ou moins fissiles.

L'amélioration du coefficient de température apportée par la présence de TRU est significative pour la configuration *r8.5*, mais faible pour les autres. En effet, celle-ci accumule une grande quantité

de TRU (voir le tableau 7.3) et dispose d'un spectre donnant de l'importance aux résonances de capture du ^{237}Np ou du ^{238}Pu (contrairement au spectre rapide ou thermique).

Configuration		*r4*	*r8.5*	*cu*
TRU extraits	τ_{reg}	1.007	1.000	1.119
	$\frac{dk}{dT}$ (pcm/°C)	+1.15	-2.36	-5.37
TRU réinjectés	τ_{reg}	0.996	0.988	1.115
	$\frac{dk}{dT}$ (pcm/°C)	+1.44	-3.12	-5.35

TAB. 7.2 – Impact de la destination des TRU sur le taux de régénération et le coefficient de température total.

La quantité de TRU produite avec un tel retraitement n'est pas tout à fait identique à celle d'une configuration sans retraitement (tirets indiqués sur la figure 7.5) . La partie gauche des tableaux 7.3 (également disponible par isotope en Annexe D) dresse le bilan des inventaires de TRU pour les configurations *r4*, *r8.5* et *cu*. Les phénomènes mis en jeu sont identiques à ceux décrits précédemment.

Dans ce mode auto-incinérateur, il n'y a pas de flux de sortie de TRU. En revanche, l'extraction des PF en 6 mois peut en entraîner à l'extérieur. Les pertes au retraitement, indiquées sur la partie droite du tableau 7.3, peuvent être comparées au tableau 4.7 page 87. Les "fortes" pertes de TRU très lourds sont caractéristiques du mode auto-incinérateur.

	Inventaires		
Configuration	*r4*	*r8.5*	*cu*
Np	29 kg	110 kg	150 kg
Pu	38 kg	260 kg	270 kg
Am	3.1 kg	7.1 kg	4.8 kg
Cm	14 kg	18 kg	2.4 kg
Bk	5.0 g	40 g	170 mg
Cf	60 g	110 g	730 mg

	Pertes au retraitement (/TWh)		
Configuration	*r4*	*r8.5*	*cu*
Np	85 mg	315 mg	430 mg
Pu	110 mg	740 mg	770 mg
Am	10 mg	20 mg	15 mg
Cm	40 mg	50 mg	7 mg
Bk	15 μg	100 μg	500 ng
Cf	170μg	300 μg	2 μg

TAB. 7.3 – Inventaire en coeur (à gauche) et pertes au retraitement (à droite) des TRU pour diverses configuration en mode auto-incinérateur, avec un retraitement des PF et du Pa en 6 mois.

7.3.2 Protactinium

7.3.2.1 Extraction ou réinjection du protactinium

Lors du retraitement, tel que prévu par le schéma 4.2 page 61, il n'est pas possible de réinjecter le protactinium en coeur sans y réintroduire les TRU. Il est néanmoins possible, par la simulation, de connaître l'influence sur la régénération du ^{233}Pa seul.

	r4	*r8.5*	*cu*
Pa extrait	1.007	1.000	1.119
Pa réinjecté	0.996	0.990	1.110

TAB. 7.4 – Impact de la destination du Pa sur le taux de régénération.

L'impact de la réinjection du Pa sur le taux de régénération, indiqué dans le tableau 7.4, est modéré pour les trois configurations. Comme mentionné précédemment, dans la configuration de référence, seul 17 % du Pa est stocké hors flux. Lorsque cette proportion est remise en coeur, une faible partie seulement capturera des neutrons avant de décroître, d'où le léger impact sur les capacités de régénération. Dans le cas du MSBR l'extraction rapide de celui-ci (10 jours) en plaçait 80 % hors flux. L'impact était alors beaucoup plus marqué et cette extraction rapide était la principale cause des bonnes capacités de régénération du MSBR. Dans le cadre du retraitement lent, cette option n'est absolument pas indispensable et peut être supprimée afin d'améliorer la faisabilité de celui-ci.

7.3.2.2 Effet du ^{231}Pa

Le ^{233}Pa n'est pas le seul isotope composant le Pa placé hors flux. Parmi les 78 kg de protactinium en coeur se trouvent 680 g de ^{231}Pa, formés principalement par réaction (n,2n) sur le ^{232}Th, et extraits lors du retraitement. Sa période de 32 760 ans en fait un élément gênant qui s'accumule à l'extérieur du coeur : 135 kg après 100 années d'évolution. Une option envisageable consiste à le réintroduire dans le réacteur, après que le ^{233}Pa ait décru. Dans ce cas, il atteint en coeur un inventaire d'équilibre de 3.1 kg et son taux de capture s'élève alors à 0.002 n/fission. Cela n'a cependant pas d'impact significatif sur les capacités de régénération du système.

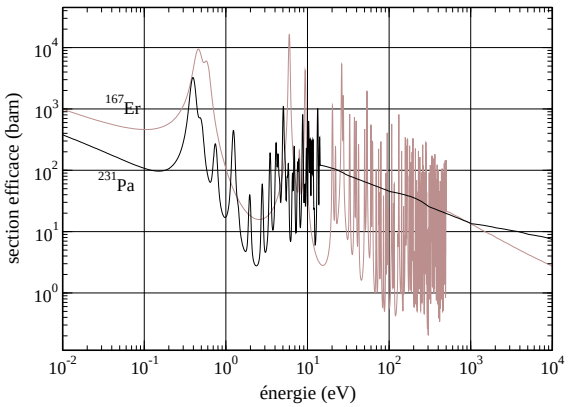


FIG. 7.8 – Sections efficaces microscopiques de capture du ^{231}Pa et de l'^{167}Er.

Comme on peut le constater sur la figure 7.8, le ^{231}Pa dispose d'une forte résonance de capture à très basse énergie, semblable à celle de l'^{167}Er. Or ce dernier isotope est connu pour améliorer

sensiblement les coefficients de température d'un réacteur (notamment le coefficient dû au graphite) grâce à sa forte résonance à basse énergie [57]. Les propriétés similaires du ^{231}Pa laissent entrevoir une amélioration de la sûreté. Pourtant, les coefficients de température ne montrent aucune variation significative, tandis qu'une amélioration légère est visible pour en configuration *r4*. Ceci est principalement dû aux quantités de ^{231}Pa mises en jeu, bien trop faibles pour qu'un effet sur la sûreté soit exploitable.

Enfin, la capture d'un neutron par le ^{231}Pa permet de former de l'^{232}U anti-proliférant. Il est donc souhaitable, de ce point de vue, de le laisser -ou le remettre- en coeur. Dans ce cas, la proportion d'^{232}U dans l'uranium passe de 250 à plus de 1000 ppm, ce qui induit une multiplication par 4 de l'activité des γ de 2.6 MeV qui se monte alors à près de 800 GBq.kg$_{\mathrm{U}}^{-1}$ à l'équilibre de la chaîne de décroissance. Signalons que ce "facteur multiplicatif" vaut respectivement 2.5 et 7 en configuration *r4* et *cu* (se référer à la figure 5.21 page 125).

7.3.3 Neptunium

A l'étape de fluoration précédant l'unité de retraitement, le neptunium est extrait en même temps que l'uranium. A la différence du reste du retraitement, la fluoration peut assez facilement être réalisée dans un temps court. On peut alors imaginer un premier retraitement en 10 jours, afin d'extraire efficacement le Np, tout en gardant un retraitement des PF et des autres TRU en 6 mois (se reporter si besoin au schéma de principe du retraitement lent page 61).

L'extraction rapide du Np réduit sensiblement la formation des éléments plus lourds, comme on peut le constater sur la partie gauche des tableaux 7.5 (pour une comparaison quantitative avec la configuration de référence, se reporter au tableau 4.2 page 66). De même, le taux de capture des TRU est fortement réduit (d'un facteur 15), ce qui permet de gagner 0.006 n/fission. Cela entraîne alors une légère augmentation du taux de régénération qui vaut alors 1.003.

L'intérêt principal de cette extraction rapide reste tout de même l'évolution du flux de sortie de TRU : légèrement plus de Np (5.1 kg/TWh au lieu de 4.3 kg/TWh) mais beaucoup moins d'éléments plus lourds (se reporter à la figure 7.5, partie de droite, ou au tableau 4.7 de la configuration de référence).

Ainsi, cette option permet, par rapport au retraitement de référence, de diminuer la production et les pertes déjà faibles de TRU très lourds. La contrepartie est une légère augmentation de la complexité du retraitement, puisque la technique de fluoration est considérée comme acquise, et une production de Np majorée de 20 %.

L'extraction rapide du Np peut également être envisagée lorsque les TRU ne sont pas extraits au retraitement. Cette étude peut alors être opposée à l'étude réalisée dans la section 7.3.1. La partie droite des tableaux 7.5 indique les inventaires de TRU obtenus pour ce retraitement et pour la configuration *r8.5*. Comme les TRU extraits dans l'unité de retraitement sont réinjectés en coeur, le flux

	avec extraction des TRU en 6 mois			sans extraction des TRU		
	Inventaire	Flux de sortie	Pertes au retraitement	Inventaire	Flux de sortie	Pertes au retraitement
Np	980 g	5.1 kg / TWh	2.8 mg / TWh	1.0 kg	5.2 kg / TWh	2.9 mg / TWh
Pu	205 g	60 g / TWh	600 μg / TWh	2.3 kg	-	6.6 mg / TWh
Am	170 mg	50 mg / TWh	500 ng / TWh	94 g	-	270 μg / TWh
Cm	35 mg	10 mg / TWh	100 ng / TWh	260 g	-	740 μg / TWh
Bk	5 ng	1 ng / TWh	-	600 mg	-	2 μg / TWh
Cf	15 ng	4 ng / TWh	-	1.8 g	-	5 μg / TWh

TAB. 7.5 – Inventaire de TRU pour la configuration *r8*.5 avec extraction du Np en 10 jours, pour une extraction en 6 mois des TRU (à gauche) et sans extraction des TRU (à droite).

de sortie n'est donné que pour le Np extrait à la fluoration. Par contre, les pertes au retraitement sont beaucoup plus importantes, particulièrement pour les TRU lourds.

En mode auto-incinérateur, l'extraction du Np diminue considérablement l'inventaire des TRU restant en coeur. On a par exemple seulement 2.3 kg de Pu au lieu de 270 kg (voir tableau 7.3). Leur taux de capture passe alors de 0.095 à 0.001 n/fission ce qui permet d'obtenir un taux de régénération similaire à la configuration de référence.

Cette option a pour principal intérêt, d'une part d'éviter de former des TRU lourds, et d'autre part d'incinérer tout de même ceux produits. De plus, cela ne dégrade que très peu le bilan neutronique. Par rapport à une configuration totalement incinératrice, on extrait 5.2 kg / TWh de Np mais on gagne entre un et deux ordres de grandeur sur les inventaires, et donc les pertes, des autres TRU.

Rappelons que les résultats donnés dans cette partie concernent une extraction du Np par la fluoration en 10 jours. Si cette étape se révélait plus simple ou plus rapide, les conséquences sur la minimisation de la formation des TRU lourds en seraient renforcées.

7.3.4 Produits de Fissions hors Lanthanides

La répartition des captures dans les PF (figure 7.1 page 156, partie de droite) montre l'importance écrasante des lanthanides (93 % des captures). Voyons quel serait l'impact des autres PF sur les capacités de régénération, lorsque seuls les lanthanides sont extraits.

Tout comme pour le cas sans retraitement, le cumul d'^{233}U est plus intéressant à analyser que le taux de régénération. La figure 7.9 illustre l'empoisonnement progressif du coeur par ces "PF secondaires". La part du zirconium dans cet empoisonnement, d'abord faible, dépasse les 50 % après une vingtaine d'années. D'apparence négligeable, ces PF n'en sont pas moins gênants et coûtent une quantité significative de matière fissile. Comme précédemment, l'accumulation des PF en coeur

(1.8 % molaire par dizaine d'années [5]) peut engendrer des perturbations chimiques rendant délicate l'extrapolation du fonctionnement au-delà de quelques dizaines d'années.

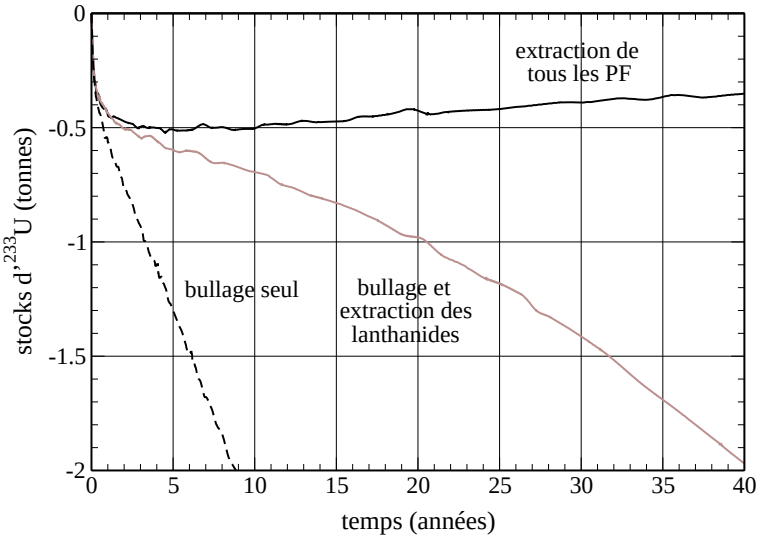


FIG. 7.9 – Impact du retraitement des PF autres que lanthanides sur les stocks cumulés d'^{233}U pour la configuration de référence.

7.4 Etude du bullage

Dans toutes les études présentées dans cet ouvrage, les PF gazeux et les métaux nobles étaient extraits du coeur en 30 secondes. Il va de soi que l'utilisation d'un système de bullage moins performant que prévu aura des conséquences néfastes sur la régénération du combustible. L'extraction des gaz ou des métaux nobles met en jeu des procédés physiques différents. En particulier, la formation et l'extraction de nano-particules par les bulles de gaz doit être confirmée (ce point est traité au chapitre 10). Nous étudierons donc l'influence de chacun de ces bullages. Enfin, nous nous intéresserons de plus près au pouvoir de séparation isotopique du bullage, des gaz comme des métaux nobles.

7.4.1 Bullage des métaux nobles

Les métaux nobles supposés être extraits lors du bullage sont donnés dans le tableau 7.6. Lorsque le bullage devient moins efficace, ces éléments restent plus longtemps en coeur et peuvent alors capturer des neutrons, mais aussi décroître en coeur au lieu de le faire à l'extérieur du réacteur. En particulier, on peut voir apparaître en coeur des éléments qui d'ordinaire se trouvent hors flux. C'est le cas des trois éléments dont le numéro atomique est immédiatement supérieur à celle des métaux nobles, c'est-à-dire le Brome, le Cadmium et l'Iode (de numéros atomiques respectifs 35, 48 et 53).

[5] La valeur de 1.6 % molaire par dizaine d'années donnée au début de la partie 7.2 ne concernait que les lanthanides.

Numéro atomique	33	34	41	42	43	44	45	46	47	52
Element	As	Se	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag	Te

TAB. 7.6 – Liste des métaux nobles extraits avec le bullage.

Intéressons-nous plus particulièrement au Cadmium. Le ^{113}Pd (de période 93 secondes) issu de la fission se désintègre en ^{113}Ag (de période 5.37 heures), qui à son tour forme le ^{113}Cd, ce dernier isotope étant stable. Il en va de même avec la formation d'autres isotopes du Cd, de l'I ou du Br. Si le temps d'extraction du bullage est de l'ordre de la minute, le ^{113}Cd se retrouve hors coeur. S'il est de l'ordre de la journée, il apparaît en coeur jusqu'à son extraction éventuelle dans l'unité de retraitement. Or, cet isotope a une section efficace microscopique de capture très élevée : dans la configuration de référence, sa section efficace moyenne est d'environ 560 barns.

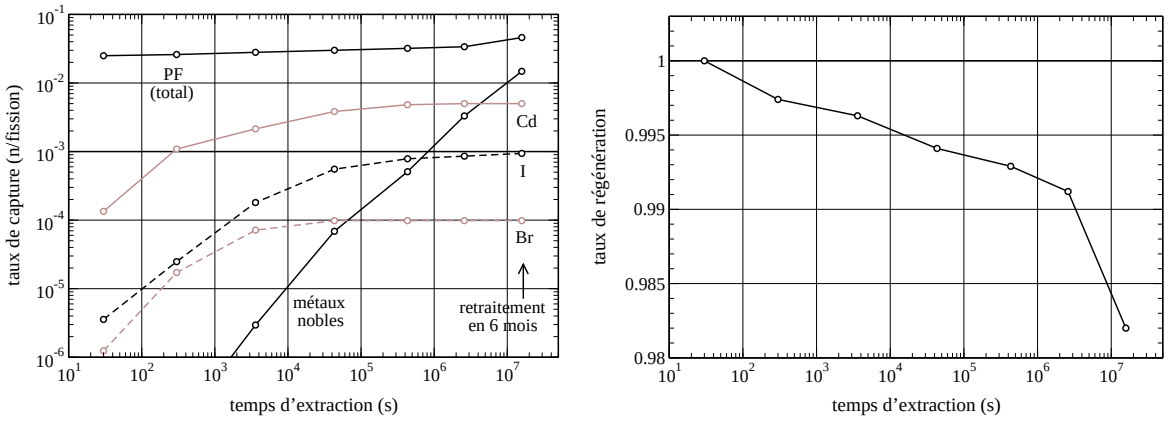


FIG. 7.10 – Taux de capture de différents éléments (à gauche) et taux de régénération (à droite) en fonction du temps d'extraction des métaux nobles.

La partie gauche de la figure 7.10 rassemble les taux de capture de l'ensemble des métaux nobles, des trois éléments sus-cités, et de l'ensemble des PF, ce pour divers temps d'extraction des métaux nobles. Signalons que, en deçà de 0.001 n/fission, un taux de réaction peut être considéré comme parfaitement négligeable. D'autre part, une extraction des métaux nobles dans le même temps que le retraitement classique revient à retirer ces élément par l'unité de retraitement et non par le bullage d'hélium (dont l'efficacité est alors considérée comme nulle pour ces éléments).

Ce graphique indique plusieurs choses :

– Les taux de capture des trois éléments sus-cités croissent fortement, puis atteignent une valeur d'équilibre. Les isotopes de ces éléments sont créés, à l'instar du ^{113}Cd, par des métaux nobles de courte période. Un temps d'extraction par bullage de quelques jours suffit à ce que la totalité de ces isotopes ait décrû en Cd, I ou Br.
– Le taux de capture de l'ensemble des métaux nobles croît fortement. Cette évolution du taux de réaction traduit directement l'augmentation de leur inventaire en coeur.

– Le taux de capture du Cd est considérablement supérieur à celui des métaux nobles. Le bullage sert donc, dans un premier temps, à éviter la formation de cet élément en coeur. L'augmentation de l'inventaire de métaux nobles ne joue un rôle qu'après environ un mois d'accumulation.

Compte tenu des taux de capture mis en jeu, les capacités de régénération sont peu affectées par un bullage lent des métaux nobles. Comme on peut le constater sur la partie droite de la figure 7.10, la perte de régénération est inférieure à 0.010 tant que les métaux nobles sont extraits dans un temps raisonnable (inférieur à 1 mois).

Attention, cette étude ne prend en compte que les effets neutroniques. Les conséquences sur la chimie des sels d'un bullage des métaux moins efficace, comme par exemple la présence de Tellure sur la résistance des structures à la corrosion, ne sont absolument pas analysées ici. De plus, cette étude est valable pour la liste des éléments partant au bullage donnée dans le tableau 7.6. Si certains de ces éléments ne sont pas extraits, ou si des éléments non cités le sont, les résultats de cette étude doivent être adaptés. En particulier, si le Cadmium est significativement extrait par le bullage, la perte de régénération sera beaucoup plus faible.

7.4.2 Bullage des gaz

Intéressons-nous maintenant au cas où le bullage des gaz est moins efficace que supposé. On gardera pour cette étude le temps d'extraction des métaux nobles à la valeur habituelle. Cette hypothèse n'est pas forcément très réaliste, mais elle nous permet, après avoir étudié l'influence du bullage des métaux nobles, de voir celle du bullage des gaz rares seule. La liste des gaz extraits par le bullage est donnée dans le tableau 7.7.

Numéro atomique	1	2	7	10	18	36	54
Element	H	He	N	Ne	Ar	Kr	Xe

TAB. 7.7 – Liste des gaz extraits avec le bullage.

Le taux de régénération des configurations soumises à un bullage de gaz moins efficace est présenté sur la figure 7.11. Contrairement au cas précédent, où les métaux nobles capturaient peu de neutrons, le seul ^{135}Xe est très majoritairement responsable de l'effet observé, quel que soit le temps d'extraction. Comme on peut le voir, son taux de capture a un impact relativement faible pour des temps d'extraction inférieurs à la dizaine de minutes. Si le Xe reste plus longtemps en coeur, la détérioration devient plus problématique, atteignant près de 0.02. La stabilisation observée pour les grands temps d'extraction est due à sa courte période radioactive de 9.14 heures. Les isotopes du Xe non extraits forment du Cs, qui peut rester en coeur tout comme le Cd de l'étude précédente. Son taux de capture, touts isotopes confondus, est en revanche très inférieur à celui du ^{135}Xe.

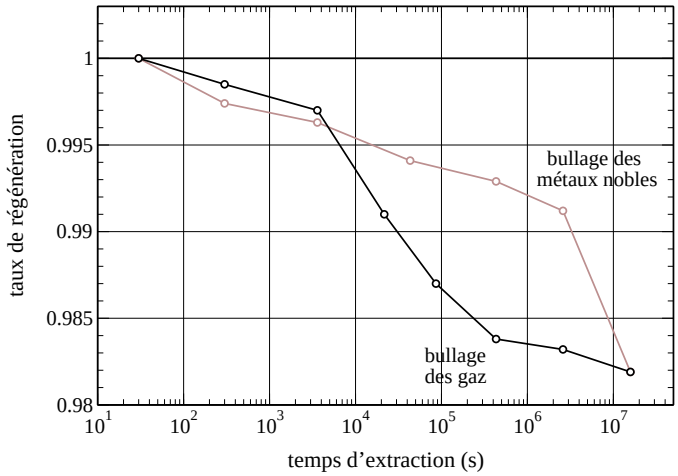


FIG. 7.11 – Taux de régénération en fonction du temps d'extraction des gaz (et rappel de la courbe concernant le bullage des métaux nobles).

7.4.3 Bullage des configurations à spectres thermalisés et rapides

Compte tenu des sections efficaces microscopiques de capture du ^{113}Cd et du ^{135}Xe, l'accumulation de ces éléments en coeur est beaucoup plus problématique en spectre thermique. Pour la configuration *r4*, la perte de régénération due au ^{113}Cd est 50 % supérieure à celle de la configuration *r8.5*, et celle due au ^{135}Xe est plus que doublée. En revanche, pour la configuration *cu*, la perte due aux gaz rares est presque nulle, tandis que celle liée au bullage des métaux nobles est deux à trois fois inférieure à celle de la configuration *r8.5*. Comme on pouvait le supposer, le bullage des gaz et des métaux nobles est particulièrement utile pour les configurations thermalisées. Par contre, une grande efficacité est presque accessoire pour les configurations à spectre rapide.

Tout ceci ne prend en compte que des considérations d'ordre neutronique, et absolument pas physico-chimique. En effet, les PF arrivent tôt ou tard à des concentrations suffisamment élevées pour que des problèmes de saturation apparaissent [60].

7.4.4 Séparation isotopique

Comme on l'a vu dans le cas de l'^{113}Ag et du ^{113}Cd, l'efficacité du bullage a des répercussions sur le lieu d'apparition de certains isotopes. Examinons plus spécialement le cas des isotopes du Xe, dont la décroissance donne du Cs. Le tableau 7.8 rappelle les périodes radioactives de deux isotopes du Xe et du Cs.

Isotope	^{135}Xe	^{137}Xe	^{135}Cs	^{137}Cs
Période	9.14 h	3.82 min	2.3 .10^6 ans	30.1 ans

TAB. 7.8 – Périodes radioactives de quelques isotopes du Xe et du Cs.

On comprend aisément que, si le temps mis pour extraire les isotopes du Xe par le bullage est très inférieur à leur temps de décroissance, ils décroîtront hors-coeur et les isotopes du Cs correspondants seront mélangés. En revanche, si ce temps est compris entre 4 minutes et 9 heures, la situation sera tout autre : le ^{135}Xe sera extrait rapidement et formera du ^{135}Cs dans les charbons actifs du système de bullage, tandis que le ^{137}Xe décroîtra en ^{137}Cs, alors extrait par l'unité de retraitement. Le tableau 7.9 indique, de manière quantitative, quelle est l'efficacité de cette séparation isotopique. On voit que, pour un temps d'extraction de 1 heure, seuls 9 % du ^{135}Cs se trouvent mélangés au ^{137}Cs à la sortie de l'unité de retraitement, et qu'en même temps le ^{135}Cs extrait par bullage est dépourvu de ^{137}Cs. Le bullage permet ainsi une meilleure séparation des déchets, ainsi qu'une éventuelle transmutation du ^{135}Cs [6].

Temps d'extraction	Isotope	Flux	Unité de retraitement	Bullage
30 s	^{135}Cs	32.3 kg/an	1 %	99 %
	^{137}Cs	32.1 kg/an	24 %	76 %
5 min	^{135}Cs	32.6 kg/an	1.5 %	98.5 %
	^{137}Cs	32.1 kg/an	65 %	35 %
1 h	^{135}Cs	31.3 kg/an	9 %	91 %
	^{137}Cs	31.4 kg/an	100 %	0 %
1 j	^{135}Cs	24.8 kg/an	63 %	37 %
	^{137}Cs	33.5 kg/an	100 %	0 %
5 j	^{135}Cs	23.1 kg/an	81 %	19 %
	^{137}Cs	33.6 kg/an	100 %	0 %

TAB. 7.9 – Efficacité de séparation du ^{135}Cs et du ^{137}Cs en fonction du temps d'extraction du Xe par le bullage.

Si le cas du Xe est le plus flagrant, ce n'est pas le seul exemple. En particulier, le Te a deux isotopes (^{129}Te et ^{131}Te) de durées de vie respectives 70 et 25 minutes. S'ils sont extraits suffisamment vite, l'iode formé par leur décroissance se retrouvera hors du coeur. Or l'^{129}I et l'^{131}I sont deux PF dont la radiotoxicité, à long terme pour le premier et à court terme pour le second, n'a rien à envier à celle des isotopes du Cs. Un bullage efficace du Xe et du Te permettrait donc qu'aucun de ces isotopes (Cs comme I) ne se retrouve en coeur et réduirait sensiblement les conséquences néfastes d'un accident nucléaire.

[6] Il demeure toutefois un problème avec le ^{133}Cs, mélangé au ^{135}Cs, et dont la section efficace de capture est assez grande. Toutefois, un renouvellement rapide des charbons actifs permettrait la récupération du ^{133}Xe avant sa décroissance en ^{133}Cs, le séparant ainsi du ^{135}Cs.

7.5 Dilution

7.5.1 Principe

Comme son nom l'indique, cette méthode consiste à diluer les PF et les TRU du sel combustible dans une quantité plus grande de sel. La figure 7.12 illustre le fonctionnement de cette méthode. Celle-ci a pour objectif de remplacer l'unité de retraitement et nous l'appliquerons donc à une configuration dite "sans retraitement". De toute manière, utiliser cette méthode en plus d'une unité de retraitement est sans intérêt. Compte tenu de la plus grande quantité de sel, l'unité extrairait moins de PF par unité de volume de sel traité ce qui réduirait d'autant son efficacité.

