## UNIVERSITÉ DE GRENOBLE

## THÈSE

Pour obtenir le grade de

## DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE GRENOBLE

Spécialité : Mécanique des fluides, Énergétique, Procédés

Arrêté ministériel : 7 août 2006

Présentée par

### Vanessa VALLET

Thèse dirigée par **Prof. Alain SANTAMARINA** et encadrée par **Dr. Bernard GASTALDI** 

préparée au sein du Laboratoire d'Études et de Développement des Cœurs et de l'I-MEP2 : Ingéniérie - Matériaux, Mécanique, Environnement, Énergétique, Procédés, Production

## Recherche de l'économie des ressources naturelles par des études de conception de cœurs de réacteurs à eau légère et à haut facteur de conversion à combustibles mixtes thorium / uranium / plutonium

Thèse soutenue publiquement le **12 septembre 2012**, devant le jury composé de :

### **Monsieur Frank CARRE** Directeur Scientifique de la Direction Energie Nucléaire, Président Monsieur Paul REUSS Professeur de l'INSTN Saclay, Rapporteur Monsieur Eric SERRE Directeur de Recherche CNRS, Rapporteur **Monsieur Daniel HEUER** Directeur de Recherche CNRS. Examinateur Monsieur Luc VAN DEN DURPEL Directeur scientifique et expert international, Examinateur **Monsieur Alexis NUTTIN** Maître de Conférences (HDR) PHELMA/LPSC, Examinateur **Monsieur Alain SANTAMARINA** Directeur de Recherche au CEA Cadarache, Directeur de thèse Monsieur Bernard GASTALDI Ingénieur Chercheur au CEA Cadarache, Co-Directeur de thèse



ii

# Remerciements

Je souhaite tout d'abord exprimer ma reconnaissance à F. VARAINE pour m'avoir accueilli dans son laboratoire en l'an de grâce 2009, ainsi qu'à B. FONTAINE qui lui a succédé et qui a toujours été de précieux conseil, surtout vers la fin ! Je souhaite remercier mon directeur de thèse, A. SANTAMARINA pour sa patience ainsi que pour les échanges fructueux que nous avons eu. Je tiens également à remercier messieurs P. REUSS et E. SERRE pour m'avoir fait l'honneur d'être rapporteurs de mon mémoire, et pour les judicieux conseils prodigués. J'adresse de chaleureux remerciements aux autres membres du jury, en particulier à L. VAN DEN DURPEL et à A. NUTTIN qui ont suivi mes travaux, bien que d'un peu loin, mais toujours avec un enthousiasme revigorant, merci en particulier à Alexis pour sa relecture du mémoire !

Merci également à toutes les personnes avec qui j'ai eu l'occasion de travailler ou seulement de discuter, bien trop nombreuses pour que je les cite toutes, mais qui se reconnaîtront. Merci en particulier à Christine pour son aide précieuse et sa gentillesse, et merci à Edwin (mon premier stagiaire, snif!). J'ai eu la chance de préparer cette thèse dans un environnement exceptionnel (vive le Sud!) où j'ai appris à découvrir des gens sympathiques, ouverts et disponibles, et qui sont pour certains devenus au fil du temps des amis. Laurent, je me surprends parfois à lancer des buironades... et la sagesse neutronique que tu dispenses parcimonieusement sous formes de maximes révèle une longue expérience : "On a jamais le temps de faire un calcul précis et complet, mais on a toujours le temps de le refaire dix fois!". Comme cela est ô combien vrai! Marc, je ne dirais rien sur ta vision des femmes et la liberté avec laquelle tu me la fais partager (d'ailleurs j'attends toujours cette fameuse boite de chocolats...). Je ne remercierai jamais assez Julien, mon co-bureau et ami, qui a écouté patiemment mes soliloques de désespoirs tout comme mes éclats de rire, sans parler de l'approvisionnement en gâteaux, fraises et sucreries en tous genres, du soutien technique et informatique (je peux sourcer le *.bashrc*, dis je peux?) et des moments de décompression au Nez sous la Robe. Merci aussi à mes deux colocs Ans' et Oliv' pour le soutien mutuel que l'on s'est porté, et surtout pour avoir supporté pendant trois ans ma mauvaise foi et mes accès jubilatoires (en fonction du score bien sûr!) à la coinche. C'était chouette de vivre avec vous! Sans oublier Alix, Mel, Daniele, et François le français, et surtout toi, Nico! Tu as bien fait de fuir pendant ces deux dernières années, tu as échappé au pire :-) Merci aussi à ma famille sans qui je ne serais pas devenue la personne que je suis, et sans qui je n'en serais peut être pas là aujourd'hui.

Enfin, merci Ber d'avoir accepté de m'écrire ce sujet de thèse et pour le soutien et la disponibilité dont tu as fait preuve au cours de ces trois années. C'est un véritable plaisir de travailler avec toi, à la fois scientifiquement et humainement. Je garderai un souvenir impérissable de ton vin de pays qui fait pousser les cheveux à l'intérieur du crâne, et de ta brochette de rigaou !

10 cartouches d'encre noire, 2 claviers d'ordinateur, 157 boites de sablés fourrés au chocolat, 65 boites de sablés fourrés à la noisette, une dizaine de barquettes de fraises, 560 litres de café, 40 litres de chicorée lorsque la cafetière est tombée en panne, et un nombre indécent de bonnes bouteilles de vin ont été nécessaires à la réalisation de ce mémoire.

iv

À toi p'tite soeur, ce sera bientôt ton tour !

vi

# Table des matières

Re	emer	ciements	iii		
$\mathbf{Li}$	ste d	les Abréviations	xi		
In	trod	uction	1		
Ι	Étı	ıde Bibliographique	5		
<ol> <li>Rappels sur la recherche de haute conversion en REP à combustible ThO<sub>2</sub></li> <li>1.1 Rappels sur les performances des combustibles ThPuO<sub>2</sub> et ThUO<sub>2</sub> en REP standa</li> <li>1.2 Modifications apportées aux REP pour améliorer l'utilisation des ressources</li></ol>					
2	<b>Stra</b> 2.1 2.2 2.3	atégies symbiotiques de déploiement de RSM thoriés         Stratégie de déploiement en deux strates         Stratégie de recherche de haute conversion partielle         Proposition de parc nucléaire symbiotique à l'équilibre	<ul> <li>23</li> <li>24</li> <li>25</li> </ul>		
3	Rap 3.1 3.2	<b>opel des techniques de fabrication et de retraitement</b> Présentation des procédés de fabrication de combustibles à base de $ThO_2$ Rappels sur le retraitement de combustibles thoriés3.2.1Radioactivité à court terme des combustibles thorium irradiés3.2.2Stratégies de retraitement liées à $l^{232}U$ et au Pa3.2.3Présentation du procédé de retraitement THOREX3.2.4Fabrication et retraitement de MOX à haute teneur en plutonium	<ul> <li>27</li> <li>29</li> <li>29</li> <li>30</li> <li>31</li> <li>31</li> </ul>		
II	Co	odes de simulation neutronique et méthodes	33		
1	Rap	pels sur le bilan neutronique phénoménologique	35		
2	<b>Pré</b> 2.1 2.2 2.3	sentation des méthodes de résolution du flux par APOLLO2Les interactions neutrons/noyaux du bilan neutroniqueApproximations communes aux méthodes MOC et $P_{ij}$ 2.2.1Hypothèse de stationnarité2.2.2Discrétisation multigroupe2.2.3Quelles équations sont résolues pour chaque méthode?2.2.4Traitement de l'anisotropie de la section de transfertRésolution par la méthode MOC	<ul> <li><b>39</b></li> <li>42</li> <li>42</li> <li>42</li> <li>43</li> <li>44</li> <li>47</li> </ul>		
		<ul> <li>2.3.1 Discrétisation angulaire et balayage du domaine</li></ul>	47 48 49		

2.4	Résolution par la méthode Pij	50
	2.4.1 Définition des probabilités de premières collision	50
	2.4.2 Prise en compte des surfaces dans le système	51
	2.4.3 Calcul des $P_{ij}$ par APOLLO2	52
2.5	Présentation du formalisme d'autoprotection des résonances	54
	2.5.1 Rappels sur le phénomène d'autoprotection	54
	2.5.2 La méthode d'autoprotection des résonances dans APOLLO2	56
2.6	Présentation du schéma de calcul <i>REL2005</i>	63
Rap	opels sur l'équation de la diffusion et sa résolution par CRONOS2	65
3.1	Rappels sur la théorie de la diffusion multigroupe	66
3.2	Description de la chaîne de calcul assemblage/coeur	67
ΙC	Démarche	71
	2.4 2.5 2.6 <b>Rag</b> 3.1 3.2 I	<ul> <li>2.4 Résolution par la méthode Pij</li></ul>

1	Sála	ation d	lu domaina d'étuda	79		
Т	5ele	τίοn u		75		
	1.1	Evaluat	tion des parametres innuençant la conversion	() 70		
	1.2	Determ	lination d'un paramètre de comparaison, le FIR <sub>équivalent</sub>	76		
		1.2.1	Mise en évidence du besoin d'un paramètre de comparaison qualitatif	76		
		1.2.2	Application de la théorie des facteurs d'équivalence au FIR <sub>équivalent</sub>	78		
		1.2.3	Etude de sensibilité des facteurs d'équivalence en réactivité	81		
	1.3	Déterm	nination des combustibles de référence	84		
		1.3.1	Hypothèses et cadre de l'étude paramétrique	84		
		1.3.2	Détermination des inventaires fissiles des combustibles de référence	85		
	1.4	Sélectio	on d'un couple [RM, $C_{Th}$ ] dans le système fissile <sup>235</sup> U	87		
		1.4.1	Évaluation de l'impact du $^{232}$ Th sur le facteur de conversion	87		
		1.4.2	Évaluation de l'influence de <sup>232</sup> Th sur le TCT au déchargement	90		
		1.4.3	Évaluation de l'effet protactinium et de la puissance sur le FIR	92		
	1.5	Sélectio	on d'un couple [RM, $C_{Th}$ ] dans le système fissile Pu	93		
		1.5.1	Évaluation de l'impact du $^{232}$ Th sur le facteur de conversion	94		
		1.5.2	Évaluation de l'influence du <sup>232</sup> Th sur le TCT au déchargement	95		
		1.5.3	Évaluation de l'effet protactinium et de la puissance sur le FIR	97		
1.6 Détermination du paramètre Fraction Fissile Régénératrice						
		1.6.1	Détermination de la FFR du combustible <sup>232</sup> Th / <sup>233</sup> U	98		
		1.6.2	Détermination de la FFR du combustible U/Pu $\overset{'}{\ldots}$	99		
<b>2</b>	Déf	inition	de cœurs sous-modérés à combustible Th $Pu/U_{app}$ et $U_{app}Pu/Th$	103		
	2.1	Présent	tation du cœur RSM de référence	105		
		2.1.1	Description géométrique du coeur	105		
		2.1.2	Analyse de ses caractéristiques et de sa capacité de conversion	107		
	2.2	Étude o	du cœur RSM homogène à combustible ThPuO <sub>2</sub>	109		
		2.2.1	Détermination d'un plan de chargement	110		
		2.2.2	Évaluation des coefficients neutroniques et des paramètres cinétiques	112		
		2.2.3	Analyse de la capacité de conversion du cœur RSM homogène	117		
	2.3	Étude o	des performances de conversion de RSM hétérogènes à combustible ThPu/U	120		
		2.3.1	Suppression des tranches fertiles axiales	120		
		2.3.2	Augmentation de la teneur initiale en plutonium	122		
	2.4	Étude d	des performances de conversion de RSM hétérogènes à combustible UPu/Th	123		
	<u> </u>	241	Évaluation du concept à tranches fertiles axiales en $^{232}$ Th	123		
		242	Étude du BSM à assemblages fertiles en ThO <sub>2</sub>	127		
		243	Évaluation d'assemblages fertiles bétérogènes zonés $ThO_2 - UO_2$	129		

2.4.3Évaluation d'assemblages fertiles hétérogènes zonés  $ThO_2 - UO_2$ 1292.5Conclusion sur les capacités de conversion en RSM hétérogène136

3	Étu	de du multirecyclage de l' <sup>233</sup> U en RSM	139
	3.1	Étude du recyclage de l'U <sub>tho</sub> en RSM hétérogène	141
		3.1.1 Évaluation du recyclage de l'U <sub>tho</sub> en RSM <b>M-ThPu</b> $U_{\text{tho}}$ /F-U <sub>app</sub>	141
		3.1.2 Évaluation du recyclage de l'U <sub>tho</sub> en RSM M-U <sub>app</sub> Pu/T-U <sub>app</sub> / $\mathbf{F}$ -ThU <sub>tho</sub>	146
		3.1.3 Conclusion sur le recyclage de l'U <sub>tho</sub> en RSM hétérogène	148
	3.2	Évaluation des RSM $U_{app}U_{tho}$ et Th $U_{tho}$	149
		3.2.1 Évaluation du RSM homogène à combustible $ThU_{tho}O_2$	149
		3.2.2 Évaluation du RSM homogène à combustible $U_{app}U_{tho}O_2$	153
	3.3	Hypothèses et description des scénarios de transition	155
		3.3.1 Hypothèses générales des études de scénarios	155
		3.3.2 Description des scénarios	157
	3.4	Analyse des études de scénarios de transition	158
		3.4.1 Scénario A de déploiement des RSM M-ThPu/F-U <sub>app</sub>	158
		3.4.2 Scénario B de déploiement des RSM M-U_{app}Pu/T-U_{app}/F-Th	161
		3.4.3 Analyse des résultats comparés des scénarios RSM	162
	-		
4	Eva	luation de l'impact de la production anticipée d' <sup>233</sup> U en REP	167
	4.1	Stratégie de déploiement des RSM avec production d' <sup>235</sup> U anticipée en REP	169
	4.2	Détermination d'un cœur REP thorié pour la production d' <sup>253</sup> U anticipée	170
		4.2.1 Potentiel du concept à assemblages homogènes ThUO <sub>2</sub>	170
		4.2.2 Revue bibliographique des concepts de REP thoriés	172
		4.2.3 Compléments d'étude d'assemblages REP thoriés	173
		4.2.4 Conclusion sur les concepts et les stratégies de scénario	178
	4.3	Scénario C de transition vers un parc symbiotique REP - RSM	179
		4.3.1 Choix de modélisation	179
		4.3.2 Analyse des résultats	180
	4.4	Scénario D de transition vers un parc symbiotique REP - RSM	182
		4.4.1 Choix de modélisation	182
		4.4.2 Analyse des résultats	183
	4.5	Conclusion sur l'économie des ressources naturelles	184
Di	iscus	sion	189
	ise usi		100
Co	onclu	ision	195
	7 A		100
11		Annexes	199
۸	Rás	ultate des études de sensibilité des facteurs d'équivalence	201
Π	$\Delta 1$	Étude du combustible ThU. O	201
	$\Lambda$ 2	Étude du combustible II $PuO_2$	201
	Π.2	Exact the combustible $O_{app1} uO_2 \dots \dots$	200
В	La c	chaîne de calcul RSM2009-HEXA	205
	B.1	Le formalisme d'autoprotection	205
	B.2	Méthode d'élaboration des SAPHYB en fonction du milieu	211
С	Éva	luations thermique et thermohydraulique du cœur M-ThPu/F-U $_{app}$	213
	C.1	Sélection bibliographique des propriétés thermiques du ThPuO <sub>2</sub> $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$	215
	C.2	Distribution de puissance cœur CRONOS2	216
	C.3	Modélisation thermohydraulique du cœur pour FLICA4	216
	C.4	Analyse des résultats	217
		C.4.1 Températures caloporteur	217
		C.4.2 Températures combustible et gaine	218
		C.4.3 Évaluation du $REC_{min}$	218
		C 4.4 Calcul des pertes de charges	220

C.4.5 Conclusion sur l'évaluation thermohydraulique $\ldots \ldots \ldots \ldots \ldots$	221
<ul> <li>D Élaboration des modèles physiques utilisés dans COSI6 couplé à CESAR5</li> <li>D.1 Présentation du code de scénario COSI6 couplé à CESAR5</li></ul>	<b>223</b> 223 224
Bibliographie	231
Résumé général	238

# Liste des abréviations

A-CAP	Advanced Coated Agglomerate Pelletization
aepp	an équivalent pleine puissance
AHWR	Advanced Heavy Water Reactors
APRP	Accident de Perte de Réfrigérant Primaire
BARC	Bhabha Atomic Research Center
BBL	bibliothèques de sections efficaces pour CESAR
B&W	Babcock & Wilcox
BWR	Boiling Water Reactor
CANDU	CANada Deuterium Uranium
CAP	Coated Agglomerate Pelletization
CEA	Commissariat à l'Energie Atomique
CHF	Critical Heat Flux
CRP	Coordinated Research Project
CVR	Coolant Void Reactivity
∅ <sub>cœur</sub>	diamètre équivalent du cœur
DdC	début de cycle
DdV	début de vie
DNBR	Departure from Nucleate Boiling Ratio
DOE	Department Of Energy
EDF	Electricité de France
EPR	European Pressurized Reactor
EPRI	Electric Power Research Institute
FBTR	Fast Breeding Thorium Reactor
FC	Facteur de Conversion
FdC	fin de cycle
FdV	fin de vie
FFR	Fraction Fissile Régénératrice
FIR	Fissile Inventory Ratio
FIR <sub>ég</sub>	FIR-équivalent
FLWR	Flexible Light Water Reactor
GENTR	GENération TRois
H <sub>active</sub>	hauteur active
IAEA	International Atomic Energy Agency
IGCAR	Indira Ghandi Center for Atomic Research
INERI	International Nuclear Energy Research Initiative

IPG	Interaction Pastille-Gaine
IR	Intégrale de Résonance
JAERI	Japan Atomic Energy Research Institute
JEFF	Joint Evaluated Fission and Fusion
јерр	jour équivalent pleine puissance
LC	longueur de cycle
LOCA	Loss Of Coolant Accident
LWBR	Light Water Breeder Reactor
MIMAS	Micronized MASter blend
MOC	méthode des caractéristiques
MOX	Mixed OXide
MSRE	Molten Salt Reactor Experiment
NEA	Nuclear Energy Agency
NL	Noyaux Lourds
ORNL	Oak Ridge National Laboratory
OSMOSE	OScillation dans Minerve d'isOtopes en Spectre Eupraxique
pcm	pour cent mille $(10^{-5})$
$\Delta P_{cœur}$	pertes de charge du cœur
PF	produit de fission
PFIR	Plutonium Fissile Inventory Ratio
PHWR	Pressurized Heavy Water Reactors
$P_{ij}$	méthode des probabilités de première collision
ppm	partie par million $(10^{-6})$
P <sub>spécifique</sub>	puissance spécifique (W/g)
PUREX	Plutonium Uranium Refining by EXtraction
PWR	Pressurized Water Reactor
RCVS	Réacteur Convertible à Variation de Spectre
REB	Réacteur à Eau Bouillante
REC	Rapport à l'Echauffement Critique
REL	Réacteur à Eau Légère
REL HFC	Réacteur à Eau Légère et à Haut Facteur de Conversion
REP S-U/B-ThPu	REP d'assemblages seed $(UO_2)$ et blanket $(ThPuO_2)$
REP S-U/B-ThU	REP d'assemblages seed $(UO_2)$ et blanket $(ThUO_2)$
REP	Réacteur à Eau Pressurisée
RM	rapport de modération
RNR	Réacteur à Neutrons Rapides
RSF	Réacteur à Sels fondus
RSM	Réacteur Sous-Modéré
RSM M-X/T-Y/F-Z	RSM hétérogène composé d'assemblages fissiles de tranches axiales fissiles (M) de composition (X), de tranches axiales fertiles (T) de composition (Y) et d'assemblages fertiles (F) de composition (Z)
RSM M-ThU <sub>tho</sub>	RSM d'assemblages de composition initiale identique ${\rm Th} U_{\rm tho} {\rm O}_2$
RTR	Radkowski Thorium Reactor

$RSM\ M\text{-}U_{app}U_{tho}$	RSM d'assemblages de composition initiale identique $\rm U_{app}U_{tho}O_2$				
SAPHYB	bibliothèques de sections efficaces multi-paramétrées (APOLLO)				
SBU	Seed Blanket Unit				
SFR	Sodium Fast Reactor				
SHEM	Santamarina Hfaiedh Energy Mesh				
${\sf S}_N$	méthode aux ordonnées discrètes				
SSCR	Spectrum Shift Control Reactor				
$\Delta \mathbf{T}_{\mathbf{coeur}}$	différence de températures d'entrée et de sortie cœur du caloporteur				
$T_{comb}$	température du combustible				
ТСТ	taux de combustion				
TDT	Two/Three Dimensional Transport				
THOREX	THORium EXtraction				
ThOX	thorium OXide				
$T_{mod}$	température du modérateur				
$U_{app}$	uranium appauvri				
UFIR	Uranium Fissile Inventory Ratio				
$U_{nat}$	uranium naturel				
UOX	Uranium OXide				
$U_{tho}$	Vecteur uranium issu de l'irradiation du thorium, composé majoritairement de l'isotope $^{233}\mathrm{U}$				
WASB	Whole Assembly as Seed and Blanket				

# Liste des symboles

$\alpha$	rapport $\sigma_{ m capture} \ / \ \sigma_{ m fission}$
b	barn, unité de mesure des sections efficaces (1 b = $10^{-24}$ cm <sup>2</sup> )
$\beta$	fraction de neutrons retardés (en pcm)
$\chi$ n,2n	facteur de reproduction (n,2n)
C <sub>Th</sub>	fraction massique de $^{232}$ Th dans le support fertile du combustible oxyde
$\epsilon$ impair	facteur de fission rapide des actinides impairs
$\epsilon_{\sf pair}$	facteur de fission rapide des actinides pairs
η	facteur de reproduction
f	facteur d'utilisation thermique
k <sub>effectif</sub>	facteur de multiplication effectif
k <sub>infini</sub>	facteur de multiplication infini
$m_{NL}$	fraction massique donnée en % de noyaux lourds
ν	nombre de neutrons produits par fission
p	facteur anti-trappe
Σ	section efficace macroscopique (en $\rm cm^{-1}$ )
σ	section efficace microscopique (en barns, ou $10^{-24} \text{ cm}^2$ )

# Introduction

Les prévisions globales de croissance démographique et économique annoncent une augmentation de la consommation énergétique mondiale. Si à ce constat est associé une recherche de développement durable, il est évident, d'une part, que l'énergie nucléaire constituera une fraction significative du mix-énergétique mondial, et d'autre part que la question des réserves en uranium naturel doit être posée. A ce titre, le constat suivant est fait : dans l'hypothèse d'une croissance modérée de la production électrique d'origine nucléaire (doublement de la capacité de production en 2050 suivi d'une stabilisation), la totalité des réserves conventionnelles mondiales en uranium naturel (identifiées et raisonnablement assurées) seront engagées d'ici 2050, et une pénurie est attendue d'ici la fin de ce siècle [Greneche and Lecomte, 2010]. Ainsi, si le rythme de croissance des réacteurs nucléaires est maintenu avec la génération actuelle de réacteurs (GEN II ou GEN III), des tensions pourraient subvenir sur le marché de l'uranium d'ici la fin du siècle.

Ces éléments font partie de la réflexion à l'origine du Forum International Génération-IV visant à définir les objectifs, puis les concepts de la future génération de réacteurs. En effet, compte tenu des délais conséquents liés à la construction d'un réacteur (délai d'autant plus long que le concept est en rupture technologique avec les réacteurs de la génération actuelle), la conception des réacteurs de 2040 doit se faire maintenant. Parmi les critères de conception qui ont émergé de ce forum de réflexion, se trouve **l'augmentation du taux d'utilisation des ressources naturelles** (les autres critères portant sur l'amélioration de la sûreté, la résistance à la prolifération, la minimisation des déchets et la diminution des coûts). Ainsi, plusieurs de ces concepts ont pour vocation d'être isogénérateurs, c'est-à-dire produire autant de matière fissile qu'ils en consomment, ce qui apporterait une solution à très long terme au problème des ressources. Toutefois, bien que leur date de déploiement prévisionnelle soit 2040, une hypothèse plus réaliste prévoit la maturité de ces concepts et leur déploiement industriel repoussé à l'horizon 2080. L'hypothèse plausible d'un retard de déploiement de réacteurs régénérateurs impose de rechercher dès à présent des solutions alternatives [Delpech et al., 2009].

Dans la génération actuelle de REP, l'utilisation des ressources naturelles est limitée principalement pour deux raisons. La première raison est que le facteur de conversion des REP, qui rend compte de leur capacité à renouveler leur matière fissile, n'est pas un critère de conception, et n'est donc pas optimisé. Ce facteur est un indicateur du bilan entre production et consommation de noyaux fissiles, et il est de l'ordre de 0.5 dans les REP actuellement en exploitation. La seconde raison est que la fabrication du combustible UOX (oxyde d'uranium) des réacteurs à eau légère nécessite une quantité importante d'uranium naturel en amont de l'irradiation en réacteur. En effet, afin d'atteindre un taux de combustion au déchargement de l'ordre de 60 GWj/t, il est nécessaire d'enrichir l'uranium naturel à hauteur de 5% en masse en isotope fissile <sup>235</sup>U. Or, au cours de cette étape d'enrichissement, environ 10 tonnes d'uranium naturel sont nécessaires pour obtenir 1 tonne d'uranium enrichi. D'autre part, 81% des réacteurs en fonctionnement dans le monde sont des réacteurs à eau légère et parmi eux, 76% sont des réacteurs à eau légère pressurisée. Par conséquent, 62% des réacteurs en fonctionnement dans le monde utilisent "effectivement" à peine 1% de l'uranium naturel. La marge de progression est grande. Cependant le problème qui se pose est de savoir comment augmenter le taux d'utilisation des ressources naturelles.

Des études ont identifié très tôt les leviers permettant d'améliorer l'utilisation des ressources dans les réacteurs existants. En particulier, [Edlund, 1975] a mis en évidence l'importance de réduire la quantité de modérateur afin de viser des facteurs de conversion de l'ordre de 0.8 à 0.9. Cette étude est à l'origine des programmes menés par la suite sur les Réacteurs Sous-Modérés et à Haut Facteur de Conversion dans les années 80. Parmi ces études, Cornelis et al., 1985 ont proposé deux concepts de cœurs très sous-modérés à combustible UPuO<sub>2</sub> aux facteurs de conversion respectifs de 0.90 et 0.96. Les excellents résultats annoncés ont cependant nécessité de réduire le rapport de modération en-dessous de 0.3, et donc de passer à une technologie boitier avec fils espaceurs. A la même époque a été réalisée l'interprétation physique du programme expérimental d'irradiation du thorium au sein du réacteur de Shippingport mené dans les années 60 [Freeman et al., 1989]. Ce programme expérimental est particulièrement intéressant car il a démontré qu'il était possible d'atteindre un facteur de conversion supérieur à l'unité avec un combustible ( $^{232}$ Th- $^{233}$ U)O<sub>2</sub> dans un réacteur à eau légère, moyennant une baisse significative de la puissance spécifique du combustible, une grande complexité géométrique et une gestion originale des captures neutroniques. Cette complexité extrême met en évidence les limites de son adaptabilité industrielle ainsi que le challenge que représente la surgénération dans un réacteur à eau légère en spectre épithermique. Cependant, l'agencement particulier qui découle de la séparation des zones fertiles et fissiles a ouvert la voie à la recherche de haute conversion par multiplication des hétérogénéités du cœur [Shwageraus et al., 2004]. Néanmoins, ces études réalisées en cycle ouvert imposent des temps de séjour très longs (selon la puissance du réacteur), pour lesquels l'intégrité de la gaine est à démontrer [Lee et al., 2004].

Un rapide bilan fait ressortir la possibilité de concevoir des cœurs de facteur de conversion supérieur à 0.8 sans rupture technologique avec les REP existants. En effet, cette valeur de 0.8 a été identifiée comme le seuil à partir duquel le taux d'utilisation de l'uranium naturel augmente fortement [Delpech et al., 2009]. Par exemple, un facteur de conversion de 0.9 permet d'atteindre un taux d'utilisation de l'uranium naturel de 4% contre 1% seulement en REP standard. L'utilisation du thorium fait partie des moyens permettant d'accroître le facteur de conversion grâce au meilleur facteur de reproduction de l'<sup>233</sup>U [Greneche et al., 2007], en particulier en déclinant le concept *seed/blanket* (hétérogènes fertile/fissile) à différentes échelles. Enfin, l'abondance du thorium est théoriquement supérieure à celle de l'uranium (de l'ordre de 6 ppm dans la croûte terrestre, pour 2 ppm d'uranium, [IAEA, 2008b]).

De cette analyse ressort qu'une approche intermédiaire existe, consistant à optimiser des réacteurs mêlant les cycles uranium et thorium en visant un facteur de conversion compris entre 0.8 et 0.9, puis à déterminer des stratégies de multi-recyclage des matières fissiles <sup>233</sup>U et plutonium.

La démarche a consisté dans un premier temps à sélectionner les configurations susceptibles de conduire à un facteur de conversion élevé, c'est-à-dire supérieur à 0.8, tout en limitant la dégradation du taux de combustion au déchargement. Cette étape a nécessité d'évaluer, pour chacun des systèmes fissiles <sup>235</sup>U et plutonium, l'influence de la fraction massique de thorium en fonction du rapport de modération couvrant les spectres très thermiques à épithermiques. L'objectif a été de déterminer les domaines [spectres, teneur en thorium, système et teneur fissile] pour lesquels l'ajout de thorium induit un gain sur le facteur de conversion. (Chapitre 1).

A partir des domaines d'études mis en évidence, l'étape suivante a consisté à définir des cœurs de réacteurs à eau légère en spectre sous-modéré avec pour fissile nourricier le plutonium et pour support fertile de l'uranium appauvri et du thorium. La définition de ces cœurs a été guidée par la volonté d'accroître au maximum la production d'<sup>233</sup>U tout en limitant la consommation du plutonium (car les stocks et la production annuelle de plutonium en REP sont limités). En effet, il est difficile de déterminer *a priori* le critère de conception à privilégier entre production d'<sup>233</sup>U et limitation de la consommation de Pu. Cette étude a abouti sur un éventail de cœurs RSM aux performances diverses, résultant chacun de compromis différents [Vallet et al., 2011]. (Chapitre 2)

L'étape suivante a été de sélectionner et d'évaluer l'impact de deux cœurs RSM à combustible thorium particuliers sur l'économie d'uranium naturel. L'un des cœurs a été retenu pour sa production d'<sup>233</sup>U élevée, et l'autre pour sa consommation limitée de plutonium. L'évaluation a été réalisée sur la base de scénarios électronucléaires français, suite à l'étude du multi-recyclage de l'<sup>233</sup>U et du plutonium. L'idée a été de rechercher la meilleure stratégie à suivre, du point de vue de l'utilisation de l'<sup>233</sup>U pour chacun des concepts mis en évidence. Ensuite, l'économie d'uranium naturel apportée par chaque concept a été évaluée par une étude de scénario de transition [Vallet et al., 2012] (Chapitre 3).

La nature des résultats observés lors des études de scénarios a conduit à rechercher l'anticipation de la production d'<sup>233</sup>U par rapport aux scénarios précédents où celle-ci était réservée aux seuls RSM thoriés. Une étude bibliographique et des analyses complémentaires ont permis de déterminer un cœur REP thorié à assemblages *seed/blanket*, dont les productions d'<sup>233</sup>U et de plutonium intégrées sur la période 2020-2040 répondent à nos objectifs. Enfin, une stratégie de transition symbiotique a été élaborée, s'appuyant à la fois sur les réacteurs thermiques de type *seed/blanket* et sur les RSM. (Chapitre 4).

Première partie

# Étude Bibliographique

## Chapitre 1

# Rappels sur la recherche de haute conversion en REP à combustible $ThO_2$

Nous allons rappeler succinctement les différents concepts de cœurs de réacteur à eau pressurisée qui ont été proposés pour la production  $d'^{233}U$  d'une part, et pour atteindre de hauts facteurs de conversion d'autre part. Ces concepts vont de la substitution simple du support uranium en un support thorium en REP jusqu'à des concepts plus innovants hétérogènes et sous-modérés.

# 1.1 Rappels sur les performances des combustibles $ThPuO_2$ et $ThUO_2$ en REP standard

Les comportements neutroniques des combustibles ThPuO<sub>2</sub> et UPuO<sub>2</sub> sont similaires et autorisent la substitution du support uranium par un support thorium [Schaeffer, 1981]. Cependant, la plupart des études de conception de réacteurs à combustible ThPuO<sub>2</sub> réalisées dans le passé se sont focalisées sur l'incinération efficace du plutonium, d'origine civile ou militaire. En effet, le support ThO<sub>2</sub> évite la conversion  ${}^{238}\text{U}/{}^{239}\text{Pu}$  en cours d'irradiation et accroît le taux d'absorption neutronique du plutonium (facteur anti-trappe (*p*) supérieur à celui de l'<sup>238</sup>U). De plus, il est théoriquement possible d'atteindre des taux de combustion plus élevés qu'avec un combustible UOX ou MOX tout en maintenant un coefficient de vidange négatif [Bjork and Fhager, 2009].

La recherche de taux de combustion accrus a également été l'objectif poursuivi par [Joo et al., 2004] en combustible ThUO<sub>2</sub>. L'augmentation du taux de combustion au déchargement est l'un des moyens (à puissance constante), d'accroître l'utilisation des ressources, spécialement en cycle ouvert. L'interchangeabilité des cycles U et ThU en REP standard a permis la comparaison de trois alternatives à l'assemblage homogène constitué de combustible  $UO_2$ . Ces variantes sont un combustible ThUO<sub>2</sub> avec de l'uranium enrichi à 20% en isotope <sup>235</sup>U, un combustible ThUO<sub>2</sub> avec de l'uranium faiblement enrichi, et un assemblage de crayons duplex (Th+U)O<sub>2</sub>. Aucune de ces initiatives ne permet de rendre le recours au thorium économiquement plus intéressant.

[Galperin et al., 2002] ont analysé l'intérêt d'un combustible ThUO<sub>2</sub> par comparaison à un combustible UOX standard en cycle ouvert. L'attrait du thorium réside dans les qualités

neutroniques de son fissile fils, et en particulier en son facteur de reproduction ( $\eta$ ) élevé en spectre thermique/épithermique, ainsi qu'en son faible rapport  $\sigma_{\text{capture}} / \sigma_{\text{fission}}$  ( $\alpha$ ). Or, le thorium n'ayant pas initialement d'isotope fissile à l'état naturel, son irradiation en réacteur doit obligatoirement être initiée par un autre élément fissile. Pour bénéficier pleinement des qualités de l'<sup>233</sup>U, il est essentiel de maximiser la contribution de ce noyau à la production d'énergie. Cette étude est intéressante car elle propose comme paramètre de comparaison la fraction d'énergie effectivement dégagée par l'<sup>233</sup>U ainsi que le besoin en uranium naturel pour guider l'optimisation, à la fois en ce qui concerne la teneur et l'enrichissement de l'uranium, mais également les paramètres de la cellule tel que le rapport de modération (RM). Une définition du RM est le rapport entre volume de modérateur ( $V_{mod}$ ) et volume de combustible ( $V_{comb}$ ) :  $RM = V_{mod}/V_{comb}$ . Le RM peut être relatif à la cellule, à l'assemblage ou au cœur.