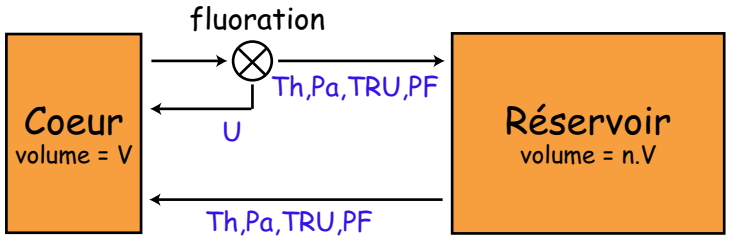


FIG. 7.12 – Schéma du principe de la dilution des PF et des TRU.

Le coeur de volume V est extrait en un temps T, de la même manière que pour le retraitement standard. De même, une fluoration immédiate permet toujours de renvoyer la matière fissile en coeur. Après cela, le sel extrait est stocké dans un réservoir de volume n.V. Ce réservoir, préalablement rempli avec du sel propre, est réinjecté en coeur en un temps n.T, ceci afin d'équilibrer les flux d'entrée et de sortie. Le sel du réservoir, initialement dépourvu de PF ou de TRU, se charge au fil du temps de ces éléments gênants. Hormis le bullage du coeur et de la couverture, et la fluoration de la couverture et du procédé de dilution, il n'y a *aucun autre* retraitement. Les PF s'accumulent et leur inventaire total croît comme il le faisait lors de l'étude sans retraitement. De même, les TRU ne sont pas extraits et la configuration est auto-incinératrice. Par contre, ces PF et ces TRU sont "dilués" dans un volume $n+1$ fois plus grand, sans pour autant changer le volume de sel soumis au flux de neutrons. On retrouve sous flux une proportion de PF et de TRU $n+1$ fois plus faible qu'en l'absence du mécanisme de dilution, et leurs taux d'absorption sont alors diminués d'autant. La quantité de matière fissile, grâce à l'étape de fluoration, n'est absolument pas modifiée par cette méthode.

7.5.2 Résultats

Avec un empoisonnement plus faible, le comportement du réacteur est beaucoup plus satisfaisant, comme le montrent les courbes de stocks d'^{233}U de la figure 7.13. Avec une extraction en 1.5 mois et une réinjection en 3 mois (soit un volume double à l'extérieur et une dilution d'un facteur 3), on obtient un réacteur ne nécessitant pas d'alimentations régulières de matière fissile. Une dilution d'un

facteur 2 n'est quant à elle pas suffisante, tandis qu'un facteur supérieur à 3 n'apporte pas d'amélioration décisive.

Rappelons que le fonctionnement sur 100 années est théorique, la limite de solubilité de certains PF étant atteinte avant. Cependant, cette méthode repousse cette limite du facteur de dilution. En effet, si les PF s'accumulent 3 fois moins vite puisque dilués (grâce à un réservoir deux fois plus grand que le coeur), alors la saturation sera atteinte après un temps 3 fois plus long.

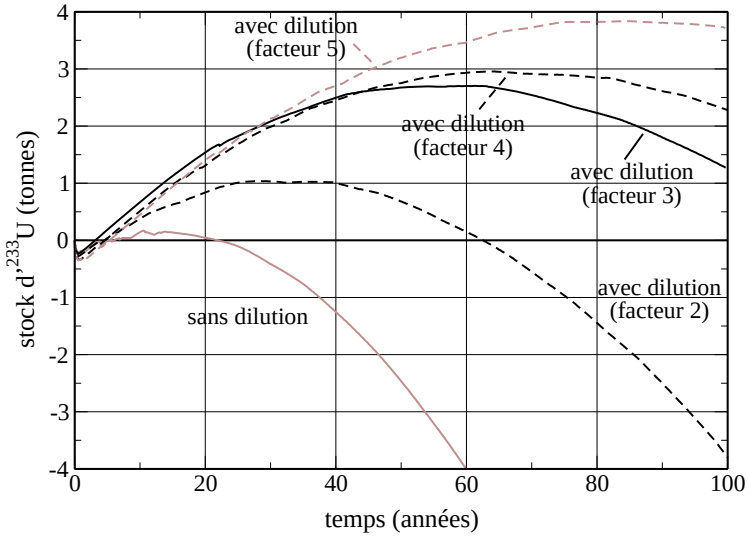


FIG. 7.13 – Impact de la dilution sur les stocks cumulés d'^{233}U pour la configuration *cu*.

7.5.3 Impact de cette méthode

Comme pour toute chose, cette méthode possède des avantages et des inconvénients. Passons tout d'abord en revue les avantages :

- Obtenir un coeur régénérateur *sans unité de retraitement chimique*. Cette solution déverrouille le problème de la faisabilité du retraitement puisqu'il existe une configuration régénératrice et disposant d'un retraitement simpliste.
- Rendre possible une extraction du protactinium efficace sans recourir à la complexité du retraitement MSBR. Il suffit pour cela de transférer rapidement le sel combustible dans le réservoir par exemple en 10 jours. Pour laisser au ^{233}Pa le temps de décroître, il est nécessaire de rester assez longtemps hors flux. Cela implique alors un volume de sel externe très conséquent. Par exemple un retour en 3 mois entraîne une multiplication du volume de sel par 10 (1 volume dedans et 9 dehors).
- Réduire la formation de TRU lourds, puisque la dilution retarde leur accumulation et leur mise à l'équilibre. Par exemple, après 100 ans, le Cm commence seulement à se former : les 600 g du cas sans retraitement (voir figure 7.6 page 161, tiret correspondant au Cm) se réduisent à 90 g, 25 g, 8 g et 3 g pour des facteurs de dilution de 2, 3, 4 et 5 respectivement.

Il existe néanmoins quelques contreparties :

- Le volume de sel est fortement augmenté. Si cela ne coûte pas de matière fissile grâce à l'étape de fluoration, cela implique une augmentation considérable de l'inventaire de lithium enrichi en ^{7}Li et de thorium, deux ressources dont le prix et la rareté doivent être pris en compte.
- L'inventaire à l'équilibre des TRU est lui aussi augmenté. En effet, un élément disparaissant par réaction nucléaire (typiquement une capture de neutron) voit sa composition s'équilibrer dans le coeur. Ainsi, la composition d'équilibre du sel est la même que celle d'une configuration sans dilution, mais le volume de sel est plus grand, ce qui se répercute sur l'inventaire de ces éléments. Rappelons néanmoins que les équilibres ne sont pas atteints pour les spectres rapides, même après 100 années de fonctionnement.

7.6 Synthèse de l'étude du retraitement

Cette étude a permis de faire ressortir un grand nombre d'informations intéressantes sur la marge de manoeuvre et les possibilités offertes par le retraitement. Essayons de résumer les grandes tendances :

Temps de retraitement : En première approximation, l'impact d'un doublement du temps de retraitement réduit de 0.020 le taux de régénération pour la configuration de référence. Par contre cette baisse n'est que de 0.007 en spectre rapide. Une telle variation rend possible un allègement des contraintes de retraitement pour les configurations surgénératrices (en particulier la configuration *cu*), mais pas de rattraper une sous-génération trop forte. Un retraitement lent des TRU dégrade leur distribution en numéro atomique en produisant plus d'Am, de Cm voire de Cf.

Suppression du retraitement : Cette option n'est applicable qu'à une configuration très surgénératrice, comme la configuration *cu*. Il est alors possible de fonctionner quelques dizaines d'années avant que le réacteur ne s'empoisonne trop. Aucun TRU n'est extrait pendant le fonctionnement du coeur, volontairement (flux de sortie) ou non (pertes au retraitement). L'inventaire doit tout de même être géré à chaque arrêt. Obtenir une configuration régénératrice, pendant un temps significatif, sans unité de retraitement constitue une avancée majeure dans la résolution des problèmes posés par le MSBR.

Extraction du protactinium : Cette extraction n'a qu'un impact modéré dans le cas des retraitements lents. Se passer de cette option, avec toutes les conséquences que cela entraîne d'un point de vue prolifération et faisabilité du retraitement, est tout à fait envisageable. Parallèlement à cela, garder le ^{231}Pa en coeur (ou le remettre après décroissance du ^{233}Pa) améliore la résistance à la prolifération en augmentant la production d'^{232}U.

Extraction rapide du neptunium : Si les TRU sont extraits dans l'unité de retraitement, cette option permet de réduire au maximum la production de TRU lourds. Dans le cas contraire, on a tout

de même une diminution de la production de ces éléments, tout en incinérant ceux qui se forment. Evidemment, un tel retraitement produit de grandes quantités de Np.

Bullage des gaz et des métaux nobles : Le bullage des métaux permet surtout d'éviter la formation de ^{113}Cd. Du point de vue de la régénération, il est possible de ralentir fortement les efficacités de ces deux bullages, la perte du taux de régénération (de l'ordre de 0.020 chacun) étant supportable pour une configuration légèrement surgénératrice. On notera aussi la possibilité de séparation isotopique, par exemple entre le ^{135}Cs et le ^{137}Cs.

Méthode de dilution : Cette méthode permet de diminuer de façon artificielle la concentration et donc l'empoisonnement des PF. N'ayant de sens que pour les configurations sans retraitement, elle permet d'allonger leur temps de fonctionnement avant arrêt (quand l'empoisonnement devient trop fort). On obtient ainsi, en contrepartie d'un inventaire plus grand de lithium et de thorium, des configurations au retraitement extrêmement simple restant globalement régénératrices.

Rappelons également que le coefficient de température est légèrement dépendant du retraitement utilisé. Pour simplifier, il est raisonnable d'ignorer cette dépendance. En ce qui concerne les autres contraintes, le principe du retraitement offre de très nombreuses possibilités, depuis un fonctionnement sans extraction des PF jusqu'à une séparation rapide du neptunium, voire une séparation isotopique par le bullage. En terme de régénération, la configuration *cu* permet une grande marge de manoeuvre, en particulier une simplification drastique de l'unité de retraitement ou du bullage, et est de ce fait grandement favorisée.

Chapitre 8

Etude du sel combustible

Par définition, le sel joue un rôle central dans les RSF, puisqu'il sert à la fois de combustible, de caloporteur et même de modérateur. Il doit avoir des caractéristiques spécifiques, tant pour les aspects neutroniques, que chimiques, thermiques ou hydrauliques. Le sel LiF - BeF_2 - $(NL)F_4$ du MSBR avait été choisi selon ces critères.

Nous allons dans ce chapitre nous intéresser à l'impact du sel combustible utilisé. Compte tenu du très large éventail de possibilités, nous nous sommes restreints à l'étude de quelques paramètres. Nous expliquerons dans une première partie quelles répercussions a eu le passage du sel MSBR à celui du TMSR. En effet, le sel combustible du MSBR contenait une forte proportion de béryllium et sa suppression entraîne des changements majeurs des propriétés physico-chimiques ou neutroniques du sel. Dans un deuxième temps, nous étudierons les possibilités offertes par le sel LiF - $(NL)F_4$ (appelé sel LiF par opposition au sel LiF - BeF_2), en particulier en ce qui concerne la proportion de Noyaux Lourds, habituellement fixée à 22 % dans nos études.

Ne sont donc pas étudiés les sels combustibles d'un autre type (chlorure au lieu de fluorure) ou utilisant un autre élément (magnésium, sodium, calcium, etc... en plus du lithium).

8.1 Etude de la présence de Be dans le sel combustible

8.1.1 Principe

Nous avons décidé de supprimer le béryllium de la composition du sel combustible pour diverses raisons. Le béryllium est un élément assez toxique, ce qui introduit un risque supplémentaire en cas d'incident. De plus, il est moins stable -chimiquement- dans le sel que ne l'est le lithium. Il convient alors de s'assurer qu'il ne soit pas extrait dans l'unité de retraitement. Enfin, il est difficile de s'en procurer, ce qui limite fortement les expériences préliminaires réalisables [48]. Cependant, ces raisons n'excluent en rien un éventuel retour à un sel de type LiF - BeF_2.

Examinons tout d'abord quelles sont les conséquences du passage du sel LiF - BeF_2 (ancien sel) au sel LiF (sel utilisé pour nos études) sur les propriétés physico-chimiques du sel lui-même. L'eutectique utilisé est passé d'une proportion de NL de 12.3 % à 22 %, et a vu son point de fusion

augmenter de 490 °C à 565 °C. Compte tenu de la plus forte proportion de NL, la densité du mélange varie de 3.3 à 4.3 [35].

8.1.2 Système simulé

Nous avons simulé un RSF utilisant un sel combustible de composition 71.7% LiF - 16% BeF_2 - 12.3% $(NL)F_4$ afin de le comparer à notre configuration de référence. Ce sel circule dans une matrice de graphite constituée d'hexagones de 15 cm de côté, percés d'un trou central de 8.5 cm de rayon (comme la configuration de référence). Les propriétés du réacteur sont fortement dépendantes de la quantité de Noyaux Lourds qu'il contient. Nous avons donc cherché à simuler un réacteur ayant un inventaire en NL voisin de celui de la configuration de référence. Compte tenu des différentes proportions de NL, de la variation de densité et de masse molaire du sel, le volume total de combustible a été augmenté pour atteindre 33 m^3. La température moyenne du sel est fixée à 630 °C comme pour les autres études présentées dans cet ouvrage (sauf mention contraire), et comme les études réalisées auparavant [9, 15].

Sel combustible	LiF 20 m^3	LiF - BeF_2 33 m^3
Coeff. température	-2.35 pcm/°C	-0.78 pcm/°C
Taux de régénération	1.000	0.983
Flux de neutron	13.7 x10^{14} n/cm^2/s	7.5 x10^{14} n/cm^2/s
Durée de vie du graphite	1.75 ans	2.75 ans
Inventaire de NL	50,0 t	48,3 t
Inventaire d'^{233}U	1 920 kg	1 520 kg

TAB. 8.1 – Impact de la présence de Be comme composant du sel sur les contraintes.

Le tableau 8.1 présente l'impact de la présence de Be sur diverses contraintes. Nous avons essayé de garder la configuration la plus proche possible de la configuration de référence (quantité de NL constante, même géométrie d'hexagones et de canaux), mais la structure même du sel introduit certaines différences. La faible proportion de NL dans le sel conduit à une thermalisation plus forte, comme le montre la figure 8.1. Le spectre neutronique de cette configuration est similaire à celui d'une configuration *r8* en sel LiF. Cette thermalisation accrue explique assez bien le coefficient de température de cette configuration (se reporter au graphique 5.11 page 111, pour une proportion d'^{233}U dans les NL de 2.32 % [1]). Pour les mêmes raisons, l'inventaire nécessaire est légèrement plus faible.

Comme montré lors de l'étude en fonction du rayon des canaux, les différents taux de capture évoluent avec le spectre neutronique (se reporter à la figure 5.14 page 114). Une configuration plus thermalisée que celle de référence voit donc ses taux d'absorption des PF, du Pa et du sel augmenter.

[1] Comme on le verra par la suite, la diminution de la proportion de NL entraine normalement un léger décalage de la courbe.

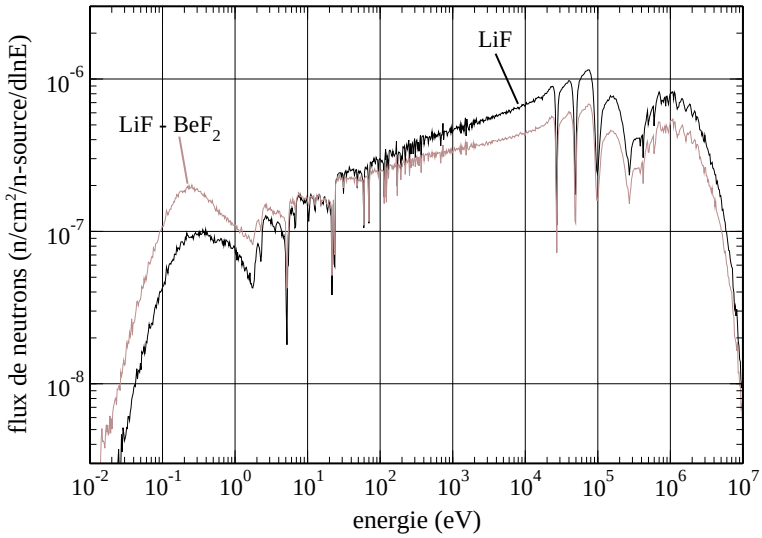


FIG. 8.1 – Spectres neutroniques de la configuration de référence et de la configuration avec un sel LiF - BeF_2 .

En revanche, la configuration étudiée ici diffère de celles des études précédentes par la forte augmentation des absorptions dans le sel (qui passent de 0.024 n/fission à 0.031 n/fission). En effet, les neutrons diffusent plus longtemps dans le sel avant de rencontrer des NL, et ont plus de chances d'être absorbés par l'un des éléments légers. Ainsi, cette différence contrebalance très largement la diminution de la puissance spécifique (33 m^3 de sel au lieu de 20) ou le plus grand nombre de neutrons disponibles (dû à la thermalisation), et aboutit à une dégradation significative du taux de régénération.

8.2 Etude de la proportion de NL dans le sel LiF - $(NL)F_4$

La proportion de NL choisie pour la configuration de référence correspond au point eutectique. Une variation de cette composition entraîne inévitablement une augmentation de la température de fusion du mélange. Celle-ci grimpe jusqu'à 845 °C pour le LiF pur. Etudier la variation de la proportion de NL sur les contraintes revient d'abord à s'interroger sur les conséquences d'une forte élévation de la température de fonctionnement.

8.2.1 Elévation de température

Si l'augmentation de 75 °C du point de fusion lors de la suppression du béryllium pouvait être supportée par les matériaux de structure conventionnels, ce n'est maintenant plus possible puisqu'elle se monte à près de 355 °C par rapport au cas du MSBR. Il faut donc remplacer l'Hastelloy par un matériau résistant à la corrosion et aux très hautes températures. De nouveaux matériaux à base de carbone (fibres de carbone, carbure, carbone-carbone ...) semblent constituer une solution prometteuse [39]. Plusieurs projets de réacteurs nucléaires sont d'ailleurs basés sur l'utilisation de hautes températures

et requièrent de tels matériaux (par exemple le Very High Temperature Reactor). De plus, il existe à l'heure actuelle des échangeurs de chaleur en graphite dont les propriétés sont très satisfaisantes par rapport aux échangeurs plus classiques [54]. Quoi qu'il en soit, notre objectif n'est pas de démontrer la faisabilité de l'utilisation de graphite pour les structures du réacteur. Cette option semble envisageable, et nous nous intéressons alors aux conséquences de l'élévation de température sur le comportement neutronique du coeur. Si cela s'avérait impossible, pour des raisons technologiques ou économiques, cette étude devrait alors être ignorée.

Nous avons simulé un réacteur opérant à la température de 1030 °C au lieu de 630 °C. Nous supposons ainsi que toutes les configurations étudiées dans la partie suivante auront la même température de fonctionnement. Cette hausse de la température a des répercussions sur le rendement thermodynamique du réacteur, qui est supposé passer de 40 % à 60 %. Voulant conserver un système produisant 1 GWe, la puissance thermique du coeur est réduite de 2500 MWth à 1667 MWth. De plus, la densité du sel diminue de 4.3 à 3.89 en raison de la dilatation de celui-ci. Un retraitement du combustible en 6 mois est conservé, malgré la légère différence dans les flux de NL à traiter (due à la diminution de la densité). L'écart avec le temps de retraitement utilisé est de l'ordre de 10 %, ce qui est plutôt négligeable.

Température moyenne	630 °C	1030 °C
Coeff. de température	-2.35 pcm / °C	-1.00 pcm / °C
Taux de régénération	1.000	1.026
Flux de neutron	13.7 x 10^{14} n/cm^2/s	9.6 x 10^{14} n/cm^2/s
Durée de vie du graphite	1.8 ans	1.2 ans
Inventaire d'^{233}U	1 920 kg	1 630 kg

TAB. 8.2 – Impact de la température sur les contraintes pour la configuration de référence.

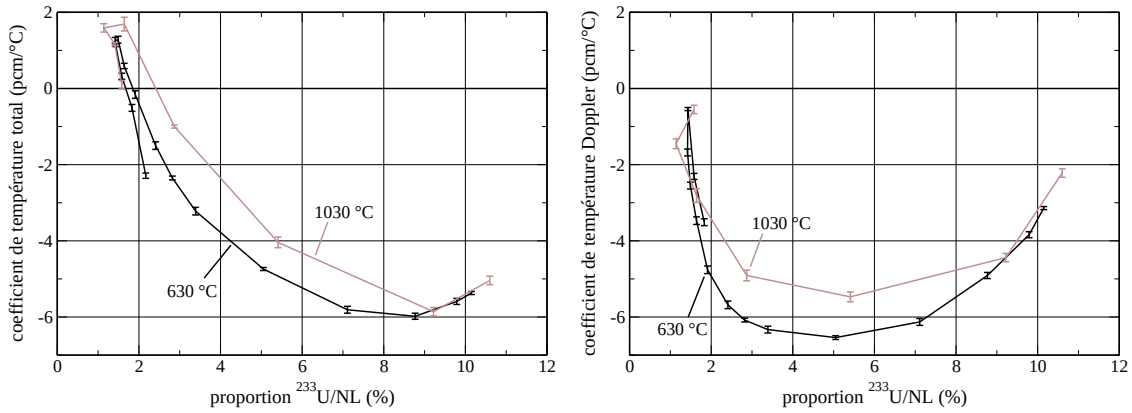


FIG. 8.2 – Impact de la température sur le coefficient de température total (à gauche) et Doppler (à droite) en fonction de la proportion de matière fissile.

Le tableau 8.2 présente l'impact de la hausse de température sur les contraintes. La plus faible densité du sel se traduit par une thermalisation légèrement plus efficace, les neutrons rencontrant moins facilement les noyaux absorbants du sel. Cependant, cette thermalisation ne suffit pas à expliquer la forte dégradation du coefficient de température. La figure 8.2 montre l'évolution des coefficients de température total et Doppler en fonction de la proportion d'^{233}U dans les NL, à 630 °C et à 1030 °C. On voit que la variation du coefficient Doppler, moins négatif à 1030 °C, est la cause principale de celle du coefficient total. En effet, les conséquences de l'élargissement des résonances sont moins prononcées à haute température.

La réduction de la puissance spécifique du coeur induit une diminution des taux de capture parasite du Pa ou des PF (se reporter au chapitre 6 pour plus d'informations sur l'influence de la puissance spécifique) qui passent respectivement de 0.024 et 0.025 n/fission à 0.018 et 0.020 n/fission. Il en résulte une amélioration des capacités de régénération du système. De même, la variation de la puissance spécifique engendre une réduction identique (environ 1/3) du flux neutronique. Paradoxalement, la durée de vie du graphite ne suit pas la même loi. En effet, la fluence limite du graphite est plus faible à 1030 °C qu'à 630 °C. Nous considérerons qu'elle vaut 10^{22} n/cm^2 au lieu des 2.10^{22} n/cm^2 habituels (voir l'évolution de la fluence limite avec la température sur la figure 3.1). Enfin, la diminution de l'inventaire nécessaire s'explique, d'une part par la plus faible densité du sel (de composition à peu près constante), et d'autre part par la quantité inférieure d'^{233}U qu'il faut ajouter peu après le démarrage du réacteur.

On notera aussi la diminution sensible de chaleur à extraire du coeur en raison de la puissance thermique totale plus faible, soit une réduction de 1/3. Augmenter la température permet donc d'alléger sensiblement les problèmes de thermohydraulique. Il existe également des conséquences d'ordre physico-chimique, comme par exemple la plus grande volatilité des PF facilitant leur extraction par bullage. Signalons enfin qu'une augmentation du rendement engendre une réduction des quantités de déchets produits (en particulier les PF) par GWe.

8.2.2 Proportion de NL

Maintenant qu'est connu l'effet de l'élévation de température à 1030 °C, intéressons-nous à la variation de la proportion de NL à cette température. Comme d'habitude, il est utile de conserver constante la quantité totale de NL dans le coeur pour comparer des systèmes aux comportements similaires. En conséquence, les configurations dont la proportion de NL dans le sel est plus faible disposeront d'un plus grand volume de combustible. Le temps de retraitement est, quant à lui, conservé égal à 6 mois pour toutes ces configurations, puisqu'on s'attache par hypothèse à garder un même flux de NL à traiter chaque jour. Le sel utilisé dans la couverture en thorium n'est pas modifié. On garde une forte proportion de NL dans le sel fertile pour maximiser la régénération dans la couverture. La densité et le coefficient de dilatation du sel combustible étant des paramètres cruciaux du système, leurs valeurs pour différentes proportions de NL sont rassemblées dans le tableau 8.3.

Proportion de $(NL)F_4$	22 %	10 %	5 %	2 %
Volume de sel (m^3)	20	36.8	67.2	155
Densité	3.89	2.58	2.33	1.98
Coefficient de dilatation ($x10^{-4}/°C$)	10	10	9	8

TAB. 8.3 – Propriétés du système en fonction du pourcentage de $(NL)F_4$ dans le sel combustible.

8.2.2.1 Sûreté

La figure 8.3 présente l'impact de la proportion de $(NL)F_4$ dans le sel sur le coefficient de température total en fonction du rayon des canaux. L'évolution générale de ce coefficient est très similaire pour tous les sels. On remarque cependant deux différences majeures lorsque le sel contient moins de NL : d'une part le maximum de la courbe est obtenu pour des canaux plus larges, d'autre part le coefficient obtenu pour la configuration *cu* est meilleur.

Pour expliquer ces différences, nous allons analyser les spectres neutroniques et les sous-coefficients de température liés à la densité et à l'effet Doppler. L'impact de la proportion de NL sur les spectres neutroniques et sur ces sous-coefficients est illustré sur les figures 8.4 et 8.5.

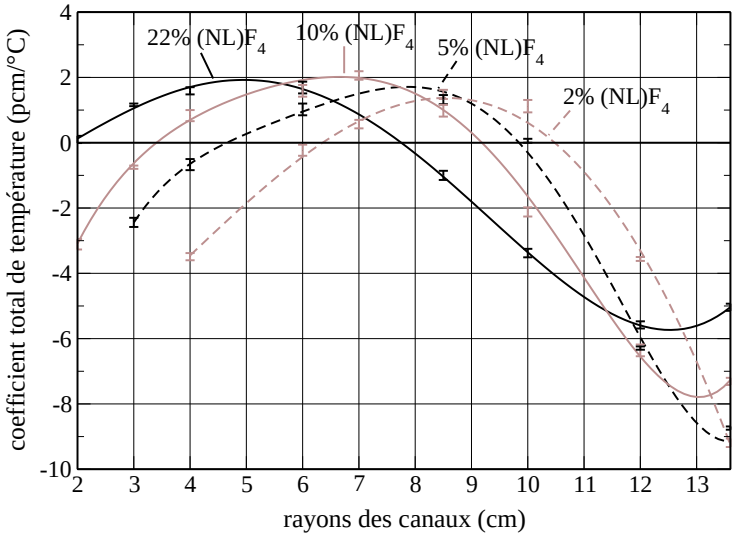


FIG. 8.3 – Impact de la proportion de $(NL)F_4$ sur le coefficient de température total en fonction du rayon des canaux. Les courbes indiquées dans les figures de cet ouvrage ne sont que des polynômes de degré n (ou autres fonctions simples) destinés à aider la visualisation. Elles n'ont pas valeur de résultat.