Les auteurs ont mis en évidence que dans le meilleur des cas, la fraction d'énergie produite par l'<sup>233</sup>U ne dépassait pas 22% en restant dans les limites d'un enrichissement à 20% de l'uranium (en isotope <sup>235</sup>U). De plus, dans le cas optimal par rapport au partage des contributions énergétiques, les besoins en uranium naturel augmentent avec 238 t/GWé.an contre 205 t/GWé.an pour de l'UOX enrichi à 5.8%.

Plus généralement, les différences remarquables suivantes ont été mises en évidence dans la littérature entre un combustible à support thorium et un combustible à support uranium. Tout d'abord, le pilotage du réacteur est plus délicat du fait de la faible **fraction de neutrons retardés**  $\beta$  de l'<sup>233</sup>U (Tab. 1.1). Le  $\beta$  du <sup>232</sup>Th est supérieur de 600 pcm à celui de l'<sup>238</sup>U, mais le taux de fission rapide du <sup>232</sup>Th est généralement plus faible (Le seuil de fission du <sup>232</sup>Th se situe à 1.05 MeV tandis que celui de l'<sup>238</sup>U est à 0.92 MeV). Selon le spectre et la composition du combustible, la plus forte valeur du  $\beta$  du <sup>232</sup>Th pourra éventuellement compenser celle très faible de son fissile fils, mais la fraction de neutrons retardés du combustible sera certainement plus faible que celle d'un MOX.

		Fertiles		Fissiles			
Isotope	$^{238}\mathrm{U}$	$^{232}$ Th	$^{240}$ Pu	$^{235}\mathrm{U}$	$^{233}\mathrm{U}$	$^{239}$ Pu	$^{241}$ Pu
$\beta$ (pcm)	1828	2433	535	679	224	296	535

TAB. 1.1: Fraction de neutrons retardés par isotope (pcm) [Reuss, 2003]

La cinétique de formation du fissile fils <sup>233</sup>U (1.1) dépend de la période de décroissance  $\beta^-$  de **son précurseur, le** <sup>233</sup>**P**a. Elle est de l'ordre de 27 jours, soit environ 10 fois plus longue que celle du <sup>239</sup>Np pour le cycle uranium (1.2).

$$^{232}Th + n \xrightarrow{233} Th \xrightarrow{22 \ min} \xrightarrow{233} Pa \xrightarrow{27 \ j} \xrightarrow{233} U$$

$$(1.1)$$

$$^{238}U + n \xrightarrow{239} U \xrightarrow{23 \text{ min}} \stackrel{239}{\beta} Np \xrightarrow{2.3 j} \stackrel{239}{\beta} Pu$$

$$(1.2)$$

D'autre part, le <sup>233</sup>Pa a une section d'absorption  $\sigma_{absorption}(2200 \text{ m/s}) = 41.5$  barns et une intégrale de résonance d'absorption IR = 856 barns (Fig. 1.1). Par conséquent, avant que cet isotope n'ait le temps de décroître pour former de l'<sup>233</sup>U, il pourra être responsable de captures parasites <sup>233</sup>Pa(n, $\gamma$ ) $\beta^{-234}U$ . Une capture parasite par le <sup>233</sup>Pa est une double perte : perte d'un noyau d'<sup>233</sup>U et perte d'un neutron disponible pour une capture fertile (à nuancer légèrement car la réaction <sup>233</sup>Pa(n, $\gamma$ ) peut conduire à la formation d'<sup>235</sup>U, moyennant une capture radiative de l'<sup>234</sup>U). Ainsi, non seulement le <sup>233</sup>Pa induit un délai dans la formation du fissile <sup>233</sup>U mais en plus il contribue à l'augmentation du taux d'absorption. Ces deux effets concourent à baisser fortement la réactivité en début de vie : c'est **l'effet protactinium**. Cet effet est proportionnel au niveau de flux du fait de la compétition entre décroissance radioactive et capture neutronique. En REP, où le flux thermique est élevé, les absorptions parasites du <sup>233</sup>Pa ne représentent qu'1% du taux d'absorption total. Une baisse de la puissance spécifique de 1% permet de réduire le taux d'absorption du <sup>233</sup>Pa de 1%, ce qui augmente la réactivité de 50 pcm [Aktogu, 1981]. Hors flux, le <sup>233</sup>Pa décroît intégralement en <sup>233</sup>U, ce qui induit une insertion de réactivité positive en cas de diminution de la puissance et dans les jours qui suivent l'arrêt du réacteur.



FIG. 1.1: Section de capture du <sup>233</sup>Pa (JEFF-3.1.1)

Les résonances épithermiques du <sup>232</sup>Th sont moins nombreuses que celles de l'<sup>238</sup>U (Fig. 1.2) et les premières grandes résonances en-dessous de 100 eV sont moins larges et légèrement plus faibles en amplitude : elles seront moins autoprotégées. Hors domaine énergétique des résonances résolues et non résolues, la **section de capture du** <sup>232</sup>Th est supérieure à celle de l'<sup>238</sup>U. Les courbes de sections efficaces révèlent également que le seuil de fission du <sup>232</sup>Th est décalé vers les hautes énergies (1.05 MeV, 0.92 MeV pour l'<sup>238</sup>U). Cela a deux incidences : la première est un taux de fission rapide plus faible sur support thorium et donc une baisse de la réactivité<sup>1</sup>, et la seconde est une contribution négative à l'effet de vidange, supérieure en valeur absolue à celle de l'<sup>238</sup>U. En effet, l'apport de réactivité dû aux fissions rapides diminue tandis que le taux de capture rapide augmente.

Enfin, la courbe des **rendements de fission de l'**<sup>233</sup>**U** est légèrement différente de celle de l'<sup>235</sup>U et des isotopes fissiles du plutonium (Fig. 1.3). En particulier, le rendement de fission associé aux produits de fission (PF) à vie longue (en particulier le technétium 99, dont le rendement de fission est de 5.03% pour l'<sup>233</sup>U alors qu'il est de 6.13% et 6.18% pour l'<sup>235</sup>U et le <sup>239</sup>Pu) est plus faible, ce qui explique le fait que la nocivité radiologique induite par les déchets radioactifs de combustible <sup>232</sup>Th/<sup>233</sup>U puisse être plus faible que dans le cas de l'uranium et du plutonium.

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>Dans un REP, l'<sup>238</sup>U contribue à hauteur de 8% à la réactivité totale par ses fissions rapides contre 2 à 3% seulement pour le <sup>232</sup>Th.



FIG. 1.2: Sections efficaces de capture et fission du  $^{232}$ Th et de l $^{238}$ U (JEFF-3.1.1)



FIG. 1.3: Courbe des rendements cumulés des produits de fission des isotopes <sup>233</sup>U, <sup>235</sup>U et <sup>239</sup>Pu [IAEA, 2008a]

D'autre part, l'absorption de neutrons par les PF constituent des captures parasites qui pénalisent d'autant plus le nombre de neutrons disponibles pour la conversion. Les PF les plus absorbants sont le  $^{135}$ Xe et le  $^{149}$ Sm. Or le rendement de ces PF en cycle thorium est plus faible qu'en cycle uranium, ainsi que l'atteste le Tab. 1.2.

Rendement cumulé (%)	$^{233}\mathrm{U}$	$^{235}\mathrm{U}$	<sup>239</sup> Pu	$^{241}$ Pu
$^{135}\mathrm{Xe}$	$5.5\pm0.4$	$6.6\pm0.2$	$7.4\pm0.2$	$7.0\pm0.2$
$^{149}\mathrm{Sm}$ et $^{151}\mathrm{Sm}$	$1.1\pm0.05$	$1.5\pm0.007$	$2.0\pm0.02$	$2.3\pm0.07$

TAB. 1.2: Rendement cumulé des PF<sup>135</sup>Xe, <sup>149</sup>Sm et <sup>151</sup>Sm par isotope fissile (JEFF-3.1.1)

En conclusion, la faisabilité de la substitution du support uranium par un support thorium a été démontrée, aussi bien en combustible  $ThUO_2$  qu'en combustible  $ThPuO_2$ , et les particularités liées au cycle thorium ont été identifiées. Cependant, l'utilisation de thorium au sein de REP standard en cœur homogène présente des performances de conversion limitées et ne permet qu'un très faible gain, voir aucun, sur l'utilisation des ressources. L'intérêt qui se dégage est celui cité par [Chebeskov et al., 2005], a savoir la possibilité d'utiliser le thorium en REP afin d'amorcer la production d'<sup>233</sup> U et d'effectuer une transition ultérieure vers un cycle <sup>232</sup> Th/<sup>233</sup> U.

## 1.2 Présentation des modifications apportées aux REP pour améliorer l'utilisation des ressources

Ces modifications sont principalement de deux catégories. La première étant un arrangement particulier des matières fertiles par rapport aux ressources fissiles en début de vie (aspect géométrique). La seconde consiste à rechercher la sous-modération.

### 1.2.1 Déclinaison du concept "seed/blanket"

La séparation des zones fertiles et fissiles a conduit au dessin et à la construction du cœur du LWBR surgénérateur de Shippingport (Fig. 1.4) au combustible  $^{232}$ Th $^{233}$ UO<sub>2</sub> [Olson et al., 2002]. L'idée de ce concept est qu'en séparant spatialement les isotopes fertiles des isotopes fissiles la compétition entre les absorptions par ces deux types d'éléments est amoindrie. En l'absence de noyau fissile fortement absorbant, plus de poids est conféré à la partie thermique de la section de capture du  $^{232}$ Th. Les zones fissiles ont un rôle nourricier. Cette répartition particulière offre pour avantage supplémentaire la séparation des cycles thorium et uranium, ce qui simplifie le retraitement des combustibles. Il devient également possible de décorréler les temps de séjour des différentes zones. Par exemple, pour le concept de cœur Radkowski Thorium Reactor (RTR) [Kasten, 1998], les assemblages en thorium séjournent environ 10 ans en cœur afin d'exploiter au maximum l'<sup>233</sup>U et d'éviter d'avoir à retraiter le combustible.

En REP, des structures hétérogènes (c'est-à-dire dont certains crayons et/ou assemblages diffèrent par leurs compositions initiales) de type *seed* et *blanket* ont été revisitées récemment avec des degrés d'hétérogénéité allant du cœur (assemblages de compositions différentes) [To-dosow and Kazimi, 2004] à la pastille (structure duplex) en passant par l'assemblage (crayons fertiles/fissiles). En particulier, une étude explorant ces deux derniers niveaux d'hétérogénéités sur un combustible ThO<sub>2</sub> - UO<sub>2</sub> (Fig. 1.5) a mis en évidence les phénomènes responsables d'une meilleure conversion et d'une limitation en terme de TCT [Shwageraus et al., 2004]. Ces mécanismes impliquent un effet de variation de spectre entre les zones fertiles/fissiles et un effet lié à la protection mutuelle des résonances. L'effet de spectre consiste en une thermalisation plus importante dans les zones fertiles en thorium et en un spectre décalé vers les plus hautes énergies



FIG. 1.4: Coupes radiale et axiale du LWBR de Shippingport, issues de la référence [Sehgal, 2010]

dans les zones d'uranium enrichi du fait de la présence d' $^{235}$ U absorbant de neutrons thermiques. Ces effets spectraux apparaissent dès que la taille des zones est de l'ordre de quelques libres parcours moyens des neutrons. Dans ces conditions, l'effet nourricier de la zone UO<sub>2</sub> est le plus prononcé.



FIG. 1.5: Schémas des structures microhétérogènes ThO<sub>2</sub>/UO<sub>2</sub> étudiées par [Shwageraus et al., 2004]

D'autre part, Shwageraus souligne l'importance du recouvrement des résonances de l'<sup>233</sup>U et de l'<sup>238</sup>U autour de 6.7 eV. En effet, lorsque ces isotopes sont présents conjointement au sein du combustible, le taux d'absorption de l'<sup>238</sup>U dans ce domaine énergétique diminue. Cet effet a été quantifié et contribue pour une baisse de 40% de l'absorption résonnante de l'<sup>233</sup>U tout en restant mineur par rapport à l'effet spectral.

En conclusion, la séparation spatiale des zones fertiles/fissiles permet d'utiliser plus efficacement les matières fertiles en cœur en augmentant le facteur de reproduction moyen du combustible, et en donnant plus de poids à la partie thermique des sections de capture fertile. En outre, cet agencement facilite la gestion et le retraitement des combustibles appartenant aux cycles thorium et uranium.

### 1.2.2 Le paramètre clé pour la haute conversion est la sous-modération

Le concept de Réacteur à Eau Légère et à Haut Facteur de Conversion (REL HFC) en combustible  $U_{app}$ PuO<sub>2</sub> avec recyclage du plutonium a été proposée de façon tout à fait visionnaire par [Edlund, 1975]. En effet, à cette époque, une augmentation croissante de l'énergie d'origine nucléaire dans le monde entier était attendue. Or il a également été pressenti qu'une utilisation plus efficace des ressources devait être recherchée dans l'intérêt général, avant le déploiement de réacteurs rapides surgénérateurs. Malheureusement, après l'accident de Three Mile Island le 28 mars 1979 et celui de Tchernobyl le 26 avril 1986, les prévisions d'un recours massif à la production d'énergie nucléaire ont été revues à la baisse.

Cependant, un peu plus tard, dans les années 80, un vaste programme impliquant différentes équipes de recherche dans le monde a vu le jour. En particulier en France avec le RCVS [Hittner et al., 1988], et au CEA où un rapport de faisabilité complet a été réalisé sur le RSM [Cantaloube, 1987]. À cette occasion, les outils de calcul neutronique, thermohydraulique et systèmes ont été adaptés au calcul des RSM et un vaste programme expérimental a été initié afin de qualifier ces outils de simulation.

### Rappels physiques sur le facteur de conversion

Le Facteur de Conversion (FC) est défini comme étant le rapport entre le taux de production de noyaux fissiles à un taux de combustion (TCT) donné, rapporté au taux de disparition de ces fissiles, au même TCT (1.3).

$$FC(TCT) = \frac{(\text{taux de production de noyaux fissile})(TCT)}{(\text{taux de disparition de noyaux fissile})(TCT)}$$
(1.3)

L'examen des voies de formation de chaque isotope fissile conduit à simplifier cette définition comme étant le rapport entre le taux de capture des isotopes fertiles,  $C_{fertile}$ , ramené au taux d'absorption des isotopes fissiles,  $A_{fissile}$  (1.4).

$$FC(TCT) = \frac{C_{fertile}(TCT)}{A_{fissile}(TCT)} = \frac{(C_{238}_{U} + C_{232}_{Th} + C_{240}_{Pu})(TCT)}{(A_{233}_{U} + A_{235}_{U} + A_{239}_{Pu} + A_{241}_{Pu})(TCT)}$$
(1.4)

En effet,

- L'<sup>233</sup>U est formé par réaction  $(n,\gamma)$  sur <sup>232</sup>Th (à l'absorption du <sup>233</sup>Pa près) (1.1)

- Le  $^{239}\mathrm{Pu}$  est formé par réaction (n, $\gamma)$  sur  $^{238}\mathrm{U}$  (1.2)
- Le <sup>241</sup>Pu est produit par capture sur <sup>240</sup>Pu (1.5)

$$^{240}Pu + n \rightarrow {}^{241}Pu \tag{1.5}$$

– Enfin, l'<sup>235</sup>U est produit à partir d'une capture neutronique par <sup>234</sup>U. Les voies de formation de l'<sup>234</sup>U sont la capture par le <sup>233</sup>Pa (suivi d'une décroissance  $\beta$ ), et par l'<sup>233</sup>U<sup>2</sup> :

$$^{233}Pa + n \rightarrow \stackrel{234}{\longrightarrow} Pa \xrightarrow{7h} \stackrel{234}{\longrightarrow} U + n \rightarrow \stackrel{235}{\longrightarrow} U$$
 (1.6)

$$^{233}U + n \rightarrow ^{234}U + n \rightarrow ^{235}U$$
 (1.7)

 $<sup>^{2}\</sup>mathrm{L'autre}$ voie étant à partir d'une décroissance  $\alpha$  du  $^{238}\mathrm{Pu}.$ 

### I. Étude Bibliographique

Ainsi, une capture neutronique par le <sup>232</sup>Th produit un noyau de <sup>233</sup>Pa qui conduit à la formation, soit d'un noyau d'<sup>233</sup>U par décroissance  $\beta$ , soit à la formation de l'isotope <sup>235</sup>U.

La formule (1.4) montre clairement que la recherche de haute conversion s'appuie sur deux critères. Le premier est l'augmentation du nombre de neutrons disponibles pour les captures fertiles, et la seconde l'augmentation du taux de capture fertile [Ronen, 1990]. C'est ici que la sous-modération (en fait le durcissement du spectre) prend tout son sens. En déplaçant le spectre neutronique du domaine thermique vers des énergies épithermiques :

- La plus faible thermalisation des neutrons favorise les captures dans les grandes résonances épithermiques du domaine du ralentissement, en particulier dans les résonances des fertiles  $^{238}$ U,  $^{232}$ Th et  $^{240}$ Pu. Le facteur anti-trappe (p) est réduit et a pour conséquence une baisse du taux d'absorption thermique (ce qui impacte principalement les noyaux fissiles).
- Le nombre de neutrons produits par fission (ν) augmente avec l'énergie. Le facteur ν de <sup>233</sup>U augmente d'environ 1.6 n/MeV tandis que ceux de <sup>239</sup>Pu et de <sup>241</sup>Pu croît d'environ 1.5 n/MeV, ainsi que l'illustre la Fig. 1.6. Jusqu'à 1 MeV, ce paramètre vaut entre 2.4 et 2.9 pour les quatre principaux fissiles (Tab. 1.3).
- La diminution du facteur p et l'augmentation de  $\nu$  concourent à augmenter le facteur de reproduction du combustible  $\eta = \frac{\nu \sigma_{\text{fission}}}{\sigma_{\text{absorption}}}$ . Le facteur de reproduction sera d'autant plus élevé si le fissile du combustible possède un faible rapport  $\sigma_{\text{capture}} / \sigma_{\text{fission}}(\alpha)$ .



FIG. 1.6: Facteurs  $\eta$  et  $\nu$  par isotope fissile (JEFF-3.1.1)

Chapitre 1. Rappels sur la recherche de haute conversion en REP à combustible  $ThO_2$ 

Isotope	<sup>235</sup> U		$^{233}\mathrm{U}$		<sup>239</sup> Pu		$^{241}$ Pu	
Paramètre	$\sigma_{th}$ (b)	IR (b)	$\sigma_{th}$ (b)	IR (b)	$\sigma_{th}$ (b)	IR (b)	$\sigma_{th}$ (b)	IR (b)
Fission (F)	584.98	268.86	530.85	762.46	746.53	293.24	1011.52	560.66
Capture (C)	98.68	139.88	45.24	138.06	272.64	181.21	362.69	180.16
$\alpha = \frac{C}{F}$	0.17	0.52	0.08	0.18	0.36	0.62	0.36	0.32
ν	2.42	2.42	2.48	2.48	2.85	2.85	2.90	2.90
$\eta = \frac{\nu}{1+\alpha}$	2.07	1.59	2.28	2.10	2.09	1.76	2.13	2.19

TAB. 1.3: facteur de reproduction ( $\eta$ ) et rapport  $\sigma_{capture} / \sigma_{fission}$  ( $\alpha$ ) des fissiles <sup>235</sup> U, <sup>233</sup> U, <sup>239</sup> Pu et <sup>241</sup> Pu (JEFF-3.1.1). La section thermique  $\sigma_{th}$  correspond à des neutrons de vitesse incidente 2200 m/s. IR est l'intégrale de résonance de la section ( $E \ge 0.5 \text{ eV}$ , coupure du Cadmium) en dilution infinie.

La sous-modération conduit naturellement à choisir pour fissile préférentiellement le plutonium plutôt que l'<sup>235</sup>U. En effet, le  $\eta$  des noyaux <sup>239</sup>Pu et <sup>241</sup>Pu est supérieur à celui de l'<sup>235</sup>U dans le domaine épithermique. L'<sup>233</sup>U est encore meilleur que le plutonium si l'on observe la Fig. 1.6a : son  $\eta$  est sensiblement constant autour de 2.2, et ce jusqu'à 1 MeV.

Pour illustration, [Kim and Downar, 2002] ont effectué la comparaison de quatre combustibles oxydes, U, (U+Th), MOX, (Th+Pu) à deux rapports de modération distincts, sur la base du FC et du coefficient de vidange. Les rapports de modération qui ont été sélectionnés correspondent à une sous-modération légère (RM = 1.139) et très forte (RM = 0.483). En particulier, pour la dernière, le réseau est hexagonal et non carré, ce qui permet une meilleure circulation du caloporteur (augmente la distance entre crayons) pour un même RM [Cornelis et al., 1985].

Combustible	U		TU		MOX		TMOX	
Composition	UO <sub>2</sub>		$(Th+U)O_2$		MOX		$\mathrm{ThO}_2 + \mathrm{MOX}$	
	$6\% \ ^{235}{ m U}$		$65\%$ Th, $6\%~^{235}{\rm U}$		6% fissile		65% Th, $6%$ fissile	
RM = Vm/Vf	1.139	0.483	1.139	0.483	1.139	0.483	1.139	0.483
Géom. crayon	carré	hexa	carré	hexa	carré	hexa	carré	hexa
$k_{inf} \text{ DdV}$	1.3339	1.1267	1.2114	0.9848	1.1952	1.1343	1.0617	0.9298
Facteur de	<b>0.4</b> 6/	0.70/	0.55/	<b>0.83</b> /	0.66/	0.84/	0.55/	0.85/
Conversion	0.73	0.95	0.74	0.94	0.79	0.94	0.77	0.99
Coeff. vidange	-396/	-345/	-533/	-505/	-117/	-7/	-683/	-209/
(pcm)	-577	-125	-637	-284	-164	83	451	-94

TAB. 1.4: Caractéristiques neutroniques en fonction de la composition des crayons et du réseau (0/50 GWj/t). La composition isotopique (%m) du plutonium ( $^{238}Pu/^{239}Pu/^{240}Pu/^{241}Pu/^{242}Pu$ ) = (1/59/21/14/5) [Kim and Downar, 2002]

Le Tab. 1.4 démontre clairement le gain sur le FC en réseau sous-modéré et illustre également l'impact bénéfique du support thorium sur le FC et sur le coefficient de vidange pour les cas MOX et (Th+Pu). Une sous-modération accrue conjointement au choix d'un combustible sur support thorium permettent d'augmenter le FC. En moyenne, quel que soit le combustible, la diminution du RM de 1.14 à 0.48 conduit à une augmentation de 0.2 sur le FC. Le passage sur support thorium permet de diminuer le CVR à même FC.

### Présentation des contraintes thermohydrauliques liées au resserrement du réseau

Les problèmes thermohydrauliques liés à la diminution du pas du réseau (solution généralement envisagée pour sous-modérer l'assemblage) ont été identifiés et étudiés précisément dès la fin des années 80 lors de la conception de cœurs RSM à combustible (U,Pu)O<sub>2</sub> [Cantaloube, 1987, Cornelis et al., 1985]. La réduction du rapport de modération est limitée par la contrainte d'extraction de chaleur (section de passage de l'eau). De plus, la conservation de la technologie de grilles et la limitation des pertes de charge du cœur ( $\Delta P_{cœur}$ ) imposent une distance minimale entre crayons de l'ordre de 1 à 2 mm, ce qui induit une limite basse au rapport de modération de 0.8 en réseau hexagonal [Golfier, 2007].

Différentes solutions peuvent être envisagées pour limiter les pertes de charge en réseau serré. La première consiste à diminuer la hauteur active ( $H_{active}$ ) du cœur. Ceci a pour conséquence d'augmenter la composante axiale de fuite. Bien que bénéfique en cas de vidange du circuit primaire, l'augmentation des fuites pénalise le bilan neutronique.

Le resserrement des crayons engendre une réduction du débit et par conséquent un moins bon refroidissement. Il est nécessaire alors, soit d'augmenter la puissance des pompes afin de compenser l'augmentation de  $\Delta P_{cœur}$ , soit de réduire la puissance spécifique ( $P_{spécifique}$ ) du combustible, comme cela a été réalisé pour le LWBR [Olson et al., 2002] ou encore dans [Permana et al., 2008]. Dans ces deux exemples, la  $P_{spécifique}$  a été réduite d'un facteur six par rapport à un REP standard.

L'abandon des grilles et le recours à la technologie "boîtiers" avec des fils espaceurs spiralés autour des crayons (Fig. 1.7) permet de limiter les pertes de charges dans le caloporteur et de réduire encore le RM jusqu'à des valeurs de 0.4. Avec cette technologie de fils espaceurs, les gaines en acier inoxydable sont à privilégier car des cannelures peuvent être intégrées directement, comme illustré Fig. 1.7, ce qui est plus difficile avec des gaines en zircaloy<sup>3</sup>. D'autre part, l'utilisation de gaines en zircaloy en réseau très serré est déconseillée car ces dernières ont tendance à gonfler après dépressurisation et à obstruer les sections de passage du caloporteur (problème de renoyage du coeur) [Penndorf, 1988]. Le zircaloy est transparent aux neutrons thermiques tandis que l'acier l'est aux neutrons rapides. En spectre épithermique, cette différence est réduite. Enfin, l'acier inoxydable est moins sujet à la corrosion par l'eau, des taux de combustions supérieurs sont donc envisageables et le recours à l'acier supprime le terme source d'hydrogène en cas d'accident.



FIG. 1.7: Schéma de crayons en réseau hexagonal avec gaines cannelées de fils espaceurs [Cornelis et al., 1985]

En conclusion, en réseau triangulaire avec fils espaceurs, des RM plus faibles peuvent être envisagés, malgré les limites thermohydrauliques mises en évidence sur les pertes de charge, l'extraction de chaleur et la distribution homogène de l'écoulement. Cependant, des boîtiers hexagonaux sont nécessaires pour maintenir la structure des faisceaux de crayons, et à des RM aussi

 $<sup>^{3}\</sup>mathrm{Le}$  zircaloy est le nom donné à un groupe particulier d'alliage de zirconium.

faibles de 0.4 à 0.5, la sur-modération locale au niveau de la lame d'eau inter-assemblage peut causer des variations locales importantes de la puissance [Millot, 1982].

Le calcul thermohydraulique des réseaux serrés à pas triangulaire a également nécessité de déterminer de nouvelles corrélations pour le Rapport à l'Echauffement Critique (REC). En particulier, des expériences menées au CEA de Grenoble sur un réseau triangulaire sous-modéré ont conduit à déterminer une nouvelle corrélation ainsi que des coefficients d'échange appropriés [Courtaud et al., 1988]. Le domaine de validité de la corrélation (réseaux à pas triangulaire) est :

- pression (bar) telle que 76 < P < 160
- vitesse massique  $(kg.m^{-2}.s^{-1})$  telle que 2000  $<{\rm G}<8000$
- titre thermodynamique tel que -0.2  $< {\rm X} < +0.4$

Un programme similaire a été mené en Allemagne [Donne and Hame, 1985] à la même époque. Une étude expérimentale et théorique menée plus récemment par [Cheng and Muller, 1998] dans le but de confronter les corrélations existantes. Il a été mis en évidence à cette occasion que la corrélation de Courtaud (GSM.6) est celle qui donne les meilleurs résultats par confrontation aux mesures expérimentales.

### 1.2.3 Présentations des modifications apportées aux RSM pour augmenter le facteur de conversion

### Gestion des captures neutroniques par variation de spectre

Dans les années 80, FRAMATOME a proposé un concept de réacteur sous-modéré original par sa gestion de la réactivité [Hittner et al., 1988]. Dans ce concept, dénommé Réacteur Convertible à Variation de Spectre (RCVS), le contrôle de la réactivité  $\rho$ , définie par (1.8), était effectué par retrait ou insertion de barres de combustible fertiles en U<sub>app</sub>. Des couvertures fertiles périphériques ont également été ajoutées afin d'utiliser les neutrons de fuite pour améliorer le bilan fissile au déchargement.

$$\rho = \frac{k_{\text{effectif}} - 1}{k_{\text{effectif}}} \tag{1.8}$$

Ce concept est particulièrement intéressant par la recherche d'économie de neutrons qu'il propose. En REP, la gestion de la réactivité sur le cycle s'effectue principalement par ajustement de la concentration en bore soluble dans le circuit primaire. Le  ${}^{10}B$  est un absorbant neutronique et ses captures sont considérées comme parasites dans la recherche de haute conversion. De plus, en RSM, l'efficacité du bore diminue fortement. La perte d'efficacité doit être compensée par l'augmentation de sa concentration dans le fluide primaire (concentration limitée par ailleurs à cause du coefficient modérateur).

Dans le cas du RCVS, la méthode consiste à insérer les barres fertiles en début de vie. Le taux de capture non stérile aboutissant à la formation d'isotopes fissiles augmente. Ce taux d'absorption supplémentaire en début de vie aide à contrôler la réactivité à la place du bore soluble du circuit primaire. Les barres sont ensuite progressivement extraites de l'assemblage en fonction du temps de séjour afin de diminuer le taux de capture fertile et augmenter le facteur facteur anti-trappe (p). Les barres de variations de spectre constituent en quelque sorte une réserve de réactivité dynamique.



(a) Section axiale d'un assemblage RCVS
 (b) Section axiale d'un 6<sup>ème</sup> du cœur RCVS
 FIG. 1.8: Coupes transversales du cœur et de l'assemblage du RCVS

Le RCVS a été conçu avec un RM de 0.6 et une teneur en plutonium de  $6\% m_{NL}$  (Fig. 1.8). Cet inventaire initial lui permet d'atteindre un taux de combustion au déchargement de 60 GWj/t tout en dégradant très peu la qualité du plutonium (de 69% à 66% de fissile). La faisabilité thermohydraulique ainsi que le comportement neutronique du cœur en cas de vidange du caloporteur ont été vérifiés. En particulier, l'optimisation du facteur de conversion du cœur à conduit à augmenter le nombre de crayons fertiles ainsi que leur diamètre. Des contraintes d'emplacement sont alors apparues pour les tubes guides qui ont été concentrés en une couronne intermédiaire entre le centre et la périphérie de l'assemblage. Cette disposition particulière de l'assemblage a engendré des différences de refroidissement dont il a fallu vérifier l'impact thermohydraulique. Le calcul thermohydraulique du RCVS a été à l'origine du programme expérimental mené à Grenoble et en Allemagne [Donne and Hame, 1985].

À la même époque, [Sider and Matzie, 1980] ont étudié un concept de réacteur à variation de spectre dénommé Spectrum Shift Control Reactor (SSCR). La variation de spectre est ici "énergétique", c'est-à-dire que le modérateur est de l'eau lourde (D<sub>2</sub>O) en début d'irradiation, puis il est dilué avec de l'eau légère en fonction du TCT afin de passer d'un spectre très épithermique favorable aux captures résonnantes en début de vie, à un spectre plus thermique en fin de vie, favorable aux fissions. Le bore soluble n'est plus requis et la gestion de la réactivité se fait par le contrôle de la modération. Les captures stériles sur le bore sont supprimées. Cette gestion de la modération du cœur permet d'accroître le FC de 15% (Fig. 1.9). Dans le même temps, le SSCR a également été étudié avec un combustible ThPuO<sub>2</sub> dans l'idée d'un "transmuteur"<sup>4</sup> du Pu en <sup>233</sup>U. La consommation de plutonium est alors réduite de 8% (g/MWj) par rapport à un REP pour un inventaire fissile initial comparable. D'autre part, la production d'<sup>233</sup>U par cycle est augmentée de 11%.

 $<sup>{}^{4}</sup>$ Cette formulation peut paraître un raccourci un peu audacieux. Le terme "transmutation" ne s'entend pas au sens traditionnel du terme, mais est employé ici pour évoquer la disparition de plutonium suivi indirectement par la production d'<sup>233</sup>U.



FIG. 1.9: Comparaison des facteurs de conversion entre le SSCR et un PWR (U,Pu)O<sub>2</sub>

Ces résultats vont dans le sens d'une meilleure utilisation des ressources. Cependant, le gain observé sur la consommation/production fissile reste faible en regard de la complexité et du coût engendré par la variation de spectre, qu'elle soit spatiale ou énergétique. À ce propos, l'étude de cette méthode pour des cœurs sous-modérés à haut facteur de conversion a été revisitée récemment par [Guillemin, 2009]. L'auteur a montré que ces deux méthodes conduisent à des Fissile Inventory Ratio (FIR) de 0.97 mais au détriment du taux de combustion, inférieur à 30 GWj/t. En conclusion, cette technique ne permet pas d'atteindre des FC supérieurs à l'unité et reste peu compétitive économiquement.

### Déclinaison du concept "seed/blanket" en réacteur sous-modéré

Un rapide bilan montre que la séparation spatiale des zones fertiles et fissiles permettait un meilleur rendement de conversion dans les zones fertiles. Cependant, l'enrichissement en isotopes fissiles des parties *seed* devra compenser l'absence de fissile des parties *blanket* au détriment de variations de puissance importantes entre les deux types de zone. D'autre part, il a été mis en évidence que la clé permettant d'atteindre des FC supérieurs à 0.8 était la sous-modération. L'objectif de cette section est de présenter quelques concepts de cœurs de réacteur qui allient ces deux principes : séparation spatiale des zones fertiles/fissiles et sous-modération.

### Assemblages/cœurs hétérogènes radialement

Un design de cœur sous-modéré à combustible  $(U,Pu)O_2$  en réseau hexagonal a été proposé par [Cornelis et al., 1985]. Le temps de résidence des parties *seed* et *blanket* a été décorrélé. L'assemblage de type *seed/blanket* est illustré sur la Fig. 1.10.

L'auteur a réalisé une comparaison entre les performances neutroniques de ce cœur hétérogène avec un cœur homogène de combustible, dimensions, longueur de cycle et inventaire en noyaux lourds similaires. Les principales différences entre les deux concepts sont la répartition hétérogène du fissile par rapport au fertile, ainsi que le temps de résidence du fertile (6 aepp contre 3 aepp pour le cœur homogène). La hauteur active de ces cœurs a été réduite à 220 cm du fait des pertes de charges plus importantes, ce qui rend plus aisé le renoyage du cœur en cas de vidange. La densité de puissance du cœur est de 159 W/cm<sup>3</sup> dans les *blanket* et 195 W/cm<sup>3</sup> dans les *seed*. Le résultat des calculs montre un facteur de conversion de 0.90 pour le cœur RSM homogène contre 0.96 pour le cœur hétérogène.



FIG. 1.10: Schéma d'une coupe axiale d'un assemblage hexagonal sous-modéré hétérogène proposé dans la référence [Cornelis et al., 1985]. La partie périphérique de l'assemblage est la partie blanket composée de crayons fertiles en réseau hexagonal ( $\Phi_{crayon}=1.12$  cm), tandis que la partie centrale correspond aux crayons seed ( $\Phi_{crayon}=0.74$  cm)

#### Coeurs hétérogènes axialement

Le concept seed/blanket a été appliqué pour définir un cœur "multicouches" alternant du combustible fissile fortement enrichi avec du combustible fertile. Initialement, l'idée d'un cœur galette a été émise par les japonais [Akie et al., 1992] et [Okumura et al., 1990] avec un combustible  $^{232}$ Th/ $^{233}$ U métallique enrichi à 8.5%. Les parties fissiles sont réparties axialement en 5 tranches de 24 cm d'épaisseur alternées par 4 couches fertiles internes de 16 cm et deux couches servant de couvertures axiales en tête et pied d'assemblage de 24 cm de hauteur (Fig. 1.11). Le rapport de modération est inférieur à 0.5. Durcir le spectre est bénéfique pour la conversion, mais préjudiciable sur le coefficient de vidange. L'idée est qu'avec un cœur galette, la composante axiale des fuites est suffisamment augmentée pour rendre le coefficient de vidange négatif.

Pour pallier cette limitation, [Ronen and Dali, 1998] ont proposé un cœur composé d'une succession de couches axiales d'uranium appauvri et d'uranium enrichi de 3 cm d'épaisseur qu'ils ont dénommé "Big Mac". Ce concept est particulièrement intéressant car il permet d'exploiter à la fois des effets de variation de spectre entre zones fertiles/fissiles et des effets de fuites dans ou hors des différentes couches. La  $H_{active}$  de ce cœur est de 366 cm pour un  $\emptyset_{cœur}$  de 337 cm et un RM de 0.5. Les zones fissiles sont constituées de MOX présentant une teneur en plutonium de  $12\%m_{NL}$ . La fraction fissile du plutonium est de 67%. Les zones fertiles sont en  $U_{app}$ . Les auteurs ont mis en évidence un facteur de conversion supérieur à 0.9 conjointement à un coefficient de vidange négatif pour un temps de séjour en cœur de 600 jours.



FIG. 1.11: Coeur galette multicouches [Akie et al., 1992] (Hactive=232cm, Øcœur=375cm)

En conclusion, la sous-modération (durcissement du spectre neutronique) est le levier le plus efficace pour atteindre la haute conversion. Ainsi, en jouant sur le rapport de modération, des FC de l'ordre de 0.8 peuvent être atteints, spécialement avec un combustible MOX dont le facteur de reproduction est plus indiqué que celui de l'<sup>235</sup> U en spectre épithermique. Cependant, la réduction du RM est limitée par la thermohydraulique, principalement à cause de l'extraction de chaleur et de l'augmentation des pertes de charge. La conservation des grilles REP ainsi que de la gaine en zircaloy imposent un RM supérieur à 0.8. L'utilisation de fils espaceurs spiralés et de gaines en aciers inoxydables permettent de réduire le RM jusqu'à des valeurs de 0.5. Enfin, la géométrie du coeur, et plus particulièrement, la répartition de zones fissiles nourricières, et fertiles dédiées à la conversion permettent d'accroître le FC tout en assurant un coefficient de vidange négatif.
## Chapitre 2

# Présentation des principales stratégies symbiotiques de déploiement de RSM à combustibles thoriés

Comparé à l'<sup>238</sup>U, le <sup>232</sup>Th présente des performances de conversion similaires en Réacteur Sous-Modéré (RSM) tout en assurant des marges supplémentaires sur le coefficient de vidange. D'autre part, l'<sup>233</sup>U produit par réaction  $(n,\gamma)$  sur le thorium est un fissile performant en spectre thermique et en spectre épithermique du fait de son rapport  $\sigma_{capture} / \sigma_{fission} (\alpha)$  faible et par conséquent de son facteur de reproduction  $(\eta)$  élevé. Ces deux éléments justifient l'étude du thorium dans des réacteurs à haute conversion. Cependant, du fait de l'absence de ce fissile à l'état naturel, il est indispensable de définir une stratégie de production/recyclage de l'<sup>233</sup>U en combinaison avec un cycle uranium/thorium.

#### 2.1 Stratégie de déploiement en deux strates

Une stratégie de déploiement avec deux types de RSM a été proposée par [Millot, 1982]. Le premier type de RSM est dénommé RSME pour RSM-économiseur de matière avec un combustible UPuO<sub>2</sub>, et le second type de RSM est dénommé RSMC pour RSM-Convertisseur de matière à base d'uranium enrichi et de plutonium. Ce dernier est fortement plutonigène avec des couvertures fertiles axiales et radiales en uranium appauvri afin d'accroître la vitesse de pénétration des RSME. Cette étude est particulièrement intéressante pour la stratégie qu'elle propose et constitue une évaluation préliminaire de l'intérêt des RSM dans le parc nucléaire français. Les RSM qui ont été considérés pour l'étude par l'auteur possèdent un RM de 0.5 avec boîtiers et fils espaceurs sur des gaines en acier inoxydable. Le FC du RSMC est supérieur à l'unité, ce qui lui confère un temps de doublement de 12,5 ans contre 70 ans pour le RSME.

Cette idée a été reprise par [Radkowski and Shayer, 1988] avec la notion d'un réacteur prebreeder alimentant un réacteur breeder. Ils sont partis du constat que la surgénération n'était pas possible en considérant la valeur du facteur de reproduction ( $\eta$ ) du <sup>239</sup>Pu seul. Si l'on se réfère au Tab. 1.3, on remarque que  $\eta_{239Pu}$  est inférieur à 2 sur le domaine [É  $\geq 0.5$  eV]. Toutefois, en considérant le  $\eta$  des deux noyaux fissiles (<sup>239</sup>Pu + <sup>241</sup>Pu), le  $\eta$  résultant est supérieur à 2. Le seul

Isotope	$^{232}$ Th	$^{238}\mathrm{U}$	<sup>240</sup> Pu
$\sigma_{capture}(2200 \ m/s) \ (b)$	7.40	2.68	285.83
$  \operatorname{IR}_{capture}(E \geq 0.5 \ eV) (b)  $	85.64	274.95	8483.86
Seuil de fission (MeV)	1.05	0.92	-
$\sigma_{fission}(2 \text{ MeV}) (b)$	0.13	0.57	1.75
$\operatorname{IR}_{fission}(E \geq 0.5 \ eV)$ (b)	0.00	0.00	3.36

problème est que la section d'absorption du  $^{240}$ Pu (Tab. 2.1) est trop importante et empoisonne le cœur dans un REP traditionnel.

TAB. 2.1: Sections et intégrales de résonances des fertiles <sup>232</sup> Th, <sup>238</sup> U et <sup>240</sup> Pu (JEFF-3.1.1)

Suite à ce constat, les auteurs ont proposé que le réacteur *pre-breeder* (sous-générateur) soit chargé avec du plutonium issu du retraitement d'un combustible UOX à 45 GWj/t dans le but de générer le plus possible de <sup>240</sup>Pu et <sup>241</sup>Pu. Ce cœur réalise en quelque sorte un enrichissement isotopique du plutonium. Pour cela, le concept de cœur *seed/blanket assembly modular arrangement* est sélectionné. Les *seed* amovibles sont en PuZr et les *blanket* en U<sub>nat</sub>. Après trois passages en coeur, le plutonium du combustible PuZr (dont la composition isotopique s'est enrichie en isotopes <sup>240</sup>Pu et <sup>241</sup>Pu) est retraité séparément du plutonium des *blanket* puis introduit dans le réacteur *breeder* (régénérateur) permettant la régénération du plutonium fissile. Le défi posé par ce concept est de retraiter vite le combustible afin de limiter la dégradation du <sup>241</sup>Pu en <sup>241</sup>Am hors flux.

Les auteurs ont analysé les effets prépondérants sur l'augmentation du facteur de conversion. Les deux effets majeurs sont l'augmentation du  $\eta$  grâce au <sup>241</sup>Pu, et l'augmentation du taux de fission des fertiles <sup>238</sup>U et <sup>240</sup>Pu. Ainsi, la complexité technologique et de gestion de ces deux types de cœur mises à part, cette étude alliant enrichissement isotopique en réacteur et stratégie symbiotique est originale et pertinente du point de vue de la recherche de haute conversion.

#### 2.2 Stratégie de recherche de haute conversion partielle

Une approche différente a été réalisée par [Ronen and Leibson, 1988]. L'idée a été ici d'introduire de l'<sup>235</sup>U au sein de combustibles U/Pu en RSM afin d'améliorer le CVR d'une part, et d'assurer la surgénération  ${}^{238}\text{U}/{}^{239}\text{Pu}$  d'autre part. Le fissile  ${}^{235}\text{U}$  dont le facteur de reproduction ( $\eta$ ) est moins élevé que celui des isotopes fissiles du plutonium est sacrifié pour améliorer la conversion U/Pu. D'autre part, l'augmentation de  $\eta_{235U}$  avec l'énergie est beaucoup plus faible que pour le plutonium, ce qui limite l'effet de vidange. Ainsi, les auteurs ont démontré que l'ajout de  $3\%\text{m}_{NL}$  d'<sup>235</sup>U permet d'obtenir un rapport d'inventaire en plutonium fissile, noté Plutonium Fissile Inventory Ratio (PFIR), de 1.02 tout en limitant la consommation en  ${}^{235}\text{U}$  avec un rapport d'inventaire en uranium fissile, noté Uranium Fissile Inventory Ratio (UFIR), de 0.71. Outre les marges gagnées sur le coefficient de vidange, les auteurs ont mis en évidence que cette stratégie permettait d'accroître la vitesse de pénétration des RSM.

Cette stratégie peut paraître contre-productive du point de vue de l'économie d'uranium naturel. En effet, il est proposé ici d'enrichir l'uranium à hauteur de 3%m en  $^{235}$ U pour améliorer la conversion  $^{238}$ U/ $^{239}$ Pu en spectre épithermique, avec la contrainte supplémentaire de devoir retraiter très vite le plutonium irradié. Cependant, il est intéressant de noter d'une part que

l'utilisation de l'uranium 235 qui est faite dans ce RSM est meilleure qu'en REP traditionnel. D'autre part, l'idée de sacrifier l'<sup>235</sup>U dont le  $\eta$  est faible en spectre épithermique au profit de la formation de plutonium peut être une approche pertinente dans le cas de réacteurs à cycles mixtes uranium-thorium-plutonium.

#### 2.3 Proposition de parc nucléaire symbiotique à l'équilibre

La notion de "scénario symbiotique" a été mentionnée originellement par Eschbach et Deonigi. Une adaptation de ce concept avec deux types de RSM qui soient surgénérateurs et dont l'un d'eux utilise la technique du SSCR a été proposée par [Carmona et al., 1981]. L'idée est d'utiliser chaque fissile (<sup>233</sup>U et Pu) là où son facteur  $\eta$  est le meilleur. Les deux types de réacteurs considérés pour l'étude sont :

- un REP standard à combustible  ${}^{238}$ U/ ${}^{233}$ U de puissance P<sub>thermique</sub> = 3000 MW et un taux de combustion au déchargement de 23 GWj/t, correspondant à la valeur de saturation de la concentration atomique en  ${}^{239}$ Pu.
- un RSM à combustible <sup>232</sup>Th/Pu à variation de spectre en réseau serré (RM = 0.4). Sa  $H_{active}$  a été réduite et la puissance volumique est limitée à 200 W/cm<sup>3</sup>.

Le problème qui est apparu est que le REP n'est pas auto-suffisant et de l'<sup>235</sup>U est nécessaire en complément. Au final, les auteurs ont calculé d'après les bilans matière que le ratio REP/RSM est de 4 pour 1. À ce bilan il faut rajouter environ 400 kg d'<sup>235</sup>U par cycle. En conclusion, l'économie d'U<sub>nat</sub> cumulée sur 30 ans est de 30% comparé au cycle uranium fermé avec recyclage de U et Pu.

Parmi les concepts proposés dans cette dernière section, on peut retenir l'idée que l'isogénération U/Pu ou Th/<sup>233</sup> U ne sera très certainement pas accessible dès la première strate mais pourra être mise en place avec un réacteur sous-générateur qui alimente un réacteur régénérateur. Ensuite, il peut être judicieux de sacrifier la conversion <sup>238</sup> U/<sup>239</sup> Pu si cela permet une meilleure utilisation des ressources par la suite (avec le <sup>241</sup> Pu [Ronen and Leibson, 1988] ou l<sup>233</sup> U). Enfin, avec les deux cycles uranium et thorium, la notion de scénario symbiotique prend tout son sens et son intérêt. Cependant, [Carmona et al., 1981] a mis en évidence que la consommation/production des matières fissile par concept ne sont pas équivalentes et qu'il est difficile d'obtenir un ratio de 1 pour 1.

## Chapitre 3

# Rappel des techniques de fabrication et de retraitement des combustibles $(Th/U/Pu)O_2$

L'étude de l'apport de combustibles oxydes mixtes (Th,U,Pu) et leur multirecyclage implique de rechercher l'état des connaissances en matière de fabrication de combustibles mixtes thoriés d'une part, et de la faisabilité de leur retraitement d'autre part. Les contraintes qui seront éventuellement dégagées fourniront les hypothèses aux études réalisées par la suite.

Un bilan des techniques et des procédés liés à l'amont et l'aval du cycle a été édité par l'AIEA en 2005 [IAEA, 2005b]. Une analyse encore plus récente a été effectuée par [Sehgal, 2010]. Cette publication est particulièrement intéressante car elle met en lumière les réalisations et les acquis d'un point de vue industriel. Les premiers réacteurs électrogènes chargés avec une fraction substantielle de thorium ont été construits et exploités principalement aux États-Unis entre 1960 et 1990. Le retour d'expérience sur la fabrication et le retraitement de ces combustibles est disponible et fait partie de la littérature ouverte. De plus, un vaste programme lié au thorium a été lancé en Inde du fait de leurs ressources élevées en thorium naturel (et de l'absence de ressources en uranium naturel) et de leur demande croissante en énergie [Balakrishnan et al., 2002].

# 3.1 Présentation des procédés de fabrication de combustibles à base de $ThO_2$

La fabrication de pastilles de ThO<sub>2</sub> de haute densité, c'est-à-dire supérieure à 95% de la densité théorique, a été réalisée, récemment en Inde [Anantharaman et al., 2008], et auparavant aux Etats-Unis pour le réacteur à eau bouillante d'Elk River et le réacteur à eau pressurisée Indian Point 1 [Sehgal, 2010].

Durant les 40 dernières années, plusieurs pays ont fabriqué avec succès des oxydes à base de thorium sous la forme de poudres et de micro-sphères lors d'opérations en contact, en boite à gants ou à distance grâce à des procédés complètement ou partiellement téléguidés. Différents procédés de conversion en oxyde peuvent ensuite être employés, selon que les préparations de ThO<sub>2</sub>, UO<sub>2</sub> et PuO<sub>2</sub> sont sous la forme de poudres (procédé "powder-pellet") ou de microsphères (procédés "vibro-sol", "sol-gel" ou par technique d'imprégnation) [Anantharaman et al., 2008]. Bien que la température de fusion plus élevée de l'oxyde de thorium soit un avantage sous irradiation, cela devient un inconvénient lors de l'étape de frittage. Par conséquent des températures supérieures à 2000°C sont requises pour atteindre la densité visée, ce qui peut devenir rédhibitoire à cause du coût engendré. Une solution a été proposée par [Yang et al., 2004], qui consiste à modifier le protocole de préparation des poudres. En particulier, il suggère un ajout d'alcool pendant le broyage humide de la poudre de ThO<sub>2</sub> ainsi que pendant le mélange des poudres ThO<sub>2</sub> et UO2. Avec ce procédé, des densités finales de 96% à 98% de la densité théorique ont été obtenues avec une distribution homogène de l'uranium et du thorium au sein des pastilles.

Le procédé Coated Agglomerate Pelletization (CAP) a été développé par [Kutty et al., 2009] au centre de recherche atomique Bhabha Atomic Research Center (BARC) en Inde pour la fabrication de combustible (Th,<sup>233</sup>U)O<sub>2</sub> et son industrialisation ultérieure. Ce procédé a été élaboré afin de diminuer les opérations générant des aérosols et de minimiser le nombre d'étapes nécessitant des protections radiologiques conséquentes. En effet, la présence d'<sup>232</sup>U requiert que les opérations soient menées en boites à gants derrière des blindages. Les matières premières pour initier le procédé sont des agglomérats de ThO<sub>2</sub> et des poudres d'U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>. Une évolution de ce procédé, Advanced Coated Agglomerate Pelletization (A-CAP) a ensuite été proposée. L'U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> n'est plus traité seul, mais dans un mélange 50% ThO<sub>2</sub> - 50% UO<sub>2</sub> afin de réduire les effets de rayonnement. Les combustibles obtenus ont été caractérisés [Kutty et al., 2009] et les analyses ont montré une distribution hétérogène de l'uranium au sein de la pastille. La zone centrale est plus riche en ThO<sub>2</sub> et des grains fins sont observés, tandis qu'en périphérie, zone plus riche en fission, la taille des grains est supérieure. Cette structure confère au matériau une plus grande plasticité à haute température ainsi qu'un meilleur piégeage des produits de fissions par les gros grains en périphérie.

Le ThO<sub>2</sub> est plus stable que l'UO<sub>2</sub> ou PuO<sub>2</sub> car cette molécule est dans son degré d'oxydation maximal. Cette propriété est ici aussi à double tranchant. En effet, une plus grande stabilité à l'oxydation autorise des temps de stockage plus longs pour le combustible irradié [Demkowicz et al., 2004]. Cependant, cela implique également que le ThO<sub>2</sub> sera plus difficile à dissoudre dans l'acide nitrique concentré. Le remède consiste à ajouter de faibles quantités d'acide fluorhydrique à l'acide nitrique ainsi que du nitrate d'aluminium afin de pallier les problèmes de corrosion des équipements en acier inoxydable, comme cela est suggéré dans [IAEA, 2005b].

Enfin, le programme expérimental du LWBR de Shippingport [Freeman et al., 1989] a démontré la fabricabilité à la fois de combustible  $Th^{233}UO_2$  contenant jusqu'à 5% en masse d'<sup>233</sup>U, et d'assemblages modulaires très hétérogènes [Olson et al., 2002].

Un rapide bilan des expériences menées jusqu'à présent ne soulève pas de problème de faisabilité en ce qui concerne la fabrication de combustibles mixtes  $(Th, U, Pu)O_2$ . Des procédés similaires à ceux élaborés pour le cycle uranium montrent de très bons résultats. Enfin, la recherche et le développement sur les combustibles à base de thorium connaît un nouvel essor en Inde notamment, du fait de leur politique énergétique volontariste basée sur cette ressource naturelle.

#### 3.2 Rappels sur le retraitement de combustibles thoriés

L'utilisation de combustible à base de thorium n'est pertinente que si elle s'accompagne du retraitement et du recyclage de l'uranium fissile produit [Sehgal, 2010]. Pour le programme du LWBR de Shippingport et le combustible de Indian Point, des installations pilotes ont été construites aux Etats-Unis afin de développer les procédés de retraitement de thorium irradié, de séparation de l'<sup>233</sup>U et de fabrication de combustible neuf à partir de <sup>232</sup>Th et <sup>233</sup>U. Ces campagnes se sont déroulées sans incident et un stock important d'<sup>233</sup>U a été constitué, actuellement entreposé à Oak Ridge National Laboratory (ORNL)<sup>1</sup>. Outre l'ORNL, les laboratoires Babcock & Wilcox (B&W) ont construit des installations à petite échelle dans l'objectif de commercialiser ensuite des Réacteurs à Eau Légère (REL) fonctionnant sur cycle thorium.

#### 3.2.1 Radioactivité à court terme des combustibles thorium irradiés

Les principales sources de radioactivité de combustibles thoriés irradiés sont l'<sup>232</sup>U et l'<sup>236</sup>U. L'<sup>236</sup>U appartient à l'une des deux voies de formation du <sup>238</sup>Pu, émetteur  $\alpha$ . Dans un combustible UOX ou MOX standard, la voie de formation du <sup>238</sup>Pu est dite "voie <sup>238</sup>U" (à travers les décroissances  $\beta$  du neptunium, et les réactions (n,2n) du <sup>239</sup>Pu). Cependant il existe une seconde voie, dite "voie <sup>235</sup>U". Une capture neutronique par <sup>235</sup>U forme de l'<sup>236</sup>U, qui par capture conduit à l'<sup>237</sup>U puis aux isotopes du neptunium et au <sup>238</sup>Pu par décroissances  $\beta$  successives. Cet isotope, mis à part le fait d'être très capturant et de constituer un poison neutronique, ne pose pas de problème spécifique qui ne soit pas déjà pris en compte pour le retraitement de combustibles UOX ou MOX [Murray et al., 2012].

Cependant, la fabrication d'oxydes à base de plutonium ou d'uranium issu de l'irradiation du thorium ne peut être menée qu'en boites à gant a minima, voire derrière des boucliers de protection radiologique à cause de la présence d'<sup>232</sup>U. En effet, cet isotope particulier de l'uranium, formé par réactions neutroniques sous flux (3.1), (3.2) et (3.3), n'est pas stable. Sa période radioactive est de 70 ans environ.

$$^{232}Th \xrightarrow{(n,2n)} ^{231}Th \xrightarrow{\beta-} ^{231}Pa \xrightarrow{(n,\gamma)} ^{232}Pa \xrightarrow{\beta-} ^{232}U$$

$$(3.1)$$

$$^{232}Th \xrightarrow{(n,\gamma)} ^{233}Th \xrightarrow{\beta-} ^{233}Pa \xrightarrow{(n,2n)} ^{232}Pa \xrightarrow{\beta-} ^{232}U$$

$$(3.2)$$

$$\overset{(n,2n)}{\longrightarrow} \overset{232}{U} \xrightarrow{(n,2n)} U \tag{3.3}$$

Parmi ses descendants, le <sup>212</sup>Bi, le <sup>212</sup>Po et le <sup>208</sup>Tl sont particulièrement importants car ils émettent des  $\gamma$  très énergétiques (0.8 et 1.6 pour le <sup>212</sup>Bi et 2.6 MeV pour le <sup>208</sup>Tl et le <sup>212</sup>Po).

$$\overset{232}{U} \xrightarrow{\alpha(70a)} \overset{228}{\longrightarrow} Th \xrightarrow{\alpha(2a)} \overset{224}{\longrightarrow} Ra \xrightarrow{\alpha(4j)/\gamma(0.2MeV)} \overset{220}{\longrightarrow} Rn$$

$$\overset{\alpha(1m)/\gamma(0.5MeV)}{\longrightarrow} \overset{216}{Po} \xrightarrow{\alpha(15s)} \overset{212}{\longrightarrow} Pb \xrightarrow{\beta(11h)/\gamma(0.3MeV)} \overset{212}{\longrightarrow} Bi$$

$$(3.4)$$

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>Environ 1098 canisters contenant de l'<sup>233</sup>U sous différentes formes (Molten Salt Reactor Experiment (MSRE), métal, oxyde, plaques...) selon le Department Of Energy (DOE).

$${}^{212}Bi \begin{cases} 36\% & \frac{\alpha(60m)/\gamma(0.8MeV)}{208} 208Tl \xrightarrow{\beta(3m)/\gamma(2.6MeV)} 208Pb (stable) \\ 64\% & \frac{\beta(61m)/\gamma(1.6MeV)}{212} 2^{12}Po \xrightarrow{\alpha/\gamma(2.6MeV)} \end{cases} \xrightarrow{208}Pb (stable) \end{cases}$$

Pour exemple, le niveau de contamination de l'<sup>232</sup>U dans un combustible (ThO<sub>2</sub> - 3% d'<sup>233</sup>UO<sub>2</sub>) de Réacteur à Eau Légère (REL) a été évaluée à  $0.2\% m_{NL}$  au déchargement [Sehgal, 2010].

Enfin, des risques de criticité sont à prendre en compte avec un combustible contenant de l'<sup>233</sup>U, car ils sont supérieurs à ceux concernant un combustible UOX standard du fait de sa faible masse critique [Kiriyama and Pickett, 2000]. La masse critique de l'<sup>233</sup>U est évaluée à 16 kg, contre 48 kg pour l'<sup>235</sup>U, et 10 et 13 kg respectivement pour le <sup>239</sup>Pu et le <sup>241</sup>Pu. Par conséquent, les limitations couramment employées pour les opérations sur combustibles irradiés devront être adaptées à ce nouveau type de combustible.

#### 3.2.2 Stratégies de retraitement liées à l'<sup>232</sup>U et au Pa

Différentes stratégies sont possibles. La première consiste à refroidir le combustible plusieurs années (>20 ans) afin de faciliter sa manipulation en s'affranchissant des blindages radiologiques. La seconde stratégie est de le retraiter dans un délai court devant la période de décroissance de l'<sup>228</sup>Th, en opérations semi-téléguidées [Brooksbank et al., 1974].

Par ailleurs, des solutions existent pour limiter l'apparition des émetteurs  $\gamma$ , soit en cœur sous irradiation, soit par la suite dans les quelques semaines qui suivent le déchargement. Sous flux, la formation d'<sup>232</sup>U peut être réduite en agissant sur la thermalisation des neutrons. En effet, les réactions (3.1), (3.2) et (3.3) montrent que ce sont les neutrons énergétiques par réaction (n,2n) qui vont conduire à l'apparition de l'<sup>232</sup>U. Un brevet a été déposé par [Lang and Stetson, 1982] pour des REP. La solution avancée est d'utiliser des crayons creux avec du modérateur au centre afin de diminuer la fractions de neutrons rapides responsables des réactions (n,2n) sur le <sup>232</sup>Th, l'<sup>233</sup>U et le <sup>233</sup>Pa.

Hors flux, la séparation du <sup>228</sup>Th du reste du combustible dans les quelques semaines qui précèdent le retraitement permet de stopper la formation des émetteurs  $\gamma$ . La cinétique d'apparition des isotopes énergétiques en bout de la chaîne de filiation de l'<sup>232</sup>U est déterminée par la demi-vie du <sup>228</sup>Th (2 ans). À partir du <sup>228</sup>Th, les périodes de décroissances sont beaucoup plus courtes (au maximum 4 jours). Ainsi, l'avantage d'extraire le <sup>228</sup>Th est de couper le processus de désintégration au niveau de cet isotope. En général les temps de refroidissement avant retraitement sont de l'ordre de 5 à 10 ans, ce qui est faible devant la période de l'<sup>232</sup>U mais du même ordre de grandeur que celle du <sup>228</sup>Th.

La question du temps de refroidissement optimal est également posée avec les isotopes <sup>233</sup>Pa et <sup>233</sup>U. En effet, la formation d'<sup>233</sup>U dépend de la période de décroissance radioactive du protactinium. Or, cette période est de l'ordre de 27 jours, ce qui est environ 10 fois plus long que celle du <sup>239</sup>Np (2 jours) dans le cas du cycle uranium. D'après [IAEA, 2005b] il est nécessaire d'attendre au moins 12 mois avant de séparer et retraiter l'uranium du combustible irradié afin que la décroissance du <sup>233</sup>Pa soit complète. Ainsi, il n'y a pas de perte de fissile <sup>233</sup>U et l'impact radiologique à long terme est réduit.

[Sehgal, 2010] reporte notamment qu'au sein de l'installation de fabrication Kilorod à l'Oak Ridge National Laboratory (ORNL), 1000 crayons de Th<sup>233</sup>UO<sub>2</sub> contenant  $3\%m_{NL}$  d'<sup>233</sup>U ont été fabriqués dans un délai de 8 mois. Le combustible neuf a été fabriqué à partir d'uranium de retraitement dont le <sup>228</sup>Th a été préalablement extrait pour limiter l'impact radiologique. La fabrication a été réalisée avec le procédé Sol-Gel suivi d'une vibro-compaction pour obtenir des crayons combustibles. Pour indication, cette installation a permis de fabriquer des combustibles neufs à partir d'uranium et thorium de retraitement avec une capacité de 60 à 3700 kg<sub>NL</sub>/jour dans un environnement protégé par blindage et avec opérations téléguidées.

#### 3.2.3 Présentation du procédé de retraitement THOREX

Le procédé THORium EXtraction (THOREX) est analogue au procédé Plutonium Uranium Refining by EXtraction (PUREX) d'extraction liquide-liquide et a été spécifiquement développé pour le retraitement de combustibles <sup>232</sup>Th-<sup>233</sup>U. Le document de [Gresky, 1956], publié par ORNL détaille précisément chaque étape. Deux variantes de ce procédé ont été plus largement étudiées : "Interim 23" et "Acide THOREX". Interim 23 permet de séparer l'uranium en laissant le thorium dans les raffinats d'extraction avec les PF [Flanary et al., 1964] tandis que le procédé Acide THOREX permet de séparer uranium et thorium [Rainey and Moore, 1962]. Une installation de recherche a été construite en Inde au sein du Bhabha Atomic Research Center (BARC) à la fin des années 60 afin de mener des études sur ce procédé. Une seconde installation a vu le jour à IGCAR afin de retraiter le combustible <sup>233</sup>U sur support aluminium du réacteur CIRUS.

Outre les difficultés déjà mentionnées relatives à la dissolution, des points durs sont à souligner également au niveau de l'étape de séparation par extraction liquide-liquide par le solvant TBP (risque de formation d'une troisième phase, formation de HDBP responsable de la rétention d'actinides). Ici encore des solutions ont été proposées, en particulier des substituts au TBP comme solvant extracteur [Miguirditchian et al., 2008].

Par conséquent, le retraitement de l'oxyde de thorium est délicat et le degré de maturité du procédé THOREX n'est pas aussi avancé que celui du procédé PUREX. Il est à noter cependant que cette technique a fait ses preuves. D'autre part, des alternatives à ce procédé existent. En particulier, une équipe canadienne a déposé un brevet décrivant un procédé plus simple et moins onéreux pour séparer les absorbants de la famille des terres rares des matières fissiles et fertiles par dissolution dans un acide fort [Sullivan and Hamilton, 1999]. Enfin, pour le retraitement à la fois d'uranium, de plutonium et de thorium, une combinaison des procédés THOREX et PUREX doit être employée. Bien que cette méthode soit fonctionnelle, des investigations supplémentaires sur l'optimisation de la chimie du procédé sont requis [IAEA, 2005b]. Des développements technologiques sont en cours en Inde pour le retraitement à plus grande échelle [Anantharaman et al., 2008].

#### 3.2.4 Fabrication et retraitement de MOX à haute teneur en plutonium

La recherche de haute conversion se dirige vers la sous-modération accrue. De plus fortes teneurs en plutonium (et en fissile en général) seront nécessaires pour atteindre des longueurs de cycle comparables à celles des REP actuels. La fabrication de combustible MOX par le procédé Micronized MASter blend (MIMAS) est bien adapté à des teneurs moyennes en plutonium de 12%, cependant des microstructures hétérogènes d'amas enrichis en plutonium de quelques dizaines de  $\mu m$  apparaissent lorsque le taux de dilution du mélange mère par une poudre d' $UO_2$  devient trop faible [Bairiot et al., 1999]. Cependant des combustibles MOX à teneur en plutonium comprise entre 18 et 30% $m_{NL}$  ont déjà été fabriqués par le passé pour être irradiés dans PHENIX et RAPSODIE [Leclere et al., 1999].

Le procédé  $COEX^{TM}$  constitue une évolution du procédé PUREX aménagé pour produire des mélanges Uranium/Plutonium (U/Pu > 20%) [Laveissiere, 2008]. Ce procédé permet une co-extraction de l'uranium et du plutonium, ce qui évite la production de plutonium séparé et réduit les risques de prolifération. La co-extraction est suivie d'une conversion de la solution par coprécipitation oxalique, puis d'une calcination. La fabrication d'oxydes mixtes homogènes a été démontrée à ATALANTE au CEA de Marcoule en 2007.

Les capacités annuelles de production de l'usine MELOX sont actuellement limitées à 220 t d'oxydes mixtes (dont 120 t de MOX). Les risques liés à la fabrication de MOX sont un débit de dose neutronique et de  $\gamma$  élevés aux postes de travail (protections radiologiques et exploitation automatisée), des risques de contamination et de dégagement de chaleur (enceintes étanches, entreposages refroidis), et un risque de criticité (limitation de la masse de plutonium et des produits hydrogénés). Des limites sont imposées sur les fractions massiques en <sup>241</sup>Am et <sup>240</sup>Pu [Fukuda et al., 1999]. Par l'exemple, à l'usine MELOX, la concentration maximale autorisée en <sup>241</sup>Am est de  $3.0\% m_{NL}$ , et la concentration minimale en <sup>240</sup>Pu est de  $17\% m_{NL}$ . Par ailleurs, une contrainte supplémentaire stipule que le ratio <sup>238</sup>Pu/Pu doit rester inférieur à 3.4% afin de limiter le dégagement de chaleur et l'émission de neutrons [Murray et al., 2012].

## Deuxième partie

# Codes de simulation neutronique et méthodes

## Chapitre 1

# Rappels sur le bilan neutronique phénoménologique d'un réacteur nucléaire

Le pilotage d'un réacteur nucléaire se fait en maintenant constant et égal à l'unité le facteur de multiplication effectif ( $\mathbf{k}_{effectif}$ ). Ce facteur indique l'état d'équilibre ou de déséquilibre de la réaction de fission en chaîne. C'est une mesure à un instant donné de l'excédent de neutrons d'une génération n de neutrons par rapport à la génération n - 1 qui lui a donné naissance, d'où le nom de facteur de multiplication. Ce facteur tient compte des fuites hors du réacteur. À ce  $k_{effectif}$  est par conséquent associé un facteur de multiplication infini ( $\mathbf{k}_{infini}$ ) qui correspond au  $k_{effectif}$  dans le cas où le réacteur serait infini dans les trois dimensions de l'espace, et donc sans fuite neutronique. Ainsi les deux sont reliés par la relation (1.1) en notant P le terme de production de neutrons dans la pile, A le terme de disparition par absorption et L le terme de disparition par fuite.

$$k_{effectif} = \frac{P}{A+L} = \frac{k_{infini}}{1+\frac{L}{A}}$$
(1.1)

Le calcul de la taille critique et l'optimisation du réseau de la première pile nucléaire CP1 de Chicago a été réalisé par Enrico Fermi sur la base d'une décomposition phénoménologique du  $k_{infini}$ , appelée **formule des quatre facteurs**. Cette formulation permet une compréhension physique simple du bilan neutronique.