Comme pour l'étude du sel LiF - BeF_2, les neutrons diffusent plus longtemps avant d'être absorbés lorsque la proportion de NL diminue. Il en résulte une thermalisation accrue par les noyaux de carbone ou les noyaux légers du sel, comme on peut le constater sur la figure 8.4. Cette thermalisation est à l'origine du décalage des extremums des sous-coefficients de température. En effet, une configuration

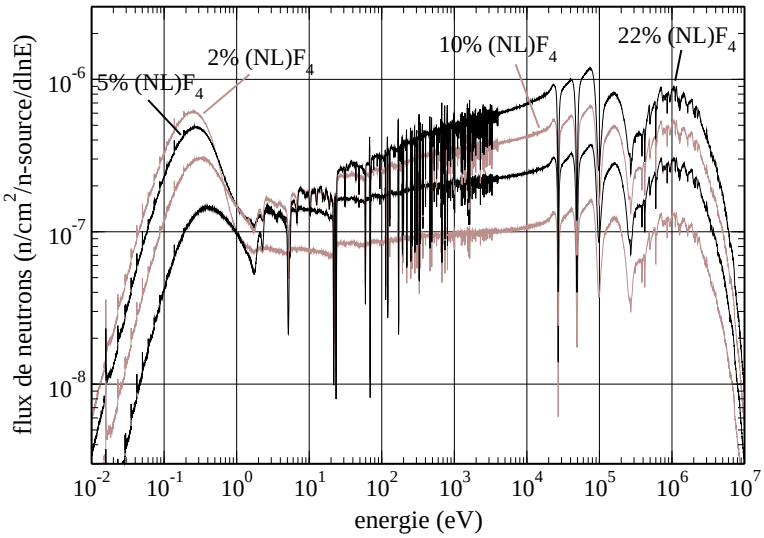


FIG. 8.4 – Impact de la proportion de (NL)F_4 sur le spectre neutronique pour la configuration *r8*.5.

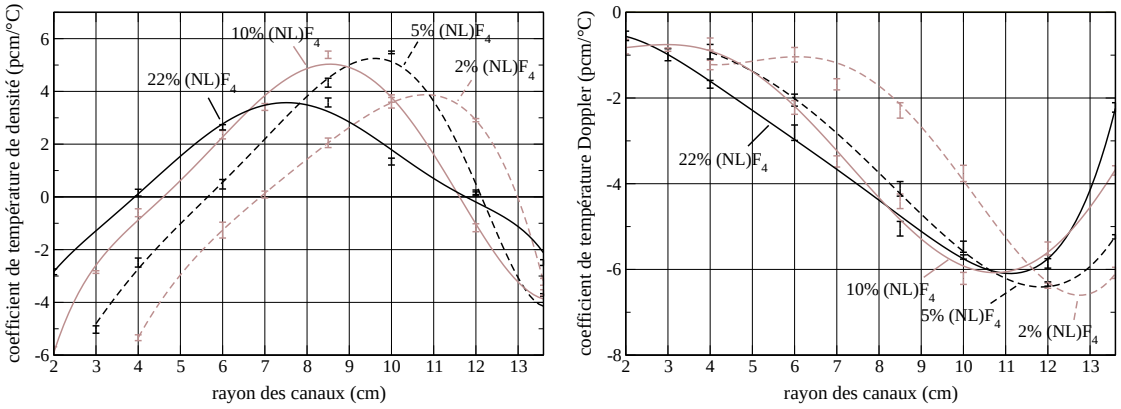


FIG. 8.5 – Impact de la proportion de (NL)F_4 sur le coefficient de température de densité (à gauche) et Doppler (à droite) en fonction du rayon des canaux.

r8.5 avec une proportion de NL de 5 % a un spectre neutronique proche de celui d'une configuration *r7* avec une proportion de 10 %.

Pour les même raisons, comme on peut le voir sur la partie droite de la figure 8.5, le maximum de l'effet Doppler est obtenu pour des rayons plus larges (et est plus important en valeur absolue) à mesure que le sel s'appauvrit en NL. Les valeurs obtenues pour la configuration *cu* sont donc très différentes suivant la proportion de NL. Cette forte amélioration se répercute directement sur le coefficient de température total de la configuration *cu* (voir figure 8.3).

Si l'on représente la variation des coefficients de température totaux en fonction de l'enrichissement en ^{233}U pour différentes proportion de NL, ce qui est fait sur la figure 8.6, on constate que les phénomènes mis en jeu sont globalement les mêmes. Il y a tout de même des différences : le décalage du "point de rebroussement" et la divergence des courbes pour les forts enrichissements en ^{233}U. Comme pour l'étude en fonction de la taille des hexagones, on obtient un nouveau réseau de courbes permettant la prédiction des coefficients de température.

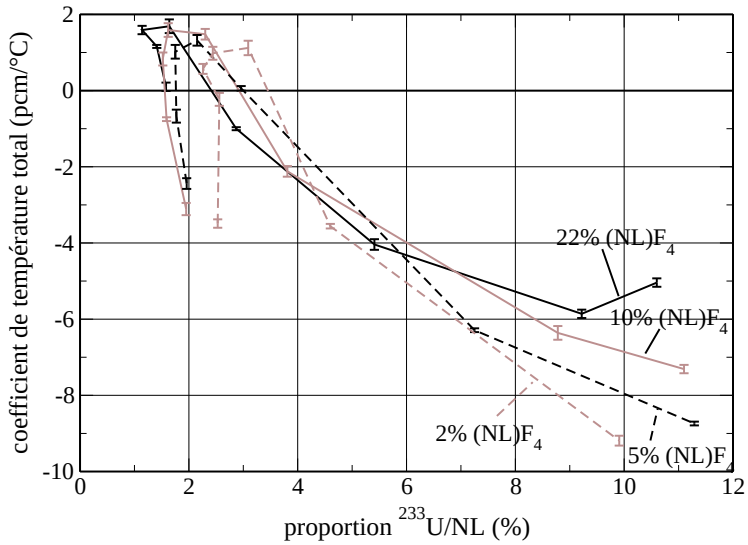


FIG. 8.6 – Impact de la proportion de (NL)F_4 sur le coefficient de température total en fonction de la proportion de matière fissile.

8.2.2.2 Capacités de régénération

L'impact de la proportion de NL sur le taux de régénération en fonction du rayon des canaux est présenté sur la partie gauche de la figure 8.7. D'une manière similaire au coefficient de température, la thermalisation supplémentaire apportée par les noyaux légers du sel est la source de profondes différences sur les capacités de régénération du système. En particulier, l'évolution du nombre de neutrons disponibles (fortement lié au rapport $\alpha_{^{233}U}$) est représentée sur la partie droite de la figure et montre clairement cette thermalisation accrue.

Toujours comme pour l'étude du LiF - BeF_2, les noyaux légers vont capturer plus de neutrons lorsque la proportion de NL est faible. Cela a pour conséquence directe une réduction du taux de régénération. Si l'on se place à thermalisation identique, par exemple au niveau du minimum local du taux de régénération, soit *r8.5* avec 22 % et *cu* avec 2 % de NL, le taux de capture parasite du sel se monte à 0.016 n/fission dans le premier cas et 0.028 n/fission dans le second.

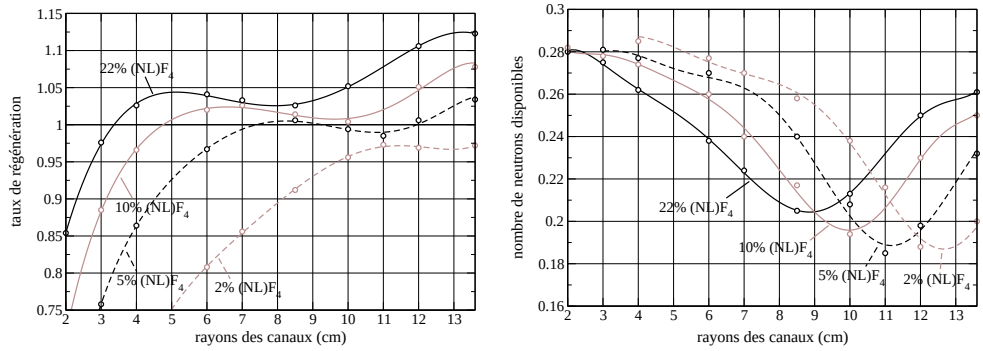


FIG. 8.7 – Impact de la proportion de $(NL)F_4$ sur le taux de régénération (à gauche) et sur le nombre de neutrons disponibles par fission (à droite) en fonction du rayon des canaux.

8.2.2.3 Inventaire nécessaire

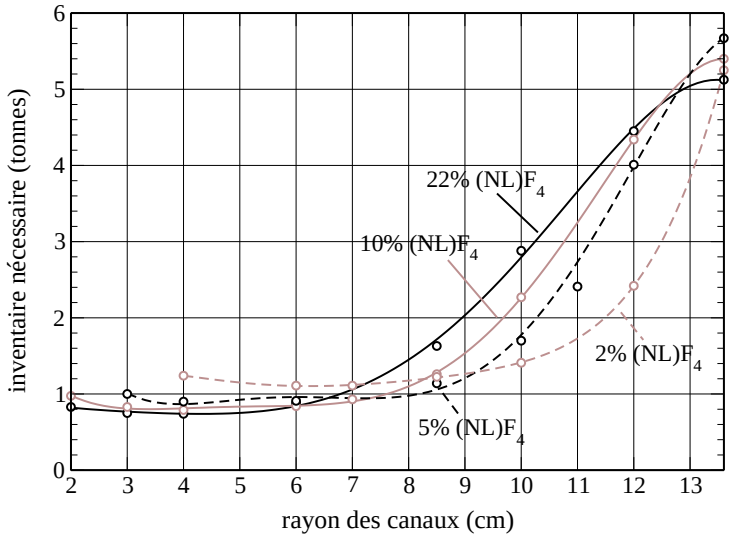


FIG. 8.8 – Impact de la proportion de $(NL)F_4$ sur l'inventaire nécessaire en fonction du rayon des canaux.

Compte tenu de nos hypothèses de travail, l'inventaire nécessaire pour démarrer un réacteur est, normalement, assez peu différent d'un type de sel à l'autre. La figure 8.8 présente l'impact de la proportion de NL sur cette contrainte. Comme pour les contraintes précédentes, on observe à la fois

un décalage lorsque la proportion de NL diminue dû à la thermalisation accrue, et une augmentation due aux captures supplémentaires dans les éléments légers du sel.

8.2.2.4 Tenue des matériaux

La diminution de la puissance spécifique prolonge la durée de vie du graphite, le flux étant inversement proportionnel au volume du coeur. De plus, la fraction de neutrons de haute énergie est fortement réduite lorsque la proportion de NL baisse : 25 % de neutrons d'énergie supérieure à 50 keV en *r8.5* avec 22 % de $(NL)F_4$, contre seulement 11 % avec une proportion de $(NL)F_4$ de 2 %. La figure 8.9 présente les durées de vie du graphite pour différentes proportions de NL et différents rayons de canaux.

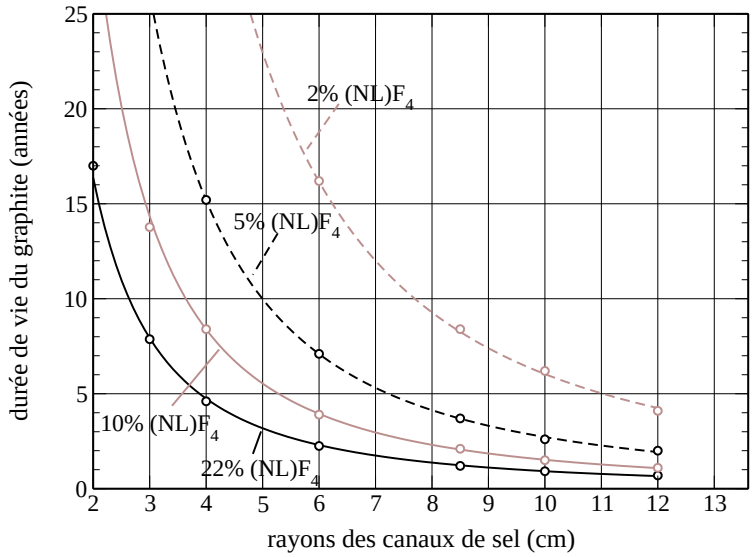


FIG. 8.9 – Impact de la proportion de $(NL)F_4$ sur la durée de vie du graphite modérateur en fonction du rayon des canaux.

8.2.2.5 Aspects de thermohydraulique

L'impact de la proportion de NL sur les contraintes de thermohydraulique est très semblable à l'impact de la puissance spécifique (section 6.1.1.5). En effet, avec 2 % de NL, le réacteur est près de 8 fois plus gros, tout en gardant la même puissance totale qu'avec 22 % de NL. Le sel étant combustible et caloporteur, cela revient à garder constante la quantité de combustible, tout en augmentant celle de caloporteur.

Cela permet d'alléger grandement les problèmes de thermohydraulique, qu'ils soient liés aux pertes de charges lors de l'écoulement dans les canaux ou à l'évacuation de la puissance thermique du coeur. C'est l'un des grands intérêts de la réduction de la proportion de NL.

8.2.3 Exemple à taille constante

Exceptionnellement, nous allons combiner l'étude précédente avec l'étude en fonction du volume du coeur, ce qui permettra de dégager quelques informations fort intéressantes. Contrairement à ce qui a été montré précédemment, le volume de sel des configurations étudiées ici est gardé constant, soit 20 m^3, ce qui ne conserve pas la quantité de NL du coeur. Nous n'allons pas réaliser une analyse systématique en fonction du rayon des canaux, mais nous allons nous concentrer sur les configurations avec des canaux de 8.5 cm de rayon et les configurations avec un unique canal de sel. Le temps de retraitement est ajusté pour conserver un flux de NL à traiter constant. Les résultats de cette étude sont rassemblés dans les tableaux 8.4.

Rayon de 8.5 cm

Proportion de $(NL)F_4$ (temps de retraitement)	22 % (6 mois)	10 % (3.3 mois)	5 % (1.8 mois)	2 % (20 jours)
Coeff. de température (pcm / °C)	-1.00	+0.31	-0.14	-2.57
Taux de régénération	1.026	0.984	0.951	0.868
Inventaire d'^{233}U (kg)	1 630	820	520	350

Canal unique

Proportion de $(NL)F_4$ (temps de retraitement)	22 % (6 mois)	10 % (3.3 mois)	5 % (1.8 mois)	2 % (20 jours)
Coeff. de température (pcm / °C)	-5.12	-8.19	-10.87	-13.15
Taux de régénération	1.123	1.024	0.941	0.850
Inventaire d'^{233}U (kg)	5 125	3 010	1 930	1 150

TAB. 8.4 – Impact de la proportion de NL sur les contraintes pour des configurations avec 20 m^3 de sel : *r8.5* (en haut) et *cu* (en bas)

Voilà ce que nous pouvons tirer de cette étude :

– En configuration épithermique, la réduction de la taille est généralement insuffisante pour rendre le coefficient de température vraiment négatif (à part pour la configuration à 2 % de NL). De plus, le taux de régénération atteint très rapidement des valeurs inacceptables, principalement à cause de l'augmentation des fuites neutroniques, des captures sur les éléments légers du sel et de celles sur le Pa (pour plus d'informations, se reporter à la partie 6.1.1 page 129). Ainsi, même si ces configurations ne nécessitent que très peu de matière fissile, elles sont difficilement envisageables. Précisons également que la durée de vie du graphite modérateur est quasiment identique pour toutes ces configurations, une augmentation du flux compensant la thermalisation du spectre par les noyaux légers du sel.

– En configuration rapide, l'amélioration de la sûreté ne fait que renforcer des coefficients de température déjà très fortement négatifs. On atteint d'ailleurs les coefficients les plus négatifs de toutes nos études. Le taux de régénération est difficilement comparable à celui des configurations *r8.5* (supérieur ou inférieur suivant le cas). Cela s'explique par la plus grande sensibilité des configurations *cu* à la réduction de taille (plus forte augmentation des fuites). Ce taux de régénération ne reste acceptable que pour une proportion de NL d'au moins 10 %. Enfin, de la même manière que précédemment, l'inventaire nécessaire est fortement réduit.

Parmi ces configurations, le canal unique utilisant un sel contenant 10 % de $(NL)F_4$ retient particulièrement l'attention. En effet, cette configuration dispose d'un inventaire nécessaire amoindri tout en gardant une régénération satisfaisante et un coefficient de température fortement négatif. Ces avantages s'ajoutent évidemment aux autres avantages relatifs à la configuration *cu*, et en particulier la quasi-absence de problèmes liés à l'irradiation du graphite.

Chapitre 9

Etudes diverses concernant la sûreté

Indépendamment de toutes les études présentées dans les chapitres précédents, nous avons réalisé quelques études spécifiques de sûreté. Celles-ci concernent principalement la détermination des coefficients de réactivité, non plus en fonction de la température mais en fonction de diverses perturbations du coeur, telle que la vidange ou l'insertion de matière fissile. Elles ont pour but de tester d'autres aspects de sûreté que ceux couverts par les seuls coefficients de température.

9.1 Vidange du coeur

Le coeur du réacteur est pourvu d'un dispositif de vidange par le biais de bouchons de sel solide fusibles à une température adéquate. Si une vidange est requise, la situation est a priori incidentelle. Il est donc utile de s'assurer que l'évacuation du combustible ne conduira pas à un sur-accident. Pour ce faire, nous calculons la réactivité d'un réacteur dont la quantité de sel en coeur diminue graduellement. Contrairement au calcul d'un coefficient de température de densité, la perte de combustible n'est pas homogène et fait apparaître un espace libre entre le sel du plénum et le réflecteur axial supérieur.

Signalons que, compte tenu de l'ancienneté de cette étude, la configuration utilisée comprend deux zones de modération, des réflecteurs axiaux en graphite, ainsi qu'un réflecteur radial lui aussi en graphite à la place de la couverture fertile. De plus, le coeur contient 40 m^3 de sel combustible. Cependant les résultats obtenus, et surtout les phénomènes mis en jeu, sont relativement indépendants des différences par rapport à la configuration de référence.

La figure 9.1 présente le coefficient de multiplication [1] en fonction de la fraction de sel extrait du coeur par la vidange. Précisons que, jusqu'à 16 % du sel vidangé, le niveau libre du sel se situe dans le plenum. Les deux derniers points correspondent à une situation où le niveau libre du sel descend dans le bloc modérateur.

Pour cette configuration, disposant d'un réflecteur axial supérieur en graphite, le coefficient de multiplication croit d'environ 50 pcm quand le plenum se vide, avant de décroître fortement lorsque

[1] Ce coefficient de multiplication est légèrement inférieur à 1. Ceci est dû au manque de statistique des calculs MCNP réalisés pendant l'évolution du réacteur. La composition finale obtenue est ainsi quelque peu différente de la composition nécessaire à l'obtention d'un réacteur critique.

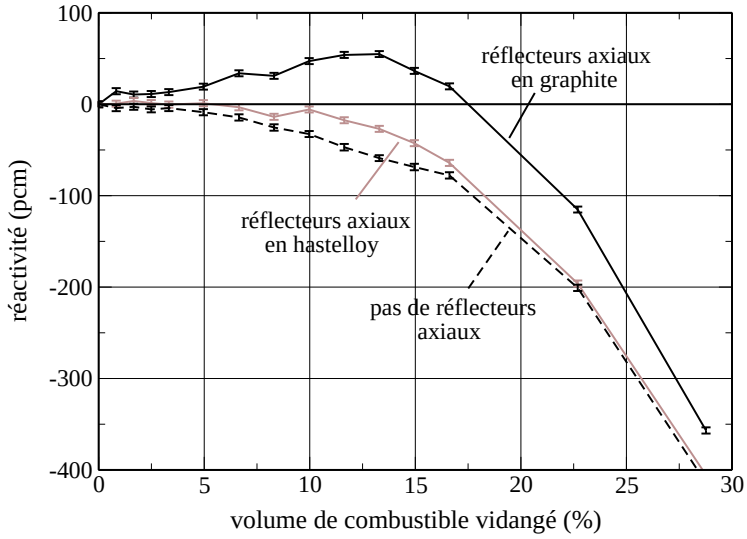


FIG. 9.1 – Impact de la vidange du coeur sur la réactivité du coeur.

le sel commencer à quitter le bloc modérateur. Si la décroissance finale est parfaitement normale et attendue, le phénomène la précédant l'est un peu moins.

Le taux de fission du sel dans le plénum n'est pas uniforme : il est maximum contre le bloc modérateur et contre le réflecteur. La couche d'air apparaissant entre la surface du sel et le réflecteur est absolument transparente aux neutrons. Ainsi, tout se passe comme si le réflecteur était descendu et resté en contact avec le sel. On a alors toujours deux zones thermalisées en haut et en bas du plenum, mais une zone intermédiaire (moins thermalisée) qui disparaît progressivement. Ainsi, au fur et à mesure de la vidange du plenum, la thermalisation moyenne du sel s'améliore ce qui conduit à une augmentation de la réactivité du système.

Cet accroissement de la réactivité reste faible, mais que cela se produise en situation incidentelle encourage à une certaine prudence. La vidange a été étudiée dans deux autres configurations de réacteur : un réacteur sans réflecteurs axiaux, et un réacteur avec des réflecteurs axiaux en hastelloy. Les résultats sont également présentés sur la figure 9.1. On peut voir que l'absence de réflecteur, ou l'utilisation d'un matériau moins modérateur, permet de s'affranchir de ce risque de sur-accident.

9.2 Vidange de la couverture

La plupart des systèmes simulés comportaient une couverture fertile, de structure solide mais contenant un sel liquide de composition 78% LiF - 22% ThF_4. Il n'est pas indispensable que la couverture soit liquide puisqu'elle peut être composée de barreaux solides (par exemple du ThO_2). Si elle est liquide, une vidange accidentelle est possible, et celle-ci peut-être totale, si tous les canaux communiquent entre eux par l'intermédiaire d'un circuit de sel fertile, ou partielle, si la couverture est

un assemblage d'ampoules scellées de graphite. Nous avons étudié les deux options, en nous basant sur la configuration de référence.

Ainsi, si tous les canaux de sel fertile sont vidés, le coefficient de multiplication croît d'environ 200 pcm. L'augmentation de la réactivité du système est due au matériau utilisé pour sa structure, à savoir du graphite. En temps normal, les neutrons pénétrant dans la couverture ont peu de chances de ressortir, étant absorbés par le thorium du sel fertile. La couverture peut alors être assimilée à un corps noir. Lorsque ce sel n'est plus présent, la couverture se transforme alors en un réflecteur en graphite qui, bien que non homogène, thermalise et renvoie une partie des neutrons en coeur. Si un seul canal de la couverture est vidé, qu'il soit dans la première couche ou la seconde (se reporter au schéma de réacteur page 59), la variation du coefficient de multiplication est voisine de zéro. Dans ce cas, les neutrons non absorbés par le canal vidangé le sont dans les voisins et ne retournent presque pas en coeur.

L'utilisation d'un matériau aux propriétés de modération et de réflexion moins bonnes n'a pas été simulée, mais elle permettrait certainement de supprimer ce problème. En revanche, l'augmentation du taux de capture associé (dans le Zr pour le ZrC ou le ZrO_2) et la diminution des captures dans le thorium (neutrons moins thermalisés) pénaliseraient fortement l'intérêt même de la couverture. On préfèrera de loin une solution à ampoules de graphite, pour laquelle la vidange simultanée de tous les canaux de sel est fortement improbable.

Les systèmes simulés comportent un espace vide entre la couverture fertile et le bord du coeur. Si cet espace est rempli avec un matériau réflecteur tel que le graphite, alors la vidange de la totalité de la couverture s'accompagne d'une augmentation de l'ordre de 2400 pcm. Cette augmentation est plus de dix fois plus importante qu'en l'absence de réflecteur. La cause est très similaire à la précédente sauf que les neutrons revenant en coeur sont beaucoup plus nombreux et plus thermalisés à cause de la présence de graphite derrière la couverture. Signalons que la vidange d'un seul canal ne donne toujours pas de résultats significativement différents de zéro. On remarquera qu'il est en tout cas très inférieur à la part moyenne apportée par chacun des 102 canaux de la couverture, soit une vingtaine de pcm, la perte du sel d'une seule ampoule étant alors compensée par les ampoules voisines.

De ces études on retiendra trois choses. D'une part il est préférable, pour des raisons de sûreté, de ne pas placer de matériaux réflecteurs entre la couverture fertile et le bord du coeur. D'autre part, une couverture constituée d'un seul circuit de sel introduit également un risque. Enfin, le retrait d'une ampoule, par exemple pour la récupération de l'^{233}U, n'a pas de conséquence néfaste sur le comportement du coeur, et peut par conséquent être réalisé sans arrêt du réacteur.

9.3 Déplacement de la barre centrale

9.3.1 Barre centrale en graphite

Comme on peut le voir sur les schémas de divers coeurs de réacteur (page 94), l'hexagone situé au centre ne contient pas de canal de sel, puisqu'il représente une barre centrale simulant grossièrement les barres de contrôle. Nous allons nous intéresser dans cette section à l'impact des mouvements de cette barre sur la réactivité du coeur. Afin de mieux voir les effets, nous ferons cette étude à partir de la configuration *cu*, dont la barre centrale n'est pas noyée dans un volumineux massif de graphite.

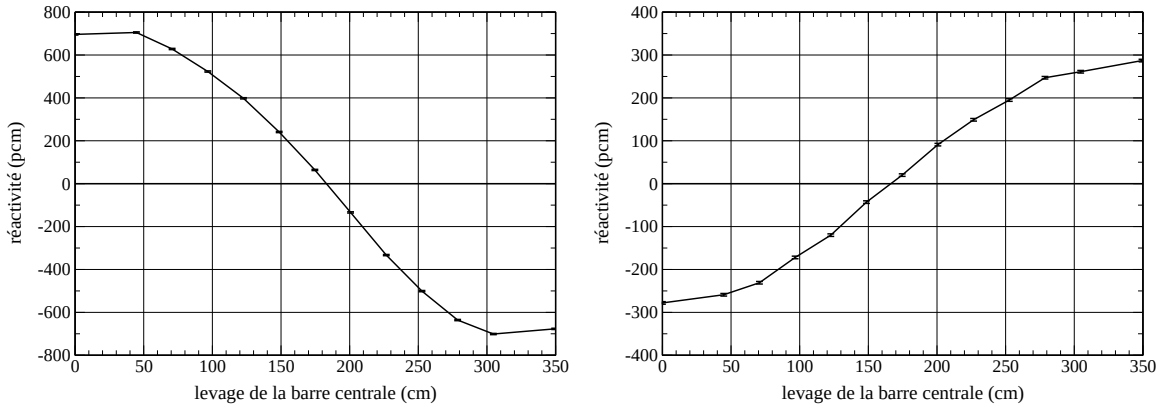


FIG. 9.2 – Impact de la levée de la barre centrale en graphite (à gauche) ou en ZrC (à droite) sur la réactivité du coeur dans la configuration *cu*.

La partie gauche de la figure 9.2 illustre l'effet de la montée de la barre centrale sur le coefficient de multiplication du système. La réactivité diminue à mesure que la barre centrale quitte le coeur, jusqu'à -1400 pcm au maximum. La variation de réactivité atteint, au centre du coeur, la valeur de -7.6 $\pm$ 0.2 pcm/cm. Cette évolution est due au fort pouvoir modérateur du graphite, qui augmente les sections efficaces de fission au voisinage de la barre centrale (voir les visualisations 3D des taux de fission de la configuration *cu*, page 97). La suppression de cette barre occasionne alors un léger durcissement de spectre et une baisse de la réactivité. Précisons que pour des configurations plus thermalisées que la configuration *cu*, l'effet de la barre de graphite serait atténué puisque celle-ci se retrouverait alors environnée du modérateur.

Signalons également que, compte tenu des densités des matériaux (1.86 pour le graphite et 4.3 pour le sel), la barre centrale en graphite "flotte" dans le sel. Elle a par conséquent une tendance naturelle à sortir du sel, et donc à baisser la réactivité.