Soit un neutron qui entre dans le domaine thermique. Ce neutron a une probabilité **f** (facteur d'utilisation thermique) d'être absorbé dans le combustible. Cette absorption va conduire à la production de  $\eta$  (facteur de reproduction) neutrons. Ces  $f\eta$  neutrons produits vont se multiplier en  $\epsilon \eta f$  neutrons, grâce aux fissions rapides dans le combustible représentées par le facteur de fission rapide ( $\epsilon$ ). Ces  $\epsilon \eta f$  neutrons vont enfin aborder le ralentissement avec une probabilité p de ne pas être absorbé dans les résonances épithermiques, **p** étant le facteur antitrappe. Par conséquent, pour un neutron thermique de la génération n, il arrive  $\epsilon \eta f p$  neutrons à l'énergie thermique à la génération n + 1 (1.2). Au final,

$$k_{infini} = \epsilon p f \eta \tag{1.2}$$

La formule des quatre facteurs est bien adaptée aux réseaux UOX où la majorité des fissions sont celles de l'<sup>235</sup>U dans le domaine thermique tandis que la plupart des contributions au facteur  $\epsilon$  sont les fissions rapides de l'<sup>238</sup>U. Toutefois, dans le cas d'un combustible MOX, cette formulation présente des limites du fait des nombreuses résonances des isotopes du plutonium entre 0.1 et 5 eV qui durcissent le spectre neutronique. Tous les effets ne sont pas alors découplés et il est nécessaire de décomposer le facteur  $\epsilon$  en un terme de fission rapide "fertile" et un terme de fission rapide "fissile". Par ailleurs, la première formulation de Fermi ne tient pas compte de la multiplication des neutrons rapides par réactions autres que les fissions rapides, telle que la réaction (n,2n) notamment. Une formulation légèrement différente et plus complète a été proposée par [Blanc-Tranchant, 1999], puis modifiée par [Hfaiedh, 2006]. Ces modifications conduisent à la formule formule des six facteurs (1.3).

$$k_{infini} = \chi_{n,2n} \epsilon_{pair} \epsilon_{impair} p f \eta$$
(1.3)

Les expressions détaillées de chacun de ces facteurs font référence à un domaine énergétique "rapide" et un domaine "thermique". La coupure thermique est prise à  $E_{th}=0.625$  eV afin que la résonance de capture du <sup>240</sup>Pu soit comptabilisée dans le facteur anti-trappe. Les neutrons d'énergie supérieure à  $E_{th}$  appartiennent au groupe 1 ("rapide") tandis que les neutrons d'énergie inférieure appartiennent au groupe 2 ("thermique"). Les notations  $A^{1,2}$ ,  $F^{1,2}$ ,  $P^{1,2}$  correspondent respectivement au taux d'absorption, taux de fission et taux de production dans le groupe 1 ou 2. Les indices (n,2n), c, pair et impair correspondent respectivement aux termes taux de réaction (n,2n), combustible, actinides pairs et actinides impairs. Ainsi,

 $-\chi_{n,2n}$  est le facteur de réaction à seuil (n,2n) du combustible

$$\chi_{n,2n} = \frac{A}{A - P_{n,2n}} \tag{1.4}$$

 $-\epsilon_{pair}$  est le facteur de fission rapide des actinides pairs. Il est calculé comme étant le rapport production par absorption du combustible dans un système où les actinides pairs sont considérés comme fissiles, ramené à ce même rapport dans un système où les actinides pairs sont considérés comme non fissiles

$$\epsilon_{pair} = \frac{\frac{P}{A}}{\frac{P - P_{pair}^1}{A - F_{pair}^1}} \tag{1.5}$$

-  $\epsilon_{impair}$  est le facteur de fission rapide des actinides impairs. Dans le système où les isotopes impairs sont considérés comme non-fissiles (car comptabilisés dans le facteur  $\epsilon_{pair}$ ), le facteur  $\epsilon_{impair}$  est calculé comme étant le rapport production par absorption du combustible dans un système où les actinides impairs sont considérés comme fissiles, ramené à ce même rapport dans un système où les actinides impairs sont considérés comme non fissiles dans le domaine rapide. Ainsi après avoir isolé les fissions des actinides pairs on isole celles des actinides impairs dans le groupe rapide

$$\epsilon_{impair} = \frac{\frac{P - P_{pair}^{1}}{A - F_{pair}^{1}}}{\frac{P - P_{pair}^{1} - P_{impair}^{1}}{A - F_{pair}^{1} - F_{impair}^{1}}} = \frac{\frac{P - P_{pair}^{1}}{A - F_{pair}^{1}}}{\frac{P^{2}}{A - F^{1}}}$$
(1.6)

 p est le facteur anti-trappe. Il traduit la probabilité qu'un neutron passe le domaine du ralentissement sans disparaître dans les captures résonnantes

$$p = \frac{A^2}{A - F^1} \tag{1.7}$$

 f est le facteur d'utilisation thermique. Il permet de tenir compte des captures effectives dans le combustible à l'énergie thermique par rapport aux captures stériles dans les structures

$$f = \frac{A_{combustible}^2}{A^2} \tag{1.8}$$

 $-\eta$  est le facteur de reproduction du combustible qui décrit le nombre de neutrons produits par le combustible à partir d'une absorption d'un neutron thermique dans ce même combustible

$$\eta = \frac{P_{combustible}^2}{A_{combustible}^2} \tag{1.9}$$

Cette formulation est particulièrement intéressante car elle permet de découpler les phénomènes physiques qui régissent la vie du neutron et d'effectuer des interprétations physiques simples. Cependant, ce formalisme n'est pas suffisant car il ne permet pas d'avoir accès à des variables locales, telles que les taux de réaction ou le flux neutronique. Cette dernière grandeur, particulièrement importante dans le cadre de la physique des réacteurs, est régie par une équation de transport, établie par un bilan local sur un volume élémentaire entre entrées et sorties de neutrons. Cette équation, dite équation de Boltzmann dans le cadre de la neutronique fait l'objet de la section suivante.

## Chapitre 2

## Présentation des méthodes $P_{ij}$ et MOC de résolution du flux par APOLLO2

### 2.1 Rappels des interactions neutrons/noyaux intervenant dans le bilan neutronique

Les principaux paramètres physiques d'intérêt (car mesurables) en neutronique sont les *taux* de réaction, c'est-à-dire le nombre de réactions entre les neutrons et la matière par unité de temps et de volume (2.1). Le taux de réaction associé à l'interaction R, est fonction de la densité atomique N<sup>i</sup> du noyau *i* dans le milieu considéré, du flux neutronique  $\Phi$  au point considéré, et de sa section efficace  $\sigma_R^i$ .

$$\tau_R^i = N^i \sigma_R^i \Phi \ (en \ cm^{-3} s^{-1}) \tag{2.1}$$

La section efficace microscopique  $\sigma_R^i$  est une fonction continue de l'énergie incidente du neutron qui a la dimension d'une surface<sup>1</sup>. Cette grandeur caractérise la probabilité qu'une particule interagisse avec le noyau cible *i* pour une réaction *R*. Cette section efficace *microscopique* permet de définir une section efficace *macroscopique*,  $\Sigma_R^i$  comme étant égale au produit (2.2)

$$\Sigma_R^i = N^i \sigma_R^i \quad (en \ cm^{-1}) \tag{2.2}$$

La section macroscopique a la dimension de l'inverse d'une longueur et caractérise la distance moyenne parcourue par le neutron avant de rencontrer un noyau i et de réagir avec ce noyau selon la réaction R. La section microscopique  $\sigma$  est intrinsèque à chaque couple (noyau, réaction), tandis que la section macroscopique  $\Sigma$  dépend de la composition du combustible.

Les différents types d'interactions qui peuvent subvenir dans un réacteur entre un neutron et la matière sont :

 La diffusion potentielle élastique du neutron avec un noyau, décrite par les lois de la mécanique classique et qui caractérise le ralentissement des neutrons par choc avec le modérateur. En effet l'énergie des neutrons n'est que de l'énergie cinétique. Lors de cette

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>Dans la pratique on utilise l'unité *barn* (b) définie par 1 b =  $10^{-24}$  cm<sup>2</sup>.

interaction, le neutron ne pénètre pas dans le noyau, il y a seulement transfert d'énergie entre la particule et le noyau cible. Ainsi, le neutron, de direction angulaire incidente  $\vec{\Omega}$  et d'énergie **En** avant le choc se retrouve avec une énergie **En**' (et donc une vitesse  $v' \leq v$ ) et une direction angulaire  $\vec{\Omega}'$  après le choc<sup>2</sup>.

- La diffusion résonnante élastique du neutron avec un noyau, passant par la formation d'un noyau composé : le neutron est absorbé puis un neutron est émis par le noyau en laissant le noyau cible dans un état stable.
- La diffusion résonnante inélastique qui est une réaction à seuil et qui concerne plutôt les interactions avec les noyaux lourds. Lors d'une diffusion inélastique, le neutron est absorbé par le noyau et conduit à la formation d'un noyau composé. Le noyau composé est dans un état d'énergie *excité*. La durée de vie de ce niveau excité est limitée et le noyau revient dans son mode fondamental par l'émission d'un neutron et d'un photon.
- L'absorption neutronique du neutron par le noyau cible, conduisant à la formation d'un noyau composé. Le noyau composé est dans un niveau d'énergie excité et les *voies de sortie* du neutron sont de plusieurs catégories :
  - Le neutron peut être **capturé** par le noyau. L'énergie d'excitation du noyau composé est entièrement libérée sous forme de photons (émission  $\gamma$ ).
  - Le neutron peut également fissionner le noyau cible. La fission conduit à l'émission de ν neutrons, le facteur ν valant entre 2 et 3 selon l'énergie incidente du neutron et l'isotope cible. Le noyau se scinde alors en deux (plus rarement trois) fragments de fission, selon la courbe des rendements de fission (Fig. 1.3, page 10).
  - Enfin, si le neutron incident est assez énergétique, il peut être à l'origine des réactions à seuil, en particulier les réactions (n,xn) ou (n,yp) qui conduisent à la production de x neutrons ou y protons, ou encore la réaction (n,α)<sup>3</sup>.

Ces réactions avec la matière sont induites par un neutron incident. Certaines réactions nucléaires surviennent cependant de façon spontanée. Des fissions spontanées sont observées, bien que ce phénomène soit rare comparé aux fissions induites dans un réacteur électrogène. Par exemple, on dénombre 26 fissions spontanées par heure et par gramme d'<sup>238</sup>U [Reuss, 2003]. Des particules peuvent également être émises par décroissance radioactive naturelle. La décroissance radioactive ( $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$ ) se produit selon une loi temporelle caractérisé par une constante de décroissance  $\lambda$ , propre à chaque noyau. Soit N(t) le nombre de noyaux i à l'instant t,  $N(t_0)$  le nombre de noyaux i, supposé connu, à l'instant  $t_0$  et  $\lambda_i$  la constante radioactive du noyau i, alors N(t)vérifie l'équation (2.3) (hors flux), qui s'intègre en (2.4).

$$dN(t) = -\lambda N(t)dt \tag{2.3}$$

$$N(t) = N(t_0) \exp\left(-\lambda t\right) \tag{2.4}$$

La prise en compte des différentes interactions qui peuvent subvenir au sein d'un réacteur nucléaire permet d'établir un bilan statistique local de la population neutronique entrant/sortant d'un volume élémentaire. Ce bilan conduit à l'écriture d'une équation générale, appelée **équation** 

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup>La probabilité de remontée en énergie  $(v' \ge v)$ , appelée up-scattering, augmente avec la température du milieu et la masse des noyaux diffuseurs. Cependant, en général, cette probabilité reste très faible au-delà de quelques eV, c'est un phénomène essentiellement thermique. Par conséquent, une coupure thermique propre à chaque isotope sera définie pour le calcul des matrices de transfert.

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup>La particule  $\alpha$  est un noyau d'hélium  $\frac{4}{2}He$ , constitué de deux neutrons et de deux protons.

du transport de Boltzmann. La très grande densité de la population neutronique en réacteur (de l'ordre de  $10^{14} n/cm^2/s$  en REP) justifie que cette dernière soit traitée de manière statistique. On définit ainsi une *densité neutronique* n à laquelle est associée un flux  $\Phi = nv$ .

La résolution de l'équation de Boltzmann donne accès au flux neutronique  $\Phi(\vec{r}, v, \vec{\Omega}, t)$ , fonction de sept variables qui sont le temps t, l'énergie ou la vitesse incidente du neutron E ou v $(E = \frac{1}{2}mv^2)$ , la position  $\vec{r}(x, y, z)$  définie par trois coordonnées d'espace, et la direction angulaire, fonction des angles polaire et azimutal  $\vec{\Omega}(\theta, \phi)$ . L'équation du transport de Boltzmann traduisant un bilan local de neutron dans un volume dV, correspond à l'équation sous sa forme différentielle (2.5).

$$\frac{1}{v}\frac{\partial\Phi(\vec{r},v,\vec{\Omega},t)}{\partial t} = -\left[\vec{\Omega}.\vec{\nabla} + \Sigma(\vec{r},v)\right]\Phi(\vec{r},v,\vec{\Omega},t) + Q(\vec{r},v,\vec{\Omega},t)$$
(2.5)

Où  $\Sigma(\vec{r}, v)$  est la section efficace macroscopique totale du milieu au point  $\vec{r}$  pour un neutron de vitesse incidente v, et où  $Q(\vec{r}, v, \vec{\Omega}, t)$  est la densité d'émission de neutrons qui peut se décomposer en la somme d'un terme de diffusion  $D(\vec{r}, v, \vec{\Omega}, t)$  et d'un terme de production  $P(\vec{r}, v, \vec{\Omega}, t)$ . Le terme de diffusion comptabilise les neutrons de vitesse v' et de direction angulaire  $\vec{\Omega'}$  qui parviennent au point  $\vec{r}$  avec v et  $\vec{\Omega}$  suite à une réaction de diffusion (2.6).

$$D(\vec{r}, v, \vec{\Omega}, t) = \int dv' \int d^2 \Omega' \Sigma_s(\vec{r}, \Omega \leftarrow \Omega', v \leftarrow v') \Phi(\vec{r}, \vec{\Omega'}, v')$$
(2.6)

Le terme de production comptabilise les productions de neutrons au point  $\vec{r}$  dans la direction  $\vec{\Omega}$  et avec la vitesse v qui sont issus d'une fission. Ce terme est explicité par (2.7) où  $\chi(\vec{r}, v)$  est un spectre de fission, c'est-à-dire une loi permettant de caractériser l'énergie des neutrons produits par fission. L'approximation la plus couramment employée pour ce terme est un spectre de Maxwell (2.8) où T = 1.33, c'est-à-dire que l'énergie moyenne des neutrons de fission,  $\overline{En} = \frac{3}{2}T = 2 MeV.$ 

$$P(\vec{r}, v, \vec{\Omega}, t) = \frac{\chi(\vec{r}, v)}{4\pi} \int dv' \nu \Sigma_f(\vec{r}, v') \int d^2 \Omega' \Phi(\vec{r}, \vec{\Omega'}, v', t)$$
(2.7)

$$\chi(E) = \frac{2\pi}{(\pi T)^{\frac{3}{2}}} \sqrt{Ene - \frac{En}{T}}$$
(2.8)

Cette équation, donnée ici sous forme différentielle, possède également une forme intégrale (2.9). Cette formulation traduit le fait que les neutrons produits sur la demi-droite de direction  $\vec{\Omega}$  (terme de production Q) contribuent au flux calculé au point  $\vec{\Omega}$  à la condition qu'ils ne soient pas absorbés ou diffusés sur le trajet (terme d'absorption et de diffusion, exp $(-\tau)$ , fonction de la section macroscopique totale du milieu,  $\Sigma(\vec{r}, v)$ ).

$$\Phi(\vec{r}, v, \vec{\Omega}, t) = \int_0^\infty \exp\left(-\tau\right) Q(\vec{r} - s\vec{\Omega}, v, \vec{\Omega}, t - \frac{s}{v}) ds$$
(2.9)

Dans cette formulation, s est l'abscisse curviligne,  $\tau$  est le parcours optique (2.10), et  $Q(\vec{r} - s\vec{\Omega}, v, \vec{\Omega}, t - \frac{s}{v})$  est le terme de production, défini précédemment.

$$\tau = \int_0^s \Sigma(\vec{r}' - s'\vec{\Omega}, v) ds'$$
(2.10)

L'équation du transport est complexe et sa résolution nécessite de faire des hypothèses et des approximations afin de la simplifier et de pouvoir la résoudre par des méthodes analytiques. L'ensemble de ces approximations constituent la *démarche déterministe*.

Le code de simulation déterministe qui a été employé est le code APOLLO2 [Bellier et al., 2002, Sanchez et al., 2010]. Parmi les méthodes de calcul de flux d'APOLLO2, deux en particulier ont été utilisées, la méthode des probabilités de première collision  $(P_{ij})$  et la méthode des caractéristiques (MOC). Nous allons détailler à présent les hypothèses et les approximations effectuées plus spécifiquement dans ces méthodes.

## 2.2 Présentation des hypothèses et approximations communes aux méthodes MOC et $P_{ij}$

Le flux neutronique est fonction des variables  $\vec{r}$ ,  $\vec{\Omega}$ , v et t. Les premières approximations qui sont effectuées, et qui sont communes à la méthode des caractéristiques (MOC) et la méthode des probabilités de première collision ( $P_{ij}$ ), portent sur les variables t et v (ou E, l'énergie incidente du neutron). Nous commençons donc par détailler les simplifications propres à ces deux variables.

#### 2.2.1 Hypothèse de stationnarité

La première hypothèse qui est faite est de considérer que la variation du flux avec le temps est suffisamment faible pour traiter son évolution comme une succession d'états statiques. Cette approximation conduit à introduire un paramètre d'ajustement permettant d'équilibrer le bilan neutronique, c'est le facteur de multiplication effectif ( $k_{effectif}$ ). Il suffit alors de diviser le terme de production de neutrons par fission par ce coefficient positif,  $k_{effectif}$ , afin d'équilibrer l'équation.

#### 2.2.2 Discrétisation multigroupe

La discrétisation multigroupe consiste à remplacer l'équation donnant le flux scalaire  $\Phi(\vec{r}, \vec{\Omega}, E)$ par  $N_g$  équations où les  $N_g$  flux  $\Phi^g(\vec{r}, \vec{\Omega})$  sont solution, avec  $E_0 < E_1 < ... < E_g < ... < E_{N_g}$ .  $N_g$  est le nombre de groupes énergétiques, de largeurs variables en léthargie, dont les bornes ont été déterminées selon les courbes de sections efficaces microscopiques ponctuelles des principaux noyaux lourds du combustible.  $N_g$  est généralement de l'ordre de la centaine. Par exemple, le maillage énergétique Santamarina Hfaiedh Energy Mesh (SHEM), actuellement utilisé au CEA pour les calculs neutroniques, propose un découpage en 281 groupes.

Les flux multigroupes  $\Phi^{g}(\vec{r})$  (2.11) et les sections efficaces multigroupes  $\Sigma_{R}^{g}(\vec{r})$  (2.12) se déduisent par conservation des taux de réaction, notés R (R = t, s ou f pour totale, diffusion ou fission).  $E_{g}$  est la borne supérieure du groupe g et  $E_{g-1}$  la borne inférieure.

$$\Phi^{g}(\vec{r}) = \int_{En_{g-1}}^{En_{g}} dE \ \Phi(\vec{r}, E)$$
(2.11)

$$\Sigma_{R}^{g}(\vec{r}) = \frac{1}{\Phi^{g}(\vec{r})} \int_{En_{g-1}}^{En_{g}} dE \ \Sigma_{R}^{g}(\vec{r}, E) \ \Phi^{g}(\vec{r}, E)$$
(2.12)

Un système d'intégrales couplées en espace et en énergie est obtenu et peut être résolu en séparant les variables d'espace et d'énergie et en écrivant que les sections efficaces sont indépendantes de la forme du flux.

#### 2.2.3 Quelles équations sont résolues pour chaque méthode?

Les deux paragraphes précédents ont montré qu'il était possible de s'affranchir des dépendances énergétiques et temporelles du flux afin de faciliter la résolution de l'équation du transport. Dans les deux cas ( $P_{ij}$  et MOC), c'est une équation intégrale qui est résolue par intégration numérique. Cependant cette équation "intégrale" n'est pas la même dans les deux cas, selon les traitements et discrétisations angulaires des variables  $\vec{r}$  et  $\vec{\Omega}$ . La dépendance angulaire en  $\vec{\Omega}$ intervient au niveau du flux et de la section de transfert du groupe g' dans g,  $\Sigma_s^{g \leftarrow g'}(\vec{r}, \vec{\Omega} \leftarrow \vec{\Omega}')$ , qui sont tous deux anisotropes.

La méthode  $P_{ij}$  résout l'équation du transport de Boltzmann sous sa forme intégrale, telle que décrite en (2.9). L'hypothèse majeure qui est effectuée est de considérer que les diffusions sont isotropes. Cette hypothèse permet de supprimer la dépendance angulaire de l'équation intégrale, ce qui revient à résoudre le flux scalaire  $\Phi_g(\vec{r})$  défini par (2.13).

$$\Phi_g(\vec{r}) = \int \frac{\exp\left(-\tau_g\right)}{4\pi \left|r - r'\right|^2} Q_g(\vec{r}') d^3 r'$$
(2.13)

Dans le cas de la méthode MOC, c'est l'équation de Boltzmann sous sa forme intégrodifférentielle (voir (2.5)) qui est le point de départ. Le volume de calcul est balayé par un certain nombre de lignes d'intégrations, appelées *caractéristiques*, qui définissent chacune une direction  $\vec{\Omega}$ . La projection de l'équation intégro-différentielle sur chacune de ces caractéristiques la fait dégénérer en une équation différentielle ordinaire (2.14) de  $R = |\vec{r'} - \vec{r}|$ , qu'il est alors facile de résoudre par intégration numérique.

$$\left(\frac{\partial}{\partial R} + \Sigma_g\right) \Phi_{g,\vec{\Omega}}(\vec{r}) = Q_{g,\vec{\Omega}}(\vec{r},g)$$
(2.14)

Par rapport au traitement de la *loi de choc*, c'est-à-dire de l'anisotropie de la section de transfert, autant l'hypothèse d'isotropie permet de s'affranchir de la dépendance angulaire dans le cas de la méthode  $P_{ij}$ , autant cette hypothèse ne permet pas de simplification importante dans le cas de la méthode MOC. En fait, le traitement exact de la section de transfert n'introduit pas de complexité supplémentaire. Nous allons donc à présent nous pencher sur le traitement de la loi de choc selon les méthodes  $P_{ij}$  et MOC.

#### 2.2.4 Traitement de l'anisotropie de la section de transfert

Le terme de production de neutrons par transfert, explicité par la relation (2.6), permet de comptabiliser les neutrons qui parviennent au point  $\vec{r}$  dans la direction  $\vec{\Omega}$  à l'énergie E suite à une diffusion qui a modifié leur direction et/ou leur énergie. Ce terme est un terme doublement différentiel en énergie et en direction angulaire. Nous verrons par la suite le traitement de la partie énergétique. Intéressons nous d'abord au traitement angulaire.

La diffusion est isotrope dans le référentiel du centre de masse du système {neutron + noyau cible}, mais ce n'est pas le cas dans le référentiel du laboratoire : les diffusions se font préférentiellement vers l'avant, c'est-à-dire dans une direction telle que  $\vec{\Omega}.\vec{\Omega'} \ge 0$ , en notant  $\vec{\Omega'}$  la direction incidente et  $\vec{\Omega}$  la direction du neutron après diffusion.

Comme nous venons de le mentionner, la section de diffusion dépend en fait du produit scalaire  $\vec{\Omega}.\vec{\Omega}' = \cos(\psi) = \mu$  avec  $\psi$  l'angle de la déviation, dont le cosinus est noté  $\mu$  afin de simplifier les notations par la suite. Ainsi, la section de diffusion en un point  $\vec{r}$  ne dépend plus que de la variable  $\mu$  (2.15).

$$\Sigma_s(\vec{r}, E \leftarrow E', \vec{\Omega} \leftarrow \vec{\Omega}') = \Sigma_s(\vec{r}, E \leftarrow E', \mu)$$
(2.15)

Cette seule dépendance en  $\mu$  permet de développer la section de diffusion en série tronquée à un ordre L sur la base des polynômes de Legendre  $(P_l, 0 \le l \le L)$  (2.16).

$$\Sigma_s(\vec{r}, E \leftarrow E', \mu) = \sum_{l=0}^{L} \frac{2l+1}{2} \Sigma_{s,l}(\vec{r}, E \leftarrow E') P_l(\mu)$$
(2.16)

Cette formule fait intervenir les moments de Legendre  $\Sigma_{s,l}$  (coefficients des polynômes), définis par :

$$\Sigma_{s,l}(\vec{r}, E \leftarrow E') = \int_{-1}^{1} \Sigma_{s,l}(\vec{r}, E \leftarrow E', \mu) P_l(\mu) d\mu$$
(2.17)

#### L'anisotropie de la diffusion dans la méthode $P_{ij}$

L'approximation de choc isotrope, nécessaire à la simplification de l'équation du transport intégrale pour la méthode  $P_{ij}$ , implique que le développement de la section soit tronqué à l'ordre L = 0, soit  $\Sigma_s \approx \Sigma_{s,0}$ . Cette hypothèse s'accompagne toutefois d'une correction dans APOLLO2, appelée "correction du transport P0c"<sup>4</sup> qui permet de prendre en compte l'anisotropie en corrigeant les moments d'ordre 0 par les moments d'ordre 1. Cette correction est détaillée dans [Bellier et al., 2002, Calloo et al., 2012] : un terme correctif sous la forme d'une distribution de Dirac  $\Delta \Sigma_{tr}(\vec{r}, E \leftarrow E') \delta(\mu - 1)$  est associé aux moments de Legendre  $\Sigma_{s,l}(\vec{r}, E \leftarrow E', \mu)$  dans la définition de la section de diffusion corrigée :

 $<sup>^{4}</sup>$ Cette correction est appelée "P0c" pour "développement de la section de diffusion à l'ordre L=0 sur la base des polynômes de Legendre, corrigée d'un terme d'anisotropie".

$$\Sigma_{s,l}(\vec{r}, E \leftarrow E', \mu) = \sum_{k=0}^{L} \tilde{\Sigma}_{s,k}(\vec{r}, E \leftarrow E') P_k(\mu) + \Delta \Sigma_{tr}(\vec{r}, E \leftarrow E') \delta(\mu - 1)$$
(2.18)

La définition des moments angulaires corrigés se fait en écrivant leur conservation pour  $0 \le l \le L + 1$  entre les équations (2.17) et (2.18). Ainsi, en injectant (2.18) dans (2.17) pour  $0 \le l \le L$ , on obtient (2.19).

$$\Sigma_{s,l}(\vec{r}, E \leftarrow E') = \int_{-1}^{1} \left[ \sum_{k=0}^{L} \tilde{\Sigma}_{s,k} P_k(\mu) + \Delta \Sigma_{tr}(\vec{r}, E \leftarrow E') \delta(\mu - 1) \right] P_l(\mu) d\mu$$
(2.19)

En utilisant les propriétés d'orthogonalité des polynômes de Legendre  $(P_l)$  (2.20) et de la distribution de Dirac 2.21, nous parvenons à la définition des moments corrigés (2.22).

$$\int_{-1}^{1} P_k(\mu) P_l(\mu) d\mu = \frac{2}{2l+1} \delta_{kl}$$
(2.20)

$$\int_{-1}^{1} \delta(\mu - 1) P_l(\mu) d\mu = P_l(1) = 1$$
(2.21)

$$\tilde{\Sigma}_{s,l}(\vec{r}, E \leftarrow E') + \Delta \Sigma_{tr}(\vec{r}, E \leftarrow E') = \Sigma_{s,l}(\vec{r}, E \leftarrow E')$$
(2.22)

Le terme  $\Delta \Sigma_{tr}(\vec{r}, E \leftarrow E')$  se déduit par conservation du moment d'ordre L + 1:

$$\Sigma_{s,L+1}(\vec{r}, E \leftarrow E') = \int_{-1}^{1} \left[ \sum_{k=0}^{L} \tilde{\Sigma}_{s,k} P_k(\mu) + \Delta \Sigma_{tr}(\vec{r}, E \leftarrow E') \delta(\mu - 1) \right] P_{L+1}(\mu) d\mu \quad (2.23)$$

En remarquant que le produit scalaire  $\int_{-1}^{1} P_k(\mu) P_{L+1}(\mu) d\mu$  est nul (propriété d'orthogonalité), on en déduit l'expression de  $\Delta \Sigma_{tr}(\vec{r}, E \leftarrow E')$ :

$$\Delta \Sigma_{tr}(\vec{r}, E \leftarrow E') = \Sigma_{s, L+1}(\vec{r}, E \leftarrow E')$$
(2.24)

En injectant (2.22) et (2.24) dans (2.16), et en développant la section à l'ordre L = 0, on obtient l'expression de la section en P0c :

$$\Sigma_{s}(\vec{r}, E \leftarrow E', \mu) = \frac{1}{2} \left[ \Sigma_{s,0}(\vec{r}, E \leftarrow E') + \Sigma_{s,1}(\vec{r}, E \leftarrow E') \right] + \Sigma_{s,1}(\vec{r}, E \leftarrow E') \delta(\mu - 1)$$
(2.25)

Cette section corrigée est enfin injectée dans la source de transfert (2.6) de l'équation du transport (2.5). Puisque la source de transfert est supposée isotrope, il est aisé de l'intégrer en angle. Les sections efficaces totales et de diffusion corrigées dans APOLLO2 ont enfin pour expression :

$$\tilde{\Sigma}_t(\vec{r}, E) = \Sigma_t(\vec{r}, E) - \int_0^\infty \Sigma_{s,1}(\vec{r}, E \leftarrow E') dE'$$
(2.26)

$$\tilde{\Sigma}_{s,0}(\vec{r}, E \leftarrow E') = \Sigma_{s,0}(\vec{r}, E \leftarrow E') - \delta(E' - E) \int_0^\infty \Sigma_{s,1}(\vec{r}, E \leftarrow E') dE' \qquad (2.27)$$

Ces formulations sont données en fonctions continues de l'énergie. Dans l'approximation multigroupe, les transferts se font d'un groupe g' vers le groupe g. La section de transfert doit donc être évaluée pour les neutrons de tous les groupes g' qui parviennent dans le groupe g par diffusion. Pour les noyaux lourds pour lesquels les diffusions élastiques sont prépondérantes, le gain maximal en léthargie observé est très faible devant le ralentissement. Cela signifie que la majorité des transferts ont lieu d'un groupe g dans lui-même, ce qui permet de faire une seconde hypothèse sur la section de transfert (2.28).

$$\Sigma_s^{g \leftarrow g}(\vec{r}) >> \Sigma_s^{g \leftarrow g'}(\vec{r}) \quad (g' \neq g) \tag{2.28}$$

#### L'anisotropie de la section de diffusion dans la méthode MOC

Pour la méthode MOC, la section de diffusion est développée à un ordre L quelconque (pas de correction en transport), ainsi on remarque que le terme de transfert dépend toujours de la variable angulaire. On rappelle que le terme de transfert multigroupe, noté  $D_q$ , s'écrit :

$$D_g = \int_{4\pi} d^2 \Omega' \Sigma_s^{g \leftarrow g}(\vec{r}, \vec{\Omega} \leftarrow \vec{\Omega}') \Phi_g(\vec{r}, \vec{\Omega}')$$
(2.29)

Ensuite, le flux peut être projeté sur la base des harmoniques sphériques  $Y_l^m(\vec{\Omega})$  où les  $\Phi_g^{l,m}(\vec{r})$  sont les moments angulaires du flux, définis par :

$$\Phi_g(\vec{r},\vec{\Omega}) = \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^{l} \Phi_g^{l,m}(\vec{r}) Y_l^m(\vec{\Omega})$$
(2.30)

$$\Phi_g^{l,m}(\vec{r}) = \int_{4\pi} d\Omega Y_l^m(\vec{\Omega}) \Phi_g^{l,m}(\vec{r},\vec{\Omega})$$
(2.31)

En injectant (2.30) dans (2.29) on obtient :

$$D_g = \sum_{l \ge 0} \sum_{s,l}^{g \leftarrow g} (\vec{r}) \sum_{m=-l}^{l} \Phi_g^{l,m}(\vec{r}) Y_l^m(\vec{\Omega})$$
(2.32)

En conclusion, nous avons décrit ici le traitement de l'anisotropie relative à la section de transfert, à la fois pour la méthode  $P_{ij}$  (hypothèse de choc isotrope avec correction du transport) et pour la méthode MOC (développement du terme de transfert sur la base des polynômes de Legendre à un ordre L quelconque pour la section de diffusion, et à un ordre L identique pour le flux projeté sur la base des harmoniques sphériques). Nous pouvons passer à présent à la résolution du flux.

#### 2.3 Résolution par la méthode MOC

La méthode des caractéristiques (MOC) est une méthode numérique adaptée à la résolution des problèmes de transport à un niveau industriel car faisant preuve d'un excellent rapport temps/précision. De plus, elle permet le traitement de géométries exactes non-structurées grâce au solveur Two/Three Dimensional Transport (TDT) [Sanchez and Stankovski, 1993]. La méthode MOC a été récemment implémentée dans la version 2.8 du code APOLLO [Sanchez and Santandrea, 2005, Santamarina et al., 2008].

#### 2.3.1 Discrétisation angulaire et balayage du domaine

Cette méthode repose sur la définition de *caractéristiques*, c'est-à-dire de lignes d'intégration parallèles à une direction  $\vec{\Omega}$  sur lequel l'équation intégro-différentielle de Boltzmann dégénère en une équation différentielle ordinaire qu'il devient aisé de résoudre par des méthodes analytiques. La précision des calculs découle donc en premier lieu du maillage spatial, c'est-à-dire du balayage de l'espace par les *caractéristiques*. Ces lignes d'intégrations sont définies à partir de trois paramètres :  $\Delta r$ ,  $N_{\phi}$  et  $N_{\theta}$  qui permettent de moduler la densité de trajectoire. Le premier paramètre  $\Delta r$  correspond à l'espacement entre deux lignes d'intégration de même direction  $\vec{\Omega}$ , tandis que  $N_{\phi}$  et  $N_{\theta}$  permettent la discrétisation angulaire de la variable  $\vec{\Omega}$  sur la sphère unité. À chaque couple  $(\phi, \theta)$  correspond une direction  $\vec{\Omega}$ .

La discrétisation angulaire se fait comme illustré sur la Fig. 2.1. On commence par découper la sphère en bandes espacées de  $\frac{\pi}{N_{\theta}}$  selon la colatitude  $\theta$ , puis ces bandes sont divisées en trapèzes de même surface selon l'angle polaire  $\phi$ . À chaque maille m de vecteur normal  $\vec{\omega_m}$  est associée un poids  $\omega_m$  permettant de reconstruire le flux à partir de chaque contribution individuelle par maille, selon une formule de quadrature de type Gauss-Legendre [Lathuiliere, 2010].