9.3.2 Barre centrale en ZrC

La même étude a été réalisée avec une barre centrale en ZrC plutôt qu'en graphite. Les résultats sont présentés sur la partie droite de la figure 9.2. Contrairement au cas précédent, la levée de la barre

centrale s'accompagne d'une augmentation du coefficient de multiplication, d'environ +560 pcm au total avec une pente maximum de +2.7 $\pm$ 0.2 pcm/cm. Comparé au graphite, le ZrC a à la fois un pouvoir modérateur inférieur, et un taux de capture très supérieur. Retirer la barre centrale revient alors surtout à diminuer les captures parasites, ce qui augmente la réactivité du système.

Signalons également que, compte tenu des densités des matériaux (6.73 pour le ZrC et 4.3 pour le sel), la barre centrale en ZrC "coule" dans le sel. Elle a par conséquent une tendance naturelle à s'enfoncer dans le sel, et donc à baisser la réactivité.

9.4 Insertion de réactivité

Le nombre d'opérations réalisables sur un coeur de RSF est bien plus important que pour un REP. En effet, le combustible peut être retiré pour être envoyé au retraitement, de la matière fertile ou fissile peut être ajoutée, etc... Ces possibilités offertes par le concept de RSF permettent un contrôle du combustible précis autant que précieux, mais représentent également des risques potentiels qu'il faut évaluer. Voyons donc quel est l'impact sur le comportement du coeur de plusieurs types d'insertion de réactivité, comme par exemple l'introduction d'uranium en coeur. On se basera pour cette étude sur la configuration de référence.

Si l'on suppose que la quantité d'^{233}U en coeur est augmentée de 1 % (soit 21.1 kg), le coefficient de multiplication croît de 288 $\pm$ 4 pcm. Ceci revient à une augmentation de la réactivité de 13.6 $\pm$ 0.2 pcm/kg$_{^{233}\mathrm{U}}$. Sachant que le coeur nécessite une alimentation en ^{232}Th d'environ 2.6 kg/j, une interversion entre ^{232}Th et ^{233}U ne se traduirait que par l'insertion d'environ 35 pcm/j (éventuellement en plusieurs fois). De la même manière, l'ajout d'1 % de ^{232}Th (soit 460 kg) en coeur conduit à une diminution de la réactivité de 228 $\pm$ 4 pcm. Ainsi, ne pas injecter les 2.6 kg/j nécessaires engendre une augmentation d'environ 1 pcm/j, ce qui est négligeable.

Le ^{233}Pa, avec sa période de 27 jours, décroît en coeur assez rapidement (2.55 % par jour) en formant de l'^{233}U. Cela correspond à une diminution de la matière capturante et une augmentation de la matière fissile : le premier effet augmente la réactivité de 32.1 $\pm$ 1.1 pcm/j, et le second de 26.8 $\pm$ 0.4 pcm/j, ce qui fait au total 58.9 $\pm$ 1.2 pcm/j. Comme on peut le voir, le coeur est relativement peu sensible aux erreurs d'alimentations, ou à la décroissance non surveillée du ^{233}Pa.

Ceci est en partie dû au fait que le coeur contient une grande quantité de combustible (près de 2.1 tonnes d'^{233}U) par rapport à la quantité consommée quotidiennement (2.6 kg/j). Les conséquences seraient très probablement plus problématiques dans le cas de coeurs à petit inventaire.

Toutes ces études, même si elles sont assez simplistes, montrent à quel point le concept de RSF est robuste vis-à-vis des problèmes de sûreté. Evidemment des analyses plus poussées, en régime transitoire et/ou prenant en compte les aspects thermohydrauliques, doivent être menées [43, 44].

Chapitre 10

Expérimentation sur l'extraction des métaux nobles par le bullage

Comme il a été montré au chapitre 7, l'extraction des PF gazeux et des métaux nobles est presque indispensable en spectre thermique, et nécessaire en spectre épithermique. Sans cette extraction, l'empoisonnement dû à ces PF détériore significativement le taux de régénération. C'est pourquoi nous avons toujours considéré dans nos simulations le bullage comme efficace. Il convient cependant de s'attarder sur la faisabilité de ce bullage.

Les mécanismes d'extraction des PF par les bulles d'hélium sont différents selon qu'il s'agit de gaz ou de métaux nobles. Les gaz sont dissous dans le sel, avec une concentration maximale limite variant suivant la nature du sel, la température et la pression. Pour un même sel, les limites de solubilité sont aussi différentes suivant les gaz (He, Ne, Ar, Xe). Par exemple, dans le cas du sel NaF - ZrF_4, l'hélium est le gaz le plus soluble : 37 cm^3 par litre de sel à 800 °C, contre 5,5 cm^3 pour le xénon [61]. A 600 °C, les limites de solubilité tombent respectivement à 15 et 1,4 cm^3 par litre de sel. Si la quantité de gaz dissoute ne dépasse pas très significativement la limite de solubilité, il n'y a pas formation de bulle dans la masse du liquide, le gaz diffuse seulement vers les interfaces libres. Pour éliminer les gaz, il faut créer volontairement des bulles à l'intérieur du liquide. La technique la plus évidente est l'injection, quoiqu'elle présente de nombreux inconvénients. Si le gaz injecté est de l'hélium, les autres gaz dissous dans le liquide vont diffuser dans les bulles d'hélium et être évacués avec elles. Le bullage est d'autant plus efficace que la surface d'échange est grande, c'est-à-dire, les bulles nombreuses et petites. Ces bulles vont aussi constituer des interfaces de piégeage de particules présentes dans le liquide.

Les métaux nobles, dont l'oxyde est facilement réduit, peuvent être présents dans le sel sous forme métallique. Lors de l'expérience du MSRE, un bullage involontaire existant dans la pompe avait permis de voir l'impact de ce phénomène sur la concentration en xénon. Il avait aussi mis en évidence la présence de nombreuses particules métalliques. Un projet de bullage contrôlé avait été mis en route mais a été interrompu avec l'arrêt des projets d'Oak Ridge dans les années 75. L'efficacité d'extraction des particules métalliques par bullage d'hélium, supposée très bonne, n'a donc pas pu être quantifiée à cette époque.

Une détermination expérimentale du rendement d'extraction par bullage des particules métalliques présentes dans le sel demande le montage d'une installation fonctionnant en mode dynamique (circulation du sel, injection des bulles). Ceci représente un travail hors de notre sujet. Nous avons entrepris, comme première expérience et aussi comme étape nécessaire à la compréhension des phénomènes de base, de tester le mécanisme d'extraction des métaux nobles dans des conditions très simplifiées et sur une petite quantité de sel. Les échantillons sont fabriqués au LPSC (Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie), fondus au LTPCM (Laboratoire de Thermodynamique et Physicochimie Métallurgique) et caractérisés au CMTC (Centre des Moyens Technologiques Communs, ENSEEG-Saint Martin d'Hères). Dans un second temps, il conviendrait d'effectuer des expériences mettant en jeu un volume de liquide nettement plus important ainsi qu'une injection de bulles.

10.1 Principe de l'extraction des métaux nobles

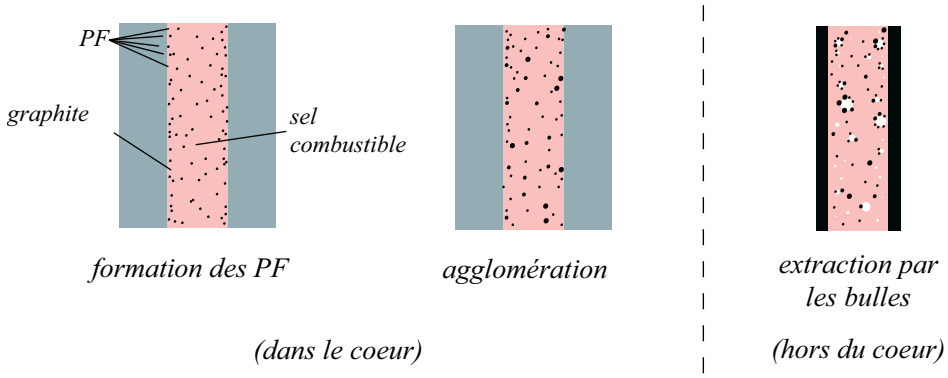


FIG. 10.1 – Schémas de principe des différentes étapes d'extraction des métaux nobles par le bullage d'hélium.

Entre leur apparition et leur extraction, les métaux nobles suivent un certain nombre d'étapes, schématisées en figure 10.1. Le principe théorique d'extraction des métaux nobles est le suivant. Les noyaux issus de la fission sont produits isolément et il est probable qu'ils se réorganisent rapidement en atomes ou en ions (en $1/1000^e$ de seconde). On a donc pour les PF nobles une production d'atomes isolés dans le sel. Ces atomes sont indépendants ou associés à des ions préexistants : ils sont "en solution" dans le sel. Par suite de rencontres avec d'autres atomes du même élément ou d'atomes d'éléments avec lesquels ils peuvent s'allier, ils forment des agrégats qui préfigurent l'état cristallin thermodynamiquement stable. Lorsque ces agrégats sont suffisamment gros, ils forment des nanocristallites (10 à 100 nm) isolés ou eux-mêmes agrégés sous forme de suie. Cette description est celle qui est reconnue pour la condensation des métaux dans un gaz refroidi. On peut supposer qu'il en est de même dans un liquide.

Cependant, des parois existent généralement à proximité du lieu de production des PF (sauf dans la configuration dépourvue de graphite modérateur). Or les probabilités de rencontre de deux atomes sont considérablement plus grandes sur une interface, que dans un volume. Il est donc possible que la formation des nano-cristaux soit initiée sur les parois (nucléation hétérogène), et que les particules extraites par bullage soient issues des germes détachés des parois par l'écoulement du sel.

10.2 Principe de l'expérience

Pour expérimenter et valider le concept d'extraction des PF nobles par bullage, il faut trouver un système expérimental simulant, d'une part le sel qui sera utilisé dans un réacteur, et d'autre part la présence d'interfaces liquide/gaz. Les paragraphes suivant détaillent les choix que nous avons faits.

10.2.1 Choix et obtention des matériaux

10.2.1.1 Le sel

Pour des raisons de sécurité, il n'est pas envisageable d'utiliser le sel combustible comme matériau pour cette étude, pas plus que de manipuler des actinides, fût-ce du thorium. Le fluorure de lithium, LiF, est en revanche un sel tout à fait manipulable, puisque ne nécessitant pas de protections excessives. Cependant, sa température de fusion (848 °C) est un peu élevée, sachant que les phases de maintien à l'état liquide sont effectués avec une marge de 50 °C environ au-dessus de la température de fusion, et que l'on atteint alors des températures limites pour l'installation. Le mélange eutectique LiF - CaF_2, lui a été préféré pour sa température de fusion 769 °C, comme le montre le diagramme de phases sur la partie gauche de la figure 10.2. Le mélange initial de poudre a l'aspect présenté sur la partie droite, sur la micrographie prise par microscopie à balayage en mode électrons retro-diffusés. Dans ce mode de fonctionnement, les différences de numéro atomique des éléments constituant les petits cristaux de poudre, soit LiF soit CaF_2, sont rendus par des différences de niveau de gris : les grains clairs correspondent au CaF_2, et les plus foncés au LiF.

10.2.1.2 Le molybdène

Ne pouvant fabriquer toute la gamme de PF par fission, nous nous sommes restreints à l'étude de l'extraction du molybdène, qui est l'un des métaux nobles les plus importants en coeur. Nous supposons de ce fait que les autres métaux nobles ont un comportement physico-chimique voisin de celui du Mo. Le molybdène a une température de fusion de 2617 °C.

L'introduction de Mo, sous forme de poudre, dans le mélange de sels avant fusion est une méthode simple, que nous avons utilisée pour les premiers échantillons. Les grains de la poudre de molybdène utilisée ont une taille considérablement plus élevée que des nano-agrégats. Comme on peut le voir en figure 10.3, la granulométrie de la poudre est plutôt répartie sur les tailles 2 μm et 6 μm. Pour se placer dans des conditions les plus proches possible de celles du coeur du réacteur, où le molybdène

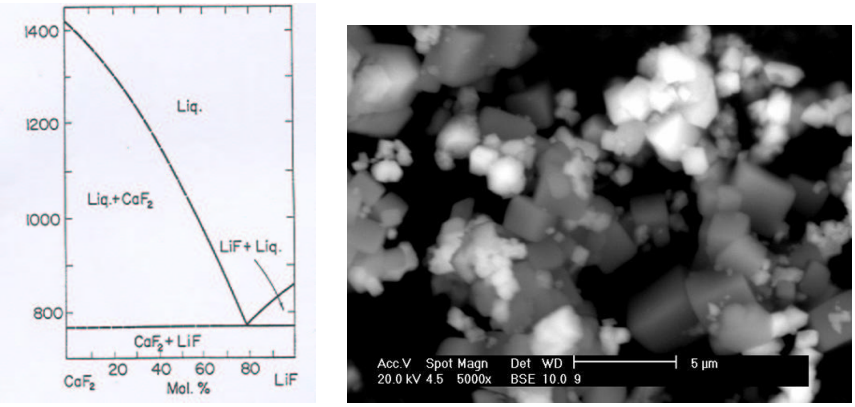


FIG. 10.2 – Diagramme de phase LiF-CaF2 (à gauche) et observation en microscopie à balayage du mélange des poudres de LiF et CaF2 avant fusion (à droite).

se forme à l'état atomique, il est évident que l'ajout de la poudre métallique micronique ne convient pas, puisqu'une partie de la phase d'agrégation ne serait pas testée. Il s'agit donc de trouver un procédé permettant l'ensemencement du Mo dans un état plus fin. Le procédé retenu est la pulvérisation cathodique. De manière générale, cette méthode consiste à déposer une couche mince par éjection d'atomes d'un matériau cible, cette éjection étant réalisée par le bombardement d'ions accélérés. Appliquée pendant des temps relativement courts, cette méthode nous permet d'implanter des atomes de Mo en surface des grains de poudre. En toute rigueur, le Mo en surface est à l'état atomique. Cependant ces atomes vont migrer à la surface de la poudre et se rassembler en îlots. Il y a ainsi une phase d'agglomération durant le dépôt lui même, qui conduit à la formation de petits îlots de molybdène. Il faut donc trouver un juste milieu entre une quantité de Mo implantée suffisamment forte pour obtenir des effets observables et pas trop grande pour limiter l'agrégation prématurée. Pour obtenir ces dépôts de molybdène, nous avons bénéficié du savoir faire et des installations du service Transfert de Technologie du LPSC, en particulier un magnétron creux permettant le dépôt de cuivre et de graphite sur tout type d'échantillon, qui a été modifié à notre profit. Nous avons aussi utilisé les acquis apportés par une étude précédente [62].

L'irradiation d'une petite quantité de poudre correspondant à un échantillon, étalée sur une surface de quelques cm^2, est effectuée dans l'installation de dépôt par plasma, durant quelques secondes ou dizaines de secondes (voir schéma sur la figure 10.4). La poudre irradiée est ensuite analysée par microscopie à balayage pour confirmer la présence de molybdène comme le montre le spectre de la figure 10.5. Le lithium est un élément trop léger pour apparaître sur ces spectres, dont le seuil de détection en énergie correspond au carbone. Cependant, s'il est présent, le dépôt de molybdène est formé de grains de taille très faible, qui ne peuvent pas être résolus par un MEB standard. Pour résoudre la taille des grains initiaux de molybdène présent dans notre sel, une couche a été déposée sur un saphir poli (Alumine monocristalline) et observée dans un microscope permettant une meilleure résolution (MEB à effet de champ, P. Chaudouët, LMGP). Les micrographies présentées sur la figure 10.6 montrent une granulométrie apparente de la couche de molybdène déposée de l'ordre de 20 nm.

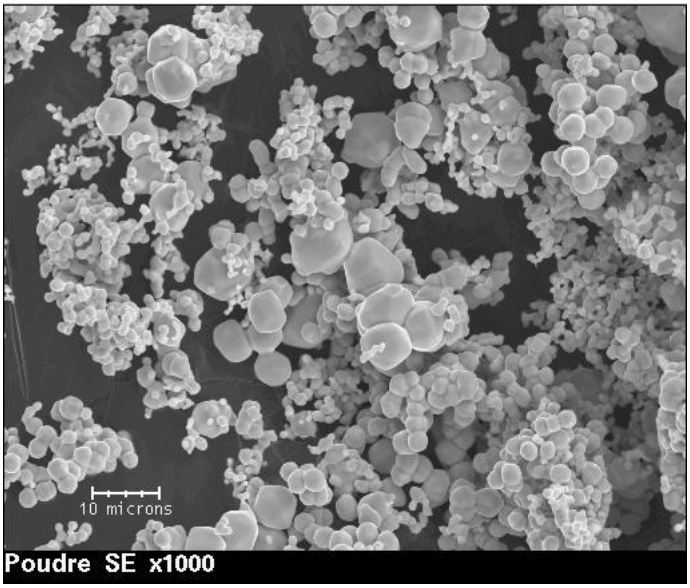


FIG. 10.3 – Poudre de Mo observée en microscopie à balayage.

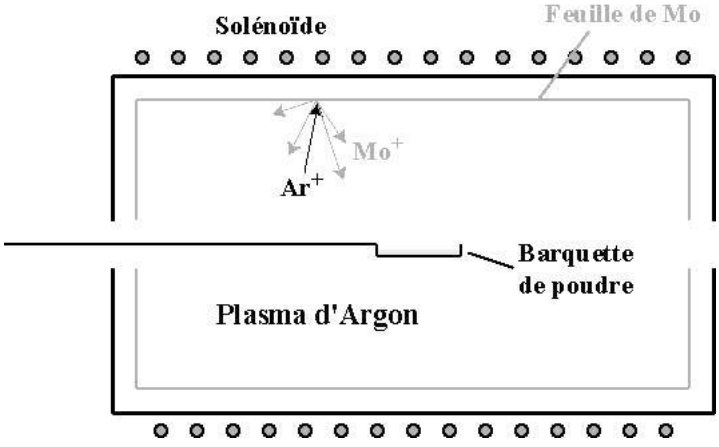


FIG. 10.4 – Schéma de principe de la pulvérisation cathodique.

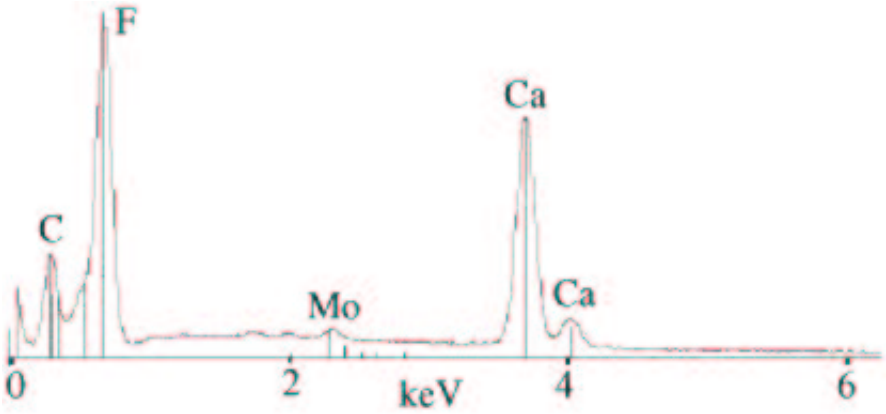


FIG. 10.5 – Analyse par microscopie à balayage de la poudre après irradiation. Le pic relatif au carbone est présent du fait de l'utilisation d'un scotch en carbone pour fixer la poudre et du dépôt nécessairement effectué sur les grains pour rendre les surfaces conductrices.

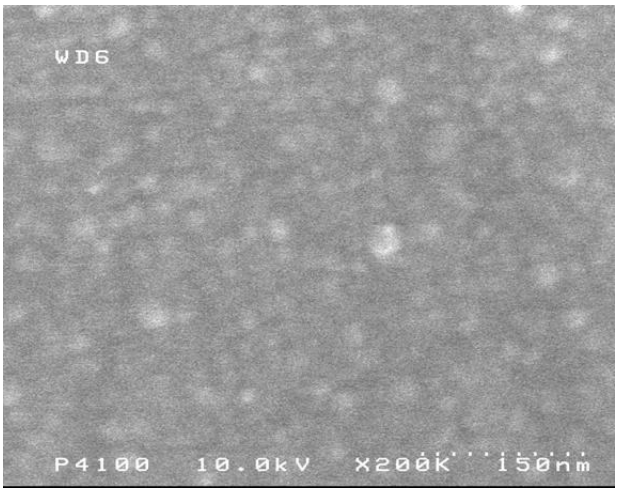


FIG. 10.6 – Résolution de l'état de surface du dépôt de Mo effectué sur saphir.

Lors du dépôt plasma, les grains de poudre LiF et CaF_2, comme ceux imagés en figure 10.2, voient leurs facettes supérieures revêtues de ce type de couche de molybdène à grains très fins. Les poudres, qui sont donc en fait très partiellement exposées du fait des effets d'ombrage et de superposition des grains, sont ensuite rassemblées, compactées et pastillées. Cela fournit une répartition totalement aléatoire et discontinue du Mo dans les pastilles initiales. Les essais de dépôt de Mo ont été faits, soit avec une période d'irradiation inférieure à 10 secondes, ce qui produit une très faible proportion de Mo, soit avec une période "longue", c'est-à-dire au minimum 20 secondes.

10.2.2 Phase de fusion du sel avec Molybdène

Une fois le Mo introduit dans la poudre, que ce soit par la méthode de dépôt plasma ou par ajout de poudre métallique, l'ensemble formant une pastille doit être fondu pour simuler le sel combustible liquide à haute température. La fusion de la pastille se fait sous une atmosphère gazeuse réductrice pour éliminer les éventuelles traces d'oxyde présentes en surface du métal et limiter sa ré-oxydation lors de la montée en température. Ceci pour plusieurs raisons. Si on laisse le métal (ceci est vrai aussi pour d'autres métaux que Mo) se couvrir d'une couche d'oxyde, on gène considérablement la capture de ce métal par les interfaces liquide/gaz, car le sel mouille très bien les oxydes métalliques. D'autre part, les oxydes de molybdène sont relativement volatils ; il ne faut pas qu'une partie du molybdène, qu'on a eu tant de mal à introduire, reparte de l'échantillon avant la fusion. Et enfin, si on laisse une couche d'oxyde s'établir à la surface des particules de Mo, les contacts inter-particules ne seront plus représentatifs des phénomènes qui se déroulent entre deux particules métalliques noyées dans le sel.

L'installation utilisée pour la fusion des pastilles est représentée de manière schématique en figure 10.7. Lors de la mise en place de la pastille dans l'installation, un pompage en vide primaire est effectué pour limiter la présence d'oxygène et de vapeur d'eau, puis un balayage de gaz (hélium et hydrogène) est mis en place. L'installation, quant à elle, peut fonctionner indifféremment sous hélium, sous hydrogène ou avec un mélange des deux, en balayage ou en statique.

La pastille de sel à fondre est placée dans un porte-échantillon en nickel, au centre de la zone chauffée par le four, dans l'enceinte en acier inoxydable.

La température atteinte par le porte-échantillon en nickel est suivie grâce à un thermocouple situé dessous et qui est lié à la canne de trempe. La température de maintien à l'état liquide est de 820 °C environ, nettement supérieure à la température de fusion du sel. Quand la durée voulue de maintien en température est atteinte, l'ensemble, porte-échantillon et sel, est tiré manuellement dans la zone de trempe située dans le bas de l'enceinte hors four. Dans cette zone, la paroi est refroidie par un circuit d'eau. L'enceinte n'est ouverte pour récupérer l'échantillon que quand l'ensemble est refroidi (four et partie haute).

10.2.3 Type d'observations effectuées

Des essais de fusion de l'eutectique LiF - CaF_2, conditionné sous forme de pastille, avec et sans Mo ajouté, ont été effectués. L'allure générale des échantillons est celle de la figure 10.8, après frac-

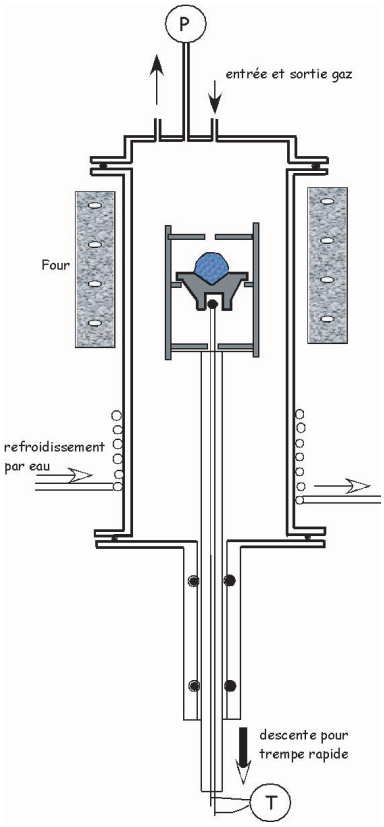


FIG. 10.7 – Schéma de principe de l'installation de fusion du sel.

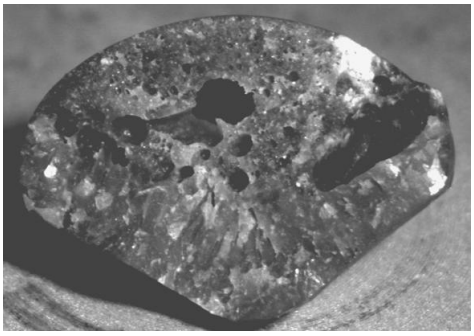


FIG. 10.8 – Intérieur de la bille de sel après trempe.

ture de la bille obtenue. On distingue sur le faciès de rupture de la bille, des bulles de différente taille qui se sont formées, a priori, lors du refroidissement du sel. Lorsque la bille de sel est liquide, on suppose qu'elle est entièrement liquide et homogène, les bulles et anfractuosités ne se forment que durant un laps de temps très court, lors du refroidissement. Lorsque la température du liquide diminue, la solubilité des gaz décroît aussi. Les cavités se forment aussi du fait de la progression de la cristallisation.

La taille des bulles formées lors du refroidissement dépend très nettement de la vitesse de refroidissement. Des trempes extrêmement rapides conduisent à une dispersion de petites bulles très fines. Les observations par microscopie à balayage sont faites à l'intérieur de ces bulles et à la surface externe de la bille. La structure du mélange salin après fusion et refroidissement est celle d'un eutectique lamellaire. Rappelons que les images obtenues en microscopie à balayage en mode "électrons rétro-diffusés" présentent un contraste qui est sensible à la masse atomique de l'élément chimique, et que les zones plus claires correspondent au CaF_2 tandis que les plus foncées au LiF. A grossissement moyen, les images ont l'aspect visualisé en figure 10.9.

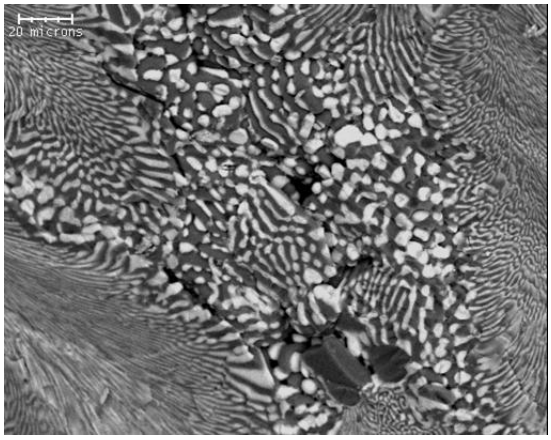


FIG. 10.9 – Allure du sel eutectique LiF-CaF2, après fusion et trempe.