FIG. 2.1: Illustration de la discrétisation angulaire sur un  $8^{me}$  de la sphère unité. Sur ces exemples, la sphère a été découpée selon la colatitude  $\phi$  en respectivement 4, 8, 16 et 32 correspondant aux découpages  $S_4$ ,  $S_8$ ,  $S_{16}$  et  $S_{32}$  [Reuss, 2003]

La méthode MOC va consister à projeter l'équation du transport sur les caractéristiques de direction  $\vec{\Omega}$  ainsi déterminées. Repartons de l'expression de l'équation du transport sous sa forme intégro-différentielle stationnaire (2.33), Q représentant le terme source de production de neutrons, tandis que  $\Sigma$  est la section efficace macroscopique d'absorption du milieu.

$$\vec{\Omega}.\vec{\nabla}\Psi(\vec{r}) = Q(\vec{r}) - \Sigma(\vec{r})\Psi(\vec{r})$$
(2.33)

Le terme  $\vec{\Omega}.\vec{\nabla}\Psi(\vec{r})$  correspond en fait à la dérivée du flux angulaire dans la direction  $\vec{\Omega}$ , ce qui explique qu'en se plaçant sur une droite parallèle à cette direction, l'équation différentielle dégénère en une équation différentielle ordinaire. En notant  $\Psi(\vec{r}) = \Psi(\vec{r}_0 + s\vec{\Omega}), \vec{r}_0$  et  $\vec{r}$  étant deux points quelconques du domaine, et *s* l'abscisse curviligne, on peut écrire :

$$\vec{\Omega}.\vec{\nabla}\Psi(\vec{r}) = \frac{d}{ds}\Psi(\vec{r}_0 + s\vec{\Omega})$$
(2.34)

Si de plus on se place dans un sous-domaine de la géométrie, c'est-à-dire une région i, où Q et  $\Sigma$  sont uniformes, alors l'équation (2.33) peut se simplifier en :

$$\frac{d}{ds}\Psi(\vec{r}_0 + s\vec{\Omega}) = Q_i - \Sigma_i\Psi(\vec{r}_0 + s\vec{\Omega})$$
(2.35)

Ce qui s'intègre en :

$$\Psi(\vec{r}_0 + s\vec{\Omega}) = \Psi(\vec{r}_0)e^{-\Sigma_i s} + Q_i \frac{1 - e^{-\Sigma_i s}}{\Sigma_i}$$
(2.36)

#### 2.3.2 Les équations de transmission et de bilan

L'équation (2.36) nous permet d'écrire l'équation de transmission, donnant la relation entre le flux entrant dans le domaine  $\Psi^+$  et le flux sortant de la région de calcul  $\Psi^-$  pour s = l(T). La longueur l(T) est déterminée par l'intersection de la caractéristique et de la région physique *i*. Les notations sont illustrées sur la Fig. 2.2.

$$\psi_i^+(T) = \psi_i^-(T) \ e^{-\Sigma_i l_i(T)} + \frac{1 - e^{-\Sigma_i l_i(T)}}{\Sigma_i} q_i$$
(2.37)



FIG. 2.2: Schéma des flux entrants et sortants de la région d'intégration i [Fevotte, 2008]

Bien que le flux en un point de la région soit une donnée intéressante, dans la pratique on cherchera surtout à calculer le flux moyen dans la maille (*approximation de flux plats par maille*). Ce flux angulaire moyen s'obtient très simplement par intégration entre les bornes du volume. En conservant les notations  $\Psi^+$ ,  $\Psi^-$  et l(T), on obtient l'équation de bilan (2.38).

$$\bar{\Psi}_{i} = \frac{1}{T} \int_{0}^{T} dt \Psi(\vec{r}_{0} + t\vec{\Omega}) = \frac{\Psi^{-} - \Psi^{+}}{\Sigma_{i}T} + \frac{Q_{i}}{\Sigma_{i}T}$$
(2.38)

La densité de trajectoires, fonction du paramètre  $\Delta r$  définit des bandes de longueur  $l_T$  et de section  $(\Delta r)^2$  (Fig. 2.3). Les discrétisations effectuées permettent d'obtenir les variations du flux angulaires entre deux points de l'espace grâce à l'équation de transmission (2.37), ou bien le flux moyen dans la maille grâce à l'équation de bilan (2.38).



FIG. 2.3: Schéma du volume d'intégration de la région i le long d'une direction particulière  $\vec{\Omega}$ 

Dans la pratique, un maillage dit maillage transverse est défini sur le plan orthogonal (ou sur la droite orthogonale en 2D) à la direction  $\vec{\Omega}$ . Le flux angulaire moyen  $\psi_i(\vec{\Omega})$  est alors calculé sur chaque région par l'intermédiaire d'une formule de quadrature basée sur les trajectoires au centre des cellules du maillage transverse par la formule (2.39). La notation  $s_k$  correspond à la trajectoire issue du centre de la maille transverse k. La section de la bande contenant  $s_k$  mesure  $\Delta_k$  de côté.

$$\psi_i(\vec{\Omega}) = \frac{\sum_{s_k \cap i} \Delta_k l_i(s_k) \psi_i(s_k)}{\sum_{s_k \cap i} \Delta_k l_i(s_k)}$$
(2.39)

Cette formule permet de déterminer les contributions de flux angulaire sur des trajectoires transverses adaptées, au flux angulaire de la région i, en sommant chacune de ces contributions sur tous les volumes qui interceptent la région de calcul i.

#### 2.3.3 Conditions aux limites

Pour les conditions aux limites, trois possibilités peuvent être envisagées [Fevotte, 2008] :

- conditions aux limites ouvertes avec des trajectoires simples. Les caractéristiques s'arrêtent à la frontière du domaine et les neutrons du flux sortant sont perdus. Les flux sortants ne sont utilisés que pour calculer le flux aux frontières.
- conditions aux limites fermées avec des trajectoires composées. À ce moment là, le flux sortant du domaine sert directement à calculer le flux entrant au même endroit. Tout se passe comme si la caractéristique rebondissait sur la frontière du domaine et repartait dans une direction correspondant à sa condition aux limites, qui peut être par exemple de type spéculaire, comme illustré sur la Fig. 2.4a. Les directions sont ainsi prolongées sur

le motif et toute la difficulté du traçage réside dans le fait de ne pas retracer deux fois la même ligne d'intégration.

- conditions aux limites cycliques pour des domaines fermés. Ce cas de figure se rencontre lorsque les conditions aux limites sont toutes de type fermées, quelle que soit la surface du domaine. Ainsi, pour éviter que les trajectoires de traçage ne deviennent infinies, elles sont fermées. C'est-à-dire que si aucune partie du domaine ne contient d'ouverture permettant de débuter et achever le traçage, des trajectoires dites cycliques seront employées, comme illustré sur la figure Fig. 2.4b. C'est la condition utilisée en pratique.



(a) Réflexion spéculaire fermée(b) Réflexion spéculaire cycliqueFIG. 2.4: Enxemple de traçage de trajectoire en fonction des conditions aux limites

Enn conclusion, l'avantage de la méthode MOC est tout d'abord la possibilité de décrire des géométries exactes qui ne sont pas forcément structurées et avec un découpage spatial non régulier. Cette méthode autorise le traitement du choc à un ordre quelconque. Son inconvénient majeur réside dans la routine de traçage (ou tracking) qui peut être longue et fastidieuse.

#### 2.4 Résolution par la méthode Pij

La méthode des probabilités de première collision  $(P_{ij})$  est largement employée par tous les codes déterministes pour la résolution de l'équation du transport sur des géométries hétérogènes.

#### 2.4.1 Définition des probabilités de premières collision

La géométrie de calcul est discrétisée en N sous-volumes disjoints, au sein desquels est faite l'approximation de *flux plat*. C'est-à-dire que les flux scalaires y seront considérés comme uniformes. La deuxième hypothèse sous-jacente à cette méthode est l'hypothèse que les *chocs et les sources sont isotropes*. En fait, l'anisotropie du choc sera en partie prise en compte par l'intermédiaire de la *correction du transport* (décrite page 45).

L'établissement des probabilités de première collision nécessite de déterminer la probabilité qu'un neutron émis en  $\vec{r'}$ , point du sous-volume j, effectue sa première collision en  $\vec{r}$ , appartenant au sous-volume i. Les *collisions* des neutrons au point  $\vec{r}$  correspondent en fait au taux de réaction en ce point,  $\tau(\vec{r}) = \Sigma_t(\vec{r})\Phi(\vec{r})$  [Blanc-Tranchant, 1999].

La somme des collisions qui ont lieu dans le volume  $V_i$  s'écrit  $V_i \Sigma_i \Phi_i$  et est définie par l'équation (2.40). Cette équation s'obtient à partir de la formulation du flux dans l'équation du

transport sous sa forme intégrale (équation 2.13, page 43).

$$V_i \Sigma_{t,i} \Phi_i = \int_{V_i} \Sigma_{t,i}(\vec{r}) \Phi(\vec{r}) d^3 r = \sum_j \int_{V_j} Q(\vec{r}') d^3 r' \int_{V_i} \Sigma_{t,i}(\vec{r}) \frac{e^{-\tau}}{4\pi R^2} d^3 r$$
(2.40)

Où au est le parcours optique du neutron de  $\vec{r}'$  à  $\vec{r}$ 

R est le module  $|\vec{r} - \vec{r'}|$ 

 $Q(\vec{r})$  est le terme de densité d'émission au point  $\vec{r}$ , défini par  $Q(\vec{r}) = \sum_{s} (\vec{r}) \Phi(\vec{r}) + S(\vec{r})$ 

Le terme  $V_i \Sigma_i \Phi_i$  comptabilise les collisions qui ont lieu dans le volume  $V_i$  à partir de neutrons émis dans tous les volumes  $V_j$ . La probabilité de première collision qu'un neutron émis dans un sous-volume j effectue sa première collision dans le sous-volume i est notée  $P_{j\to i}$ , ou plus simplement  $P_{ji}$ . Cette probabilité est définie par l'équation (2.41) : elle correspond à la probabilité qu'un neutron émis dans le volume  $V_j$  de façon isotrope et selon la densité d'émission Q subisse sa première collision dans le volume  $V_i$ .

$$P_{ji} = \frac{\int_{V_j} Q(\vec{r}') d^3 r' \int_{V_i} \Sigma_{t,i}(\vec{r}) \frac{e^{-\tau}}{4\pi R^2} d^3 r}{\int_{V_i} Q(\vec{r}') d^3 r'}$$
(2.41)

La densité d'émission étant uniforme par maille grâce à l'hypothèse de flux plats, l'équation (2.41) se simplifie en (2.42).

$$P_{ji} = \frac{1}{V_j} \int_{V_j} d^3 r' \int_{V_i} d^3 r \Sigma_{t,i}(\vec{r}) \frac{e^{-\tau}}{4\pi R^2}$$
(2.42)

On obtient un système dans lequel les densités d'émission, bien qu'uniformes, font toujours intervenir les flux. Ce système doit donc être inversé pour être résolu.

$$\Sigma_{t,i}\Phi_i V_i = \sum_{j=1}^N P_{ji}Q_j V_j \quad (pour1 \le i \le N)$$
(2.43)

#### 2.4.2 Prise en compte des surfaces dans le système

Le volume global V étant délimité par une surface S, il faut ajouter à ce système d'équations la probabilité  $P_{jS}$  qu'un neutron émis dans le volume  $V_j$  atteigne la surface et sorte du volume V, ainsi que la probabilité  $P_{Si}$  qu'un neutron issu de la surface effectue sa première collision au sein du volume  $V_i$ . Enfin, il reste à tenir compte de la probabilité  $P_{SS}$  qu'un neutron issu de Straverse le volume  $V_i$  sans collision et ressorte par S. Ici encore, une hypothèse d'uniformité et d'isotropie est faite pour décrire la manière dont les neutrons entrent et sortent par S.

Ces probabilités  $P_{ji}$  ne sont pas indépendantes les unes des autres. Dans l'hypothèse de la modélisation d'un réacteur, considéré comme infini du point de vue de la longueur de migration des neutrons, il faut ajouter les *relations de conservation* (2.44) et (2.45), ainsi que la *relation de réciprocité* (2.46), qui permettent de réduire le nombre d'équations du système de N<sup>2</sup> à N(N+1)/2 équations, N étant le nombre de sous-volumes.

$$\sum P_{ji} + P_{jS} = 1 \tag{2.44}$$

$$\sum_{i} P_{Si} + P_{SS} = 1 \tag{2.45}$$

$$P_{Si} = \frac{4V_i \Sigma_i}{S} P_{iS} \tag{2.46}$$

Enn conclusion, avec les relations de conservation et de complémentarité, seules les probabilités de type  $P_{ji}$ , avec  $j \leq i$ , doivent être calculées explicitement par quadrature. Toutes les autres s'en déduisent de proche en proche. Par conséquent, le système matriciel à résoudre n'est plus que de dimension N(N+1)/2.

#### 2.4.3 Calcul des $P_{ij}$ par APOLLO2

Les calculs de neutronique sont généralement effectués sur des ensembles géométriques réguliers dont l'élément unitaire, la cellule combustible, est composé a minima de modérateur, d'une gaine et d'une pastille combustible pour le cas des REP par exemple. Par conséquent le maillage spatial sera au moins constitué de trois mailles correspondant aux *milieux*. D'autre part, à l'instar de la méthode MOC, l'approximation de *sources plates* est employée, ce qui nécessite d'adopter un maillage spatial qui permette de suivre le gradient de flux au sein de la cellule.

Les cellules sont reliées entre elles par des relations sur les courants entrants et sortants. Les approches **multicellule** et "**2D-exact**" découlent de la modélisation de ces courants.

Dans le **modèle multicellule**, la cellule peut être cylindrisée afin de pouvoir se ramener dans des conditions isotropes, à traiter un problème 1D. Dans cette méthode, le couplage entre les différentes cellules de la géométrie se fait selon un **formalisme flux-courant**. L'avantage est de pouvoir résoudre le flux sur un nombre limité de cellules, caractérisées uniquement par leur environnement. Cette méthode de résolution est très rapide et est particulièrement adaptée aux calculs d'autoprotection (voir section 2.5). Chaque cellule est calculée indépendamment les unes des autres. Le lien entre cellules se fait grâce aux *courants d'interface*.

La cylindrisation de la cellule se fait par conservation des volumes (cylindrisation de Wigner-Seitz). Le rayon équivalent externe est choisi de façon à conserver le volume de la cellule : en notant p le pas du réseau, alors le rayon équivalent  $R_{eq}$  est défini par  $R_{eq} = p/\sqrt{\pi}$ . La cylindrisation est associé à des conditions de réflexion isotrope. En effet, l'association de ces deux approximations permet de simplifier le calcul des probabilités de collisions en se ramenant à un cas 1D d'une part, et en ne calculant que les  $P_{ji}$  au sein d'une même cellule d'autre part.

Examinons les différentes possibilités offertes à un neutron émis dans le volume  $V_j$  et leur probabilités associées. On note avec un exposant "+" les probabilités de collision qui correspondent à la probabilité de collision d'un neutron dans la cellule qui lui a donné naissance, sans traversée de la surface externe de la cellule.

- le neutron émis dans le volume  $V_j$  de la cellule subit sa première collision dans le volume  $V_i$  appartenant à la même cellule. Cette situation correspond à la probabilité exacte  $\mathbf{P}_{ji}^+$ 

- le neutron émis dans le volume  $V_j$  sort par la surface S et subit sa première collision dans une cellule adjacente. Cette situation correspond à la probabilité  $\mathbf{P}_{iS}^+ \mathbf{P}_{Sj}^+$
- le neutron émis dans le volume  $V_j$  sort par la surface S, traverse une cellule, et subit sa première collision dans une troisième cellule, situation à laquelle on associe la probabilité  $\mathbf{P}_{jS}^+\mathbf{P}_{SS}\mathbf{P}_{Sj}^+$ , etc.

Alors

$$P_{ji} = P_{ji}^+ + P_{jS}^+ P_{Sj}^+ + P_{jS}^+ P_{SS} P_{Sj}^+ + P_{jS}^+ P_{SS}^2 P_{Sj}^+ + \dots$$

L'approximation consistant à dire que les traversées des surfaces se font de manière isotrope et uniforme, que l'on nomme hypothèse de *courants plats*, permet d'écrire la probabilité  $P_{ji}$  comme la somme de chacune des probabilités individuelles décrites précédemment. Cette somme est une suite géométrique de raison ( $P_{SS}$ ) et de terme initial  $P_{ji}^+$  (2.47).

$$P_{ji} = P_{ji}^{+} + \frac{P_{jS}^{+} P_{Si}^{+}}{1 - P_{SS}}$$
(2.47)

Le terme  $\frac{P_{jS}^+P_{Si}^+}{1-P_{SS}}$  correspond à l'**effet Dancoff**, qu'un neutron émis dans un barreau combustible subisse sa première collision dans une autre cellule que celle qui lui a donné naissance. Enfin, le terme  $P_{SS}$  correspond à une *probabilité de transmission*. Différents modèles existent dans APOLLO2 pour déterminer ces probabilités de transmission.

Le modèle le plus simple, appelé modèle **Roth**  $\times$  4 (Roth  $\times$  6 pour une cellule hexagonale), permet de calculer les probabilités de transmission sur la cellule cylindrisée avec faces différenciées (Fig. 2.5). Dans le modèle Roth  $\times$  4, l'*effet de retour* a été supprimé par rapport au modèle Roth. Cette correction supprime l'effet non physique correspondant à un neutron provenant d'une cellule extérieure, qui traverse la surface par la face N°1 et qui ressort de la cellule par cette même face sans avoir subi de collision. Cette méthode autorise uniquement l'approximation UP0 de courants uniformes en espace et isotropes en angle.



FIG. 2.5: Différenciation des courants d'interface [Courau, 2008]

Le modèle **homogène** consiste à calculer les  $P_{ji}$  internes sur la cellule cylindrisée, puis de calculer les probabilités de transmission sur le vrai contour géométrique.

Le modèle **hétérogène conservatif** propose le calcul des probabilités de fuite et de transmission sur la géométrie réelle indépendamment des probabilités de collision de la géométrie cylindrisée. Par conséquent le jeu de probabilités obtenu ne vérifie pas les équations de conservation et doit être renormalisé. Ce modèle peut s'employer avec les approximations de flux angulaires d'interface UP0 ou UP1. Pour cette dernière, les courants sont considérés comme étant uniformes en espace et linéaires en angle. Le calcul des probabilités de transmission s'effectue donc par une double intégration, à la fois en espace et en angle, ce qui supprime les biais liés à la cylindrisation en s'approchant de la condition de réflexion spéculaire.

Enfin, dans le cas du modèle **hétérogène direct**, seules les probabilités de collision sur les régions de rayons internes au cercle inscrit à la cellule sont calculées avec le modèle 1D. Toutes les autres le sont sur la géométrie réelle.

L'approche **2D-exacte**, qui correspond au **formalisme flux** calcule les probabilités de collision sur la géométrie 2D, sans cylindrisation. Par conséquent, cette méthode ne présente que deux approximations : l'hypothèse d'isotropie de la diffusion avec la *correction du transport*, et l'hypothèse de *flux plats* par région. Le calcul des  $P_{ij}$  est effectué dans chaque sous-volume de la géométrie par intégration le long de *cordes* définies par un angle  $\Delta \Phi$  avec une densité paramétrée par  $\Delta r$ . Dans la pratique, le module **Marsyas** est utilisé pour le calcul du flux par la méthode  $P_{ij}$  sur des géométries rectangulaires exactes, et le module **TDT** pour toutes les géométries en général. Cette méthode permet de décrire des conditions de réflexion de type spéculaire.

Enn conclusion, la méthode des probabilités de première collision  $(P_{ij})$  offre les avantages d'un calcul précis de motifs de petite taille avec l'hypothèse de choc isotrope, et la possibilité de définir des regroupements de cellules par similarité d'environnement, ce qui permet de réduire la taille du système à calculer, et donc le temps de calcul. Ces arguments en font une méthode adaptée aux calculs d'autoprotection.

#### 2.5 Présentation du formalisme d'autoprotection des résonances

#### 2.5.1 Rappels sur le phénomène d'autoprotection

Les grandeurs mesurables en physique des réacteurs sont les taux de réactions (2.1), c'està-dire le produit du flux neutronique par la section efficace. Les courbes de sections efficaces peuvent présenter de grandes variations sur des domaines d'énergie très étroits (de plusieurs ordres de grandeurs) selon le noyau et l'énergie incidente du neutron. Ce phénomène est appelé "résonance" et survient lorsque la somme de l'énergie de liaison du neutron capturé par un noyau et son énergie cinétique disponible dans le centre de masse approche l'énergie d'excitation d'un niveau séparé. Ce phénomène s'accompagne d'une dépression du flux au niveau de l'énergie de la résonance d'absorption ou de diffusion. Par conséquent, les variations du taux de réaction sont beaucoup plus faibles que celles du flux ou de la section efficace, c'est ce qu'on appelle le phénomène **d'autoprotection**.

Soit  $E_0$  une énergie de référence, on note u la variable léthargie, définie par :  $u = \ln \frac{En_0}{En}$ .

Cette variable est utilisée pour des raisons pratiques : lors du ralentissement, on parle de gain de léthargie pour exprimer la perte d'énergie par diffusion. En particulier, soit un noyau de numéro atomique A auquel on associe le paramètre  $\alpha = \left(\frac{A-1}{A+1}\right)^2$ , on définit le gain maximum de léthargie  $\epsilon$  et le gain moyen de léthargie  $\xi$  par choc, par :

$$\epsilon = -\ln \alpha$$
 et  $\xi = 1 - \frac{\alpha \epsilon}{1 - \alpha}$ 

La section multigroupe **autoprotégée** ( $\sigma_{R,X}^{g,i}$  où g est le groupe énergétique  $[u_{g-1}; u_g]$ , i est la région considérée, R est la réaction étudiée, et X le noyau lourd à autoprotéger) doit vérifier la conservation des taux de réactions multigroupe et ponctuel :

$$\sigma_{R,X}^{g,i}\Phi^{g,i} = \int_{u_{g-1}}^{u_g} \sigma_{R,X}(u)\Phi^i(u)du$$
(2.48)

Toute la problématique de l'autoprotection des résonances découle du fait que le taux de réaction multigroupe et le flux multigroupe ne sont a priori pas connus. Une méthodologie de calcul a donc été mise en place afin d'évaluer chacun de ces termes.

A titre d'exemple, la section efficace de capture radiative de l'isotope <sup>232</sup>Th est illustrée sur la Fig. 2.6. Sur cette figure est comparée la section efficace continue ainsi que la section condensée à 281 groupes d'énergie (maillage énergétique SHEM) sur un zoom autour de la limite du maillage fin SHEM à 22.5 eV. Le maillage SHEM a été défini par [Hfaiedh and Santamarina, 2005] suite aux limites mises en évidence concernant les performances du maillage européen XMAS-172. L'objectif était de réaliser une optimisation fine du maillage jusqu'à 22.5 eV afin qu'un traitement spécifique d'autoprotection ne soit pas nécessaire en-dessous de cette valeur. La Fig. 2.6 illustre une particularité de la section du <sup>232</sup>Th. Sa première résonance de capture significative est une résonance double, dont les pics sont centrés sur 21.81 eV (1780 b à 300K) et 23.46 eV (2970 b). La première est incluse dans le découpage énergétique fin, tandis que la seconde ne l'est pas et doit être autoprotégée.



FIG. 2.6: Section de capture du <sup>232</sup> Th entre 20 et 30 eV, dans un spectre REP (JEFF-3.1.1)

Le traitement des sections efficaces qui est fait par la suite par le code de calcul fait l'objet de recommandations. Les noyaux résonnants sont différenciés de ceux dont la section ne varie que lentement et régulièrement avec la léthargie. Les premiers subissent un traitement particulier **d'autoprotection**. Pour les seconds, leurs sections efficaces, dites **à dilution infinie**, sont simplement tabulées (en fonction de la température pour les noyaux modérateurs).

#### 2.5.2 La méthode d'autoprotection des résonances dans APOLLO2

La détermination des sections efficaces effectives est réalisée par équivalence avec les taux de réaction multigroupes. Dans un premier temps sont évalués les taux de réaction multigroupes  $T_{R,X}^{g,i}$ : c'est l'étape d'équivalence, basée sur le formalisme de Wigner-Bell et développée par Livolant-Jeanpierre. Dans un deuxième temps, on cherchera à déterminer  $\Phi^{g,i}$  par une équivalence fin-multigroupe.

#### Présentation de l'équivalence homogène-hétérogène

L'objectif de cette étape est de parvenir à déterminer le taux de réaction  $T_{R,X}^{g,i}$ . Pour cela, il est nécessaire de déterminer le flux dans la région d'autoprotection étudiée. Or, dans le domaine des résonances, le flux est déterminé par l'équation du ralentissement (équation du transport simplifiée avec les hypothèses de ralentissement élastique isotrope et de noyau cible au repos dans le référentiel du laboratoire, les réactions de diffusion inélastique, fission et (n,xn) étant négligées). Sa résolution est assez simple dans un milieu homogène, mais se révèle plus complexe en milieu hétérogène.

En **géométrie homogène**, l'équation du ralentissement s'écrit selon (2.49). Sont notés  $\Phi$  le flux, R<sub>0</sub> l'opérateur de ralentissement associé aux noyaux lourds et R<sub>1</sub> celui associé aux noyaux diffusants. La section macroscopique totale associée aux noyaux lourds est notée  $\Sigma_0 = N_0 \sigma_0$ , où  $N_0$  est la densité atomique de noyaux lourds et  $\sigma_0$  la section microscopique, et  $\Sigma_1 = N_1 \sigma_1$  la section associée au modérateur. L'opérateur de ralentissement est une fonction de la léthargie donnant la densité d'arrivée des neutrons à la léthargie u.

$$R_1\Phi(u) + R_0\Phi(u) = (\Sigma_0 + \Sigma_1)\Phi(u)$$
(2.49)

Le flux réel  $\Phi$  peut être décomposé en un flux macroscopique  $\psi$  (presque en 1/E), qui représente le flux non perturbé par les résonances, et une fonction de structure fine  $\varphi$ , qui suit les creusements aux énergies de résonance et qui vaut 1 en dehors des résonances. Le flux macroscopique,  $\psi(u)$  varie peu avec la léthargie et est égal au flux non perturbé par les résonances. Le gain maximum de léthargie par choc avec le modérateur est grand<sup>5</sup> et l'intervalle d'intégration en léthargie de l'opérateur  $R_1\phi(u)$  ( $[u; u - \epsilon_1]$ ) suffisamment large pour lisser les brusques variations ponctuelles du flux. Cette observation permet de définir le flux macroscopique  $\psi(u)$ par (2.50).

$$\psi(u) = \frac{R_1 \Phi(u)}{\Sigma_1} \tag{2.50}$$

Au voisinage d'une résonance,  $\varphi$  varie très rapidement alors que  $\psi$  varie peu. L'opérateur de ralentissement lourd  $R_0$  appliqué au flux total peut se simplifier selon (2.51).

$$R_0\Phi(u) \approx R_0(\varphi\psi)(u) = \psi(u)R_0\varphi(u) \tag{2.51}$$

<sup>&</sup>lt;sup>5</sup>Le gain maximum de léthargie de l'hydrogène, de l'oxygène et de l'<sup>238</sup>U valent respectivement  $\epsilon^{H} = \infty$ ,  $\epsilon^{O} = 0.252$  et  $\epsilon^{^{238}U} = 0.017$ .

Cette décomposition du flux nous amène donc à simplifier l'équation du ralentissement en reportant (2.51) et (2.50) dans (2.49). On obtient l'équation de structure fine :

$$R_0\varphi(u) + \Sigma_1 = (\Sigma_0 + \Sigma_1)R_0\varphi(u) \tag{2.52}$$

La division des deux membres de l'équation (2.52) par la densité de noyaux lourds  $N_0$  fait apparaître la section de dilution  $\sigma_d$ , définie par  $\sigma_d = \Sigma_1/N_0$ .

$$r_0\varphi(u) + \sigma_d = (\sigma_0 + \sigma_d)\varphi(u) \tag{2.53}$$

Cette équation est particulièrement intéressante car elle ne dépend plus du modérateur ou de la concentration en noyau résonnant, mais uniquement de la dilution  $\sigma_d$ , constante avec la léthargie. L'équation (2.53) peut ainsi être résolue de manière exacte en géométrie homogène et permet de tabuler les sections effectives multigroupes  $\sigma_{eff,0}^{g,R,homo}(\sigma_d,T)^6$ :

$$\sigma_{eff,0}^{g,R,homo}(\sigma_d,T) = \frac{1}{\Delta u_g} \int_{u_{g-1}}^{u_g} \sigma_0(u)\varphi(u)du$$
(2.54)

Le calcul des sections effectives en milieu homogène pour une dilution quelconque et à une température donnée s'effectue simplement par interpolation de ces valeurs tabulées.

La résolution de l'équation du ralentissement en **milieu hétérogène** nécessite de différencier le combustible dans lequel se trouve le noyau lourd résonnant, du modérateur qui contient les noyaux diffusant. La communication entre ces deux zones est réalisée par les probabilités de première collision dans l'approximation de flux plat par région (un point de calcul dans le combustible  $\Phi_c$  et un point de calcul dans le modérateur  $\Phi_m$ ). Ainsi, pour un barreau isolé, l'expression du taux de collision dans le combustible à partir des probabilités de premières collision  $P_{cc}$  et  $P_{mc}$  s'écrit selon (2.55).  $P_{cc} / P_{mc}$  est la probabilité qu'un neutron créé dans le combustible / modérateur subisse sa première collision dans le combustible.

$$V_c \Sigma_c \Phi_c = V_c R_c \Phi_c P_{cc} + V_m R_m \Phi_m P_{mc} \tag{2.55}$$

Le flux  $\Phi_c$  est décomposé en un flux macroscopique et une fonction de structure fine car l'absorption résonnante a lieu dans les noyaux lourds du combustible. On définit de manière similaire au cas homogène le flux macroscopique  $\psi = R_m \Phi_m / \Sigma_m$ . Ceci, allié aux relations de réciprocité ( $V_m \Sigma_m P_{mc} = V_c \Sigma_c P_{cm}$ ) et de conservation ( $P_{cm} = 1 - P_{cc}$ ) définies section 2.4, nous permet de réécrire l'équation (2.55) à partir de la probabilité  $P_{cc}$  seule. Le terme  $P_{cc}$  correspond à la probabilité qu'un neutron émis dans le combustible subisse sa première collision dans un élément combustible. Une *section équivalente* est définie par analogie avec la section de dilution dans le cas homogène :

$$\sigma_e = \sigma_c(u) \frac{1 - P_{cc}(u)}{P_{cc}(u)}$$
(2.56)

<sup>&</sup>lt;sup>6</sup>Les tabulations des taux de réaction exacts sont obtenus grâce aux codes NJOY et CALENDF en résolvant l'équation de structure fine sur un maillage multigroupe fin.

La section équivalente, contrairement à la section de dilution du cas homogène, n'est plus une constante. Ce paramètre est à présent fonction de la léthargie par l'intermédiaire de la section totale du combustible  $\sigma_c(u)$  et de  $P_{cc}(u)$ . Aux centres des résonances, la section  $\sigma_c(u)$  devient très grande. Pour un élément convexe de volume V et de surface S, on définit l'*opacité* par  $\omega = \bar{l}\Sigma_c$ , où  $\bar{l} = 4V/S$  est la corde moyenne au sens de Cauchy (le point origine de la corde est pris selon une loi uniforme sur la surface et selon une direction entrante isotrope). Pour des fortes opacités (par exemple à l'endroit des résonances), la probabilité  $P_{cc}$  s'écrit au premier ordre :

$$P_{cc} = 1 - \frac{1}{\bar{l}\Sigma_c} \tag{2.57}$$

En injectant (2.57) dans (2.56), l'expression de la section équivalente devient :

$$\sigma_e = \frac{\Sigma_c}{N_c} \frac{1}{\bar{l}\Sigma_c - 1} \tag{2.58}$$

On peut montrer à partir de cette expression que lorsque la section  $\Sigma_c$  tend vers l'infini, la section équivalente tend vers une valeur asymptotique égale à

$$\sigma_{e,\infty} = \lim_{\Sigma_c \to \infty} \sigma_e = \frac{1}{\bar{l}N_c}$$
(2.59)

La section équivalente peut être assimilée à la section asymptotique  $\sigma_{e,\infty}$  au centre des résonances, mais cette approximation est forte au niveau des ailes des résonances, bien que la section équivalente reste proche de sa valeur asymptotique. On définit alors la fonction de Bell  $b(u) = \frac{\sigma_e(u)}{\sigma_{e,\infty}}$  et on applique un facteur correctif  $b = \frac{\overline{\sigma_e(u)}}{\sigma_{e,\infty}}$  à la section équivalente asymptotique (2.60). La dépendance avec la léthargie n'apparaît plus. Cette approximation permet d'identifier une géométrie homogène à une géométrie hétérogène en terme d'autoprotection, par l'intermédiaire de la section de dilution.

$$\sigma_e \approx \frac{b}{\bar{l}N_c} \tag{2.60}$$

Par ailleurs, le combustible est en général composé de plusieurs noyaux (par exemple l'oxygène dans le cas d'un oxyde). Le noyau résonnant que l'on cherche à autoprotéger est indicé "0". Les autres noyaux, supposés non résonnants, sont caractérisés par une section macroscopique totale  $\Sigma_{s,1}$  et un opérateur de ralentissement  $R_1$ , par conséquent  $R_c \Phi_c = R_0 \Phi_c + R_1 \Phi_c$ et  $\Sigma_c = \Sigma_0 + \Sigma_{s,1}$ . Pour l'oxygène par exemple, dont la section est une fonction constante de la léthargie sur le domaine énergétique considéré, l'opérateur de ralentissement  $R_1 \Phi_c \approx \Sigma_{s,1}$  où  $\Sigma_{s,1}$  est la section de diffusion du mélange de noyaux autres que le noyaux "0". En injectant ces termes dans (2.55), la section équivalente  $\sigma_{e,0}$  obtenue se décompose à présent en un terme "homogène" et un terme "hétérogène".

$$\sigma_{e,0} = \frac{\Sigma_{s,1}}{N_0} + \sigma_0(u) \frac{1 - P_{cc}(u)}{P_{cc}(u)}$$
(2.61)

Enfin, les raisonnements effectués jusqu'à présent ont concerné un barreau isolé. Or, dans le
cas d'un réseau de crayons, il est nécessaire de prendre en compte l'effet Dancoff dans le calcul de  $P_{cc}$  (et donc de  $\sigma_e$ ). Les développements du calcul amènent à introduire un facteur correctif C, appelé facteur de Dancoff, et conduisent à l'expression (2.62) (où  $b_0$  le facteur de Bell calculé sans effet Dancoff).

$$\tilde{\sigma}_{e,0} \approx \frac{1}{\bar{l}N_0} \frac{(1-C)b_0}{(1-C+Cb_0)} + \frac{\Sigma_{s,1}}{N_0}$$
(2.62)

En résumé, la résolution exacte de l'équation de structure fine dans le cas hétérogène est complexe, principalement à cause de la dépendance de la section équivalente avec la léthargie. Cependant sa résolution approchée par le biais d'une modélisation<sup>7</sup> de l'opérateur de ralentissement lourd  $r_0$  ne pose pas de problème. Il a été démontré ensuite qu'une équivalence entre le cas homogène et le cas hétérogène était justifiée par l'intermédiaire de la section équivalente (relativement constante en fonction de la léthargie). La méthode permettant d'obtenir le flux de structure fine dans le cas hétérogène (et donc les sections effectives), est résumée par la Fig. 2.7.