Les morphologies observées diffèrent un peu selon les zones (fracture, intérieur de bulle, surface...) mais sont toujours fines, ce qui ne facilite pas la recherche du molybdène, qui sur ce type d'image doit apparaître "encore plus blanc". Les surfaces intérieures des bulles sont des zones de regroupement des différents "polluants" du liquide, même si la durée de vie des bulles durant la solidification est courte. La nucléation des bulles se faisant plus facilement sur un corps étranger présent dans le liquide (nucléation hétérogène), les impuretés non dissoutes constituent des sites d'initiation de bulle. D'autre part, toutes les impuretés présentes à l'état gazeux lors du début de la trempe vont cristalliser rapidement sur cette même interface. Les éléments parasites trouvés, qui proviennent soit de l'installation, soit des poudres utilisées, sont : Mg, P, K, Cl et Fe.

L'intérêt de regarder l'intérieur des bulles est de pouvoir, au moins partiellement, faire abstraction de la pollution due aux autres constituants de l'enceinte (parois, isolants...), et d'être en présence d'une interface à durée de vie courte. La surface externe de la bille est la seule interface liquide/gaz

qui existe durant tout le temps de maintien à l'état liquide et c'est sur elle que l'on retrouve aussi la majorité des polluants et des particules.

Les essais effectués avec une très faible proportion de molybdène (temps très courts de dépôt plasma, très faible quantité de poudre molybdène ajoutée, de l'ordre de 20 ppm) conduisent à des billes de sel où le molybdène n'est pas détectable. Soit il est localement dissous à un taux inférieur au seuil de détection de l'appareil, soit il est rassemblé en groupements de petite taille et tellement rares que la recherche par microscopie à balayage dans ce type d'échantillon n'est pas une démarche raisonnable.

Les résultats détaillés dans les paragraphes 10.3 et 10.4 ont été obtenus sur des échantillons présentant une quantité suffisante de Mo (temps de dépôt supérieur ou égal à 20 secondes, ou bien quantité de poudre nettement supérieure à 20 ppm).

10.3 Résultats des expériences préliminaires utilisant la poudre de Mo

Si les premières étapes des phases de grossissement des particules ou d'agglomération ne peuvent être validées, celle d'extraction par les bulles de particules de plus grande taille peut quand même être testée. Deux pastilles fabriquées à partir du même mélange de poudres ont été fondues. L'une a été trempée après 10 minutes de maintien à l'état liquide et l'autre après 1 heure. Comme on peut le constater sur la figure 10.10, des amas de molybdène se forment dans les deux cas mais ceux de l'échantillon maintenu liquide 10 minutes sont nettement plus petits.

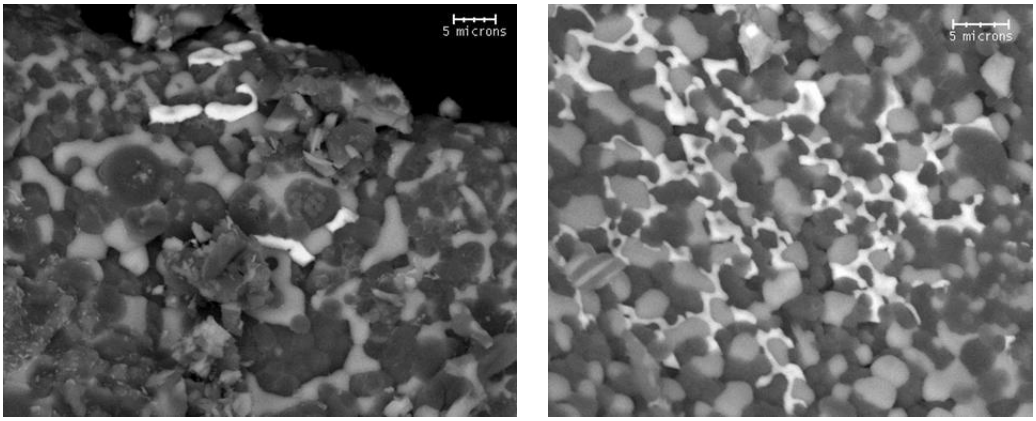


FIG. 10.10 – Observation des amas en surface interne de bulle pour des échantillons où le molybdène a été introduit sous forme de poudre, pour des temps de maintien liquide de 10 minutes (à gauche) et 60 minutes (à droite).

Une zone observée à faible grossissement en limite de la surface de la bille est représentée sur la figure 10.11. On distingue bien la surface de la bille (partie haute droite) et le sel fracturé dans la masse (bas gauche). L'analyse des zones très claires en surface, révèle la présence de molybdène

et de fer. La forte présence de Fe, indique une contamination, provenant probablement de l'enceinte en acier. Cette association Fe-Mo, est fréquemment retrouvée dans nos échantillons, mais elle n'est pas systématique puisqu'il existe des amas où l'analyse ne montre pas de fer. Elle s'explique par la forte affinité de ces deux métaux l'un pour l'autre. Le fer peut comporter jusqu'à 5 % d'atomes de molybdène en solution solide, et il existe des composés intermétalliques [1]. Dans certaines zones les amas peuvent être plus riche en fer qu'en molybdène. On ignore pour le moment si le fer joue un rôle dans les mécanismes du frittage [2] rapide qui a lieu entre les particules de molybdène. Les grains de molybdène provenant de la poudre ajoutée, ont fortement changé de morphologie, et cela même après 10 minutes de maintien à l'état liquide à 820 °C, et très en dessous donc de la température de fusion du métal.

Bien que nous ne puissions décrire précisément les mécanismes qui conduisent à leur formation, nous pouvons conclure, au vu des observations effectuées, que les agglomérats de particules micro niques de molybdène se rassemblent bien et de manière assez efficace aux interfaces (bulles et surfaces).

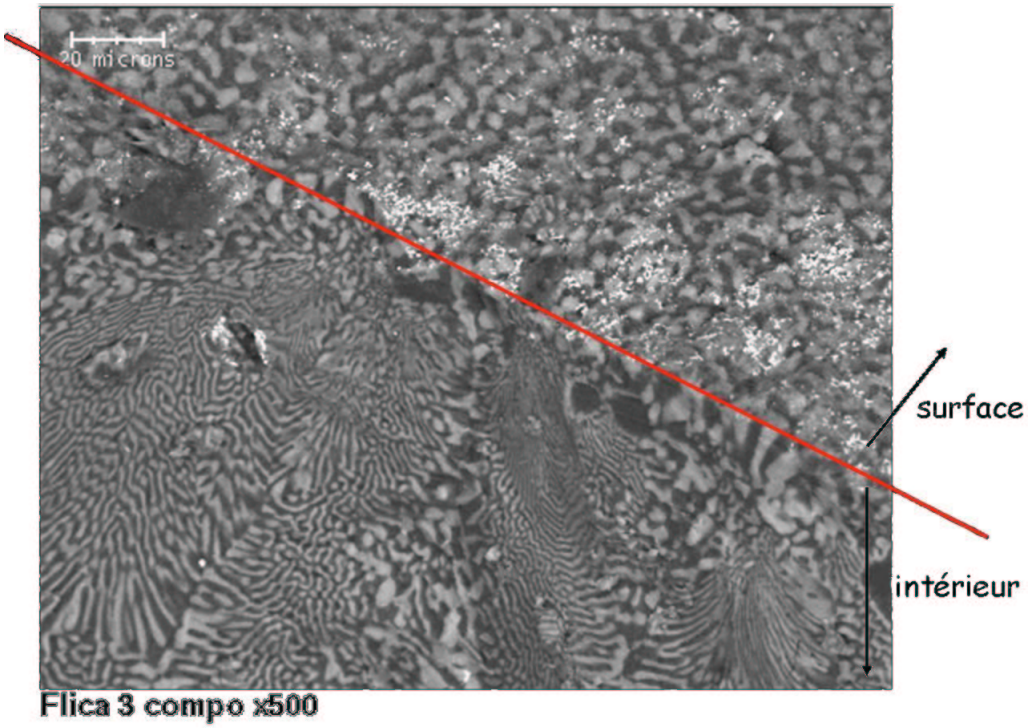


FIG. 10.11 – Observation des amas en surface externe de la bille pour l'échantillon où le molybdène a été introduit sous forme de poudre et l'ensemble maintenu liquide 60 minutes. On distingue à la fois la surface et la zone de fracture dans la masse du sel.

[1] Un composé intermétallique entre deux espèces A et B est une phase solide du type A_xB_y ayant sa propre structure cristalline.

[2] Mécanisme par lequel deux grains en contact se soudent par diffusion des atomes.

10.4 Expériences avec implantation ionique de Mo

Plusieurs expériences ont été réalisées à partir de la poudre irradiée. Le sel est gardé à l'état liquide pendant des temps variables, de manière à voir si l'agglomération du Mo est progressive et jusqu'à quel ordre de taille. Les images présentées ci-dessous ne sont pas caractéristiques de la totalité des surfaces des échantillons, mais seulement des zones où on a repéré des accumulations. Pour un temps de maintien liquide de 10 minutes, l'analyse MEB présentée sur la partie haute de la figure 10.12 révèle de petits agglomérats de Mo. Leur répartition en taille couvre plusieurs ordres de grandeurs : les plus petits que l'on devine à peine sont de l'ordre de 50 nm, mais des amas nettement plus gros et plus épais sont formés, dépassant déjà nettement les 350 nm. Cependant, on retrouve des amas de taille comparable dans l'échantillon laissé 1 heure à l'état liquide, tout comme dans celui gardé 2 heures liquide (respectivement au milieu et en bas de la figure 10.12).

On constate que les particules de Mo ont des tailles très similaires pour des maintiens liquides compris entre 10 minutes et 2 heures. Dans ce type d'échantillon, à partir du moment où les particules ont atteint une taille d'environ 200 à 500 nm, tout semble être une question de probabilité de rencontre entre particules, pour former des agrégats plus gros, mais liés par des ponts assez minces. Dans les échantillons maintenus longtemps à l'état liquide, on trouve aussi des amas énormes (plusieurs microns) qui ont un faciès bien différent. Ce sont même des "plaques" épaisses de Mo, dans le cas de l'échantillon conservé 4 heures à l'état liquide. Dans le cas de cet échantillon particulier, un phénomène supplémentaire a pu favoriser le regroupement du Mo. En effet un creuset d'alumine avait été mis sur le porte-échantillon en Nickel pour protéger le dessus de la bille liquide. Le sel est entré en contact et a nappé l'alumine en créant des zones de drainage du sel. Ces mouvements sont favorables au rassemblement en amas. La figure 10.13 montre deux zones caractérisant bien les deux aspects possibles.

A la surface de cet échantillon, on trouve des zones où les deux populations se côtoient. En figure 10.14 , on distingue en bordure d'une "plaque" de molybdène une fine répartition de grains de l'ordre de 50 à 200 nm.

10.5 Conclusions de l'expérience

De ces expériences, simplifiées par rapport à la réalité que constituerait un coeur de réacteur en fonctionnement, nous pouvons tout de même tirer des conclusions nettes et importantes. Le grossissement nécessaire pour passer de particules de l'ordre de 20 nm à 500 nm peut être rapide, de l'ordre de 10 minutes dans nos conditions expérimentales. Il aboutit à des particules de forme relativement compacte, qui s'associent ensuite entre elles au gré des rencontres à la surface du liquide. En fonction du temps, ces amas, dont la structure est peu dense et probablement assez fragile, peuvent se réarranger en plaques denses de grande taille (supérieure à 10 μm). Ce réarrangement demande certainement des conditions de confinement dans une zone "tranquille" du point de vue hydrodynamique.

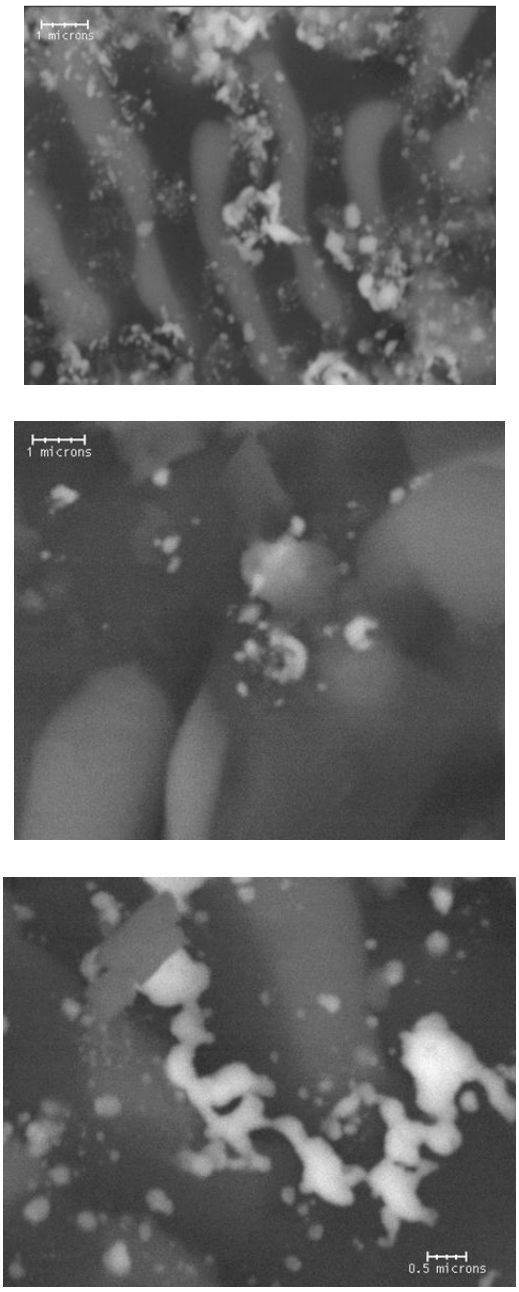


FIG. 10.12 – Observation des amas en surface de la bille pour un temps de fusion de 10 minutes (en haut), de 1 heure (au milieu) et de 2 heures (en bas).

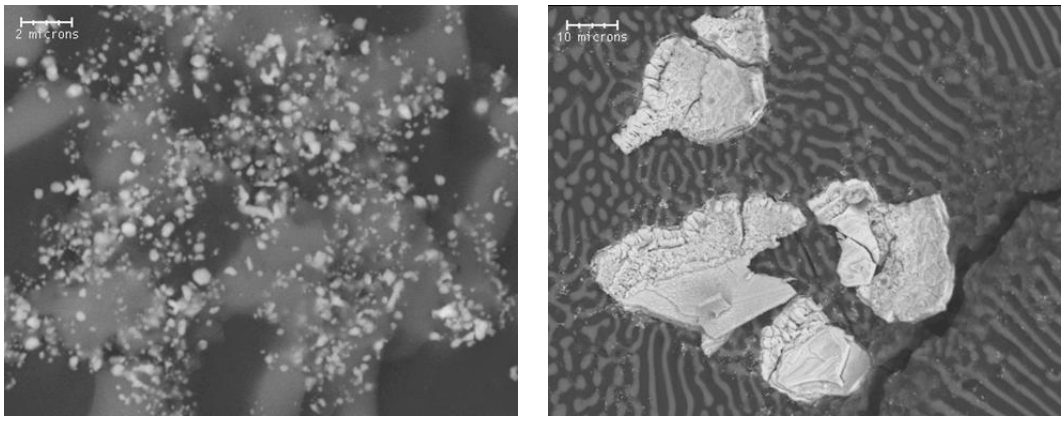


FIG. 10.13 – Observation des amas en surface de la bille pour un temps de fusion de 4 heures : une zone de fine dispersion comme pour des temps courts (à gauche) et des plaques de Mo (à droite).

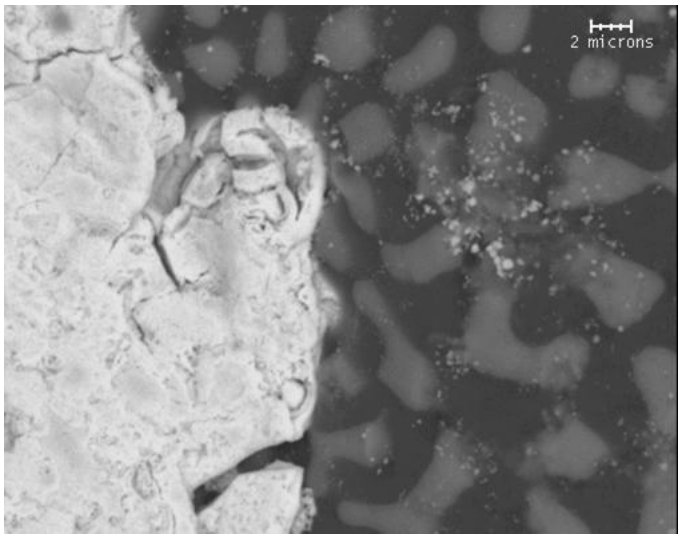


FIG. 10.14 – Observation des amas en surface de la bille pour un temps de fusion de 4 heures : une zone de fine dispersion comme pour des temps courts et des plaques de Mo.

Parallèlement à la croissance et l'agglomération des grains de molybdène, il préexiste sûrement une population de petites particules (inférieures à 200 nm) qui n'émergent pas à une interface (bulle ou surface). Elles ont donc une très faible probabilité de rencontrer d'autres particules, et de former un début d'amas. Lors de la cristallisation de l'échantillon, elles peuvent être rejetées en surface par l'avancée du front de solidification.

Les mécanismes de frittage visiblement mis en oeuvre sont extrêmement efficaces. La formation des gros amas et des plaques de molybdène à 820 °C est un phénomène étonnant quand on considère la température de fusion du molybdène (2617 °C). Il est évident que les phénomènes mis en jeu sont complexes et ne se résument pas à la simple diffusion d'atomes de molybdène. Ils font sans doute intervenir, des impuretés (Fe, espèces fluorées ?), et nécessitent d'être étudiés de manière plus approfondie.

Ces résultats nous permettent d'assurer qu'une forte proportion de particules métalliques peuvent être extraites en utilisant les interfaces liquide/gaz. Les probabilités de rencontre doivent être suffisantes entre particules, par exemple si elles sont très petites mais extrêmement nombreuses. Sinon le temps de séjour et le mouvement des interfaces doivent être adaptés à la capture des "individus" isolés.

Chapitre 11

Synthèse générale

Grâce aux différentes études que nous avons menées, nous sommes plus à même de comprendre le fonctionnement des RSF en cycle thorium. En particulier, il est maintenant beaucoup plus facile de définir un concept de réacteur satisfaisant au mieux nos contraintes (sûreté, régénération, tenue des matériaux, inventaire...). Compte tenu du nombre important d'études réalisées, nous allons maintenant clarifier l'ensemble des principes découverts ou redécouverts. Pour ce faire, nous allons parcourir l'une après l'autre les contraintes, en essayant d'apporter si besoin des solutions pour les satisfaire. Petit à petit, plusieurs configurations apparaîtront de façon assez naturelle. L'ordre choisi pour les contraintes nous paraît le plus approprié mais n'est nullement imposé.

Après cette étude, nous présenterons plus en détail les diverses configurations auxquelles nous serons parvenus. Si quelques unes seulement sont décrites, cela ne signifie pas que ce sont les seules, ni que ce sont les meilleures. Ce sont simplement plusieurs exemples démontrant la faisabilité - principalement neutronique- et l'adaptabilité des Réacteurs à Sel Fondu.

11.1 Principes généraux découlant des études

Dans la partie qui va suivre, nous allons supposer acquises certaines caractéristiques pour les réacteurs, de manière à pouvoir nous servir des résultats présentés tout au long de cet ouvrage. Ainsi, le réacteur produit 1000 MWe à partir de 2500 MWth, fonctionne à 630 °C et utilise 20 m^3 de sel dont la composition est 78% LiF - 22% (NL)F_4. Ce sel circule dans une matrice de graphite constituée d'hexagones de 15 cm de côté. Le retraitement de la totalité du coeur est effectué en 6 mois, avec extraction de l'ensemble des PF et des TRU. De plus le coeur est entouré d'une couverture fertile, et l'^{233}U formé est extrait en 6 mois.

11.1.1 Sûreté

Le spectre neutronique est sans conteste le paramètre le plus important d'un réacteur nucléaire puisqu'il conditionne le comportement global du coeur. On définit, plus ou moins arbitrairement,

quatre grandes catégories de spectres : très thermique, thermique, épithermique et rapide (figure 5.5 page 99).

La sûreté du réacteur, tout du moins la partie concernant les coefficients de température, est satisfaisante pour les configurations à spectre très thermalisé ou épithermique, et très bonne pour celles à spectre rapide. Le coefficient de température dû à la densité du sel, important en cas de passage de bulle ou de présence de corps étrangers [1], est négatif pour les spectres très thermalisés ou rapides. Seules les configurations thermalisées n'ont pas de coefficients de température négatifs. Ce problème peut être résolu en homogénéisant le coeur, principalement par l'utilisation d'un réseau d'hexagones de paramètre de maille plus petit.

Ainsi, bien que n'étant pas égaux pour cette contrainte, tous les spectres neutroniques permettent d'obtenir une sûreté acceptable, voire très satisfaisante.

11.1.2 Régénération

En raison de la forte proportion de modérateur, les capacités de régénération des configurations très thermalisées sont mauvaises, et ce de façon irrécupérable (avec une couverture fertile, un retraitement efficace ou quelque autre paramètre). Réservées à des utilisations très spécifiques sous-génératrices, on ne considèrera pas ces configurations comme acceptables pour un réacteur de puissance dans le cadre d'une utilisation durable.

Les autres configurations conduisent, grâce à la couverture fertile mais malgré un retraitement assez lent, à des taux de régénération supérieurs à 1. On notera également les très bons résultats obtenus dans ce domaine par les configurations rapides, qui peuvent se passer de couverture tout en restant régénératrices.

11.1.3 Tenue des matériaux

L'irradiation du graphite est un réel problème. Celui des configurations thermalisées a une durée de vie assez acceptable, mais un flux important de graphite irradié doit alors être géré. Les configurations à spectre rapide n'ont quant à elles que peu de graphite, mais celui-ci doit être changé très fréquemment. Les configurations épithermiques constituent pour leur part une situation intermédiaire, mêlant problèmes de remplacement et de gestion.

Face à ce problème, la configuration rapide avec un unique canal de sel est très intéressante puisque ne contenant pas de graphite au sein du coeur. Compte tenu des problèmes posés par la présence, même faible, de graphite en coeur, on assimilera par la suite l'ensemble des configurations rapides à cette configuration particulière.

L'utilisation d'un matériau modérateur différent du graphite pourrait peut-être atténuer ces problèmes. Il s'agirait alors de trouver un matériau aussi peu capturant, et dont la résistance à l'irradiation est supérieure à celle du graphite. En l'absence de données sur les matériaux, nous n'avons pas mené

[1] Rappelons que le coefficient de température dû à la densité caractérise une variation globale de la densité du sel. Cependant, il donne une bonne indication des effets d'une variation locale de densité.

d'études. Cependant, le $^{11}B_4C$ pourrait être un candidat intéressant, d'autant que les sections efficaces microscopiques (diffusion élastique et capture) du ^{11}B sont presque identiques à celles du ^{12}C. Ainsi, on sait d'ores et déjà que l'utilisation de $^{11}B_4C$ au lieu du graphite donnerait les mêmes résultats neutroniques.

11.1.4 Inventaire nécessaire

La quantité de matière fissile requise pour des configurations thermalisées est faible, et celle des configurations épithermiques, bien que supérieure, reste acceptable. La configuration *cu* nécessite en revanche un inventaire important, qui représente le seul réel problème de ce type de réacteur parmi les diverses contraintes étudiées.

La manière la plus simple de réduire l'inventaire nécessaire par GWe est d'accroître la puissance spécifique, soit par une diminution de la quantité de sel combustible, soit par une augmentation de la puissance totale. Cette option n'est pas sans conséquences. D'une part, l'augmentation du flux dégrade encore plus fortement le graphite modérateur, et d'autre part la quantité de chaleur à extraire par les échangeurs est plus grande. Pour la configuration *cu*, seul le deuxième point est problématique, et la réduction possible d'inventaire nécessaire par GWe est très fortement liée aux capacités des échangeurs de chaleur.

Parallèlement à ceci, une autre possibilité est d'augmenter la température de fonctionnement du réacteur. Celle-ci présente deux intérêts majeurs :

- L'augmentation du rendement thermodynamique. Cela peut se traduire par une diminution de l'inventaire de matière fissile, une amélioration des capacités de régénération, une réduction de la production de déchets... Bien que tous ces avantages ne soient pas cumulatifs, l'augmentation du rendement offre des atouts indéniables.
- Possibilité de réduction de la proportion de Noyaux Lourds dans le sel. Ceci permet une diminution de l'inventaire nécessaire et/ou de la puissance spécifique. Cela se paie cependant par des capacités de régénération dégradées.

Une augmentation de la température implique obligatoirement un remplacement des matériaux utilisés pour les structures, l'Hastelloy ne pouvant résister à ces températures. Des matériaux à base de carbone (carbure, fibre de carbone, carbone-carbone) pourraient être utilisés. Evidemment, si cela s'avérait impossible, cette option devrait être ignorée. Notons également la dégradation significative de la tenue du graphite avec la température, qui rend d'autant plus délicats les problèmes liés à son remplacement et sa gestion. Signalons enfin qu'un RSF à très haute température permettrait la production d'hydrogène, de la même manière qu'un Very High Temperature Reactor (VHTR).

11.2 Configurations possibles

Maintenant que voila exposés les grands principes, nous allons maintenant définir des configurations possibles de réacteurs et donner leurs performances vis-à-vis des contraintes principales.

11.2.1 Configurations à spectre thermique

11.2.1.1 Description et performances

La configuration *r4*, à spectre thermique, a un coefficient de température positif. Afin de résoudre ce problème, on s'intéresse plutôt à la configuration disposant d'hexagones de 5 cm de côté mais de même rapport de modération : *h5-r1.33*. Un tel réacteur mesure 2.55 m de rayon pour 5.35 m de hauteur, et comprend 3036 hexagones dans le coeur et 1303 dans la couverture. Les performances globales de cette configuration sont indiquées dans le tableau 11.1.

Contrainte	Résultat
Coefficient de température total Coefficient de température de densité	-0.78 $\pm$ 0.05 pcm/°C +0.86 $\pm$ 0.05 pcm/°C
Taux de régénération	1.019
Flux de neutron Durée de vie moyenne du graphite Flux de graphite à retraiter	6.4 x10^{14} n/cm^2/s 5.5 ans $\simeq$30 t/an (16 m^3/an)
Inventaire d'^{233}U nécessaire	890 kg

TAB. 11.1 – Performances globales de la configuration à spectre thermique par rapport aux contraintes.

Son coefficient de température n'est pas franchement négatif et reste tout de même problèmatique. De même, la durée de vie moyenne de 5.5 ans se réduit à environ 2 ans pour le graphite le plus irradié. Cependant, son taux de régénération est supérieur à 1 et peut être valorisé, comme nous allons le voir par la suite. De même, son inventaire nécessaire est relativement faible et une augmentation de celui-ci ne serait pas rédhibitoire. Aux résultats présentés dans le tableau, ajoutons aussi les pertes de charge dans les canaux acceptables (de l'ordre de 1 bar) et le retraitement considérablement plus simple que celui du MSBR (traitement en 6 mois).

11.2.1.2 Autres versions

Compte tenu du coefficient de température total faiblement négatif, une configuration plus petite, augmentant les fuites neutroniques, serait préférable. Afin de ne pas augmenter la puissance spécifique, dégrader plus rapidement le graphite et accroître le flux à retraiter, il est préférable que cette diminution de taille s'accompagne d'une diminution de la puissance totale du réacteur.