FIG. 2.7: Schéma de principe de la détermination des sections multigroupes dans APOLLO2

L'équivalence homogène/hétérogène est réalisée par étapes :

- 1. En géométrie hétérogène, l'équation de structure fine est résolue en utilisant un modèle de ralentissement lourd. La résolution de cette équation permet de calculer  $\sigma_{eff,R,X,i}^{hete,r_0}(u)$ .
- 2. En géométrie homogène, l'équation de structure fine est également résolue avec le même modèle de ralentissement lourd  $r_0$ , l'objectif étant de déterminer la dilution  $\sigma_d$  permettant d'obtenir l'équivalence entre sections effectives homogène et hétérogène (2.63). La section  $\sigma_d$  est obtenue par méthode itérative.

<sup>&</sup>lt;sup>7</sup>Plusieurs modèles de l'opérateur de ralentissement dans les résonances ont été développés. Parmi ces modèles, le modèle NR (Narrow Resonance) est plus spécifiquement adapté à la description du ralentissement au niveau d'une résonance étroite et isolée. Le modèle WR (Wide Resonance), est quant à lui préférentiellement utilisé pour les résonances dont la largeur est grande devant le gain maximum de léthargie. Le modèle ST (Statistique) est adapté au domaine du continuum où les résonances sont fines et très rapprochées en léthargie. Enfin, le modèle TR (Toutes Résonances) est une généralisation du modèle ST prenant en compte les transferts des groupes  $g' \to g$ . C'est à l'utilisateur, à travers le formalisme de calcul de l'autoprotection, de définir les modèles de ralentissement propres à chaque isotope dans les différents domaines énergétiques. Les modèles ont été établis en considérant principalement la largeur des résonances par rapport au gain maximum de léthargie. Le lecteur pourra se reporter aux références [Bellier et al., 2002] et [Hfaiedh, 2006] pour plus de détails.

$$\sigma_{eff,R,X}^{g,homo,r_0}(\sigma_d) = \sigma_{eff,R,X}^{g,hete,r_0}$$
(2.63)

- 3. Ensuite, connaissant  $\sigma_d$ , les sections effectives *exactes*, c'est-à-dire sans modélisation de l'opérateur de ralentissement, sont interpolées à partir des valeurs tabulées en fonction de la dilution et de la température. Donc à partir de  $\sigma_d$  on en déduit  $\sigma_{eff,R,X,i}^{homo,exact}(\sigma_d)$ .
- 4. Enfin, toujours en utilisant l'équivalence homogène-hétérogène, on peut écrire en bonne approximation :

$$\sigma_{eff,R,X,i}^{g,hete,exact} \approx \sigma_{eff,R,X,i}^{g,homo,exact}(\sigma_d)$$
(2.64)

#### Présentation de l'équivalence fin-multigroupe

Il reste maintenant à déterminer les flux multigroupes  $\Phi^{g,i}$  afin de pouvoir remonter aux sections multigroupes  $\sigma_{R,X}^{g,i}$ , connaissant les taux de réactions  $T_{R,X}^{g,i}$  (en fait les sections efficaces effectives  $\sigma_{eff,R,X}^{g,i}$ , issues du calcul fin). On rappelle que les exposants g et i font référence au groupe énergétique de largeur  $\Delta u_g = [u_{g-1}; u_g]$ , et à la région d'autoprotection, tandis que les indices R et X font respectivement référence à la réaction et au noyau considérés.

$$\sigma_{eff,R,X}^{g,i} = \frac{1}{\Delta u_g} \int_{u_{g-1}}^{u_g} \sigma_{R,X}(u) \varphi^i(u) du$$
(2.65)

$$\sigma_{R,X}^{g,i} = \frac{\int_{u_{g-1}}^{u_g} \sigma_{R,X}(u)\varphi^i(u)du}{\int_{u_{g-1}}^{u_g} \varphi^i(u)du} = \frac{\Delta u_g \sigma_{eff,R,X}^{g,i}}{\int_{u_{g-1}}^{u_g} \varphi^i(u)du}$$
(2.66)

Les flux multigroupes dépendent justement des sections multigroupes que nous cherchons à déterminer. L'obtention des sections efficaces multigroupes  $\sigma_{R,X}^{g,i}$  nécessite de résoudre le système non-linéaire (2.68) par itérations : à partir de la section multigroupe calculée à l'itération (n), on en déduit l'expression du flux multigroupe à l'itération (n + 1), jusqu'à la convergence des sections.

$$\Delta u_g \sigma_{R,X}^{g,i,(n)} \phi^{g,i,(n+1)}(\sigma_{R,X}^{g,i,(n)}) = T_{R,X}^{g,i}$$
(2.68)

#### Prise en compte de la protection mutuelle des résonances

La méthode d'équivalence homogène/hétérogène est très performante dans le cas d'un combustible constitué de noyaux résonnants pouvant être considérés comme indépendants les uns des autres, c'est-à-dire les résonances n'interfèrent pas entre elles. Cependant, si le combustible est composé de plusieurs noyaux lourds résonnants, comme cela est souvent le cas, les résonances peuvent interférer. À titre d'exemple, la Fig. 2.8 illustre l'influence de la résonance à 20.87 eV de l'<sup>238</sup>U sur l'autoprotection des résonances à 19.30 et 21.07 eV de l'<sup>235</sup>U.

Avec le maillage SHEM, [Hfaiedh and Santamarina, 2005] a montré que les phénomènes de protection mutuelle étaient correctement modélisés en-dessous de 22.5 eV. Cependant, audessus de 22.5 eV, ce phénomène d'autoprotection mutuelle intervient encore. En effet, prenons



FIG. 2.8: Protection mutuelle de <sup>238</sup>U et <sup>235</sup>U autour de 21 eV avec SHEM [Hfaiedh, 2006]

l'exemple des sections de <sup>238</sup>U et <sup>232</sup>Th entre 30 et 200 eV (Fig. 2.9). On remarque que plusieurs résonances peuvent se faire de l'ombre. En effet, le creusement du flux au niveau d'une des résonances va modifier l'autoprotection des résonances voisines. La méthode consistait alors à autoprotéger les isotopes par ordre d'importance (concentration/largeur de la résonance) en considérant tous les autres noyaux comme non résonnants, et d'itérer sur le calcul des sections efficaces autoprotégées. Cependant, un nouveau modèle de **protection mutuelle des résonances** a été développé par [Coste-Delclaux and Mengelle, 2004].



FIG. 2.9: Recouvrement des résonances de <sup>238</sup>U et <sup>232</sup>Th entre 30 et 200 eV (JEFF-3.1.1)

Le calcul de la protection mutuelle des résonances fait appel aux tables de probabilités [Coste-Delclaux and Mengelle, 2004]. Cette méthode consiste à remplacer les sections efficaces ponctuelles en fonction de l'énergie, par des densités de probabilité dans l'équation du ralentissement. Le principe des tables de probabilité est illustré simplement sur la Fig. 2.10. On trouve à gauche la section efficace fonction de l'énergie dans le groupe de bornes  $[E_{g-1}; E_g]$ . Cette section peut être représentée par une densité de probabilité associée à chaque valeur que peut prendre  $\sigma$  dans ce groupe énergétique (Fig. 2.10, au centre).  $\omega(\sigma)d\sigma$  est la probabilité que la section ait une valeur comprise entre  $\sigma$  et  $\sigma + d\sigma$ . Enfin, cette distribution peut être discrétisée en un nombre fini de valeurs par pondération par une distribution de Dirac (Fig. 2.10, à droite). Ces distributions peuvent être tabulées pour un échantillon de température, ce sont les *tables de probabilités*.



FIG. 2.10: Densité et table de probabilité d'une section efficace [Hfaiedh, 2006]

L'intérêt des tables de probabilité repose sur la possibilité de transformer une fonction de la variable  $\sigma$  qui dépend en fait de l'énergie E, par une intégrale portant sur  $\sigma$  seulement, grâce à la technique d'intégration de Lebesgue [Reuss, 2003]. Cette formulation, décrite ici dans le cas d'une section efficace unique, peut se généraliser à N sections résonnantes.

La technique d'autoprotection des mélange est réalisée en deux étapes :

 une section équivalente est calculée dans un milieu homogène après résolution de l'équation de structure fine du mélange en milieu hétérogène en prenant le modèle TR pour l'opérateur de ralentissement lourd, et les tables de probabilités pour la description des sections. L'équation de structure fine pour un mélange de noyaux résonnants s'écrit :

$$\sum_{j \in \text{noyaux résonnants}} R_j \phi_c - (\Sigma_c + \Sigma_e) \phi_c + \Sigma_e = 0.$$
(2.69)

2. Une fois la section équivalente  $\sigma_e$  connue, la résolution de l'équation de structure fine du mélange en milieu homogène sur un maillage hyperfin est réalisée.

La différence majeure avec la méthode présentée précédemment est que les sections effectives ne sont plus les sections tabulées obtenues par résolution exacte de l'équation de structure fine homogène, mais sont recalculées, dans APOLLO2, à partir des tables de probabilités, tabulées en température.

L'implémentation de cette méthode a permis de réduire fortement les biais observés sur le calcul des sections effectives de l'<sup>238</sup>U, de l'<sup>235</sup>U, du <sup>240</sup>Pu et du <sup>241</sup>Pu en particulier. Un travail de validation a été réalisé par [Coste-Delclaux and Mengelle, 2004, Hfaiedh, 2006].

La précision du calcul d'autoprotection est primordiale dans le cadre de l'étude de la haute conversion. En effet, la validité du calcul du facteur de conversion dépend de la qualité du calcul d'autoprotection, d'où la nécessité de bien prendre en compte les effets de protection mutuelle entre les résonances du <sup>232</sup>Th et les autres noyaux lourds résonnants.

# 2.6 Présentation du schéma de calcul REL2005

Un schéma de calcul est l'ensemble des choix de modélisation et des approximations effectuées lors des calculs déterministes. Le schéma *REL2005* s'appuie en amont sur une bibliothèque de sections efficaces multigroupes (issues des bibliothèque européenne de données nucléaires évaluées, en l'occurence JEFF-3.1.1). Les évaluations des éléments de la chaîne thorium incorporées à JEFF-3.1.1 ne sont pas toutes récentes<sup>8</sup>, ainsi que le montre le Tab. 2.1.

Isotope	Evaluation	Date
<sup>232</sup> Th	Maslov, Minsk	2001
<sup>231</sup> Pa	Scientific Co-ordination Group	1982
<sup>233</sup> Pa	Scientific Co-ordination Group	1982
$^{232}\mathrm{U}$	Scientific Co-ordination Group	1982
<sup>233</sup> U	Mutsunobu, Kawano	2000
<sup>234</sup> U	Maslov	2002

TAB. 2.1: Envaluations JEFF-3.1.1 des éléments de la chaine thorium

Les étapes du schéma *REL2005* et leur enchaînement est décrit Fig. 2.11.



FIG. 2.11: Architecture du schéma de calcul REL2005 (les cellules en rose correspondent au calcul de premier niveau, les cellules en bleu au calcul MOC de deuxième niveau, les cellules à fond blanc aux étapes nécessaires entre premier et second niveau).

<sup>&</sup>lt;sup>8</sup>Enn 1999 a été lancé un Coordinated Research Project (CRP) "nuclear data for thorium-uranium fuel cycle" par l'IAEA sur les isotopes de la chaîne thorium [Pronyaev, 1999]. L'objectif a été d'évaluer, de vérifier et de valider les mesures sur des benchmarks issus d'expériences récentes. Ce projet a pris fin en 2005 et les nouvelles évaluations des données nucléaires existent [Schillebeeckx and Trkov, 2006].

Le calcul d'autoprotection fait partie des étapes gourmandes en temps de calcul. L'optimisation temps/précision conduit à différencier la géométrie d'autoprotection de la géométrie du calcul de flux. Les cellules qui ont le même environnement immédiat sont regroupées afin de former une unique cellule physique. Ainsi, si la modélisation de l'assemblage fait intervenir 45 cellules combustibles (nombre de crayons nécessaires pour décrire un huitième d'assemblage REP avec symétries), une dizaine de cellules physiques suffiront au calcul d'autoprotection (les cellules seront différenciées selon leur proximité à la lame d'eau, aux trous d'eau,...).

La pastille est découpée en quatre sous-volumes correspondant (du centre vers la périphérie) à 50%, 30%, 15% et 5% de la surface de la pastille cylindrique. Ce découpage est préconisé afin de tenir compte du gradient de flux interne dans la pastille, qui influe notamment l'absorption résonnante de l'<sup>238</sup>U (effet de peau) et qui conduit à un phénomène d'autoprotection spatiale (dépression du flux thermique au centre de la pastille).

Deux calculs de flux sont réalisés : un premier, rapide, par la méthode  $P_{ij}$  en UP1-Hétérogène permet d'obtenir un flux à 281 groupes par maille de calcul. Avec ce flux à 281 groupes, les sections efficaces sont condensées sur un maillage à nombre de groupes restreints (en l'occurence 26 groupes). Le second calcul de flux est réalisé par la méthode MOC à 26 groupes d'énergie sur une géométrie TDT exacte (dont le maillage peut être irrégulier). En effet, le calcul par la méthode MOC directement à 281 groupes est beaucoup trop long pour les calculs prospectifs d'une part, et le schéma double niveau 281G-26G donne de très bons résultats en terme de précision par rapport au calcul MOC à 281 groupes [Santamarina et al., 2008]. Une équivalence transport 281G - transport 26G est effectuée afin de corriger les biais liés à la condensation.

Ce schéma de calcul a été validé est en partie qualifié pour les combustibles UOX et MOX en REP et REB. Cependant la validation et la qualification de ce schéma pour décrire des combustibles thoriés et/ou à forte teneur en plutonium, au sein de réseaux sous-modérés (en particulier à pas triangulaire) est en cours

# Chapitre 3

# Rappels sur l'équation de la diffusion et sa résolution par CRONOS2

Le calcul des cœurs de réacteurs nucléaires est un problème multi-échelles et multi-physiques (Fig. 3.1) qui doit s'effectuer en plusieurs étapes. Les paramètres macroscopiques d'intérêt, tels que le  $k_{effectif}$ , les distributions en trois dimensions (3D) de puissance, température ou modérateur, dépendent de la précision de données qui interviennent à une échelle beaucoup plus petite : les sections efficaces. Un certain découplage est cependant observé entre ce qui se passe au niveau macroscopique du cœur et ce qui se passe au niveau du crayon ou de l'assemblage.



FIG. 3.1: Illustration de la géométrie d'un cœur de réacteur nucléaire

L'outil de simulation qui a été utilisé pour effectuer les calculs de cœurs en 3D est le code CRONOS2. C'est un code modulaire qui peut résoudre l'équation du transport aussi bien que l'équation de la diffusion multigroupes et qui intègre des modèles de thermique et de thermohydraulique simplifiés permettant d'évaluer les contre-réactions modérateur et Doppler notamment [Lautard et al., 1990]. Ce chapitre a pour objet une présentation de la théorie de la diffusion multigroupe, employée dans CRONOS2, puis une description de la chaîne de calcul dans sa globalité, depuis la constitution des données d'entrée jusqu'au résultat final. Le code CRONOS2 est intégré au système SAPHYR [Akherraz et al., 2003] comprenant également APOLLO2 et FLICA4. Ces trois codes ont été développés pour pouvoir être couplés entre eux. Ainsi, chaque étape du calcul est décrite précisément avec un outil spécifique et les résultats de l'un servent de données d'entrée au code suivant. Il est ainsi possible de réaliser un calcul neutronique couplé à la thermohydraulique très précisément sur des cœurs de géométrie et de gestion complexes.

## 3.1 Rappels sur la théorie de la diffusion multigroupe

La théorie de la diffusion permet d'aboutir à une équation, *l'équation de la diffusion*, plus simple que l'équation du transport. Elle repose sur deux hypothèses.

1. Les neutrons apparaissent, sont diffusés ou absorbés. La première hypothèse est que le milieu est essentiellement *diffusant*, c'est-à-dire que sur le parcours de longueur dx, la probabilité d'être absorbé est négligeable devant celle d'être diffusé (3.1).

$$\Sigma_a dx \ll \Sigma_s dx \tag{3.1}$$

2. La seconde hypothèse est que la longueur caractéristique de la géométrie est très grande devant la longueur caractéristique des variations de flux. En notant  $\lambda_s$  le libre parcours moyen de diffusion, cela se traduit par (3.2).

$$\lambda_s \ll \text{dimensions caractéristiques}$$
 (3.2)

Dans ces conditions, on peut appliquer la **loi de Fick** au "gaz" de neutrons dilué dans le milieu diffusant. Cette loi exprime qu'en chaque point de la géométrie, et à un instant t, le vecteur *courant de particules* est proportionnel au gradient de la densité neutronique [Barjon, 1993]. En notant D le coefficient de diffusion, la loi de Fick appliquée au flux neutronique est décrite par l'équation (3.3). Cette formulation permet de simplifier le terme de fuite de l'équation du transport par un terme de diffusion qui traduit le fait que les neutrons ont tendance à diffuser dans le réacteur et que leur concentration atomique tend à s'uniformiser.

$$\underbrace{\vec{J}(\vec{r},t)}_{Courant \ de \ neutrons} = -D(\vec{r},t) \ \vec{\nabla} \underbrace{\Phi(\vec{r},t)}_{Flux \ scalaire}$$
(3.3)

Cette équation fait intervenir un coefficient de diffusion  $D(\vec{r}, t)$ . En milieu faiblement absorbant, ce coefficient est fonction de la section macroscopique totale du milieu au point  $\vec{r}$  (3.4). La section totale  $\Sigma_t$  est la somme de la section d'absorption et de diffusion. La diffusion est considérée comme isotrope, c'est-à-dire  $\Sigma_s = \Sigma_{s,0}$ . Cependant cette approximation introduit un biais sur le calcul de l'aire de migration  $M^2$  qui est proportionnelle au carré moyen de la distance parcourue par le neutron entre son émission et son absorption (3.5). Dans l'hypothèse d'un choc isotrope, l'aire de migration est sous-estimée. Cet exemple illustre la nécessité d'une correction pour tenir compte de l'anisotropie de la diffusion.

$$D = \frac{1}{3\Sigma_t} \tag{3.4}$$

$$M^2 = \frac{1}{6} \left\langle d^2 \right\rangle = \frac{D}{\Sigma_a} = \frac{1}{3\Sigma_t \Sigma_a} \tag{3.5}$$

L'anisotropie de la diffusion est prise en compte par la correction du transport<sup>1</sup>. Cette correction consiste à modifier la section totale avec un terme correctif  $\overline{\mu}$  qui rend compte de l'anisotropie. On écrira avec un indice "tr" la section corrigée en transport (3.6), qui permet de rétablir la valeur de l'aire de migration en remplaçant  $\Sigma_t$  par  $\Sigma_{tr}$  dans (3.5). Le calcul du cosinus de l'angle de déviation entre le système du centre de masse et le système du laboratoire montre que  $\mu$  est fonction du numéro atomique du noyau diffusant A et de l'angle de déviation dans le système du centre de masse :  $\overline{\mu} = 2/(3A)$ . En calculant sa valeur moyenne (par intégration angulaire) et en prenant A=1 pour l'hydrogène qui est le principal noyau diffusant pour un réacteur de type REP modéré à l'eau légère, alors  $\overline{\mu} = 2/3$ .

$$\Sigma_{tr} = \Sigma_t - \overline{\mu} \Sigma_s \tag{3.6}$$

Le terme  $-\vec{\Omega}.\vec{\nabla}\Phi$  de l'équation du transport se simplifie ensuite en injectant l'expression du courant neutronique selon la loi de Fick :

$$-\vec{\Omega}.\vec{\nabla}\Phi = \vec{\nabla}\vec{J}(\vec{\Omega}) = \nabla(D\vec{\nabla}\Phi(\vec{r},t)) = D\ \Delta\Phi(\vec{r},t)$$
(3.7)

Finalement, l'équation de la diffusion sous sa forme stationnaire multigroupe est donnée par l'équation (3.8).

$$D \Delta \Phi - \Sigma_a \Phi + S = 0 \tag{3.8}$$

La loi de Fick appliquée à la diffusion des neutrons en réacteur est vérifiée si le nombre de groupes énergétiques est limité. En effet, avec un maillage énergétique fin, l'approximation consistant à négliger l'absorption devant la diffusion peut être mise en défaut.

## 3.2 Description de la chaîne de calcul assemblage/coeur

A l'échelle de la cellule ou de l'assemblage, les grandeurs d'intérêt sont les taux de réactions. Ces taux de réaction des neutrons avec la matière dépendent des sections efficaces et du spectre neutronique. La distance caractéristique est donc le libre parcours moyen du neutron, qui sera sensible aux hétérogénéités, en particulier à la taille de la pastille combustible, à la distance entre crayon, à la proximité à un trou d'eau ou à la lame d'eau inter-assemblage.

A l'échelle du coeur, ces effets sont lissés et les assemblages de combustible peuvent être caractérisés par des sections globales représentatives du milieu macroscopique, et qui résultent

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>A ne pas confondre avec le développement en P0c de la section de diffusion dans APOLLO2 (voir page 45)

de la physique à l'échelle microscopique. Au niveau macroscopique, les paramètres d'intérêt deviennent le  $k_{effectif}$  et les distributions 3D de puissance, de température et de densité modérateur. Toutefois, la modification de ces paramètres d'état engendrent des variations des sections microscopiques par effet Doppler, ou du ralentissement par dilatation du modérateur par exemple. Une corrélation subsiste entre ces deux échelles. Ainsi, il est possible de réaliser un calcul fin et précis au niveau de la cellule ou de l'assemblage, puis de condenser les sections calculées sur la géométrie, à un nombre de groupes énergétiques restreints. Cependant, il est nécessaire de tabuler ces sections en fonction des paramètres d'état du cœur pour que les sections puissent être interpolées suivant les distributions et les variations observées dans le cœur.

Dans la pratique, des bibliothèques de sections efficaces par réaction, par isotope et par milieux sont constituées avec le code de réseaux APOLLO2. Le processus de créations des bibliothèques multi-paramétrées est schématisé par la Fig. 3.2.



FIG. 3.2: Illustration du paramétrage des bibliothèques de sections efficaces en fonction du taux de combustion (TCT), de la température du combustible (TECO) et de la densité du modérateur (DMOD)

Les sections efficaces et les concentrations atomiques sont archivées à des taux de combustion cibles lors d'un calcul d'évolution dans les conditions nominales de température et de densité modérateur. Des calculs *de reprise* sont ensuite effectués à partir de certains taux de combustion cibles du calcul en conditions nominales. L'étape de reprise permet d'ajouter à chacun des points d'archive correspondant à un taux de combustion donné (en rouge sur le schéma), des points de tabulation des sections et des concentrations en fonction des paramètres d'état du système. Les paramètres d'état qui sont communément tabulés sont la température du combustible, la température et la densité du modérateur, ou encore la concentration en bore soluble. Les paramètres de tabulation doivent être choisis en fonction des systèmes réacteurs/combustibles modélisés.

Les données d'entrées caractéristiques de chaque type de milieu sont ainsi constituées. Avec les sections, il est possible également de particulariser un certain nombre d'isotopes dont les concentrations atomiques seront archivées en même temps que les sections. Différentes possibilités sont alors offertes par CRONOS2 pour le calcul des bilans matières. La première consiste à interpoler les concentrations en fonction du taux de combustion (évolution macroscopique), à l'instar des sections. La seconde est de recalculer le bilan matière en fonction des sections interpolées et de la nappe de flux 3D (évolution microscopique). Par exemple, les concentrations des principaux noyaux lourds peuvent être lues à partir des données d'entrée, tandis que les concentrations en  $^{135}$ Xe et  $^{135}$ I seront recalculées, car elles sont très dépendantes de la forme du flux neutronique.

Lors d'une évolution microscopique, les concentrations sont calculées par CRONOS2 en fonction des taux de réactions faisant intervenir le flux du calcul de diffusion multigroupe, et des données de décroissance radioactive par isotope, à travers les équations de Bateman. Cette méthode est plus longue et plus précise que l'évolution macroscopique car elle permet de tenir compte du flux 3D réel dans le réacteur, c'est-à-dire qui tienne compte de la nature et du taux de combustion des assemblages environnants, ainsi que de la forme axiale du flux. Son utilisation est recommandée, spécialement si les assemblages du cœur sont de compositions initiales très différentes, dans le cas d'un cœur "hétérogène" par exemple.

Deux modules de thermohydraulique (monophasique et diphasique) et de thermique du combustible permettent de prendre en compte les variations de température combustible et modérateur dans le cœur. Ces modèles sont basés sur une modélisation simplifiée de la conduction thermique au sein de la pastille combustible et de la gaine, ainsi que du transfert thermique dans le gap situé entre ces deux milieux. Les coefficients d'échange thermique sont renseignés par l'utilisateur. Les contre-réactions thermohydrauliques sont ensuite évaluées par itérations entre calculs neutroniques donnant une distribution de puissance 3D, et calculs thermohydrauliques évaluant les distributions 3D de températures/densité. <sup>2</sup>

La détermination du cycle à l'équilibre se fait à partir de plusieurs cycles d'évolution du combustible, jusqu'à parvenir à une convergence sur le taux de combustion au déchargement. Le critère de fin de vie est différent selon que l'évolution du combustible se fait avec bore soluble dans le primaire ou non. Dans le premier cas, le k<sub>effectif</sub> du cœur est maintenu constant et égal à l'unité par ajustement de la concentration en bore. Cette concentration est recalculée à chaque pas de taux de combustion, selon son efficacité différentielle calculée, et la fin de vie est décrétée lorsque la concentration en bore passe en dessous d'une valeur minimale (par exemple 10 ppm). Dans le second cas, c'est-à-dire sans bore, le critère de fin de vie porte sur la réactivité : le cœur doit être rechargé dès que la réactivité devient inférieure à une valeur seuil (par exemple 100 pcm). Dans ce cas, l'évolution "fictive" se fait à facteur de multiplication supérieur à l'unité.

En conclusion, la chaîne de calcul d'un cœur 3D est un processus en deux étapes à minima : constitution des bibliothèques de sections efficaces multiparamétrées, puis calcul en théorie de la diffusion 3D. Une troisième étape pourrait être ajoutée avec couplage au code de thermohydraulique FLICA4. Cependant, des modèles de thermohydraulique et de thermique simplifiés permettent de tenir compte des variations des paramètres d'état du cœur. CRONOS2 et FLICA4 résolvent tous deux trois équations de bilan (conservation de la masse, du moment, et de l'énergie). La principale différence entre ces deux codes est que CRONOS2 n'intègre pas de notion de transfert de masse du caloporteur (son traitement est approché par des corrélations), tandis que FLICA4 résout le véritable problème thermohydraulique 3D, et à ce titre résout une équation supplémentaire (différence de vitesse entre phases liquide et vapeur du caloporteur).

 $<sup>^2 \</sup>rm Pour$  un calcul thermohydraulique plus précis, il est possible de coupler le code neutronique CRONOS2 au code thermohydraulique FLICA4.

Troisième partie

Démarche

# Chapitre 1

# Sélection du domaine d'étude

L'objectif de ce chapitre est de déterminer un domaine d'étude au sein duquel l'ajout de thorium peut contribuer à accroître le facteur de conversion.

Pour cela, une étude paramétrique sera réalisée. La première étape va consister à définir le cadre de cette étude en évaluant les paramètres qui contribuent à modifier le Facteur de Conversion (FC). Le FC est une mesure instantanée de la conversion. Dans la pratique, c'est le Fissile Inventory Ratio (FIR) qui est employé. C'est un indicateur global évalué entre le chargement et le déchargement du combustible. Cependant, cet indicateur ne tient pas compte des différences de "qualité" neutroniques des isotopes fissiles produits. Par conséquent la deuxième étape consistera à définir un indicateur de conversion à la fois quantitatif et qualitatif. Enfin, l'étude paramétrique sera réalisée d'abord avec pour fissile l<sup>235</sup>U, puis avec du plutonium.

## 1.1 Évaluation des paramètres influençant la conversion

Le Facteur de Conversion (FC), est défini par l'équation (1.1) comme le rapport entre taux de capture fertile sur taux d'absorption fissile :

$$FC = \frac{\sum_{i \in fertile} N^{i} \sigma_{capture}^{i} \Phi}{\sum_{j \in fissile} N^{j} \sigma_{absorption}^{j} \Phi}$$
(1.1)

Où  $\Phi$  est le flux neutronique dans le combustible,  $N^i$  et  $N^j$  sont respectivement les concentrations atomiques des noyaux fertiles (*i*) et fissiles (*j*), et  $\sigma^i_{apture}$  et  $\sigma^j_{absorption}$  les sections efficaces microscopiques de capture et d'absorption. Le FC d'un cœur complet est un paramètre complexe qui dépend à la fois des caractéristiques géométriques et de la puissance du réacteur (à travers  $\Phi$ ), de la composition du combustible (à travers N) et des propriétés neutroniques intrinsèques aux noyaux composant le combustible (à travers  $\sigma$ ). En particulier, le FC dépend

- de l'excédent de neutrons disponibles, à travers
  - Le nombre de neutrons produits par absorption dans le combustible, c'est-à-dire le facteur de reproduction  $\eta$  défini par

$$\eta^{comb}(E) = \frac{\sum_{i \in comb} N^i \nu^i(E) \sigma^i_{fission}(E)}{\sum_{i \in comb} N^i \sigma^i_{absorption}(E)}$$
(1.2)

dont les valeurs par isotope fissile sont rappelées dans le Tab. 1.3, page 15. Le facteur de reproduction est fonction du facteur  $\nu$ , le nombre de neutrons produits par fission, et du rapport  $\sigma_{\text{capture}} / \sigma_{\text{fission}} (\alpha)$ . Ces paramètres sont des fonctions de l'énergie incidente du neutron, et seront donc impactés par le **spectre** neutronique du réacteur.

- Les captures parasites par le modérateur et les éléments de structures, ainsi que les fuites hors coeur, essentiellement fonction de l'aire de migration du réseau combustible.
- Les captures parasites par les produits de fission (PF). La nature et la quantité des PF est fonction des noyaux fissiles du combustible par l'intermédiaire des courbes de rendements de fission cumulés, et leur taux d'absorption est fonction du spectre neutronique.
- L'effet protactinium. Cet effet est spécifique aux combustibles contenant du <sup>232</sup>Th, car le <sup>233</sup>Pa est un isotope intermédiaire apparaissant dans la chaîne de formation de <sup>233</sup>U à partir d'une réaction  $(n,\gamma)$  sur <sup>232</sup>Th. La production d'<sup>233</sup>U résulte de la décoissance  $\beta$ du <sup>233</sup>Pa. Du fait de sa demi-vie de l'ordre de 27 jours, et d'une section de capture élevée avec une intégrale de résonance de 855 b, la capture neutronique sera en compétition avec la décroissance radioactive, et donc avec la production d'<sup>233</sup>U. Cette compétition dépend essentiellement du niveau de flux dans le coeur, et donc de la **puissance spécifique** imposée au combustible.

$$\frac{dN^{^{233}Pa}}{dt} = \underbrace{N^{^{232}Th}\sigma^{^{232}Th}_{capture}\Phi}_{formation} - \underbrace{\lambda^{^{233}Pa}_{decroissance\ \beta}}_{decroissance\ \beta} - \underbrace{N^{^{233}Pa}\sigma^{^{233}Pa}_{capture}\Phi}_{disparition\ par\ capture}$$
(1.3)

- le FC dépend également de la capture fertile, c'est-à-dire
  - de la section efficace effective de capture des isotopes fertiles. Les sections efficaces microscopiques, en tant que fonctions continues de l'énergie, sont des données intrinsèques à chaque isotope. Cependant, les sections efficaces effectives sont pondérées par le spectre neutronique et dépendent du spectre et de la **composition** du combustible en noyaux lourds à travers le phénomène d'autoprotection.
  - d'autre part, le taux de capture fertile va dépendre également de la compétition avec les autres corps résonnants présents dans le combustible, et donc du rapport N<sup>fissile</sup>/N<sup>fertile</sup>. En effet, les sections efficaces des noyaux fissiles pour des neutrons d'énergie incidente inférieure à la centaine d'eV, sont en général plus élevées de l'ordre de plusieurs décades que les sections de capture radiative des fertiles. Par conséquent, plus le rapport N<sup>fissile</sup>/N<sup>fertile</sup> sera faible, et plus la conversion sera élevée.

Cette analyse a permis d'identifier les **paramètres** qui influencent et déterminent le FC, tels que les sections efficaces, le facteur  $\nu$ , le facteur anti-trappe. Mais elle a également permis de mettre en évidence un certain nombre de **leviers** sur lesquels il est possible d'agir, notamment la géométrie, la composition du combustible et la puissance spécifique.

Par conséquent, les éléments qui vont être évalués dans ce chapitre sont le rapport de modération (RM) (aspect géométrique), la composition du support du combustible, la nature et la teneur fissile (aspect composition), et enfin le niveau de flux (puissance spécifique). L'étude de leurs influences respectives permettra de dégager des domaines d'étude. Pour cela, une étude paramétrique a été effectuée à partir de la modélisation d'une cellule en milieu infini. Nous commencerons par étudier les deux fissiles <sup>235</sup>U et plutonium, puis le RM et la composition du support. Nous terminerons par l'influence de la puissance et du rapport  $N^{fissile}/N^{fertile}$ .