Pour un réacteur produisant 500 MWe (avec 1250 MWth), contenant 10 m^3 de sel et dont le temps de retraitement est de 6 mois [2], les changements par rapport à la situation précédente sont : un coefficient de température d'environ -1.5 pcm/°C (par extrapolation) et un taux de régénération de 1.018. Le graphite subit la même irradiation, mais le flux n'est que de 15 t/an (30 t/an pour 1 GWe). Quant à l'inventaire nécessaire, il reste d'approximativement 1 tonne d'^{233}U par GWe.

Evidemment, il est possible d'imaginer d'autres versions que celle-ci. Sans réduire la taille, on peut imaginer un retraitement en 1 an au lieu de 6 mois (perte de régénération d'environ 0.020), ce qui nous amènerait à l'iso-génération. Il est difficile d'envisager un réacteur asymétrique car les pertes de charge dans les canaux, atteignant déjà 1 bar, seraient très fortement accrues. Si la valeur faiblement négative du coefficient de température est jugée acceptable, il est alors possible de réduire la puissance totale du réacteur. Même si le flux de graphite à traiter est inchangé, cela permet d'allonger sa durée de vie au détriment de l'inventaire par GWe.

11.2.2 Configurations à spectre épithermique

11.2.2.1 Description et performances

La configuration dite "de référence" est une configuration possible de RSF. Rappelons que son coeur mesure 1.60 m de rayon pour 3.30 m de hauteur, et contient 120 canaux de sel fissile, et 90 canaux de sel fertile dans la couverture. Les diverses propriétés de cette configuration sont rassemblées dans le tableau 11.2.

Contrainte	Résultat
Coefficient de température total	-2.35 $\pm$ 0.05 pcm/°C
Coefficient de température de densité	+3.19 $\pm$ 0.05 pcm/°C
Taux de régénération	1.000
Flux de neutron	1.4 x10^{15} n/cm^2/s
Durée de vie moyenne du graphite	1.75 ans
Flux de graphite à retraiter	$\simeq$18 t/an (10 m^3/an)
Inventaire d'^{233}U nécessaire	1 920 kg

TAB. 11.2 – Performances globales de la configuration à spectre épithermique "de référence" par rapport aux contraintes.

Cette fois le coefficient de température total est assez négatif, mais celui lié à la densité du sel est quant à lui fortement positif. Avec un retraitement en 6 mois, le réacteur est iso-générateur, ce qui est suffisant mais ne laisse pas beaucoup de marge de manoeuvre. Le flux étant plus élevé et le spectre plus rapide, le graphite dure moins de 2 ans en moyenne, et 6 mois seulement au centre du coeur. De plus, la quantité à retraiter reste importante malgré la diminution de la masse de modérateur.

[2] Comme pour l'étude en fonction de la puissance spécifique, on garde constant le flux de NL à traiter pour 1 GWe produit. Dans le cas présent, les deux réacteurs de 500 MWe se "partagent" une même unité de retraitement.

11.2.2.2 Autres versions

Ce réacteur représente un compromis entre les différentes contraintes. Il est tout juste régénérateur, ne dispose pas d'un coefficient de température très négatif, nécessite un remplacement assez fréquent du graphite ainsi qu'une quantité de matière fissile assez importante. Si elle reste acceptable, cette configuration n'accepte en revanche que peu de versions différentes.

Il est cependant possible d'envisager une division du coeur en plusieurs zones de modération, de manière à aplatir la nappe de flux. Sans compromettre les performances de régénération, cela permettrait d'allonger la durée de vie du graphite le plus irradié.

11.2.3 Configurations à spectre rapide

11.2.3.1 Description et performances

Pour la configuration à spectre rapide, nous choisirons évidemment celle constituée d'un unique canal de sel de 1.25 m de rayon pour 2.60 m de haut. Ce coeur est entouré d'une couverture constituée de seulement 66 hexagones. Les diverses propriétés de cette configuration sont rassemblées dans le tableau 11.3.

Contrainte	Résultat
Coefficient de température total	-5.37$\pm$ 0.04 pcm/°C
Coefficient de température de densité	-2.02 $\pm$ 0.04 pcm/°C
Taux de régénération	1.119
Flux de neutron	2.0 x10^{15} n/cm^2/s
Durée de vie moyenne du graphite	-
Flux de graphite à retraiter	-
Inventaire d'^{233}U nécessaire	5 470 kg

TAB. 11.3 – Performances globales de la configuration à spectre rapide par rapport aux contraintes.

Ce réacteur dispose de très bonnes performances, tant en terme de sûreté (les deux coefficients sont négatifs) qu'en terme de régénération. De plus, il n'est que peu handicapé par les problèmes d'irradiation du graphite. Le seul inconvénient de cette configuration est son inventaire nécessaire de près de 5.5 tonnes.

11.2.3.2 Autres versions

Le premier objectif étant de diminuer l'inventaire, il est possible d'augmenter la puissance spécifique du coeur. La limite apportée à cette augmentation n'est fixée que par les possibilités d'extraction de la chaleur du coeur. En effet, il n'y a pas de graphite soumis à un flux intense et la régénération est largement suffisante pour autoriser une telle modification.

Compte tenu des très bonnes capacités de régénération de cette configuration, un grand nombre de variantes permettent de valoriser les neutrons disponibles. Le temps de retraitement peut être considérablement allongé, jusqu'à plus de 10 ans, tout en gardant un réacteur régénérateur. Le retraitement peut même être supprimé, le réacteur pouvant fonctionner plus de 20 ans sans apport de matière fissile. Toujours dans cette optique, un tel réacteur sans unité de retraitement mais pourvu d'une unité de dilution des PF (voir section 7.5 page 174), peut fonctionner pendant un siècle sans alimentation de matière fissile. D'un autre côté, si l'on conserve le retraitement standard en 6 mois, cette configuration de réacteur peut se passer de couverture fertile tout en restant régénératrice.

11.2.3.3 Version "Très Hautes Températures"

Comme il a été précisé auparavant, l'augmentation de température nuit à la résistance du graphite à l'irradiation. Mais pour une configuration à canal unique de sel, cette option perd l'un de ses inconvénients. Intéressons-nous donc de plus près à ce que l'on peut obtenir par cette méthode. Afin de réduire l'inventaire sans pénaliser trop fortement l'extraction de la puissance thermique, utilisons un sel contenant 10 % de (NL)F_4 au lieu de 22 %, mais sans changer la taille du réacteur. Compte tenu de l'augmentation du rendement thermodynamique, il est même possible de revenir à la puissance spécifique du système de référence (par exemple par un accroissement de la puissance totale). Les performances d'un réacteur fournissant 1500 MWe avec 2500 MWth sont indiquées dans le tableau 11.4.

Contrainte	Résultat
Coefficient de température total	-8.33± 0.07 pcm/°C
Coefficient de température de densité	-4.82± 0.06 pcm/°C
Taux de régénération	1.006
Flux de neutron	2.7 x10^{15} n/cm^2/s
Durée de vie moyenne du graphite	-
Flux de graphite à retraiter	-
Inventaire d'^{233}U nécessaire (pour 1.5 GWe)	3050 kg

TAB. 11.4 – Performances globales de la configuration à spectre rapide et haute température par rapport aux contraintes.

Un tel système ne nécessite pas un retraitement plus complexe ou des échangeurs de chaleur plus puissants que pour les autres configurations présentées, mais il est indispensable d'avoir des matériaux résistant aux hautes températures. L'inventaire de matières fissiles, seul problème des configurations *cu*, est réduit à environ 2 tonnes par GWe, ce qui est très raisonnable.

11.3 Questions en suspens

Certaines des “options” dont on dispose dans notre recherche de configurations possibles, dépendent d’inconnues d’ordre technologique. Les exemples les plus révélateurs concernent la fluoration de l’uranium, l’efficacité de l’extraction de la puissance thermique par les échangeurs, le fonctionnement du réacteur à plus de 1000 °C, etc...

La fluoration est une étape indispensable au bon fonctionnement d’un RSF puisqu’elle est utilisée pour le retraitement, la couverture et le procédé de dilution. Aucune configuration de réacteur ne peut être régénératrice sans ce procédé. Fort de l’expérience acquise grâce au MSRE [12], nous avons considéré la fluoration comme acquise dans nos études. Il est cependant essentiel d’améliorer notre connaissance de ce procédé, en particulier le flux que l’on peut traiter, les éléments secondaires entraînés et les efficacités d’extraction.

L’augmentation de la puissance spécifique du coeur est quant à elle fortement limitée par la capacité des échangeurs de chaleur. Des études poussées doivent donc être réalisées afin de mieux connaître leurs performances, et dimensionner au mieux le réacteur. Plus précisément, on s’intéressera au volume de sel utilisé par ces échangeurs et la différence de température qu’ils peuvent supporter.

La possibilité d’opérer à très haute température permet de définir de bien meilleures configurations de réacteur. Cependant, cette voie ne pourra être validée que lorsque la recherche concernant les matériaux résistant à ces températures sera plus avancée. Ces recherches bénéficient des travaux réalisés pour le VHTR, mais doivent prendre en compte le fort pouvoir corrosif des sels fondus. Il est important de noter que les matériaux utilisés peuvent être différents suivant l’usage, selon qu’ils sont placés en coeur, qu’ils composent les canalisations, les échangeurs, les pompes ou les isolants.

Parallèlement à cela, un matériau différent du graphite pourrait être utilisé comme modérateur. Il s’agirait évidemment de trouver un matériau moins sensible aux flux de neutrons, c’est-à-dire ne subissant pas de variations trop fortes de ses caractéristiques physiques (en particulier le volume) lors de l’irradiation. Compte tenu des contraintes concernant le pouvoir capturant d’un tel matériau, peu d’éléments peuvent remplir ce rôle. On distinguera deux candidats : le BeO et le $^{11}B_4C$. Le premier, utilisé pour le modérateur de l’Aircraft Reactor Experiment [10], présente l’inconvénient d’utiliser du béryllium. Le second nécessite un enrichissement très efficace du bore en ^{11}B, afin de limiter les captures sur le ^{10}B. Signalons que ces matériaux, et particulièrement le $^{11}B_4C$, ont des propriétés neutroniques similaires à celles du graphite. Leur utilisation ne devrait donc pas changer fondamentalement les résultats obtenus [3]. Dans le cas du graphite, il convient de définir comment gérer le modérateur une fois irradié, s’il peut être retraité ou s’il doit être stocké.

Bien sûr, des interrogations demeurent concernant le retraitement du combustible. Nous avons fait l’hypothèse qu’un temps suffisamment long rendait possible l’extraction de tous les PF, notamment grâce à l’extraction préalable du Th. Cette étape est nécessaire compte tenu de la difficulté que repré-

[3] On parle ici de sections efficaces microscopiques de capture et de diffusion élastique, mais pas de données physiques macroscopiques telle que la densité. Utiliser ces matériaux requiert donc un travail d’ajustement de certains paramètres du coeur.

sente le Th lors de l'extraction des PF. Il est donc nécessaire de s'assurer de la faisabilité de cette étape clé [4]. Si tel n'est pas le cas, une solution de remplacement, même de faible efficacité, doit être trouvée. De la même manière, l'efficacité du système de bullage doit être mieux connue, particulièrement dans le cas des réacteurs à spectre thermalisé. Il serait enfin essentiel de connaître le comportement chimique du sel lorsqu'il se charge en PF, et en particulier lorsque leur concentration atteint la limite de solubilité.

Enfin, signalons que toutes nos études ne concernent que peu les aspects dynamiques, en particulier le comportement du coeur en situation accidentelle, et qu'il convient de poursuivre les études sur le sujet.

[4] Notons qu'il n'est pas problématique si des PF accompagnent le Th lors de cette étape. L'important est surtout d'éviter que le Th ne reste dans le sel pour la suite de l'unité de retraitement.

Conclusion

Depuis plusieurs décennies, la menace d'un réchauffement planétaire se précise. Des indices de plus en plus nombreux nous mettent en garde contre ce bouleversement climatique. L'effet de serre, par ailleurs responsable de la température moyenne clémente de notre planète, se renforce essentiellement en raison de l'augmentation de la concentration de CO_2 dans l'atmosphère. Cette hausse, d'origine anthropique, est due aux gaz émis par nos moyens de production d'énergie, nos transports, notre chauffage... Au vu des conséquences possibles du réchauffement climatique, il apparaît nécessaire de limiter nos émissions de CO_2, et par là même de trouver d'autres méthodes de production d'énergie que l'utilisation des combustibles fossiles. Le développement de l'énergie nucléaire, entre autres, s'inscrit dans cette optique. Pour que cela soit significatif, les capacités de production d'énergie électronucléaire devraient croître très fortement au cours de ce siècle. Or une telle croissance n'est pas sans poser des problèmes de ressources naturelles, de gestion de déchets radioactifs, et de sûreté. Une solution à ces diverses contraintes peut être apportée par l'utilisation du cycle thorium dans des Réacteurs à Sels Fondus (RSF).

Ces réacteurs, utilisant un combustible liquide circulant dans un modérateur solide, ont été expérimentés avec succès dans les années 1960. Le projet de réacteur de puissance Molten Salt Breeder Reactor (MSBR) n'a cependant pas été retenu à l'époque. Bien qu'il ait été réévalué plusieurs fois au cours des dernières décennies, le MSBR souffre de plusieurs problèmes majeurs. En particulier, ce concept vise à obtenir la meilleure régénération, grâce à un retraitement du combustible très performant et donc très contraignant. Ce retraitement est considéré aujourd'hui comme irréalisable. De plus, les récentes réévaluations ont attribué au MSBR un coefficient de température total légèrement positif, et non négatif comme indiqué à l'époque. Cela en fait un réacteur possiblement instable. Pour ces différentes raisons, le concept MSBR, bien que toujours considéré comme un des RSF de référence, ne peut pas aboutir à une installation industrielle.

Dans l'optique de trouver des solutions à ces divers problèmes et de définir le concept de Thorium Molten Salt Reactor (TMSR), nous avons mené un certain nombre d'études sur le sujet. Comme tout réacteur nucléaire, le TMSR doit répondre à différentes contraintes, au-delà des critères établis par le forum international Generation-IV. L'étude que nous avons menée consiste à analyser simultanément l'impact de plusieurs paramètres du coeur sur l'ensemble de ces contraintes. Cette solution vise à éviter de se fourvoyer trop longtemps dans des axes de recherche prometteurs dans un domaine, pour découvrir plus tard leur incompatibilité vis-à-vis des autres critères. Un grand nombre de caractéristiques du coeur ont été soumises à cette analyse, ce qui a permis de réaliser une étude paramétrique

détaillée des RSF en cycle thorium, et de mieux comprendre les phénomènes physiques régissant leur comportement. Nous avons été amenés à élargir considérablement notre champ de recherche. Nos premières études concernant le rapport de modération, au-delà des études précédentes, ont montré un comportement du coeur inattendu. En particulier, l'évolution du taux de régénération n'est absolument pas monotone. Fort de cette expérience, nous avons étudié la variation de nombreuses caractéristiques du coeur sur une très large gamme.

Mises à part les configurations très thermalisées, le coefficient de température s'améliore lorsque la thermalisation diminue, et ce jusqu'au spectre rapide. Nous confirmons donc les mauvaises caractéristiques de sûreté du MSBR, dont le spectre n'était pas assez dur. Signalons qu'une diminution du paramètre de maille du réseau modérateur, qui revient à diminuer l'hétérogénéité entre sel et graphite, permet de rendre les coefficients de température des configurations thermalisées négatifs. Par ailleurs, grâce à l'augmentation du nombre de neutrons disponibles, le taux de régénération est bien meilleur pour les configurations rapides que épithermiques. Parallèlement à cela, le durcissement du spectre s'accompagne à la fois d'une réduction de la durée de vie du modérateur et du flux de graphite irradié à gérer, ainsi que d'une augmentation prévisible de l'inventaire de matière fissile.

On retiendra que les autres paramètres géométriques, tels que le volume du coeur ou le découpage en zones de modération, permettent une amélioration des performances du réacteur. Il est par exemple possible de réduire l'inventaire par GWe par une augmentation de la puissance spécifique du coeur. Par contre, le problème posé par l'irradiation du graphite ne trouve pas de solution très satisfaisante. Jouer sur le découpage du coeur en différentes zones de modération aplatit le flux et homogénéise les dommages reçus, mais ne change rien à la courte durée de vie du modérateur. La configuration la plus rapide, ne contenant pas de graphite en coeur dans les régions de flux intense, est la seule qui ne soit pas handicapée par ce problème.

Si le coeur est entouré d'une couverture fertile, il n'est nullement indispensable de recourir à un retraitement très efficace pour garder la régénération. En effet, un retraitement de l'ensemble du coeur en 6 mois est suffisant dans la plupart des cas standards, c'est-à-dire dont les pertes neutroniques par fuites ou captures dans le modérateur sont suffisamment faibles. Les bonnes performances dans ce domaine des configurations à spectre rapide leur permettent même de se passer de couverture fertile. Concernant le retraitement, on retiendra la possibilité de retirer les TRansUraniens (TRU), ce qui accumule de grandes quantités de Np mais peu, voire très peu, d'éléments plus lourds. Bien que ne respectant pas le critère d"'auto-incinération" de Generation-IV, ce type de retraitement facilite grandement la gestion des TRU par des réacteurs plus adaptés.

Toutes ces études nous ont apporté une compréhension nouvelle du comportement des RSF, depuis les spectres très thermalisés jusqu'aux spectres rapides. Les résultats obtenus marquent une rupture vis-à-vis des connaissances passées. L'association usuelle entre cycle thorium, RSF et spectre (épi)thermique est maintenant dépassée, puisque les spectres rapides donnent des résultats très satisfaisants, voire bien meilleurs. Ceci remet également en cause les conséquences d'un démarrage du

réacteur avec du plutonium. Produisant trop de TRU en spectre (épi)thermique, cette voie ne peut à présent plus être ignorée pour les RSF à spectre rapide.

Il existe maintenant des solutions aux problèmes soulevés par le MSBR. Les coefficients de température peuvent être rendus négatifs, soit par un durcissement du spectre neutronique, soit par un maillage plus serré du réseau modérateur. Le réacteur peut être régénérateur pour des retraitements plus simples que celui envisagé pour le MSBR, et ce grâce à une couverture en thorium (ou sans pour un réacteur à spectre rapide). Enfin, le problème posé par la courte durée de vie du modérateur peut trouver une solution avec la configuration rapide ne contenant pas de graphite en coeur.

Néanmoins, de nombreuses interrogations subsistent qui rendent incertaines l'utilisation de plusieurs voies explorées dans cet ouvrage. En tout premier lieu, l'étape de fluoration est indispensable au fonctionnement d'un RSF, tant pour le retraitement que pour la récupération de l'uranium d'une couverture fertile. Ce procédé a été considéré comme validé dans cet ouvrage. Cependant, compte tenu de son importance, une plus grande maîtrise est nécessaire (efficacité d'extraction, éléments secondaires extraits, cinétique du procédé...). Les échangeurs de chaleur constituent un second domaine à étudier en priorité. En effet, leur efficacité est fortement liée à la puissance spécifique du coeur, et de ce fait au volume de combustible et à l'inventaire en matière fissile. Une meilleure connaissance dans ce domaine est donc indispensable pour dimensionner le réacteur. D'une importance moindre, l'étude de la faisabilité de la couverture fertile est tout de même essentielle. En effet, peu de configurations de réacteur peuvent se passer de couverture tout en gardant la régénération. Enfin, la chimie des sels fondus doit être mieux connue. En particulier, le comportement du sel fortement chargé en PF (précipitation génante ou contrôlée) et l'extraction lente des lanthanides en présence de thorium sont deux points fondamentaux à éclaircir. Signalons que toutes ces études doivent être réalisées à la température standard, mais également à très haute température (1000 °C) en raison des nombreuses répercussions positives que cela engendre.

Nous retiendrons de ce travail que des configurations très acceptables de réacteurs peuvent ainsi être définies, répondant au mieux aux différentes contraintes, et ce pour tout type de spectre neutronique. Sans négliger les autres solutions, notre attention se porte plus particulièrement sur celle composée d'un canal unique de sel dans sa version conventionnelle ou très haute température.

Annexe A

Etudes des corrélations entre sous-coefficients de température

Rappelons que le coefficient de température total peut, si l'on néglige les corrélations entre effets, être décomposé en plusieurs sous-coefficients selon la formule :

$$\frac{dk}{dT}\Big)_{total} = \frac{dk}{dT}\Big)_{echauffement_sel} + \frac{dk}{dT}\Big)_{dilatation_sel} + \frac{dk}{dT}\Big)_{echauffement_graphite} \tag{A.1}$$

Il convient cependant de vérifier que les corrélations sont effectivement négligeables. Pour ce faire, nous nous intéressons à l'écart entre coefficient total et somme des sous-coefficients :

$$E = \frac{dk}{dT}\Big)_{total} - \sum_i \frac{dk}{dT}\Big)_i$$

avec $\frac{dk}{dT})_i$ les sous-coefficients de température. Pour tenir compte de la grande disparité des précisions, cet écart E est normalisé par son erreur statistique :

$$\Delta E = \sqrt{\left[\Delta \frac{dk}{dT}\Big)_{total}\right]^2 + \sum_i \left[\Delta \frac{dk}{dT}\Big)_i\right]^2}$$

avec $\Delta \frac{dk}{dT})_i$ l'erreur statistique sur chaque sous-coefficient de température. $\frac{|E|}{\Delta E}$ est alors représenté en fonction de cette erreur ΔE sur la figure A.1. Cette observable est exprimée en "nombre d'écart type". Si des termes croisés devaient être rajoutés dans l'équation A.1, cela se traduirait par de fortes valeurs de $\frac{|E|}{\Delta E}$, particulièrement pour les calculs précis. Cela n'apparaît pas évident au vu de la figure A.1.

Une organisation des points en histogramme permet une meilleure visualisation du phénomène. La figure A.2 présente la fonction de répartition de la distribution comparée à la fonction erreur $erf\left(\frac{x}{\sqrt{2}}\right)$. Une absence totale de corrélation se traduirait par une superposition de l'histogramme et de la courbe, ce qui n'est pas tout à fait le cas. On observe ainsi un écart E légèrement plus grand

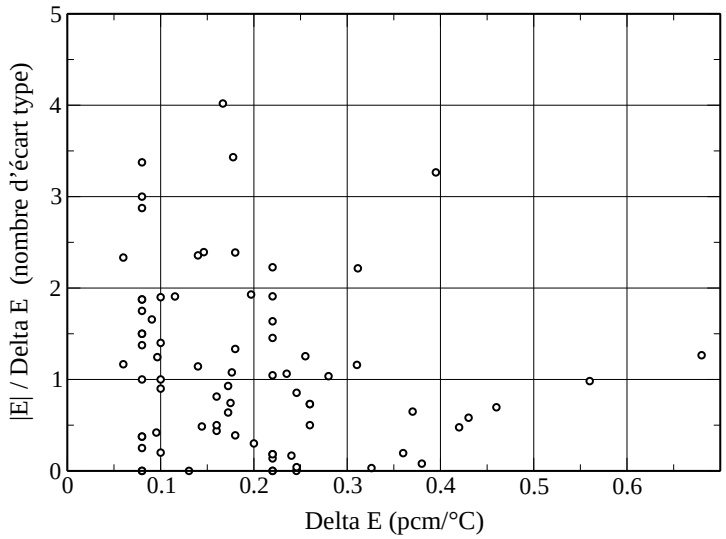


FIG. A.1 – Visualisation normalisée de la différence entre le coefficient de température total et la somme des sous-coefficients.

que la normale. Cette différence peut cependant être considérée comme minime, et les termes croisés négligés.

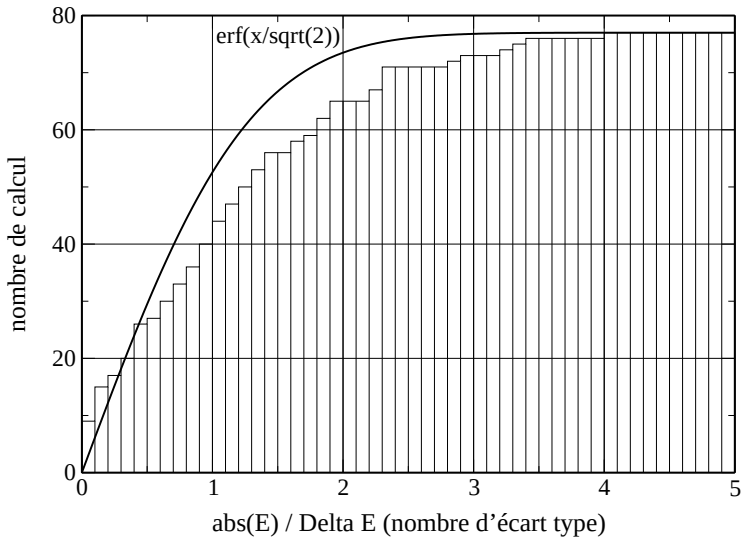


FIG. A.2 – Fonction de répartition de la distribution de $\frac{|E|}{\Delta E}$.

Annexe B

Tables de correspondances

Cette annexe rassemble les différentes tables de correspondance pouvant être utiles pour la compréhension de cet ouvrage. En particulier y est présenté le lien entre rayon des canaux et rapport de modération. Nous prendrons comme définition pour ce rapport la proportion du volume occupé par le sel au sein du bloc modérateur. Cette définition est loin d'être sans défaut, puisqu'elle ne prend en compte ni la densité des matériaux, ni le pouvoir modérateur des éléments légers du sel.

Configuration (*h15)*	*r1*	*r2*	*r4*	*r6*	*r8.5*	*r10*	*r12*	*cu*
Rapport de modération (%)	0.54	2.1	8.6	19	39	54	77	100
Proportion ^{233}U / NL (%)	2.17	1.58	1.42	1.64	2.82	5.05	8.77	10.15

TAB. B.1 – Table de correspondance entre rayon des canaux, rapport de modération, et proportion d'^{233}U dans les NL pour une taille d'hexagones de 15 cm.

Quelques caractéristiques des configurations à deux zones de modérations, étudiées au chapitre 6, sont exposées dans la table B.2.

Rayon des canaux zone interne (cm)	3	5	7	8	9	10	9	10	10	10	12
Nombre de canaux zone interne	150	150	60	108	36	60	72	60	42	30	30
Rayon des canaux zone externe (cm)	5	3	9	6	7	4	7	6	8	12	10
Nombre de canaux zone externe	162	162	66	30	102	102	54	66	78	54	54
Proportion ^{233}U / NL (%)	1.49	1.46	2.10	2.39	2.46	2.67	3.04	3.47	3.79	6.08	7.65

TAB. B.2 – Table de correspondance pour les configurations à deux zones de modération.

Annexe C

Données concernant la décomposition des coefficients de température

Cette annexe détaille les caractéristiques des configurations *r2*, *r8.5*, *r12* et *cu* utilisées pour la compréhension des coefficients de température au chapitre 5. En particulier, ces données sont liées à la décomposition des coefficients de température selon la formule 4.18 rappelée ici :

$$\begin{aligned} dk &= k\left[(C_{sel_th}x_{sel_th} - A_{sel_th}y_{sel_th}) + \left(C_{sel_pl}x_{sel_pl} - A_{sel_pl}y_{sel_pl}\right)\right. \\ &\quad \left. - A_{couv}y_{couv} - A_{gr}y_{gr} - A_{esc}y_{esc}\right] \qquad \text{(C.1)} \\ dk &= dk_{sel_th} + dk_{sel_pl} + dk_{couv} + dk_{gr} + dk_{esc} \qquad \text{(C.2)} \end{aligned}$$

avec :

- $C_i = \frac{c_i}{\Sigma c_i}$ et $A_i = \frac{a_i}{\Sigma a_i}$ qui représentent les proportions de neutron créés ou absorbés dans une zone (exprimées en %)
- x_i et y_i qui représentent les variations de ces créations et absorptions de neutron (exprimées en pcm/°C)
- Les zones correspondant aux indices mentionnés sont : le sel thermalisé (dans les canaux du modérateur), le sel des plenums, la couverture (sel fertile uniquement), le graphite (modérateur, barre centrale et structure de la couverture) et les fuites.

Configuration avec r = 2 cm

r2	Créations	Absorptions
sel thermalisé	93.3 %	78.5 %
sel des plenums	6.7 %	6.3 %
couverture	-	2.8 %
graphite	-	12.0 %
fuites	-	0.4 %

TAB. C.1 – Répartition des créations de neutrons C_i et répartition des absorptions de neutrons A_i par zones du coeur pour la configuration *r2*.

	densité			Doppler			graphite			total		
r2	x_i	y_i	dk_i	x_i	y_i	dk_i	x_i	y_i	dk_i	x_i	y_i	dk_i
sel th.	-3.9	-4.2	-0.4	-0.2	+0.6	-0.7	+3.5	+0.8	+2.6	-1.3	-3.7	+1.7
sel pl.	+19.5	+17.3	+0.2	-14.2	-11.6	-0.2	+4.5	+3.2	+0.1	+22.1	+20.2	+0.2
couv.	-	+7.7	-0.2	-	+3.0	-0.1	-	+26.9	-0.7	-	+38.0	-1.1
graph.	-	+15.8	-1.9	-	+1.9	-0.2	-	-13.3	+1.6	-	+3.7	-0.4
fuites	-	+25.3	-0.1	-	-13.2	+0.0	-	+6.44	-0.0	-	+34.3	-0.1

TAB. C.2 – Décomposition des coefficients de température en différentes contributions pour la configuration *r2*.

Configuration avec r = 8.5 cm

r8.5	Créations	Absorptions
sel thermalisé	94.5 %	89.0 %
sel des plenums	5.5 %	6.2 %
couverture	-	3.9 %
graphite	-	0.3 %
fuites	-	0.7 %

TAB. C.3 – Répartition des créations de neutrons C_i et répartition des absorptions de neutrons A_i par zones du coeur pour la configuration *r8.5*.

	densité			Doppler			graphite			total		
r8.5	x_i	y_i	dk_i	x_i	y_i	dk_i	x_i	y_i	dk_i	x_i	y_i	dk_i
sel th.	+2.0	-2.2	+3.9	-6.0	+0.2	-5.9	+0.5	+0.0	+0.5	-3.3	-2.0	-1.3
sel pl.	+20.3	+14.6	+0.2	-6.8	-1.2	-0.3	+0.5	+0.3	+0.0	+13.7	+13.5	-0.1
couv.	-	+19.6	-0.8	-	-3.1	+0.1	-	-0.3	+0.0	-	+17.0	-0.7
graph.	-	+46.4	-0.1	-	-6.7	+0.0	-	-9.1	+0.0	-	+35.9	-0.1
fuites	-	+25.8	-0.2	-	-1.0	+0.0	-	-1.8	+0.0	-	+25.5	-0.2

TAB. C.4 – Décomposition des coefficients de température en différentes contributions pour la configuration *r8.5*.

Configuration avec r = 12 cm

r12	Créations	Absorptions
sel thermalisé	86.6 %	80.8 %
sel des plenums	13.4 %	12.7 %
couverture	-	5.0 %
graphite	-	0.9 %
fuites	-	0.6 %

TAB. C.5 – Répartition des créations de neutrons C_i et répartition des absorptions de neutrons A_i par zones du coeur pour la configuration *r12*.

	densité			Doppler			graphite			total		
r8.5	x_i	y_i	dk_i	x_i	y_i	dk_i	x_i	y_i	dk_i	x_i	y_i	dk_i
sel th.	-4.0	-5.2	+0.7	-6.4	-1.2	-4.6	-0.2	-0.3	+0.1	-9.3	-5.4	-3.7
sel pl.	+15.3	+13.9	+0.3	+4.5	+8.4	-0.5	+2.6	+2.4	+0.0	+15.0	+17.4	-0.2
couv.	-	+33.4	-1.7	-	-4.7	-0.2	-	-1.6	+0.1	-	+26.7	-1.3
graph.	-	+54.1	-0.5	-	+7.6	-0.1	-	+2.1	-0.0	-	+59.4	-0.5
fuites	-	+54.0	-0.3	-	+8.2	-0.0	-	+1.1	-0.0	-	+52.1	-0.3

TAB. C.6 – Décomposition des coefficients de température en différentes contributions pour la configuration *r12*.

Configuration canal unique

cu	Créations	Absorptions
sel thermalisé	79.8 %	74.0 %
sel des plenums	20.2 %	18.6 %
couverture	-	5.2 %
graphite	-	1.2 %
fuites	-	1.0 %

TAB. C.7 – Répartition des créations de neutrons C_i et répartition des absorptions de neutrons A_i par zones du coeur pour la configuration *cu*.

	densité			Doppler			graphite			total		
cu	x_i	y_i	dk_i	x_i	y_i	dk_i	x_i	y_i	dk_i	x_i	y_i	dk_i
sel th.	-5.3	-6.3	+0.5	-3.4	-0.2	-2.6	-1.2	-1.3	-0.0	-8.2	-5.9	-2.2
sel pl.	+10.9	+9.8	+0.4	-2.5	+1.1	-0.7	+5.5	+5.4	+0.1	+6.3	+8.7	-0.3
couv.	-	+35.2	-1.8	-	-2.0	+0.1	-	-3.0	+0.2	-	+32.9	-1.7
graph.	-	+48.6	-0.6	-	-0.0	+0.0	-	+7.7	-0.1	-	+46.3	-0.6
fuites	-	+48.6	-0.5	-	+1.0	-0.0	-	+1.8	-0.0	-	+46.6	-0.5

TAB. C.8 – Décomposition des coefficients de température en différentes contributions pour la configuration *cu*.

Annexe D

Inventaires, Rapports α et Incinération des TRU

Les inventaires des Noyaux Lourds par élément et isotope des configurations *r4*, *r8*.5 et *cu* sont rassemblés dans cet Annexe. Le tableau D.2 présente les inventaires pour un retraitement des PF et des TRU en 6 mois. La figure D.1 présente le rapport α (rapport entre section efficace de capture et section efficace de fission) des principaux isotopes lourds du coeur, de l'^{233}U au ^{245}Cm. Le découpage de la figure en quatre parties est nécessaire, compte tenu du grand nombre d'isotopes considérés. Les isotopes fissiles sont tous situés dans la partie basse de la figure en raison de leur rapport α petit.

Le tableau D.3 présente la part des fissions dans les processus de disparition des TRU, élément par élément. La partie gauche du tableau indique cette part par rapport aux disparitions par réaction (fission et capture), tandis que la partie droite tiens compte également des disparitions par décroissance radioactive.

La partie gauche confirme clairement les meilleures propriétés incinératrices des spectres rapides. Par exemple, en configuration *cu*, 98 % du Pu disparaissant par réaction a fissionné, contre "seulement" 90 % en configuration *r4*. Par contre, lorsqu'on tient compte des décroissances, les choses sont tout autre. Le ^{242}Cm a une demi-vie de 163 jours et se transforme en ^{238}Pu. Or en configuration *cu*, plus de 60 % du Cm formé est du ^{242}Cm, alors que cette proportion tombe à 4 % en *r4* qui forme beaucoup plus de ^{244}Cm [1]. Ceci est dû à la décroissance du ^{241}Pu, favorisée lorsque les sections efficaces sont faibles. Le ^{242}Cm ayant une courte durée de vie, il n'a pas le temps de capturer un neutron. Ainsi, les deux voies de production du Cm sont découplées et seule la formation de ^{244}Cm conduit à l'apparition d'éléments plus lourds.

Ainsi, la disparition des TRU par fission est certes meilleure en spectre rapide, mais ne permet pas d'expliquer les ordres de grandeurs d'écart que l'on peut observer dans les inventaires (figure 7.5 et 7.6).

[1] Il existe deux voies de production de Cm. La première passe par la décroissance β^- du ^{241}Pu puis par une capture neutronique pour aboutir en grande partie à la formation de ^{242}Cm. La seconde nécessite plusieurs captures depuis le ^{241}Pu jusqu'à l'apparition de ^{244}Cm.

Retraitement des PF et des TRU en 6 mois				
Elément	Isotope	*r4*	*r8.5*	*cu*
Th	^{230}Th	60 g	100 g	1.4 kg
	^{232}Th	48.4 t	46.2 t	43.8 t
	total	48.4 t	46.2 t	43.8 t
Pa	^{231}Pa	310 g	680 g	1.2 kg
	^{233}Pa	77 kg	77 kg	84 kg
	total	77 kg	78 kg	85 kg
U	^{232}U	970 g	950 g	2.0 kg
	^{233}U	770 kg	2.1 t	5.3 t
	^{234}U	470 kg	990 kg	1.9 t
	^{235}U	100 kg	370 kg	560 kg
	^{236}U	260 kg	350 kg	580 kg
	^{237}U	490 g	950 g	550 g
	^{238}U	5.0 kg	1.7 kg	740 g
	total	1.6 t	3.8 t	8.3 t
Np	^{236}Np	3.9 mg	37 mg	53 mg
	^{237}Np	7.0 kg	15 kg	9.7 kg
	^{238}Np	36 g	45 g	10 g
	^{239}Np	3.7 g	2.1 g	230 mg
	total	7.0 kg	15 kg	9.7 kg
Pu	^{238}Pu	1.6 kg	2.5 kg	580 g
	^{239}Pu	200 g	220 g	28 g
	^{240}Pu	84 g	22 g	780 mg
	^{241}Pu	40 g	14 g	32 mg
	^{242}Pu	19 g	1.3 g	630 μg
	total	1.9 kg	2.8 kg	600 g
Am	^{241}Am	380 mg	245 mg	730 μg
	^{242}Am	2.7 mg	500 μg	260 ng
	^{242m}Am	5.3 mg	4.2 mg	4.5 μg
	^{243}Am	2.9 g	265 mg	15 μg
	total	390 mg	515 mg	750 μg
Cm	^{242}Cm	240 mg	42 mg	22 μg
	^{243}Cm	3.6 mg	1.2 mg	370 ng
	^{244}Cm	780 mg	55 mg	900 ng
	^{245}Cm	29 mg	6.5 mg	30 ng
	^{246}Cm	5.6 mg	250 μg	-
	^{247}Cm	65 μg	5 μg	-
	^{248}Cm	8.5 μg	400 ng	-
	total	1.0 g	105 mg	22 μg
Bk	^{249}Bk	50 ng	15 ng	-
Cf	^{249}Cf	10 ng	10 ng	-
	^{250}Cf	75 ng	10 ng	-
	^{251}Cf	40 ng	10 ng	-
	^{252}Cf	480 ng	20 ng	-
	total	600 ng	50 ng	-

TAB. D.1 – Inventaire des NL pour les configurations *r4*, *r8.5* et *cu* avec un retraitement des PF et des TRU en 6 mois, après 100 années de fonctionnement.

Retraitement des PF en 6 mois et auto-incinération des TRU					
Elément	Isotope	*r4*	*r8.5*	*cu*	*cu (équ.)*
Th	^{230}Th	65 g	125 g	1.4 kg	1.5 kg
	^{232}Th	48.4 t	45.3 t	43.3 t	43.2 t
	total	48.4 t	45.3 t	43.3 t	43.2 t
Pa	^{231}Pa	310 g	700 g	1.2 kg	1.2 kg
	^{233}Pa	74 kg	73 kg	84 kg	82 kg
	total	75 kg	74 kg	85 kg	83 kg
U	^{232}U	990 g	930 g	2.0 kg	2.0 kg
	^{233}U	790 kg	2.1 t	5.2 t	5.2 t
	^{234}U	470 kg	1.1 t	1.9 t	1.9 t
	^{235}U	100 kg	410 kg	560 kg	570 kg
	^{236}U	250 kg	380 kg	580 kg	620 kg
	^{237}U	490 g	930 g	530 g	570 g
	^{238}U	4.8 kg	1.5 kg	710 g	930 g
	total	1.6 t	4.2 t	8.3 t	8.4 t
Np	^{236}Np	23 mg	930 mg	8.6 g	9.6 g
	^{237}Np	29 kg	110 kg	150 kg	160 kg
	^{238}Np	150 g	290 g	150 g	170 g
	^{239}Np	3.9 g	2.0 g	250 mg	300 mg
	total	29 kg	110 kg	150 kg	160 kg
Pu	^{238}Pu	26 kg	210 kg	160 kg	180 kg
	^{239}Pu	3.2 kg	31 kg	57 kg	67 kg
	^{240}Pu	2.4 kg	7.6 kg	34 kg	48 kg
	^{241}Pu	1.7 kg	14 kg	9.6 kg	14 kg
	^{242}Pu	4.8 kg	6.3 kg	5.6 kg	11 kg
	total	38 kg	260 kg	270 kg	330 kg
Am	^{241}Am	27 g	960 g	2.8 kg	4.3 kg
	^{242}Am	170 mg	1.6 g	920 mg	1.5 g
	^{242m}Am	410 mg	29 g	100 g	170 g
	^{243}Am	3.1 kg	6.2 kg	1.9 kg	4.1 kg
	total	3.1 kg	7.1 kg	4.8 kg	8.8 kg
Cm	^{242}Cm	36 g	300 g	190 g	290 g
	^{243}Cm	1.1 g	28 g	27 g	45 g
	^{244}Cm	7.9 kg	7.8 kg	1.6 kg	4.2 kg
	^{245}Cm	480 g	3.7 kg	480 g	1.5 kg
	^{246}Cm	4.8 kg	4.4 kg	160 g	1.1 kg
	^{247}Cm	220 g	630 g	23 g	240 g
	^{248}Cm	740 g	570 g	5.8 g	160 g
	total	14 kg	18 kg	2.4 kg	7.6 kg
Bk	^{249}Bk	5.1 g	40 g	170 mg	4.8 g
Cf	^{249}Cf	960 mg	30 g	490 mg	19 g
	^{250}Cf	7.7 g	20 g	160 mg	7.4 g
	^{251}Cf	3.8 g	22 g	68 mg	4.1 g
	^{252}Cf	47 g	41 g	7.2 mg	560 mg
	total	60 g	110 g	730 mg	30 g

TAB. D.2 – Inventaire des NL pour les configurations *r4*, *r8.5* et *cu* avec un retraitement des PF en 6 mois mais auto-incinération des TRU, après 100 années de fonctionnement (et à l'équilibre pour cu).

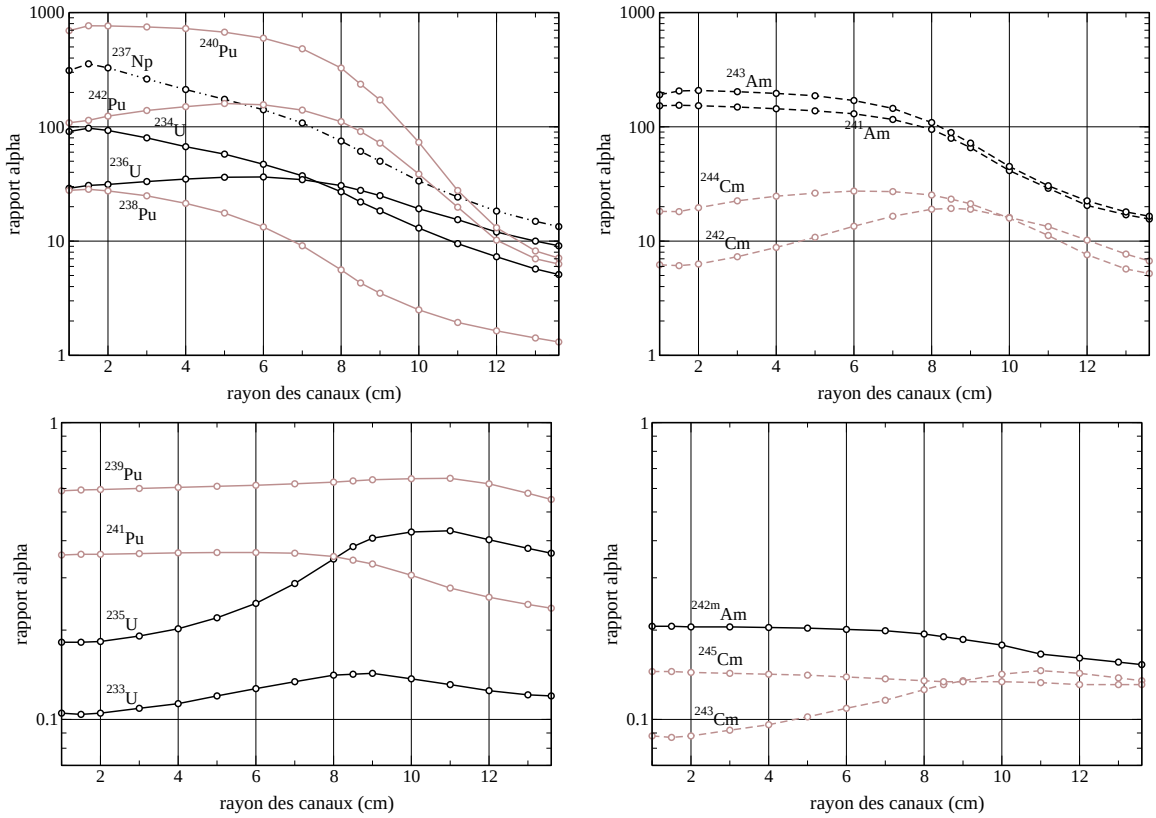


FIG. D.1 – Impact du rayon des canaux sur les rapports alpha $\left(\alpha = \frac{\sigma_c}{\sigma_f}\right)$ des principaux isotopes lourds.

	/ disparitions par réaction			/ disparitions totales		
Configuration	*r4*	*r8.5*	*cu*	*r4*	*r8.5*	*cu*
Np	3%	2%	7%	3%	2%	7%
Pu	90%	92%	98%	90%	86%	88%
Am	0%	3%	25%	0%	2%	11%
Cm	96%	96%	100%	93%	80%	25%

TAB. D.3 – Part de la fission dans les processus de disparition des éléments pour différentes configurations auto-incinératrices. Les disparitions “totales” comprennent les disparitions par réaction et celles par décroissance radioactive.

Bibliographie

[1] GIEC : “L’Avenir Climatique" (1996)

[2] J.L. Bobin et al. : “L’énergie dans le monde : bilan et perspectives”, édition EDP Sciences (2001)

[3] R.P. Bauquis : “Un point de vue sur les besoins et les approvisionnements en énergie à l’horizon 2050”, La revue de l’Energie, no. 509 (sep. 1999)

[4] A.Nuttin et al. : “Potential of Thorium Molten Salt Reactors : Detailed Calculations and Concept Evolution With a View to Large Scale Energy Production”, Progress in Nuclear Energy, vol. 46, no. 1, pp. 77-79 (2005)

[5] S. David et al. : “Fast Subcritical Hybrid Reactors for Energy Production : Evolution of Physical Parameters and Induced Radiotoxicities”, Nucl. Instr. and Meth., A 443, pp. 510-530 (2000)

[6] J.F. Luciani et A. Simon : “Les ressources d’uranium fissile permettent-elles de répondre à une forte croissance de l’énergie nucléaire mondiale ?”, Rapport CEA HC/AS/em/2002-192 (2002)

[7] E. Merle et al. : “Etude des scénarios de déploiement mondial de l’électronucléaire”, Note LPSC 04-68 (nov. 2004)

[8] Generation IV International Forum : “A Technology Roadmap fo Generation IV Nuclear Energy Systems”, Report GIF-002-00 (2002)

[9] 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)

[10] R.C. Briant, A.M. Weinberg : “Aircraft Nuclear Propulsion Reactor”, Nuclear Science and Engineering 2, pp. 795-853 (1957)

[11] M.W. Rosenthal et al. “Molten Salt Reactor - History, Status, and Potential”, Nuclear application & technology, vol. 8, pp. 107-117 (feb. 1970)

[12] P. Haubenreich, J.R. Engel : “Experience with molt salt reactor experiment”, Nuclear application & technology, vol. 8, pp. 118-136 (feb. 1970)

[13] ORNL : “Conceptual Design Study of a Single Fluid Molten Salt Breeder Reactor”, Oak Ridge National Laboratory Report, ORNL-4541 (jun. 1971)

[14] Groupe de travail CEA-EDF “Coeur RSF” : “Synthèse des études réalisées entre 1973 et 1983, dossier coeur”. Rapport interne EDF HT/12/76/83 (1983)

[15] D. Lecarpentier : “Le concept AMSTER, aspects physiques et sûreté”, Thèse de doctorat, Conservatoire National des Arts et Métiers, Paris (2001)

[16] D. Lecarpentier et al. : “The AMSTER Concept”, Nucl. Eng and Des., No 216, pp 43-67 (2002)

[17] W.R. Grimes : “Molten Salt Reactor Chemistry”, Nuclear application & technology, vol. 8, pp. 137-155 (feb. 1970)

[18] CEA-CEREM : “Problèmes de corrosion dans les réacteurs nucléaires à sels fondus”, note interne CEA, service de la corrosion, d”électrochimie et de chimie des fluides (1997)

[19] E.S. Bettis, R.C. Robertson : “The design and performance features of a single-fluid molten salt breeder reactor”, Nuclear application & technology, vol. 8, pp. 190-207 (feb. 1970)

[20] M.E. Whatley et al. : “Engineering development of the MSBR fuel recycle”, Nuclear application & technology, vol. 8, pp. 170-178 (feb. 1970)

[21] Groupe de travail CEA-EDF “Chimie RSF” : “Synthèse des études réalisées entre 1973 et 1983, dossier chimie”. Rapport interne EDF HT/12/78/83 (1983)

[22] K. Furukawa et al. “Thorium Molten Salt Nuclear Energy Synergetics” Journal of Nuclear Science and Technology, vol. 27, no. 12, pp. 1157-1178 (1990)

[23] V. Berthou : “Le concept TASSE (Thorium ADS with simplified fuel cycle for long term energy production)”, Thèse de doctorat, Université d’Evry, Val d’Essonne (2000)

[24] M. Jacquin : “Critères de choix du sel MSBR”, Note CEA (1963)

[25] S. Dunlap, W.P. Eatherly : “Graphite and xenon behavior and their influence on molten salt reactor design”, Nuclear application & technology, vol. 8, pp. 179-189 (feb. 1970)

[26] R.T. Coyle, T.M. Thomas, G.Y. Lai : “Exploratory corrosion tests on alloys in molten salts at 900 °C”, High temperature corrosion in energy systems, pp. 627-641, Detroit (sept. 1984)

[27] Groupe de travail CEA-EDF “Matériaux métalliques RSF” : “Synthèse des études réalisées entre 1973 et 1983, dossier matériaux métalliques”. Rapport interne EDF HT/12/77/83 (1983)

[28] M. Jacquin, A. Lecocq, J.L. Romet : “Traitement en continu du sel MSBR”, Rapport EDF HF/13/11/76 (1976)

[29] H. Nadir : “Etude des échanges de matière dans un procédé pyrométalurgique de retraitement de déchets métalliques”, Thèse de Doctorat, Institut National Polytechnique de Grenoble (1994)

[30] F. Lemort : “Etude de la séparation actinides - lanthanides des déchets nucléaires par un procédé pyrochimique nouveau”, Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Grenoble (1997)

[31] L.M. Ferris et al. : “Equilibrium Distribution of Actinide and Lanthanide Element between Molten Fluoride Salts and Liquid Bi Solutions”, J. Inorg, Nucl. Chem., vol. 32, pp. 2019-2035 (1970)

[32] V. Ignatiev : “Molten Salt core concepts, material and safety related issues”, école d’été Frederic Joliot / Otto Hahn, Cadarache (2000)

[33] P. Faugeras : “Réacteur AMSTER : Etude préliminaire d’un circuit de retraitement des sels”, Note interne EDF (2001)

[34] J.F. Briesmeister : “MCNP - A General Monte Carlo N Particles Transport Code”, Los Alamos National Laboratory report 12625-M (1997)

[35] I. Victor, E. Walle et al. : “Density of Molten Salt Reactor Fuel Salts”, Nureth, Avignon (2005)

[36] F. Perdu : “Contributions aux études de sûreté des filières innovantes de réacteurs nucléaires”, Thèse de Doctorat, Université Joseph Fourier, Grenoble (2003)

[37] D. Heuer, communications privées

[38] P.A. Platonov et al. : “Radiation damage and life-time evaluation of RBMK graphite stack”, Kurchatov Institute (1995)

[39] B. Tahon : “Graphite pour des applications nucléaires”, Présentation au Programme Commun de Recherche (2003)

[40] P. Faugeras : “Installation de retraitement du sel du réacteur AMSTER”, Note interne EDF HT/10/00 (2000)

[41] J.P. Goumondi : “Maîtrise du tritium dans les usines de retraitement du combustible REP”, dans Journées du tritium de la SFRP, pp. 51-70 (1986)

[42] R.B. Briggs : ”Tritium in Molten Salt Reactors”, Reactor Technology, vol. 14, no. 4 (1971)

[43] A. Nuttin : “Etat d’avancement du couplage neutronique - thermohydraulique MCNP/TRIO-U”, Présentation atelier GEDEPEON (2004)

[44] N. Capellan : “Etude de faisabilité d’un couplage cinétique - thermohydraulique MCNP/TRIO-U destiné à terme aux études de sûreté des réacteurs innovants”, Rapport de stage, Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie (2005)

[45] Cross Section Evaluation Working Group : “Data Formats and Procedures for the Evaluated Nuclear Data File ENDF-6”, National Nuclear Data Center, BNL-NCS-44945 (1995)

[46] NJOY 97.0 : “Code System for Producing Pointwise and Multigroup Neutron and Photon Cross Sections from ENDF/B-VI Data”, RSICC Code Package PSR-368 (1998)

[47] L. Mathieu : “Simulation d’une unité de retraitement de Réacteur à Sels Fondus”, Rapport de stage DEA, Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie (2002)

[48] N. Thiollière : “Mesure des section efficaces de diffusion élastique du carbone et du fluor sur la plate forme PEREN”, Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier, Grenoble (2005)

[49] M.A. Cognet : “Mesure du rapport α de la section efficace moyenne de capture de l’uranium 233 sur celle de fission sur la plateforem PEREN”, Thèse de doctorat en cours, Institut National Polytechnique de Grenoble (2007)

[50] P. Faugeras : “Installation de retraitement du sel du réacteur AMSTER”, Note interne EDF HT/10/00 (2000)

[51] O. Laulan : “Potentialités des Réacteurs à Neutrons Rapides”, Thèse de doctorat en cours, Université Joseph Fourier, Grenoble (2006)

[52] Advanced Visual Systems : www.avs.com

[53] C. de Saint Jean, M. Delpech, J. Tommasi, G. Youinou : “Scénario CNE : réacteurs classiques, caractérisation à l’équilibre”, rapport CEA DER/SPRC/LEDC/99-448 (2000)

[54] W. Forsberg et al. : “An Advanced Molten Salt Reactor Using High-Temperature Reactor Technology”, Proceedings of ICAPP’04, Pittsburg (2004)

[55] S. Sailler et J.P. Caire : “Première approche de simulation de la thermohydraulique d’un réacteur à sels fondus de Thorium”, Rapport de stage ingénieur, Ecole Nationale Supérieure d’Electrochimie et d’Electrométallurgie de Grenoble (2004)

[56] T.H. Pigford : “Thorium Fuel Cycles Compared to Uranium Fuel Cycles”, J. Phys. IV France 9, p. 73 (1999)

[57] D. Lecarpentier et al. : “Temperature Feedbacks of a Thermal Molten Salt Reactor : Compromise between Stability and Breeding Performances”, Proceedings of ICAPP’03, Cordoba, Spain (may 2003)