# 1.2 Détermination d'un paramètre de comparaison, le FIR<sub>équivalent</sub>

#### 1.2.1 Mise en évidence du besoin d'un paramètre de comparaison qualitatif

Le FC est un indicateur, à un taux de combustion donné, de la capacité d'un système  $\{\text{combustible} + \text{réacteur}\}$  à convertir sa matière fertile en matière fissile. Cependant, le paramètre macroscopique que constitue le rapport d'inventaire fissile, aussi noté Fissile Inventory Ratio (FIR), sera employé préférentiellement. Le FIR est défini comme le rapport entre la masse de noyaux fissiles au déchargement et la masse de noyaux fissiles au chargement (1.4). Dans la formule (1.4) les masses par noyaux sont donc indicées fin de vie (FdV) et début de vie (DdV).

$$FIR = \frac{m_{FdV}^{233} + m_{FdV}^{233} P^a + m_{FdV}^{235} U + m_{FdV}^{239} P^u + m_{FdV}^{241} P^u}{m_{DdV}^{233} U + m_{DdV}^{235} U + m_{DdV}^{239} P^u + m_{DdV}^{241} P^u}$$
(1.4)

Le <sup>233</sup>Pa est comptabilisé avec les fissiles dans cette formulation, du fait de sa relativement courte période de décroissance de 27 jours. En effet, au bout de quelques mois cet isotope s'est presque entièrement désintégré en <sup>233</sup>U. De manière similaire, la période radioactive du <sup>241</sup>Pu de 14 ans environ pourrait être prise en compte pour le calcul du FIR. En notant  $M^{241}Pu(t_0)$  la

masse de <sup>241</sup>Pu déchargée à un instant  $t_0$ , et  $\lambda^{2^{41}Pu} = \ln(2)/T_{1/2}$  la constante de décroissance radioactive du <sup>241</sup>Pu, alors la masse effective de cet isotope à un instant t ultérieur sera décrite par la loi exponentielle (1.5).

$$M^{^{241}Pu}(t) = M^{^{241}Pu}(t_0)e^{-\lambda^{^{241}Pu}(t-t_0)}$$
(1.5)

Par conséquent, on distinguera le FIR *au déchargement* et le FIR *au déchargement* + 5 ans en tenant compte de la décroissance du <sup>233</sup>Pa et du <sup>241</sup>Pu. La période de 5 ans est caractéristique du temps de refroidissement en piscine après déchargement du cœur et avant transport pour retraitement. Après 5 ans de refroidissement, tout le <sup>233</sup>Pa a disparu, tandis que la masse de <sup>241</sup>Pu a diminué de 21.5%.

On remarque déjà que l'<sup>233</sup>U est préférable au <sup>241</sup>Pu pour sa stabilité. De plus, leurs propriétés neutroniques respectives diffèrent de manière notoire. Deux paramètres intrinsèques à chaque noyau fissile sont particulièrement importants. Le premier est le rapport  $\sigma_{\text{capture}} / \sigma_{\text{fission}} (\alpha)$ . Les absorptions par les isotopes fissiles qui ne conduisent pas à une fission sont considérées comme des captures parasites car elles ne contribuent pas au facteur de conversion et diminuent le nombre de neutrons disponibles pour une réaction  $(n, \gamma)$  dans un noyau fertile. Par conséquent, les isotopes fissiles qui présentent un faible rapport  $\alpha$  sont à privilégier.

Le second paramètre d'intérêt est le nombre de neutrons produits par fission ( $\nu$ ), qui va déterminer en partie le nombre de neutrons disponibles pour les captures fertiles. Ce facteur dépend du noyau fissionné et de l'énergie du neutron incident. En moyenne, environ 2.5 neutrons sont produits lors d'une fission thermique. Le facteur  $\nu(E)$  peut être considéré comme constant jusqu'à des énergies de l'ordre de 100 keV, avant d'augmenter linéairement d'environ 0.15 unité par MeV (par exemple, le  $\nu$  du <sup>241</sup>Pu à 2 MeV vaut 3.23 tandis qu'à 25 meV il vaut 2.92).

Le facteur  $\nu$  des isotopes fissiles du plutonium est plus élevé que celui de l'<sup>233</sup>U ou de l'<sup>235</sup>U, mais les rapports  $\alpha$  des noyaux fissiles du plutonium sont moins bons (voir le Tab. 1.3, page 15). Le facteur de reproduction  $\eta$  synthétise ces deux éléments. Il en ressort que l'<sup>233</sup>U possède le  $\eta$ le plus élevé aux énergies thermiques, et équivalent à celui des isotopes fissiles du plutonium sur le domaine épithermique. Il serait par conséquent pertinent d'établir un critère de comparaison tenant compte de la *qualité neutronique* de chaque fissile produit ou consommé.

Suite à ce constat, nous avons choisi d'utiliser la **théorie des facteurs d'équivalence en** <sup>239</sup>**Pu**, développée en 1963 par [Baker and Ross, 1963]. En effet, [Yiftah and Okrent, 1960] ont mis en évidence que le vecteur isotopique du plutonium pouvait influencer considérablement les performances des réacteurs rapides. Par conséquent, [Baker and Ross, 1963] ont proposé un critère de comparaison en réactivité des isotopes, en se ramenant à un isotope de référence, le <sup>239</sup>Pu. Cette méthode permet de comparer les différents noyaux selon leur contribution à la réactivité initiale. Cette technique est particulièrement adaptée à la description des combustibles de réacteurs à neutrons rapides, mais plus délicate à justifier en spectre thermique compte tenu de la dépendance des sections efficaces effectives à de multiples paramètres. Concernant l'application de cette méthode en spectre thermique, nous pouvons citer les travaux menés dans les années 80 par [Azzoug, 1990] (élaboration d'une abaque permettant de déterminer une teneur en plutonium connaissant son isotopie pour les REP MOX) et [Schaeffer, 1981] (utilisation de cette méthode pour comparer entre eux des combustibles REP à base de plutonium).

Nous allons donc voir dans quelle mesure cette méthode peut être employée et quel en est son domaine de validité, sachant qu'elle donne des résultats précis et pertinents dans le cas des réacteurs à neutrons rapides.

#### 1.2.2 Application de la théorie des facteurs d'équivalence au FIR<sub>équivalent</sub>

[Baker and Ross, 1963] ont montré qu'il était possible de déterminer la masse critique en <sup>235</sup>U ou plutonium d'un combustible quelconque, connaissant la masse critique en <sup>239</sup>Pu d'un combustible de référence composé des noyaux <sup>238</sup>U et <sup>239</sup>Pu, selon la formule (1.6). Dans cette formule,  $M_{\text{critique}}^{239}P_{u,ref}$  est la masse critique en <sup>239</sup>Pu calculée pour un combustible (<sup>238</sup>U<sup>239</sup>Pu)O<sub>2</sub> de référence. La notation  $\overline{x}$  fait référence à la différence  $\overline{x} = \overline{\nu \sigma}_{\text{fission}} - \overline{\sigma}_{\text{absorption}}$  où le facteur  $\nu$  ainsi que les sections efficaces microscopiques sont condensées à 1 groupe d'énergie sur le spectre du cœur de référence pour le mélange de noyaux lourds considéré.

$$M_{\text{critique}} = \frac{M_{\text{critique}}^{^{239}Pu, ref}}{\omega} \quad et \quad \omega = \frac{\overline{x} - x_8^{ref}}{x_9^{ref} - x_8^{ref}} \tag{1.6}$$

Les résultats d'un calcul direct ont été comparés avec ceux obtenus en employant la formule (1.6) et les résultats concordent de manière très satisfaisante [Baker and Ross, 1963]. Cette expérience a montré qu'il est possible de déterminer la masse de plutonium (et donc la composition du combustible), quelle que soit sa composition isotopique, par comparaison à un plutonium de référence en fonction d'un critère de réactivité. Les deux combustibles sont alors **équivalents**.

Dans notre cas, l'équivalence entre deux combustibles est définie par le fait de conduire à la même longueur de cycle, à masse de noyaux lourds et puissance identiques. Or la longueur de cycle peut généralement être reliée à la réactivité initiale du combustible (et au facteur de conversion). En effet, après le transitoire de saturation des concentrations atomiques en <sup>135</sup>Xe et en <sup>233</sup>Pa, on observe une décroissance linéaire du k<sub>infini</sub> avec le taux de combustion dans la plupart des systèmes {réacteur + combustible}. Par conséquent, si le facteur de conversion n'est pas trop modifié (à vérifier selon les cas), le taux de combustion au déchargement (et donc la longueur de cycle) est relié à la réactivité du combustible en début de vie.

Sachant cela, deux systèmes qui ne diffèrent que par leurs compositions isotopiques initiales seront considérés comme **équivalents** si et seulement si ils conduisent à la même réactivité initiale, sous la réserve que les hypothèses de linéarité du  $k_{infini}$  et de similarité du FC soient vérifiées.

Pour établir cette équivalence, nous devons calculer la variation de réactivité  $\delta \rho$  induite par une variation de la composition isotopique du combustible par rapport à une composition de référence. Notons,

- $-\ N_i$  la densité atomique du noyau lourd i,
- $-N = \sum_{i \in \text{isotopes}} N_i$  la densité atomique de noyaux lourds,
- $-e_i = \frac{N_i}{N}$  l'enrichissement en isotope i.

On définit le système de référence par  $(\rho^{ref}, e_i^{ref}, \sigma_{a,i}^{ref}, \sigma_{f,i}^{ref})$  et le système perturbé par  $(\rho, e_i, \sigma_{a,i}, \sigma_{f,i})$ . Entre le système de référence et le système perturbé, les hypothèses suivantes sont prises : le nombre total de noyaux lourds est inchangé (soit N = cste) et les termes de transferts

et de fuites sont identiques. La modification des compositions isotopiques (modification des  $e_i$ ) va ainsi engendrer principalement des variations des sections efficaces d'absorption ( $\sigma_{a,i}$ ) et de fission ( $\sigma_{f,i}$ ).

Appliquons la théorie des perturbations au premier ordre afin d'évaluer la variation de réactivité induite par un changement de composition atomique, entre le système de référence et le système perturbé. K et P sont les opérateurs de disparition (par absorption neutronique) et de production (par fission),  $\Phi$  et  $\Phi^+$  sont respectivement le flux et le flux adjoint du système de référence, et  $\lambda$  la valeur propre,  $\lambda = 1/k_{\text{effectif}}$ . Le produit scalaire  $\langle \rangle$  porte sur le domaine d'intégration du flux.

$$\delta\rho = -\delta\lambda = \frac{\langle \Phi^+, (\lambda\delta P - \delta K)\Phi\rangle}{\langle \Phi^+, P\Phi\rangle}$$
(1.7)

Le numérateur, dont le produit scalaire porte sur la zone perturbée du réacteur, traduit les perturbations engendrées sur la population neutronique, tandis que le dénominateur, dont le produit scalaire porte sur tout le réacteur, comptabilise la production totale de neutrons issue de cette perturbation. Dans le cas particulier étudié ici, la perturbation concerne le volume global du réacteur. Considérons une cellule en milieu infini, à un groupe d'énergie, les opérateurs P et K s'écrivent

$$P = N \sum_{i \in \text{ isotopes}} e_i \nu_i \sigma_{f,i}$$
  

$$K = N \sum_{i \in \text{ isotopes}} e_i \sigma_{a,i}$$
(1.8)

où  $\nu_i$ ,  $\sigma_{f,i}$  et  $\sigma_{a,i}$  sont respectivement le nombre de neutrons produits par fission, et les sections efficaces microscopiques de fission et d'absorption, à un groupe d'énergie. Nous recherchons l'état perturbé critique qui vérifie  $\delta \rho = 0$ , soit une compensation entre la variation engendrée sur la production de neutrons et celle sur la disparition de neutrons

$$\left\langle \Phi^{+}, \delta P \Phi \right\rangle = \left\langle \Phi^{+}, \delta K \Phi \right\rangle \tag{1.9}$$

Considérons également que le combustible de référence est un mélange simplifié des seuls noyaux d'<sup>238</sup>U et de  $^{239}$ Pu, qui vérifient

$$e_{238U}^{ref} = (1 - e_{239Pu}^{ref}) \tag{1.10}$$

Avec la théorie à un groupe d'énergie,  $\Phi^+ = \Phi$ . Notons  $x_i = \nu_i \sigma_{f,i} - \sigma_{a,i}$ . La condition (1.9) et la relation (1.10) permettent d'aboutir sur la relation :

$$\sum_{i} e_{i} x_{i} = (1 - e_{239Pu}^{ref}) x_{238U} - e_{239Pu}^{ref} x_{239Pu}$$
(1.11)

avec  $\delta P - \delta K = \sum_{i} e_i \delta x_i$  entre le système de référence et le système perturbé.

La teneur en <sup>239</sup>Pu-équivalent,  $e_{239Pu}$  et les facteurs d'équivalence par noyau i,  $\omega_i$  s'en déduisent alors :

$$e_{239Pu} = \sum_{i} e_{i}\omega_{i} \quad et \quad \omega_{i} = \frac{x_{i} - x_{238U}^{ref}}{x_{239Pu}^{ref} - x_{238U}^{ref}}$$
(1.12)

On remarque qu'apparaît ici une hypothèse implicite supplémentaire sur les sections efficaces. La formulation (1.12) des facteurs d'équivalence en réactivité fait intervenir les sections efficaces microscopiques intégrées en léthargie sur le spectre du réacteur et supposent que ces dernières sont invariantes sur un certain domaine afin de pouvoir définir des facteurs d'équivalence valides pour certaines variations de compositions du combustible. Il faut savoir que la théorie des facteurs d'équivalence a été appliquée initialement aux combustibles des Réacteurs à Neutrons Rapides (RNR). Or, le spectre neutronique caractéristique des RNR est centré autour de 0.1 MeV et peu de neutrons abordent le ralentissement et sa forêt de résonances. Par conséquent le spectre énergétique des neutrons correspond à la partie des courbes des sections efficaces des noyaux lourds où les sections varient peu, comparé au domaine des résonances. Les facteurs d'équivalence définis pour des RNR sont peu sensibles aux variations de taux de combustion ou de composition du combustible. Cela n'est plus vrai en REP du fait des résonances des sections efficaces et de leur autoprotection. Nous allons donc vérifier au paragraphe 1.2.3 la sensibilité des facteurs d'équivalence au taux de combustion, à la teneur fissile et à la composition isotopique du combustible, et au rapport de modération, afin d'associer un domaine de validité à chaque jeu de facteurs d'équivalence déterminé.

Ces facteurs d'équivalence sont construits pour être normalisés à 0 pour l'<sup>238</sup>U et à 1 pour le <sup>239</sup>Pu. Toutefois, les études menées dans le cadre de ce mémoire concernent aussi bien des supports en <sup>238</sup>U qu'en <sup>232</sup>Th, ou encore des supports mixtes <sup>238</sup>U- <sup>232</sup>Th, et le fissile principal peut également être de l'<sup>235</sup>U, de l'<sup>233</sup>U ou du <sup>239</sup>Pu. Cette formulation doit donc être adaptée en fonction du combustible de référence. Nous proposons ici une définition "simplifiée" qui s'affranchit de cette normalisation, où le support n'apparaît plus dans la définition des facteurs d'équivalence<sup>1</sup>. Les facteurs d'équivalence par isotope sont alors définis simplement par (1.13) où l'indice "ref" désigne non pas le combustible de référence, mais l'isotope fissile de référence : <sup>233</sup>U, <sup>235</sup>U ou plutonium selon le cas.

$$\omega_{i/ref} = \frac{x_i}{x_{ref}} = \frac{(\nu \sigma_{fission} - \sigma_{absorption})_i}{(\nu \sigma_{fission} - \sigma_{absorption})_{ref}}$$
(1.13)

Ces facteurs d'équivalence ont été utilisés pour construire une nouvelle formulation du rapport d'inventaire fissile, notée FIR<sub>éq</sub>. Dans cette définition, les masses des noyaux fissiles  $m_i$  sont pondérées par leur facteurs d'équivalence  $\omega_{i/ref}$  (1.14).

$$FIR_{\acute{eq}} = \frac{\sum_{i \in (fissiles + 233Pa)} m^{i}_{FdV} \omega_{i/239Pu}}{\sum_{i \in fissiles} m^{i}_{DdV} \omega_{i/239Pu}}$$
(1.14)

Nous sommes conscients d'introduire ici un biais car cette formulation signifie implicitement que les fertiles (l' $^{238}$ U ou le  $^{232}$ Th par exemple) contribuent à la masse fissile, ou du moins,

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>Attention, par la suite les facteurs d'équivalence seront utilisés afin d'estimer rapidement la teneur en plutonium ou en uranium fissile permettant d'atteindre une longueur de cycle (et donc un taux de combustion) identique à celle d'un cas de référence. À ce moment là, les contributions en réactivité de tous les noyaux lourds seront pris en compte (contributions négatives ou positives selon l'actinide considéré).

on ne tient pas compte de leurs contributions négatives à l'effet en réactivité. Par exemple, la Fig. 1.1 montre que le  $^{240}$ Pu a un facteur d'équivalence de -0.5, le  $^{233}$ Pa et l' $^{241}Am$  ont un facteur d'équivalence compris entre -1.0 et -1.5 en fonction du taux de combustion. Cependant nous cherchons seulement à définir ici un outil de *comparaison* simple, dont nous vérifierons le domaine de validité.



FIG. 1.1: Facteurs d'équivalence par rapport au  $^{239}Pu$  ( $\omega_{i/^{239}Pu}$ ) d'un combustible ThPuO<sub>2</sub> (21%m<sub>NL</sub>)

La définition des facteurs d'équivalence repose sur la constance des sections efficaces microscopiques condensées à 1 groupe d'énergie sur le spectre du réacteur étudié. Les autres hypothèses effectuées, c'est-à-dire la linéarité du  $k_{infini}$  en fonction du taux de combustion, ainsi que la conservation du coefficient de fuite ont été justifiées précédemment<sup>2</sup>. Par conséquent, l'étape suivante a consisté à étudier la sensibilité des sections efficaces microscopiques à la composition isotopique initiale, au spectre neutronique et au taux de combustion.

#### 1.2.3 Étude de sensibilité des facteurs d'équivalence en réactivité

Une étude de sensibilité a été réalisée avec le code réseau APOLLO2 sur une cellule combustible en milieu infini. On a choisi de ne présenter ici que les résultats relatifs à un combustible  $ThPuO_2^3$ . En effet, ce cas est le plus délicat car tous les isotopes du plutonium sont résonnants.

L'étude de sensibilité a été réalisée sur les panels de valeurs suivants :

- RM : 0.83 / 1.02 / 1.69 / 1.98 / 2.40;
- Teneur Pu (% $m_{NL}$ ) : 7.0 / 10.0 / 15.0 / 17.0 / 21.0;
- Vecteur Pu : Pu À / Pu B / Pu C.

Les vecteurs isotopiques sélectionnés pour cette étude sont détaillés dans le Tab. 1.1. Le PuA correspond au vecteur Pu2035, c'est-à-dire au vecteur isotopique moyen disponible à l'horizon  $2035^4$ . Les vecteurs Pu B et Pu C sont les vecteurs plutonium issus du retraitement d'un

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup>On rappelle que l'hypothèse de linéarité est vérifiée après les transitoires <sup>135</sup>Xe et <sup>233</sup>Pa, et que tous les paramètres du cœur étant inchangés (excepté la composition isotopique du combusible), les fuites sont identiques.

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup>Des études de sensibilité ont également été réalisées pour un combustible UPuO<sub>2</sub> et  $(^{232}\text{Th}^{233}\text{U})\text{O}_2$  et font l'objet de l'annexe A.

<sup>&</sup>lt;sup>4</sup>De ce fait, ce plutonium est assez dégradé avec seulement 56% d'isotopes fissiles, dont 48% de <sup>239</sup>Pu. Nous avons cherché ici à nous placer dans les conditions réalistes d'un déploiement de réacteurs de génération III à combustible thorium. En effet, des étapes de qualification des codes et des combustibles, ainsi que la construction d'infrastructures spécifiques seront nécessaires avant de charger des réacteurs avec des combustibles à base de <sup>232</sup>Th. C'est donc ce vecteur Pu2035 qui sera employé pour la suite des études.

Isotope	Pu À	Pu B	Pu C
<sup>238</sup> Pu	3.03	4.00	2.50
<sup>239</sup> Pu	48.73	50.00	54.50
<sup>240</sup> Pu	30.36	23.00	25.20
$^{241}$ Pu	7.34	12.00	8.60
$^{242}$ Pu	9.80	9.50	7.90
$^{241}Am$	0.74	1.50	1.30
Qualité	56.07	62.00	63.11

combustible UOX déchargé à un taux de combustion de 60 GWj/t pour le premier, et de 45 GWj/t pour le second.

TAB. 1.1: Fractions isotopiques (%) des vecteurs plutonium sélectionnés

La *qualité* correspond à la somme des fractions massiques de  $^{239}$ Pu et de  $^{241}$ Pu :

Qualité = 
$$\frac{m(^{239}Pu) + m(^{241}Pu)}{m(total Pu)}$$
 (1.15)

Les principaux résultats font l'objet de la Fig. 1.2. On remarque que les sections efficaces microscopiques condensées sur le spectre neutronique sont principalement sensibles au rapport de modération (Fig. 1.2e et 1.2f) et à la teneur massique en plutonium (Fig. 1.2b).

Ces deux paramètres vont essentiellement modifier le niveau de flux thermique et l'autoprotection des résonances et donner plus ou moins de poids aux sections efficaces effectives des isotopes du plutonium, ce qui explique que les sections efficaces du plutonium diminuent significativement avec l'augmentation de sa teneur (Fig. 1.2b). Par ailleurs, les sections efficaces effectives des isotopes du plutonium augmentent avec le rapport de modération (augmentation de la composante thermique du spectre neutronique).

Par contre, les variations de composition induites par les différents vecteurs isotopiques ainsi que par l'augmentation du taux de combustion sont des effets mineurs par rapport aux deux effets prépondérants que sont la teneur en plutonium et le RM. Cela est vérifié également pour les isotopes créés au fur et à mesure de l'irradiation, tels que le <sup>233</sup>Pa et l'<sup>233</sup>U. Ces résultats sont encourageants car dans la pratique, à un RM fixé, la plage de variation en teneur fissile sera assez restreinte pour viser une longueur de cycle donnée.

Ces études de sensibilité nous ont permis de déterminer un jeu de facteurs d'équivalence associé à un spectre neutronique en fonction de la composition du combustible, ThPu (Tab. 1.2) ou ThU (Tab. 1.3).

RM	0.64	0.83	1.02	1.69	1.98	2.40
Teneur Pu ( $\%m_{NL}$ )	17.0	18.0	18.0	16.0	14.0	12.0
$\omega_{233}U/^{239}Pu$	1.7	1.7	1.6	1.2	1.0	0.9
$\omega_{241}Pu/^{239}Pu$	2.1	2.1	2.0	1.7	1.6	1.5

TAB. 1.2: Facteurs d'équivalences avec le  $^{239}$ Pu pour un combustible ThPuO<sub>2</sub>, moyennés entre 0 et 60 GWj/t

En conclusion, une formule modifiée du FIR a été définie, permettant de tenir compte de la *qualité neutronique* de chaque noyau fissile par rapport à un isotope de référence. Cette formulation est basée sur la définition de *facteurs d'équivalence*, qui doivent être ajustés en



FIG. 1.2: Résultats de l'étude de sensibilité pour le combustible ThPuO<sub>2</sub>

$\operatorname{RM}$	0.64	0.83	1.02	1.69	1.98	2.40
Teneur <sup>235</sup> U ( $\%m_{NL}$ )	9.0	8.0	7.0	5.0	5.0	5.0
$\omega_{233}U/^{235}U$	2.3	2.3	2.1	1.5	1.5	1.4
$\omega^{239} Pu/^{235} U$	1.9	2.2	2.5	2.7	2.7	2.7
$\omega_{241} P_{n}/235 U$	3.1	3.3	3.4	3.4	3.4	3.4

TAB. 1.3: Facteurs d'équivalences avec l<sup>235</sup>U pour un combustible ThUO<sub>2</sub>, moyennés entre 0 et 60 GWj/t

fonction du RM et de la composition du combustible. Cet outil est indispensable pour pouvoir comparer entre elles des configurations mêlant différents types de noyaux fissiles, tels que <sup>235</sup>U et Pu, ou <sup>233</sup>U et Pu, ce qui sera le cas pour des combustibles thoriés dédiés à la production d'<sup>233</sup>U par exemple. En effet, le thorium naturel est composé à 100% de l'isotope <sup>232</sup>Th. Ainsi, en l'absence de stock préalable d'<sup>233</sup>U, le thorium sera irradié en compagnie d'un autre noyau fissile, <sup>235</sup>U ou <sup>239</sup>Pu. En cours d'irradiation, de l'<sup>233</sup>U est produit. Le combustible déchargé sera donc composé au minimum de deux noyaux fissiles. Le FIR<sub>éq</sub> permet alors d'évaluer le bilan massique selon la composition du combustible.

#### 1.3 Détermination des combustibles de référence

Cette section a pour but d'évaluer l'impact du thorium sur le facteur de conversion, tout d'abord au sein d'un combustible UOX, et ensuite au sein d'un combustible MOX.

#### 1.3.1 Hypothèses et cadre de l'étude paramétrique

L'étude paramétrique va concerner six RM différents. Le choix de ces valeurs particulières s'est effectué selon les raisons suivantes. L'étude bibliographique a clairement mis en évidence que des FC supérieurs à 0.8, ne pouvaient être obtenus qu'à l'aide d'un durcissement du spectre, et donc d'une diminution du RM. Cette étude a également mis en évidence des contraintes thermohydrauliques, imposant une limite basse pour le RM. D'autre part, nous souhaitons évaluer l'influence du thorium sur les propriétés de conversion en REP standard. Enfin, la section de capture thermique du <sup>232</sup>Th comparativement à celle de son homologue <sup>238</sup>U nous a incité à considérer également un RM représentatif d'un spectre sur-modéré, et proche de l'optimum de modération. Au final, six RM ont été retenus s'échelonnant de 0.64 à 2.40. Les ajustements de RM sont effectués par modification du pas du réseau, le diamètre combustible ainsi que l'épaisseur de la gaine demeurent inchangés. En effet, cette solution est préférée à la modification du diamètre du crayon, car elle permet de conserver les volumes combustible et gaine entre les différents calculs.

Pour chacun de ces RM nous allons définir un combustible de référence, correspondant au combustible avec une fraction de thorium  $C_{Th}$  nulle.

$$C_{Th} = 100 \times \frac{m(^{232}Th)}{m(^{232}Th) + m(^{238}U)}$$
(%) (1.16)

Le vecteur isotopique du plutonium qui sera utilisé tout au long de cette étude est le vecteur Pu A décrit au Tab. 1.1. Comparé à un plutonium issu d'un combustible UOX, tel que le Pu B

par exemple, sa fraction isotopique de <sup>240</sup>Pu est supérieure, de l'ordre de 30%, ce qui a un effet positif sur le facteur de conversion. Cependant, du fait qu'une partie du plutonium composant le Pu2035 a été immobilisé longtemps sans être utilisé, une fraction importante du <sup>241</sup>Pu a décru en <sup>241</sup>Am, un poison neutronique<sup>5</sup>. En résumé, ce plutonium est pénalisant car il va nécessiter une teneur massique initiale importante, et sa forte concentration en <sup>240</sup>Pu et sa faible fraction de <sup>241</sup>Pu vont le rendre plus capturant en début de vie.

#### 1.3.2 Détermination des inventaires fissiles des combustibles de référence

#### Sélection des densités théoriques des oxydes mixtes

La densité théorique du combustible ThUO<sub>2</sub> a été évaluée par [Cohen and Berman, 1966] en fonction de la fraction molaire de ThO<sub>2</sub>, notée  $x_{Th}$ . Les résultats obtenus lors de cette étude font l'objet de la Fig. 1.3 et une régression linéaire sur ces valeurs nous donne une formule pour la densité théorique de ThUO<sub>2</sub> (1.17).

$$d_{[Th_{x_{Th}}U_{(1-x_{Th})}]O_2]} = -0.0095 \ x_{Th} + 10.94 \ (en \ g/cm^3) \tag{1.17}$$



FIG. 1.3: Densité théorique de ThUO<sub>2</sub> en fonction de la fraction massique en <sup>232</sup> Th [Cohen and Berman, 1966]

La densité théorique de l'oxyde ThPu est estimée par la somme pondérée des fractions massiques de thorium et de plutonium. En notant  $x_{Pu}$  la fraction massique de plutonium,  $d_{PuO_2} = 11.46 \ g/cm^3$  la densité théorique de l'oxyde de plutonium et  $d_{ThO_2} = 10.00 \ g/cm^3$ celle de l'oxyde de thorium, la densité du mélange est évaluée par (1.18). La densité pratique est prise à 95% de la densité théorique.

$$d_{ThPuO_2} = x_{Pu}d_{PuO_2} + (1 - x_{Pu})d_{ThO_2} \quad (en \ g/cm^3)$$
(1.18)

<sup>&</sup>lt;sup>5</sup>Le plutonium est désaméricié avant fabrication. La fraction massique  $d'^{241}Am$  correspond à la décroissance du <sup>241</sup>Pu pendant la période de fabrication de MOX neuf.

#### Détermination de la teneur fissile pour un taux de combustion imposé

Pour la comparaison, nous allons déterminer la teneur en fissile correspondant à un taux de combustion au déchargement soit de 60 GWj/t. Pour ce faire, nous avons utilisé la méthode de réactivité linéaire [Reuss, 2003] afin d'estimer la longueur de cycle, connaissant les fuites neutroniques du cœur. Cette méthode offre l'avantage d'être adaptée à ce type de calcul prospectif.

Les hypothèses sous-jacentes à ce modèle sont que :

- 1. le  $k_{infini}^{coeur}$  est égal à la moyenne des  $k_{infini}^{assemblage}$
- 2. l'évolution du  $k_{infini}$  d'un assemblage neuf est linéaire en fonction du taux de combustion
- 3. la géométrie cellule/assemblage est représentative du cœur. Autrement dit, excepté le vieillissement du combustible et l'historique d'irradiation, le cœur est homogène en type d'assemblage et en composition initiale de combustible.

Les cœurs de réacteurs nucléaires possèdent une gestion fractionnée de leurs assemblages, c'est-à-dire qu'à intervalles réguliers, une partie des assemblages, appelée *lot*, est déchargée, remplacée par un lot d'assemblages neufs. Pour cette étude, nous avons choisi de travailler en gestion par quart<sup>6</sup>. En notant 1/n la fraction des assemblages chargés/déchargés et T le taux de combustion au bout d'un cycle, le taux de combustion à l'issue de n cycles est égal à nT. Plus le fractionnement, c'est-à-dire n, augmente, et plus le TCT au déchargement sera élevé. Par contre, on ne gagne pas forcément à augmenter trop n car cela réduit alors la disponibilité de l'installation.

Les fuites d'un cœur REP standard sont évaluées à 2500 pcm environ, tandis que la valeur 3250 pcm correspond aux fuites estimées pour un Réacteur Sous-Modéré (RSM) avec un RM cellule de 0.83. Nous retiendrons cette dernière valeur pour le calcul du TCT, afin d'être conservatif, en sachant que les teneurs fissiles des cas thermiques seront légèrement surestimées. Par conséquent, le TCT cycle T est donné par la formule (1.19) pour un rechargement par quart et 3250 pcm de fuites.

$$\frac{1}{4} \left( k_{infini}(T) + k_{infini}(2T) + k_{infini}(3T) + k_{infini}(4T) \right) = 1.0325$$
(1.19)

Les teneurs massiques en  $^{235}$ U et en plutonium *Pu2035* ont été déterminées pour chacun des RM sélectionnés. Les valeurs sont regroupées dans le Tab. 1.4 et seront utilisées par la suite.

RM	0.64	0.83	1.02	1.69	1.98	2.40
Teneur en $^{235}$ U (%m <sub>NL</sub> )	9.1	9.0	6.7	4.7	4.5	4.4
Teneur en Pu ( $\%m_{NL}$ )	17.1	18.0	17.6	15.4	13.9	11.5

TAB. 1.4: Teneurs massiques en  $^{235}$ U et en plutonium en fonction du RM pour obtenir 4  $\times$  15GWj/t

<sup>&</sup>lt;sup>6</sup>Avec un modèle de réactivité linéaire, c'est-à-dire en écrivant  $k_{infini} = k_0 - \alpha T$ , le taux de combustion au déchargement en fonction du fractionnement *n* et du terme  $M^2B^2$  s'écrit  $T_{FdV} = nT = \frac{2n}{n+1} \frac{k_0 - 1 - M^2B^2}{\alpha}$ . L'application de cette formule à un REP 900 MWé en UOX enrichi à 3.25% montre que le passage d'une gestion tiers à quart et de tiers à cinquième permet de gagner respectivement 7% et 11% sur le TCT au déchargement.

# 1.4 Sélection d'un couple [RM, $C_{Th}$ ] dans le système fissile <sup>235</sup>U

L'objectif est ici de sélectionner un RM ainsi qu'une teneur en thorium dans un combustible de type ( $^{232}$ Th,  $^{238}$ U,  $^{235}$ U)O<sub>2</sub>, au regard du Facteur de Conversion (FC) et de l'impact sur la longueur de cycle. Pour cela, nous allons commencer par découpler l'influence de ces deux paramètres en identifiant tout d'abord le RM optimal en fonction du FC. En effet, le RM détermine en grande partie le spectre neutronique et a donc un effet prépondérant sur le FC. Ensuite, en fonction des RM retenus, nous sélectionnerons la composition de combustible, et donc la teneur en thorium, qui soit le meilleur compromis entre le FIR<sub>éq</sub> et le taux de combustion au déchargement.

A un RM donné, la modification de la composition du combustible par l'introduction de thorium va nécessairement modifier, soit le TCT au déchargement si la teneur fissile initiale est conservée à l'identique, soit la teneur fissile initiale qu'il faudra ajuster pour obtenir le même TCT que le cas de référence sans thorium. L'ajustement de la teneur fissile pour chaque teneur en <sup>232</sup>Th est fastidieux et l'impact du thorium peut être évalué pareillement en étudiant le TCT au déchargement en fonction de la teneur en thorium.

## 1.4.1 Évaluation de l'impact du <sup>232</sup>Th sur le facteur de conversion

Cette étape va nous permettre d'identifier les spectres neutroniques au sein desquels le thorium permet d'accroître le facteur de conversion. Pour cela nous allons étudier les courbes du FC en fonction du RM et de la teneur en  $^{232}$ Th (C<sub>Th</sub>). Ces courbes sont modifiées au cours du temps car le bilan production/consommation de noyaux fissiles est différent entre début et fin de vie.



FIG. 1.4: Facteur de conversion à 0 (traits pleins) et 60 GWj/t (traits pointillés) en fonction du RM et de  $C_{Th}$ 

On remarque sur la Fig. 1.4 que le FC augmente assez fortement entre début et fin de vie. Cela est lié directement à deux phénomènes. Tout d'abord, la masse de noyaux fissiles diminue avec le TCT. La fraction massique d'isotope fissile, aux sections efficaces d'absorption élevées, a un impact direct et significatif sur le FC. En fin de vie, une part importante de l'<sup>235</sup>U a été consommé et la production de plutonium fissile à partir de l'<sup>238</sup>U ne permet pas de compenser cette consommation. Par conséquent le taux de capture par les noyaux fertiles augmente avec le taux de combustion principalement grâce à l'augmentation relative des captures fertiles du  $^{232}$ Th, de l' $^{238}$ U et du  $^{240}$ Pu .

Cette figure montre également que l'ajout de thorium permet d'accroître le FC en spectre thermique. En début de vie, les courbes correspondant aux RM les plus faibles, et donc en théorie les plus favorables à produire un FC élevé, sont effectivement au-dessus de celles correspondant à des spectres plus thermiques. Cependant, en fin de vie, et pour des fractions de thorium élevées, cette tendance s'inverse, et le FC des cas modérés ou sur-modérés dépasse alors celui des cas sous-modérés. Cela démontre l'importance du domaine thermique pour le  $^{232}$ Th et l'efficacité de son fissile fils.