[58] Jean Bussac, Paul Reuss : “Traité de Neutronique”, Hermann, p. 66 (1978)

[59] F. Michel-Sendis : “Etude du cycle thorium en spectre de neutrons thermiques pour le nucléaire du futur”, Thèse de doctorat en cours, Université Paris XI (2006)

[60] M. Allibert , communications privées

[61] W.R. Grimes et al. : “Solubility of noble gases in molten fluorides. I in mixtures of NaF-ZrF4 and NaF-ZrF4-UF4”, Journal of Chem. Phys., vol. 62 (1958)

[62] L. Michelutti : “Participation au projet européen MOST”, Rapport d’activité, Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie (2003)

Table des figures

1.1 Quantités de CO_2 dans l'atmosphère au cours des 400 000 dernières années. 16
1.2 Flux annuels et stocks existants de carbone (en gigatonnes) en 2000 [1]. 17
1.3 Evolution temporelle des parts de marchés des diverses sources d'énergie [2]. 17
1.4 Diagramme NZ mettant en lumière les deux cycles du combustible et les premiers TRansUraniens. 20
1.5 Nombre de neutrons disponibles en fonction de l'énergie des neutrons pour le cycle ^{232}Th/^{233}U et ^{238}U/^{239}Pu. 22

2.1 Schéma de principe de l'Aircraft Reactor Experiment. 26
2.2 Ecorché du Molten Salt Reactor Experiment. 27
2.3 Schéma de principe du Molten Salt Breeder Reactor, comprenant le coeur nucléaire, le circuit de refroidissement et l'unité de retraitement. 28
2.4 Section efficace d'absorption des différents éléments constitutifs de sel : fluor et chlore (à gauche), lithium, béryllium et sodium (à droite). 30
2.5 Schéma du retraitement envisagé pour le projet MSBR. 33
2.6 Coefficients de partage de différents actinides et produits de fission, en fonction du coefficient de partage du lithium, pour le couple LiF / Bi (valable pour le couple 71.7% LiF - 16% BeF_2 - 12.3% $(NL)F_4$ / Bi métal à 600 °C) (à gauche) et le couple LiCl / Bi (à droite) [30, 31, 32, 33]. 34
2.7 Schéma de principe de l'extraction des PF par les couples LiF / Bi et LiCl / Bi.. . . . 35

3.1 Variation à l'irradiation de la longueur d'un bloc de graphite en fonction de la fluence et pour différentes températures [39]. 43
3.2 Diagramme de Moody : coefficient de pertes de charge λ en fonction du nombre de Reynolds *Re*, de la rugosité ε et du diamètre *D* du canal. 47
3.3 Exemple simplifié d'arbre de décroissance. 51
3.4 Organisation des outils autour de MCNP. 53
3.5 Recherche de la criticité par ajustement de la proportion de noyaux fissiles (multiplicateur par rapport à la quantité de matière fissile initiale). 54

4.1 Coupes verticale et horizontale du coeur du RSF de référence. 59
4.2 Schéma général du retraitement lent. 61

4.3 Evolution de l'inventaire en uranium et de ses différents isotopes pendant 100 années d'évolution du combustible. 62
4.4 Evolution de l'inventaire en neptunium et plutonium au cours de la vie du réacteur, à l'intérieur du coeur (à gauche) ainsi qu'à l'extérieur (à droite). 64
4.5 Evolution de l'inventaire en PF au cours de la vie du réacteur, à l'intérieur du coeur (à gauche) ainsi qu'à l'extérieur (à droite). 65
4.6 Section efficace moyenne de fission de l'^{233}U et de l'^{235}U (à gauche) et flux moyen dans le sel, les manches et le reste du modérateur (à droite). 67
4.7 Schéma d'un hexagone du réseau. 69
4.8 Taux de fission de l'uranium (à gauche) et principaux taux de capture hors thorium (à droite). 71
4.9 Stocks d'^{233}U pendant le fonctionnement du réacteur sur 100 ans (à gauche), zoom sur les 10 premières années (à droite). 75
4.10 Spectres neutroniques du cas de référence au démarrage et après 100 ans d'évolution (à gauche). Zoom du spectre pour t = 100 ans dans le domaine de basse énergie (à droite). 76
4.11 Taux de fission de l'^{233}U en fonction de l'énergie (à gauche). Fonction de répartition des taux de fission de l'^{233}U et de capture du ^{232}Th (à droite). 77
4.12 Zoom du spectre neutronique de la configuration de référence sur : une zone de résonances à basse énergie (en haut à gauche) et à énergie intermédiaire (en bas à gauche). Zoom à énergie intermédiaire de spectres neutroniques réalisés avec un découpage en énergie différent du cas standard : 100 bin/dec (en haut à droite) et 10 000 bin/dec (en bas à droite). 78
4.13 Flux de neutrons pour une coupe horizontale du réacteur : dans le sel (en haut à gauche), dans le graphite (en haut à droite), et dans les deux matériaux (en bas). En raison des symétries, le centre du coeur est situé dans le coin gauche de la coupe. . . 83

5.1 Coupe horizontale de trois réacteurs types : réacteur thermique avec r = 4 cm (en haut), réacteur épithermique avec r = 8.5 cm (en bas à gauche), réacteur rapide en "canal unique" (en bas à droite). Les réacteurs sont de tailles différentes afin de maintenir un volume de sel combustible constant de 20 m^3. 94
5.2 Schéma du quart supérieur droit du coeur dans la configuration en "canal unique" (à gauche). Répartition des fissions dans la même configuration (à droite). 96
5.3 Répartitions des fissions dans le quart de coeur supérieur droit pour deux configurations : réflecteur axial mince en graphite (à gauche) et réflecteur axial en ZrO_2 (à droite). 97
5.4 Impact du rayon des canaux sur les coefficients de température. Les courbes indiquées dans les figures de cet ouvrage ne sont que des polynômes de degré n (ou autres fonctions simples) destinés à aider la visualisation. Elles n'ont pas valeur de résultat. 98

5.5 Spectres neutroniques en fonction du rayon des canaux (en haut). Comparaison d'un spectre thermalisé avec celui d'un REP (en bas à gauche) et d'un spectre rapide avec celui d'un RNR (en bas à droite). 99
5.6 Spectres neutroniques à basse énergie après 100 ans d'évolution pour la configuration avec r = 2 cm, pour le cas standard et le cas avec échauffement du graphite (en haut). Sections efficaces de fission de l'^{233}U et section efficace renormalisée de capture du ^{232}Th (en bas). 101
5.7 Effet Doppler sur les deux premières grandes résonances de capture du ^{232}Th pour une différence de température de 400 °C (en haut). Rapport dans la même gamme d'énergie entre les flux neutroniques après et avant échauffement du sel (en bas). . . 104
5.8 Sections efficaces microscopiques de fission de l'^{233}U et de capture du ^{232}Th. 105
5.9 Taux de fission de l'^{233}U en fonction de l'énergie pour les trois configurations de réacteur. 106
5.10 Spectres neutroniques à basse énergie après 100 ans d'évolution pour la configuration avec r = 8.5 cm, pour le cas standard et le cas avec dilatation du sel (en haut). Sections efficaces de fission de l'^{233}U et section efficace renormalisée de capture du ^{232}Th (en bas). 109
5.11 Impact de la proportion de matière fissile sur le coefficient de température total. . . . 111
5.12 Impact du rayon des canaux sur le taux de régénération. 112
5.13 Impact du rayon des canaux sur le nombre de neutrons disponibles. 113
5.14 Impact du rayon sur les taux d'absorption parasites principaux. 114
5.15 Impact du rayon des canaux sur le flux de neutrons dans le graphite modérateur et dans le sel circulant dans les canaux (à gauche), ainsi que sur la proportion de neutrons dont l'énergie est supérieure à 50 keV dans ces deux matériaux (à droite). 117
5.16 Impact du rayon des canaux sur la durée de vie du graphite. 118
5.17 Impact du rayon des canaux sur le flux de graphite à gérer (en comptant uniquement le bloc modérateur). 119
5.18 Impact du rayon des canaux sur l'inventaire initial nécessaire. 121
5.19 Impact du rayon des canaux sur les sections efficaces de fission de l'^{233}U et de capture renormalisée du ^{232}Th (en haut). Rapport entre section efficace de capture et de fission (en bas). 122
5.20 Impact du rayon des canaux sur les inventaires de TRansUraniens, par élément chimique (à gauche) et par isotope (à droite). 123
5.21 Partie haute énergie du spectre neutronique dans le sel du coeur et de la couverture pour quelques configurations comparée à la section efficace microscopique de réaction (n,2n) sur le ^{232}Th (à gauche). Impact du rayon des canaux sur la proportion d'^{232}U dans l'uranium total (et l'activité associée du ^{208}Tl) pour le sel du coeur et de la couverture (à droite). 125

5.22 Figure récapitulative de l'impact du rayon des canaux sur plusieurs contraintes : coefficient de température total (en haut), taux de régénération (milieu haut), flux de neutrons dans le sel du coeur et durée de vie du graphite modérateur (milieu bas) et inventaire initial nécessaire (en bas) (Configuration : rayon variable, hexagones de 15 cm, 20 m^3 de sel, retraitement en 6 mois, 630 °C, 22 % de $(NL)F_4$). 126

6.1 Impact du volume de combustible sur le coefficient de température. Les courbes indiquées dans les figures de cet ouvrage ne sont que des polynômes de degré n (ou autres fonctions simples) destinés à aider la visualisation. Elles n'ont pas valeur de résultat. 130
6.2 Impact de la proportion de matière fissile sur le coefficient de température total pour plusieurs tailles de réacteur. 131
6.3 Impact du volume de combustible sur le taux de régénération. 132
6.4 Impact du volume de combustible sur l'inventaire de matière fissile nécessaire. . . . 134
6.5 Figure récapitulative de l'impact du volume de combustible (ou de la puissance spécifique par variation du volume) sur plusieurs contraintes : coefficient de température total (en haut), taux de régénération (milieu haut), flux de neutrons dans le sel du coeur et durée de vie du graphite modérateur (milieu bas) et inventaire initial nécessaire (en bas) (Configuration : rayon de 8.5 cm, hexagones de 15 cm, volume de sel variable, temps de retraitement variable, 630 °C, 22 % de $(NL)F_4$). 137
6.6 Impact de la taille des hexagones sur le coefficient de température total en fonction du rayon des canaux (abscisses renormalisées d'un facteur 3 pour *h5*, $\frac{3}{2}$ pour *h10*, $\frac{2}{3}$ pour *h20*). 139
6.7 Spectres neutroniques pour les configurations thermiques *h15-r2* et *h5-r0.66* (à gauche), épithermiques *h15-r6* et *h5-r2* (au centre) et les configurations rapides *h15-r11* et *h5-r3.66* (à droite). 139
6.8 Impact de la taille des hexagones sur le coefficient de température de densité (à gauche), Doppler (au centre) et graphite (à droite) en fonction du rayon des canaux. . 140
6.9 Impact de la taille des hexagones sur le coefficient de température total en fonction de la proportion de matière fissile. 142
6.10 Impact de la taille des hexagones sur le taux de régénération en fonction du rayon des canaux (abscisses renormalisées d'un facteur 3 pour *h5*, $\frac{3}{2}$ pour *h10*, $\frac{2}{3}$ pour *h20*). . . 143
6.11 Impact de la taille des hexagones sur l'inventaire nécessaire en fonction du rayon des canaux (abscisses renormalisées d'un facteur 3 pour *h5*, $\frac{3}{2}$ pour *h10*, $\frac{2}{3}$ pour *h20*). . . 145
6.12 Impact de la présence d'une couverture en thorium sur le taux de régénération en fonction du rayon des canaux. 146
6.13 Impact de la présence d'une couverture en thorium sur le coefficient de température total en fonction de la proportion de matière fissile. 147
6.14 Impact du découpage en zones de modération différente sur le coefficient de température total en fonction de la proportion de matière fissile. 150

6.15 Impact du découpage en zones de modération différente sur le taux de régénération en fonction de la proportion de matière fissile. 150
6.16 Flux de neutrons dans le graphite pour une coupe horizontale du réacteur pour des configurations de réacteur dont le rayon de canal de la zone interne est de 10 cm, et celui de la zone externe de 10 cm (en haut à gauche), 8 cm (en haut à droite), 6 cm (en bas à gauche) et 4 cm (en bas à droite). En raison des symétries, le centre du coeur est situé dans le coin gauche de la coupe. 151

7.1 Répartition du taux de capture dans les PF par isotope (à gauche) et par élément chimique (à droite) pour la configuration de référence. 156
7.2 Impact du temps de retraitement (en configuration *r8.5*) sur le taux de capture des PF. 157
7.3 Impact du temps de retraitement sur le spectre neutronique (à gauche) et la section efficace moyenne de capture des PF (à droite) pour la configuration de référence. . . 158
7.4 Impact du temps de retraitement sur le taux de régénération pour plusieurs configurations de réacteur. 158
7.5 Impact du temps de retraitement sur l'inventaire de TRU (à gauche) et les rejets associés (à droite). 160
7.6 Impact du temps de retraitement sur l'inventaire de TRU dans la configuration *r4* (à gauche) et *cu* (à droite). 161
7.7 Stocks cumulés d'^{233}U pour la configuration *r8.5* et *cu* sans retraitement des PF, du Pa ou des TRU. 163
7.8 Sections efficaces microscopiques de capture du ^{231}Pa et de l'^{167}Er. 166
7.9 Impact du retraitement des PF autres que lanthanides sur les stocks cumulés d'^{233}U pour la configuration de référence. 169
7.10 Taux de capture de différents éléments (à gauche) et taux de régénération (à droite) en fonction du temps d'extraction des métaux nobles. 170
7.11 Taux de régénération en fonction du temps d'extraction des gaz (et rappel de la courbe concernant le bullage des métaux nobles). 172
7.12 Schéma du principe de la dilution des PF et des TRU. 174
7.13 Impact de la dilution sur les stocks cumulés d'^{233}U pour la configuration *cu*. 175

8.1 Spectres neutroniques de la configuration de référence et de la configuration avec un sel LiF - BeF_2 181
8.2 Impact de la température sur le coefficient de température total (à gauche) et Doppler (à droite) en fonction de la proportion de matière fissile. 182
8.3 Impact de la proportion de (NL)F_4 sur le coefficient de température total en fonction du rayon des canaux. Les courbes indiquées dans les figures de cet ouvrage ne sont que des polynômes de degré n (ou autres fonctions simples) destinés à aider la visualisation. Elles n'ont pas valeur de résultat. 184
8.4 Impact de la proportion de (NL)F_4 sur le spectre neutronique pour la configuration *r8.*5.185

8.5 Impact de la proportion de (NL)F_4 sur le coefficient de température de densité (à gauche) et Doppler (à droite) en fonction du rayon des canaux. 185
8.6 Impact de la proportion de (NL)F_4 sur le coefficient de température total en fonction de la proportion de matière fissile. 186
8.7 Impact de la proportion de (NL)F_4 sur le taux de régénération (à gauche) et sur le nombre de neutrons disponibles par fission (à droite) en fonction du rayon des canaux. 187
8.8 Impact de la proportion de (NL)F_4 sur l'inventaire nécessaire en fonction du rayon des canaux. 187
8.9 Impact de la proportion de (NL)F_4 sur la durée de vie du graphite modérateur en fonction du rayon des canaux. 188

9.1 Impact de la vidange du coeur sur la réactivité du coeur. 192
9.2 Impact de la levée de la barre centrale en graphite (à gauche) ou en ZrC (à droite) sur la réactivité du coeur dans la configuration *cu*. 194

10.1 Schémas de principe des différentes étapes d'extraction des métaux nobles par le bullage d'hélium. 198
10.2 Diagramme de phase LiF-CaF2 (à gauche) et observation en microscopie à balayage du mélange des poudres de LiF et CaF2 avant fusion (à droite). 200
10.3 Poudre de Mo observée en microscopie à balayage. 201
10.4 Schéma de principe de la pulvérisation cathodique. 201
10.5 Analyse par microscopie à balayage de la poudre après irradiation. Le pic relatif au carbone est présent du fait de l'utilisation d'un scotch en carbone pour fixer la poudre et du dépôt nécessairement effectué sur les grains pour rendre les surfaces conductrices. 202
10.6 Résolution de l'état de surface du dépôt de Mo effectué sur saphir. 202
10.7 Schéma de principe de l'installation de fusion du sel. 204
10.8 Intérieur de la bille de sel après trempe. 204
10.9 Allure du sel eutectique LiF-CaF2, après fusion et trempe. 205
10.10 Observation des amas en surface interne de bulle pour des échantillons où le molybdène a été introduit sous forme de poudre, pour des temps de maintien liquide de 10 minutes (à gauche) et 60 minutes (à droite). 206
10.11 Observation des amas en surface externe de la bille pour l'échantillon où le molybdène a été introduit sous forme de poudre et l'ensemble maintenu liquide 60 minutes. On distingue à la fois la surface et la zone de fracture dans la masse du sel. 207
10.12 Observation des amas en surface de la bille pour un temps de fusion de 10 minutes (en haut), de 1 heure (au milieu) et de 2 heures (en bas). 209
10.13 Observation des amas en surface de la bille pour un temps de fusion de 4 heures : une zone de fine dispersion comme pour des temps courts (à gauche) et des plaques de Mo (à droite). 210

10.14Observation des amas en surface de la bille pour un temps de fusion de 4 heures : une zone de fine dispersion comme pour des temps courts et des plaques de Mo. 210

A.1 Visualisation normalisée de la différence entre le coefficient de température total et la somme des sous-coefficients. 228
A.2 Fonction de répartition de la distribution de $\frac{|E|}{\Delta E}$. 228

D.1 Impact du rayon des canaux sur les rapports alpha $\left(\alpha = \frac{\sigma_c}{\sigma_f}\right)$ des principaux isotopes lourds. 238

Liste des tableaux

1.1 Exemple de scénario énergétique (en Gtep). 19

2.1 Propriétés physique du sel combustible 71.7% LiF - 16% BeF_2 - 12.3% $(NL)F_4$ à 650 °C comparées à celles de l'eau à 25 °C / 1 bar et à 300 °C / 150 bars. 29

4.1 Paramètres importants de la configuration de référence. 63
4.2 Inventaire des principaux éléments ou isotopes du coeur et de la couverture (entre parenthèses) après 100 ans d'évolution. 66
4.3 Sections efficaces des principaux éléments ou isotopes du coeur et de la couverture (entre parenthèses) après 100 ans d'évolution. 70
4.4 Bilan neutronique du réacteur de référence après 100 ans d'évolution. Tous ces taux de réaction sont donnés en neutrons / fission. 73
4.5 Coefficients de multiplication et coefficients de température associés, pour la configuration de référence à l'instant initial et après 100 ans d'évolution. 79
4.6 Proportions de neutrons créés ou absorbés en fonction de la zone du coeur (en haut). Décomposition du coefficient de température total et de ses sous-coefficients (en bas). Rappelons que la somme des sous-coefficients n'est pas exactement égale au coefficient total en raison des incertitudes statistiques et des corrélations entre effets. . . . 81
4.7 Quantité de TRU dans le cycle (en coeur, flux d'extraction, pertes au retraitement) après 100 ans d'évolution. 87
4.8 Quantité de TRU sortis du coeur par TWh pour différentes filières [53]. 88
4.9 Données utiles pour les calculs de thermohydraulique pour la configuration de référence. 89

5.1 caractéristiques du coeur en fonction du rayon des canaux. 95
5.2 Décomposition du coefficient de température dû au graphite. Données supplémentaires disponibles en Annexe C. 100
5.3 Décomposition du coefficient de température dû à l'échauffement du sel sans dilatation. Données supplémentaires disponibles en Annexe C. 103
5.4 Sections efficaces macroscopiques de diffusion et d'absorption, et probabilités associées, pour les deux résonances étudiées. 105
5.5 Importance relative de la résonance de fission de l'^{233}U située entre 1.0 et 2.0 eV, et de celle de capture du ^{232}Th située entre 22.8 et 24.1 eV. 107

5.6 Décomposition du coefficient de température dû à la dilatation du sel. Données supplémentaires disponibles en Annexe C. 108
5.7 Tableau récapitulatif de la contribution du sel thermalisé au coefficient de température dû à la densité. 110
5.8 Bilan neutronique des configurations de réacteur *r4* et *cu* après 100 ans d'évolution. Tous ces taux de réactions sont donnés en neutrons / fission. 115
5.9 Impact du rayon des canaux sur la masse de graphite du bloc modérateur (hors barre centrale) et de la couverture. 119
5.10 Impact du rayon des canaux sur les grandeurs thermohydrauliques. 122
5.11 Impact du rayon des canaux sur la production de tritium. 124
5.12 Synthèse des résultats concernant les différentes configurations possibles de réacteurs en fonction des contraintes. 127

6.1 Impact du volume de combustible sur la décomposition du coefficient de température total par zone du coeur. 130
6.2 Impact du volume de combustible sur les taux d'absorptions parasites et le taux de régénération. 132
6.3 Impact de la puissance totale sur les taux d'absorptions parasites et le taux de régénération. 136
6.4 Importance relative du domaine d'énergie compris entre 1 eV et 10 keV pour diverses configurations épithermiques de même rapport de modération. 140
6.5 Impact de la taille des hexagones sur le coefficient du graphite et ses deux principales contributions, pour des configurations de même rapport de modération. 141
6.6 Impact de l'asymétrie du coeur sur le coefficient de température et le taux de régénération (erreur statistique de $\frac{dk}{dT}$ inférieure à 0.05 pcm/°C). 152

7.1 Impact du temps de retraitement sur l'inventaire de PF en coeur. 157
7.2 Impact de la destination des TRU sur le taux de régénération et le coefficient de température total. 165
7.3 Inventaire en coeur (à gauche) et pertes au retraitement (à droite) des TRU pour diverses configuration en mode auto-incinérateur, avec un retraitement des PF et du Pa en 6 mois. 165
7.4 Impact de la destination du Pa sur le taux de régénération. 166
7.5 Inventaire de TRU pour la configuration *r8*.5 avec extraction du Np en 10 jours, pour une extraction en 6 mois des TRU (à gauche) et sans extraction des TRU (à droite). . 168
7.6 Liste des métaux nobles extraits avec le bullage. 170
7.7 Liste des gaz extraits avec le bullage. 171
7.8 Périodes radioactives de quelques isotopes du Xe et du Cs. 172
7.9 Efficacité de séparation du ^{135}Cs et du ^{137}Cs en fonction du temps d'extraction du Xe par le bullage. 173

8.1 Impact de la présence de Be comme composant du sel sur les contraintes. 180
8.2 Impact de la température sur les contraintes pour la configuration de référence. . . . 182
8.3 Propriétés du système en fonction du pourcentage de (NL)F_4 dans le sel combustible. 184
8.4 Impact de la proportion de NL sur les contraintes pour des configurations avec 20 m^3 de sel : *r8.5* (en haut) et *cu* (en bas) 189

11.1 Performances globales de la configuration à spectre thermique par rapport aux contraintes. 216
11.2 Performances globales de la configuration à spectre épithermique “de référence” par rapport aux contraintes. 217
11.3 Performances globales de la configuration à spectre rapide par rapport aux contraintes. 218
11.4 Performances globales de la configuration à spectre rapide et haute température par rapport aux contraintes. 219

B.1 Table de correspondance entre rayon des canaux, rapport de modération, et proportion d’^{233}U dans les NL pour une taille d’hexagones de 15 cm. 229
B.2 Table de correspondance pour les configurations à deux zones de modération. 229

C.1 Répartition des créations de neutrons C_i et répartition des absorptions de neutrons A_i par zones du coeur pour la configuration *r2*. 232
C.2 Décomposition des coefficients de température en différentes contributions pour la configuration *r2*. 232
C.3 Répartition des créations de neutrons C_i et répartition des absorptions de neutrons A_i par zones du coeur pour la configuration *r8.5*. 232
C.4 Décomposition des coefficients de température en différentes contributions pour la configuration *r8.5*. 233
C.5 Répartition des créations de neutrons C_i et répartition des absorptions de neutrons A_i par zones du coeur pour la configuration *r12*. 233
C.6 Décomposition des coefficients de température en différentes contributions pour la configuration *r12*. 233
C.7 Répartition des créations de neutrons C_i et répartition des absorptions de neutrons A_i par zones du coeur pour la configuration *cu*. 234
C.8 Décomposition des coefficients de température en différentes contributions pour la configuration *cu*. 234

D.1 Inventaire des NL pour les configurations *r4*, *r8.5* et *cu* avec un retraitement des PF et des TRU en 6 mois, après 100 années de fonctionnement. 236
D.2 Inventaire des NL pour les configurations *r4*, *r8.5* et *cu* avec un retraitement des PF en 6 mois mais auto-incinération des TRU, après 100 années de fonctionnement (et à l’équilibre pour cu). 237

D.3 Part de la fission dans les processus de disparition des éléments pour différentes configurations auto-incinératrices. Les disparitions “totales” comprennent les disparitions par réaction et celles par décroissance radioactive. 238

“Je sers la science, et c’est ma joie.”

Disciplus simplex

Résumé

Le recours à l'énergie électronucléaire pour diminuer les émissions anthropiques de CO_2 nécessite des avancées technologiques majeures. Les réacteurs nucléaires de IV^e génération doivent répondre à plusieurs contraintes, telles qu'une sûreté améliorée, la régénération du combustible et la minimisation de la production de déchets radioactifs. De ce point de vue, l'utilisation du Cycle Thorium en Réacteurs à Sel Fondu semble prometteuse. Cet axe de recherche, étudié dans le passé, avait cependant débouché sur un concept dont les défauts ont empêché la réalisation. Une nouvelle réflexion est menée afin de trouver des solutions et d'aboutir au concept de Thorium Molten Salt Reactor.

Le couplage d'un code de transport de neutrons avec un code d'évolution des matériaux permet de simuler le comportement d'un coeur nucléaire, et de suivre son évolution tout au long de sa vie. Par cette méthode, nous avons étudié un large éventail de configurations de réacteurs. Les performances de ces systèmes ont été évaluées, grâce à un jeu de contraintes qu'ils doivent satisfaire au mieux.

Ce travail a permis de comprendre bon nombre de phénomènes physiques régissant le comportement de ces réacteurs. Grâce à cette nouvelle compréhension, la recherche de configurations acceptables a pu aboutir à des solutions satisfaisantes, apportant un souffle nouveau dans le domaine des Réacteurs à Sel Fondu.

Abstract

Producing nuclear energy in order to reduce the anthropic CO_2 emission requires major technological advances. Nuclear plants of IVth generation have to respond to several constraints, as safety improvements, fuel breeding and radioactive waste minimization. For this purpose, it seems promising to use Thorium Cycle in Molten Salt Reactors. Studies on this domain have already been carried out. However, the final concept suffered from serious issues and was discontinued. A new reflection on this topic is being led in order to find acceptable solutions, and to design the Thorium Molten Salt Reactor concept.

A nuclear reactor is simulated by the coupling of a neutron transport code with a materials evolution code. This allows us to reproduce the reactor behavior and its evolution all along its operation. Thanks to this method, we have studied a large number of reactor configurations. We have evaluated their efficiency through a group of constraints they have to satisfy.

This work leads us to a better understanding of many physical phenomena controlling the reactor behavior. As a consequence, several efficient configurations have been discovered, allowing the emergence of new points of view in the research of Molten Salt Reactors.

Mots-clés :

Réacteurs à Sel Fondu, TMSR, MSBR, cycle thorium, Generation IV, surgénération, MCNP, retraitement en ligne, neutronique, TRansUraniens, bullage, étude paramétrique, auto-incinérateur, coefficient de température