Nous complétons ces observations avec l'étude du rapport d'inventaire fissile, FIR, et de son homologue modifié des poids en réactivité, le  $\text{FIR}_{\acute{eq}}$ .



FIG. 1.5: FIR et  $FIR_{\acute{eq}}$  en <sup>235</sup> U en fonction du RM et de  $C_{Th}$  à 60 GWj/t. La courbe rouge en trait épais délimite les configurations dont la composition initiale fait appel à de l'uranium enrichi en dessous de la limite de non-prolifération à 20%m<sub>NL</sub>

La Fig. 1.5a montre que le FIR obtenu, quel que soit le rapport de modération, est toujours inférieur à 0.8. Le FIR peut s'écrire en faisant apparaître un  $\Delta m$ , correspondant à une valeur intégrée sur le temps de la variation de masse fissile :

$$FIR(t) = \frac{m_{fiss}(t) - m_{fiss}(t_0)}{m_{fiss}(t_0)} + 1 = \frac{1}{m_{fiss}(t_0)} \int_{t_0}^t \frac{dm_{fiss}(u)}{du} du + 1$$
(1.20)

Où  $m_{fiss}(t)$  est la masse de noyaux fissiles à l'instant t, et  $t_0$  un temps de référence (début de vie par exemple). Le sens de variation de la fonction FIR découle du signe de sa dérivée, soit du signe du terme (1.21) (cette formulation est valable pour les "grands temps" afin de pouvoir assimiler la production d'<sup>233</sup>U au taux de capture fertile et non à la décroissance  $\beta$  du <sup>233</sup>Pa).

$$\frac{dm_{fiss}(u)}{du} \approx \tau_{fert}^{capt}(u) - \tau_{fiss}^{abs}(u) = \tau_{fiss}^{abs}(u) \left[FC(u) - 1\right]$$
(1.21)

Où  $\tau_{fiss}^{abs}$  est le taux d'absorption des noyaux fissiles et  $\tau_{fert}^{capt}$  le taux de capture des noyaux fertiles. Par conséquent le sens de variation du FIR est déterminé par le signe de (FC-1). Ainsi, bien que le FC augmente significativement avec le taux de combustion (Fig. 1.4), il demeure inférieur à l'unité et le FIR diminue avec le temps. Toutefois, dans le cas des rapports de

modération de réacteurs thermiques standards (c'est-à-dire RM  $\approx 2$ ), l'ajout de thorium permet d'augmenter significativement le FC et le FIR. On observe ici les bénéfices conjugués d'un taux de capture thermique du <sup>232</sup>Th plus élevé que dans le cas du support <sup>238</sup>U, et d'un taux de fission de l'<sup>235</sup>U légèrement plus faible.

Ainsi, le passage d'un support <sup>238</sup>U à un support <sup>232</sup>Th en spectre thermique conduit à un meilleur bilan fissile au déchargement (Fig. 1.6). Cette conclusion est d'autant plus flagrante si l'on compare les configurations à l'aide du FIR<sub>éq</sub> en atomes d'<sup>235</sup>U. Les résultats après un temps de refroidissement de 5 ans sont illustrés par la Fig. 1.5b. Cette figure permet de quantifier l'importance de la stabilité de l'<sup>233</sup>U comparé au <sup>241</sup>Pu, malgré des facteurs d'équivalence du <sup>239</sup>Pu et du <sup>241</sup>Pu supérieurs à celui de l'<sup>233</sup>U pour ce rapport de modération. Les valeurs obtenues en absolu sont à nuancer, ainsi qu'il en a été fait la remarque au paragraphe 1.2.2. En effet, ces courbes ne signifient en aucun cas que les concepts dont le FIR<sub>éq</sub> est supérieur à l'unité sont surgénérateurs, tout simplement car les facteurs d'équivalence utilisés pour la pondération des masses ne tiennent pas compte de la normalisation au support fertile. Cependant, à un RM donné, les compositions isotopiques sont assez faiblement modifiées pour que les facteurs d'équivalence ne soient pas impactés. Par ailleurs, la substitution de l'<sup>238</sup>U par du <sup>232</sup>Th est transparente de ce point de vue car leurs facteurs d'équivalence sont similaires ( $\omega^{^{232}Th/^{235}U} = -0.05$  et  $\omega^{^{238}U/^{235}U} = -0.09$ ).



FIG. 1.6: Masses par isotope fissile à 60 GWj/t en fonction de  $C_{Th}$  (RM=1.69,  $^{235}U/(U+Th) = 4.7\%m_{NL}$ )

En outre, il faut prendre en considération le besoin en uranium naturel à la fabrication du combustible. Le besoin en uranium naturel pour une tonne d'uranium enrichi s'exprime par :

$$M_{U_{nat}} = \frac{e_{235}U - \tau_{rejet}}{e_{U_{nat}} - \tau_{rejet}} \quad (en \ t) \tag{1.22}$$

 $\tau_{rejet}$  est le taux de rejet de l'uranium (0.25 %)

Où  $e_{U_{nat}}$  est la teneur de l'uranium naturel en isotope $^{235}\mathrm{U}$  (0.71 %)

 $e_{235U}$  est l'enrichissement souhaité (en %).

Pour illustration, nous donnons ici le résultat d'un rapide calcul du besoin en uranium naturel entre les cas suivant :

1. RM = 0.83,  $C_{Th} = 50\%$ , Teneur en <sup>235</sup>U = 9.0 % $m_{NL}$  [FIR = 0.73]

2. RM = 1.98, C<sub>Th</sub> = 70%, Teneur en  $^{235}$ U = 4.5 % $m_{NL}$  [FIR = 0.50]

Pour le cas 1, le besoin en uranium naturel à la fabrication est de 17.5 t par tonne de combustible tandis qu'il n'est que de 9.5 t par tonne d'uranium enrichi dans le cas 2. On constate que pour un gain de 0.23 sur le FIR entre le cas 2 et le cas 1, le besoin en  $U_{nat}$  double.

En conclusion, le thorium permet d'améliorer les performances de conversion en spectre thermique, comparé à un support en uranium. D'autre part, bien que le rapport d'inventaire fissile soit supérieur en sous-modérant et en durcissant le spectre, cette solution ne sera pas retenue, tout simplement car elle constitue une "mauvaise utilisation" de l'<sup>235</sup>U.

L'objectif est l'économie des ressources naturelles. Or en spectre épithermique, le facteur de reproduction de l'<sup>235</sup>U est significativement plus faible qu'en spectre thermique, et très inférieur à celui des autres noyaux fissiles. De plus, en durcissant le spectre, il est nécessaire d'augmenter l'inventaire initial en fissile pour contrebalancer l'augmentation du taux de capture résonnante. Ainsi, en sous-modérant le FC demeure inférieur aux FC visés, tandis que le besoin en uranium naturel augmente considérablement à l'étape de l'enrichissement. Ces arguments nous conduisent à ne retenir l'utilisation du thorium dans le système fissile <sup>235</sup>U qu'en spectre thermique.

#### 1.4.2 Évaluation de l'influence de <sup>232</sup>Th sur le TCT au déchargement

Pour les RM sélectionnés, nous allons à présent évaluer l'impact du <sup>232</sup>Th sur le TCT au déchargement. En effet, cet isotope et ses descendants, <sup>233</sup>Pa et <sup>233</sup>U, modifient de manière significative le  $k_{infini}$  par rapport aux combustibles de référence. Pour chaque RM, la concentration atomique en fissile est celle correspondant au cas de référence sans thorium. Ainsi, on peut parvenir à des configurations de combustibles de type (<sup>232</sup>Th, <sup>235</sup>U)O<sub>2</sub>, ce qui n'est pas réaliste en pratique. Cette valeur, théorique, permet seulement de fixer les idées et de voir les effets neutroniques. Le modèle de réactivité linéaire a été employé afin d'estimer le TCT<sub>cycle</sub>. Les courbes obtenues font l'objet de la Fig. 1.7 suivante.



FIG. 1.7: TCT cycle atteint en fonction du RM et de  $C_{Th}$ 

Le taux de combustion cycle est diminué par la substitution d'<sup>238</sup>U en <sup>232</sup>Th. Les supports mixtes <sup>232</sup>Th-<sup>238</sup>U, en accroissant le taux de capture résonnante, empoisonnent le cœur. Cet effet, bénéfique pour la conversion, se traduit par une pénalité inévitable sur la longueur de cycle (jusqu'à 3000 MWj/t sur le taux de combustion cycle, soit environ 100 jepp). Les configurations les moins pénalisantes pour la longueur de cycle sont celles où le support a été entièrement substitué par du thorium. Cependant, en restant dans les limites du traité de non-prolifération, l'enrichissement de l'uranium naturel en isotope <sup>235</sup>U doit demeurer inférieur à 20%. Ceci indique que pour obtenir une teneur massique en <sup>235</sup>U de 5% $m_{NL}$  dans le combustible, il faut au minimum 25% $m_{NL}$  d'uranium enrichi à 20%, ce qui limite la fraction massique de thorium à 75% $m_{NL}$ , et à cette teneur, le TCT<sub>cycle</sub> est de 12500 MWj/t.

La décomposition du  $k_{infini}$  en six facteurs permet de comprendre physiquement l'impact de la substitution progressive de l'<sup>238</sup>U par du <sup>232</sup>Th. La Fig. 1.8 montre que les deux facteurs principalement modifiés par le thorium sont le facteur anti-trappe p et le facteur de reproduction du combustible  $\eta$ . On distingue deux phases : la première (pour  $C_{Th} < 50\%$ ) dominée par les variations de  $\eta$  et la seconde (pour  $C_{Th} > 50\%$ ), dominée par celles de p.



FIG. 1.8: Écarts en réactivité du  $k_{infini}$  et des facteurs  $\epsilon_{pair}$ ,  $\epsilon_{impair}$ , p et  $\eta$  en fonction de  $C_{Th}$ , par rapport au cas de référence sans thorium. Les écarts en réactivité sur le facteur F sont calculés par  $\Delta F/F = \ln(F/F_{ref})$  en pcm. Ces résultats sont donnés pour un RM de 1.69, à 0 MWj/t, et à une fraction massique d<sup>235</sup> U fixée 4.5%m<sub>NL</sub>

Tant que le thorium est introduit en faible proportion, il permet d'accroître le taux de capture fertile grâce à la complémentarité de ses résonances et de celles de l'<sup>238</sup>U. En faible concentration atomique, son autoprotection est réduite et sa section efficace effective importante. Ces deux effets expliquent que le facteur anti-trappe p soit inférieur à celui du combustible uranium pur.

Cependant, lorsque la concentration atomique en  $^{232}$ Th augmente, ce sont les différences des intégrales de résonance de l' $^{238}$ U et du  $^{232}$ Th qui expliquent l'augmentation forte du facteur anti-trappe. En effet, le Tab. 2.1 (voir page 24) indique que l'intégrale de résonance de l' $^{238}$ U est environ trois fois supérieure à celle du  $^{232}$ Th. Par conséquent, le facteur anti-trappe évalué lorsque le support est entièrement composé de thorium est 20000 pcm au-dessus de la valeur sans thorium.

En ce qui concerne le facteur de reproduction  $\eta$ , on remarque sur la Fig. 1.8 que celui-ci décroît presque linéairement avec C<sub>Th</sub>. Le facteur  $\eta$  du combustible ThUO<sub>2</sub> s'écrit, de manière approchée, selon la formule (1.23) (le combustible est réduit aux seuls noyaux <sup>235</sup>U, <sup>238</sup>U et <sup>232</sup>Th, et les productions de neutrons par fission du <sup>232</sup>Th sont négligées). On note avec un indice  $i \in \{2, 5, 8\}$  les noyaux <sup>232</sup>Th, <sup>235</sup>U et <sup>238</sup>U. Cette formule ne fait plus intervenir que les sections macroscopiques de production ( $N_i\nu_i\sigma_i^{fis,G^2}$ ) et d'absorption ( $N_i\sigma_i^{abs,G^2}$ ) dans le groupe thermique (E<0.625 eV)<sup>7</sup>.

$$\eta_{comb} \approx \frac{N_5 \nu_5 \sigma_5^{fis,G2} + N_8 \nu_8 \sigma_8^{fis,G2}}{N_5 \sigma_5^{abs,G2} + N_8 \sigma_8^{abs,G2} + N_2 \sigma_2^{abs,G2}}$$
(1.23)

Les variations du facteur  $\eta$  résultent principalement des rapports de densités atomiques.  $N_5$  varie très légèrement (effet de la densité plus faible de l'oxyde de thorium).  $N_8$  et  $N_2$  dépendent de  $C_{Th}$  (qui varie de 0 à 100%). Au fur et à mesure que  $N_2$  augmente, le terme de production de l'<sup>238</sup>U au numérateur diminue, tandis que la section macroscopique de capture fertile ( $N_8\sigma_8^{abs,G2} + N_2\sigma_2^{abs,G2}$ ) croît grâce à la section de capture thermique du <sup>232</sup>Th, supérieure à celle de l'<sup>238</sup>U.

#### 1.4.3 Évaluation de l'effet protactinium et de la puissance sur le FIR

L'effet protactinium induit une chute de la réactivité en début de vie à cause du délai d'apparition de l'<sup>233</sup>U. Pour le cas particulier correspondant à un rapport de modération RM=1.69, la saturation de la concentration atomique en <sup>233</sup>Pa dans le combustible est observée entre 4 et 5 GWj/t (Fig. 1.9). Le taux d'absorption de ce noyau arrive lui aussi à saturation, et la Fig. 1.10 montre qu'au maximum ce taux d'absorption parasite ne dépasse pas 1% du taux d'absorption total dans le combustible. Pour une composition de combustible où la fraction de <sup>232</sup>Th est maximale tout en restant dans les limites de la non-prolifération, c'est-à-dire un combustible composé de <sup>232</sup>Th, d'<sup>238</sup>U et <sup>235</sup>U dans les proportions respectives 75, 20 et 5% $m_{NL}$ , le taux d'absorption du <sup>233</sup>Pa est de 0.4% environ à la saturation.



FIG. 1.9: Saturation de la concentration atomique en  $^{233}$ Pa (RM=1.69,  $m_{235_{U}}=4.7\% m_{NL}$ )

 $<sup>^{7}</sup>$ La coupure thermique de 0.625 eV se situe entre la coupure cadmium à 0.55 eV et la première résonance de capture du  $^{240}$ Pu centrée sur 1 eV.



FIG. 1.10: Taux d'absorption du <sup>233</sup>Pa ramené au taux d'absorption total du combustible, à saturation du <sup>233</sup>Pa (RM=1.69). Les points en rouge correspondent à des variations de la puissance spécifique de  $\pm$  10% autour de sa valeur nominale

Le taux de capture est proportionnel au niveau de flux imposé dans le combustible. Par conséquent nous avons cherché à évaluer l'impact qu'aurait une variation modérée de la puissance de  $\pm 10\%$  autour de sa valeur nominale. Sachant que l'effet protactinium sera maximal pour une teneur en <sup>232</sup>Th maximale, les résultats du calcul proche de la limite supérieure par rapport au critère de non-prolifération, C<sub>Th</sub>=70%, ont été ajoutés sur la Fig. 1.10 (courbe rouge). Les variations du taux d'absorption du <sup>233</sup>Pa sont également de l'ordre de  $\pm 10\%$  et ont un impact global négligeable sur le FIR.

En conclusion de cette étude dans le système fissile <sup>235</sup> U, le thorium permet d'améliorer le facteur de conversion comparativement à un combustible UOX standard, en spectre thermique, lorsque sa fraction massique est maximale (dans les limites imposées par les critères de nonprolifération sur l'enrichissement de l'uranium). Dans ce cas, le FIR évalué reste faible (FIR = 0.5). Cependant au regard du critère FIR<sub>éq</sub>, le bilan fissile au déchargement est équivalent à 90% du bilan fissile au chargement en atomes d'<sup>235</sup> U-équivalents. La longueur de cycle est impactée de l'ordre de 50 à 100 jepp en passant à un support majoritairement composé de thorium. La teneur fissile au chargement devra être légèrement augmentée afin de compenser l'effet "poison" du thorium. Enfin, l'effet protactinium a été évalué et les résultats montrent qu'il parvient à saturation à 5 GWj/t environ et qu'il ne pèse que 0.4% du taux d'absorption total.

# 1.5 Sélection d'un couple $[RM, C_{Th}]$ dans le système fissile Pu

La spécificité de la France en matière de gestion de combustible irradié, est de retraiter son plutonium afin de le valoriser en réacteur au sein de combustibles MOX. L'utilisation de ce plutonium permet déjà d'accroître le taux d'utilisation de l'uranium naturel par l'intermédiaire du support en uranium appauvri<sup>8</sup>. En outre, le plutonium est plus efficace que l'<sup>235</sup>U en spectre épithermique du fait de son facteur de reproduction ( $\eta$ ) supérieur.

<sup>&</sup>lt;sup>8</sup>L'uranium appauvri est issu du processus d'enrichissement de l'uranium. Sa teneur en fissile <sup>235</sup>U est de 0.20 à  $0.25\%m_{NL}$  en fonction du taux de rejet de l'usine. La fabrication de combustible MOX consiste en un mélange des poudre d'uranium appauvri (U<sub>app</sub>) et de plutonium issu du retraitement de combustibles UOX irradiés. Ce combustible permet d'économiser 25% de l'uranium naturel.

#### 1.5.1 Évaluation de l'impact du <sup>232</sup>Th sur le facteur de conversion

La même démarche que pour le système fissile  $^{235}$ U a été suivie pour l'étude du système fissile plutonium. Tout d'abord, les teneurs massiques en plutonium des combustibles de référence ont été calculées, de façon à ce que le taux de combustion au déchargement de ces combustibles soit de 60 GWj/t.



FIG. 1.11: Facteur de conversion à 0 et 60 GWj/t en fonction du RM et de  $C_{Th}$ 

Les facteurs de conversion par couple [RM,  $C_{Th}$ ] tracés à 0 et 60 GWj/t sur la Fig. 1.11 sont plus élevés que dans le système fissile <sup>235</sup>U, et largement supérieurs à 0.8 dans le cas des faibles rapports de modération. Les FC élevés sont la conséquence de l'utilisation du plutonium. Le vecteur isotopique utilisé pour les études correspond à un plutonium dégradé ne contenant que 56% d'isotopes fissiles, mais 30% de <sup>240</sup>Pu (qui contribue au FC par ses captures radiatives qui conduisent à la formation de <sup>241</sup>Pu). Par conséquent, l'inventaire initial en plutonium sera plus élevé que pour les combustibles MOX actuels de REP standard. En REP, la teneur usuelle en Pu est de l'ordre de 7% $m_{NL}$  tandis qu'elle s'élève de 11 à 18% $m_{NL}$  dans cette étude, selon le rapport de modération. La forte teneur en plutonium concourt à durcir encore plus le spectre neutronique. Ces deux effets, diminution du RM, et proportion élevée de <sup>240</sup>Pu d'une part, et de <sup>239</sup>Pu et <sup>241</sup>Pu aux facteurs  $\eta$  élevés d'autre part, contribuent à améliorer significativement le FC comparativement au système fissile <sup>235</sup>U étudié dans la section précédente.

Quel que soit le RM, ce sont les configurations à support mixte mêlant  $^{238}$ U et  $^{232}$ Th qui maximisent le FC, à l'identique du système fissile  $^{235}$ U. D'une part, ces deux noyaux possèdent une répartition énergétique différente de leurs résonances de capture, et d'autre part la présence simultanée de ces deux corps réduit leur autoprotection. Ces deux effets concourent à accroître la probabilité globale de capture résonante, et donc le FC.

Enfin, les courbes de la Fig. 1.12 du rapport d'inventaire fissile (FIR), et du FIR pondéré par les poids en réactivité (FIR<sub>éq</sub>) conduisent à **sélectionner les faibles rapports de modération** afin d'obtenir un FIR supérieur à 0.8. Contrairement à l'<sup>235</sup>U on privilégiera les spectres épithermiques/rapides car les spectres thermiques conduisent à une valeur de rapport  $\sigma_{\text{capture}} / \sigma_{\text{fission}}(\alpha)$  moins satisfaisante pour les isotopes du plutonium.


FIG. 1.12: FIR et FIR<sub>éq</sub> en  $^{235}$ U en fonction du RM et de C<sub>Th</sub> à 60 GWj/t

# 1.5.2 Évaluation de l'influence du <sup>232</sup>Th sur le TCT au déchargement

Le facteur de conversion des cas à support mixte est bien plus élevé que précédemment avec un FC supérieur à 0.8 tout au long de l'irradiation, ce qui a une incidence sur la réactivité. En particulier, les compositions qui maximisent le FC, avec  $C_{Th}$  de l'ordre de 50 à 70% ne permettent plus d'atteindre la criticité en début de vie, comme le montre la Fig. 1.13.



FIG. 1.13: Taux de combustion cycle atteint en fonction du RM et de  $C_{Th}$ 

Une décomposition phénoménologique en six facteurs du bilan neutronique en début de vie (Fig. 1.14) met en évidence que l'introduction de thorium impacte essentiellement les facteurs p et  $\epsilon$ . Le facteur  $\epsilon_{\text{pair}}$  de fission rapide des actinides pairs diminue avec l'ajout de thorium du fait de la section de fission rapide plus faible que celle de l'<sup>238</sup>U. Le facteur anti-trappe est plus impacté pour des matrices mixtes <sup>232</sup>Th/<sup>238</sup>U. Par rapport au système fissile <sup>235</sup>U où le facteur p présentait un minimum pour C<sub>Th</sub> = 10%, l'emplacement du minimum est déplacé vers C<sub>Th</sub> = 30%. Cette valeur correspondant au minimum de p est directement liée au rapport des intégrales de résonances (voir Tab. 2.1 page 24).



FIG. 1.14: Écarts en réactivité sur chacun des six facteurs en fonction de  $C_{Th}$ , par rapport au cas de référence sans thorium. Les écarts en réactivité sur le facteur F sont calculés par  $\Delta F/F = \ln(F/F_{ref})$  en pcm. Ces résultats sont donnés pour un RM de 0.83 et une fraction massique de plutonium fixée, à un taux de combustion de 0 MWj/t

Le facteur anti-trappe peut s'écrire de manière approchée par (1.24), où  $N_0$  est la concentration atomique en noyaux lourds résonnants,  $I_{eff}$  l'intégrale de résonance effective, et le terme  $(\xi \Sigma_s)_m$  le pouvoir modérateur des noyaux diffusants (l'eau).

$$p \approx exp\left[-\frac{N_0 I_{eff}}{(\xi \Sigma_s)_m}\right] \tag{1.24}$$

Excepté la composition du support <sup>232</sup>Th-<sup>238</sup>U, et toutes choses étant égales par ailleurs, le facteur p est fonction de l'intégrale de résonance effective  $I_{eff}$ , qui n'est rien d'autre que la valeur intégrée sur tout le domaine des résonances de la section efficace effective. La section efficace effective du combustible,  $\sigma_{c,eff}(u)$ , fonction de la léthargie, correspond à la section efficace d'absorption du combustible, pondérée par le flux de structure fine (qui traduit le creusement du flux neutronique à l'endroit des résonances). Dans le cas du combustible mixte étudié, les trois principaux noyaux résonnants que sont l'<sup>238</sup>U, le <sup>232</sup>Th, et le <sup>240</sup>Pu contribuent à l'intégrale effective, ce qui diminue le facteur anti-trappe. Corrélativement, la diminution du facteur anti-trappe indique que la proportion de neutrons qui parviennent à l'énergie thermique diminue. La chute du flux thermique donne plus d'importance au flux rapide et aux fissions rapides des actinides impairs principalement.

A l'inverse, lorsque le support est majoritairement constitué de <sup>232</sup>Th, le facteur anti-trappe augmente du fait de la diminution de la contribution de l'<sup>238</sup>U à l'intégrale effective, et le flux thermique augmente, donnant ainsi plus de poids aux captures et fissions thermiques. En réalité, ce n'est pas tellement que le nombre de fissions rapides des actinides impairs diminue, mais plutôt que le nombre de fissions thermiques augmente. En effet, le facteur  $\epsilon_{impair}$  quantifie la production de neutron par absorption apportée par les *fissions des actinides impairs*, par rapport à la production de neutron par absorption dues uniquement aux *fissions thermiques*. Ainsi, le taux de fission rapide des noyaux impairs est peu modifié, alors que le taux de fission thermique augmente. Ce phénomène peut s'observer en comparant la répartition des fissions des noyaux impairs (principalement <sup>239</sup>Pu et <sup>241</sup>Pu en début de vie) entre les combustibles à support U<sub>app</sub> et <sup>232</sup>Th, par domaine d'énergie Tab. 1.5. Les taux de fissions sont normalisés à 1000 fissions. On remarque que le nombre de fissions pour des neutrons incidents d'énergie supérieure à 9 keV diminue (-38 / 1000) et que ces fissions sont reportées sur le groupes thermique.

Energie sup.	$0.625~{\rm eV}$	$9 {\rm ~keV}$	$20 { m MeV}$	
Nombre de fissions	<b>236</b> / 280	<b>567</b> / 561	<b>197</b> / 159	

TAB. 1.5: Répartition des taux de fission des actinides impairs par groupe d'énergie, normalisés à 1000 réactions de fissions. Les valeurs en rouge correspondent à un support en <sup>238</sup> U et les valeurs en vert à un support <sup>232</sup> Th (RM=0.83, TCT=0MWj/t)

Du fait du très fort impact du <sup>232</sup>Th sur le TCT au déchargement pour les configurations mixtes, la plage de teneurs en <sup>232</sup>Th envisageables est très limitée. Soit le <sup>232</sup>Th est utilisé en très faible quantité, c'est-à-dire de l'ordre de 10% au maximum, alors la pénalité sur le TCT au déchargement est limitée, tout comme le gain sur le FC. Un faible *dopage* du FC est réalisé mais sans réel intérêt sur l'objectif principal qui est l'économie des ressources naturelles et la production d'<sup>233</sup>U. Dans le second cas, le <sup>232</sup>Th est entièrement substitué à l'<sup>238</sup>U, ce qui implique également une faible pénalité sur le taux de combustion au déchargement ainsi qu'un FIR comparable à celui du cas sans thorium. L'avantage réside en un FIR<sub>éq</sub> amélioré grâce à l'<sup>233</sup>U. En conclusion, on retiendra le rapport de modération cellule RM = 0.83 qui maximise le FC (et donc le rapport d'inventaire fissile), tout en étant acceptable du point de vue de la thermohydraulique.

#### 1.5.3 Évaluation de l'effet protactinium et de la puissance sur le FIR

L'effet protactinium a été évalué dans le cas du  $\text{RM}_{cellule}$  de 0.83, en fonction de la proportion de thorium dans le support. La teneur massique en plutonium est conservée constante à  $18\% m_{NL}$ . Les résultats sont reportés sur les Fig. 1.15a et 1.15b.



FIG. 1.15: Saturation de la densité atomique en <sup>233</sup>Pa et taux d'absorption à la saturation, ramené au taux d'absorption total (RM=0.83, C<sub>Th</sub>=100%)

La saturation de la concentration atomique en  $^{233}$ Pa est observée aux environs de 5000 MWj/t. Le taux d'absorption du  $^{233}$ Pa ramené au taux d'absorption total n'excède pas 0.4 %. Cet empoisonnement  $^{233}$ Pa est l'ordre de grandeur de la valeur calculée dans le système fissile  $^{235}$ U.

Enfin, une modification de  $\pm$  10% sur la puissance spécifique du combustible modifie le taux d'absorption du <sup>233</sup>Pa de  $\pm$  10% et l'impact sur le FIR s'élève à présent à  $\pm$  0.3% (une augmentation de la puissance va dans le sens d'une diminution du FIR).

# 1.6 Détermination du paramètre Fraction Fissile Régénératrice

Le FC est défini comme le rapport entre taux de capture fertile  $N^{fertile}\sigma_{fertile}^{capt}\Phi$  et taux d'absorption fissile  $N^{fissile}\sigma_{fissile}^{abs}\Phi$ . Pour une géométrie et une puissance spécifique données, le FC dépend du rapport entre  $\sigma_{capture}^{fertile}N^{fertile}$  et  $\sigma_{absorption}^{fissile}N^{fissile}$ . Ainsi, connaissant les sections efficaces effectives, il existe théoriquement un ratio  $N^{fissile}/N^{fertile}$  qui permette d'obtenir un facteur de conversion égal à l'unité. Dans les faits, la modification de la teneur fissile modifie le spectre neutronique, et donc les sections efficaces condensées sur le spectre car plus ou moins d'importance est donnée aux domaines thermique/épithermique.

Cependant il existe un véritable intérêt à identifier les variations du FC en fonction du ratio  $N^{fissile}/N^{fertile}$ , en particulier dans un cœur mixte comprenant des zones fertiles et fissiles où la gestion des pics de puissance entre ces zones est à étudier avec soin. L'idée pourrait être ici, au moment de l'étude du multi-recyclage de l'<sup>233</sup>U, de fournir un élément de décision et de réflexion : par exemple l'introduction d'une faible fraction de fissile au sein d'assemblages fertiles permet de réduire fortement les remontées de puissance à l'interface. Cependant, la recherche de l'aplatissement de la nappe de puissance n'est pas le seul critère à prendre en compte, et il peut être intéressant de chercher à ce que la consommation d'<sup>233</sup>U n'excède pas sa production, dans ces zones "fertiles" particulières.

L'inventaire fissile d'un système "fertile père/fissile fils" qui permet d'avoir FC = 1 est noté Fraction Fissile Régénératrice (FFR). Comme mentionné précédemment, cet élément sera principalement utilisé au moment de l'étude du multirecyclage des ressources fissiles (plutonium et <sup>233</sup>U). Par conséquent deux combustibles simplifiés vont être étudiés : un combustible <sup>232</sup>Th<sup>233</sup>UO<sub>2</sub>, et un combustible UPuO<sub>2</sub>.

### 1.6.1 Détermination de la FFR du combustible $^{232}$ Th / $^{233}$ U

En simplifiant l'écriture du FC (formule (1.4), page 13) dans le cas d'un combustible constitué uniquement de <sup>232</sup>Th et d'<sup>233</sup>U, la formulation (1.25) est obtenue. Dans cette formule,  $N^{^{233}U}$  et  $N^{^{232}Th}$  sont les fractions atomiques des l'isotopes <sup>233</sup>U et <sup>232</sup>Th, et  $\sigma_{capture}^{^{232}Th}$ ,  $\sigma_{absorption}^{^{233}U}$  sont les sections efficaces à un groupe d'énergie de capture du <sup>232</sup>Th, et d'absorption de l'<sup>233</sup>U.

$$FC_{ThU} = \frac{N^{232}Th}{N^{233}U} \sigma_{capture}^{232} (1.25)$$

Soit  $e_{233U}$ , l'enrichissement en noyaux  ${}^{233}$ U, il est possible d'exprimer le rapport  $N^{233U}/N^{232Th}$  en fonction de  $e_{233U}$ :

$$e_{233U} = \frac{N^{233U}}{N^{233U} + N^{232Th}} \Leftrightarrow \frac{N^{233U}}{N^{232Th}} = \frac{e_{233U}}{1 - e_{233U}}$$
(1.26)

Le  $FC_{ThU}$  est donc une fonction de l'enrichissement en <sup>233</sup>U,  $e_{233U}$ . En injectant (1.26) dans (1.25) et en écrivant  $FC_{ThU}(e_{233U}) = 1$ , on obtient l'expression de l'enrichissement en <sup>233</sup>U à partir des seules sections microscopiques à 1 groupe. Cet enrichissement fissile particulier correspond à la FFR du combustible <sup>232</sup>Th<sup>233</sup>UO<sub>2</sub>.

$$e_{233U} = \frac{\sigma_{capture}^{232Th}}{\sigma_{absorption}^{233U} + \sigma_{capture}^{232Th}}$$
(1.27)

On se heurte ici à la même difficulté que pour la définition d'un jeu de facteurs d'équivalence en réactivité. La fraction atomique recherchée dépend des sections efficaces microscopiques des deux noyaux lourds résonnants que sont <sup>232</sup>Th et <sup>233</sup>U. Dans un combustible aussi simplifié que celui proposé (composé de <sup>232</sup>Th et d'<sup>233</sup>U), les sections efficaces effectives condensées à un groupe d'énergie dépendent du spectre neutronique. Or, à RM fixé, le spectre neutronique dépend de l'enrichissement en noyaux fissiles : plus l'enrichissement en noyaux fissiles (aux fortes sections efficaces thermiques) diminue, et plus le flux thermique augmente, donnant ainsi plus de poids à la partie thermique des sections efficaces, lors de la condensation. Par exemple la section d'absorption de l'<sup>233</sup>U ( $\sigma_{absorption}^{233}$ ) pour  $e_{233U} = 1 \ \% m_{NL}$  vaut 78 barns, tandis que pour  $e_{233U} = 3 \ \% m_{NL}, \ \sigma_{absorption}^{233U}$  vaut 43 barns.

Un rapide calcul permet d'évaluer la FFR( $^{232}$ Th/ $^{233}$ U) à **2.0** % $m_{NL}$ . Cette valeur est indicative mais imprécise puisqu'elle ne tient pas compte de l'évolution des sections 1 groupe avec le taux de combustion, ni des autres corps absorbants qui peuvent se former en cours d'irradiation. Cependant on remarque que l'ordre de grandeur de l'enrichissement en  $^{233}$ U calculé ainsi très simplement est en accord avec le résultat de calculs assemblages. La Fig. 1.16 compare l'évolution des facteurs de conversion partiels (c'est-à-dire ici le facteur de conversion  $^{232}$ Th/ $^{233}$ U, comme formulé en (1.25)) avec le taux de combustion, en fonction de l'enrichissement initial en  $^{233}$ U. Cette courbe, associée à l'évolution de la fraction massique d' $^{233}$ U, met en évidence d'une part que la valeur calculée de 2% $m_{NL}$  correspond effectivement à un FC constant et égal à l'unité (légèrement supérieur en fait), et d'autre part que les FC (et les fractions massiques d' $^{233}$ U) ont tendance à converger vers ce "point fixe".

#### 1.6.2 Détermination de la FFR du combustible U/Pu

Dans ce paragraphe nous considérons cette fois le combustible simplifié de type UPuO<sub>2</sub> constitué des noyaux principaux (pour la conversion) <sup>238</sup>U, <sup>240</sup>Pu , <sup>239</sup>Pu et <sup>241</sup>Pu. Le facteur de conversion partiel U/Pu qui est associé à ce combustible simplifié est décrit par :

$$FC_{UPu} = \frac{N^{238U} \sigma_{capture}^{238U} + N^{240Pu} \sigma_{capture}^{240Pu}}{N^{239Pu} \sigma_{absorption}^{239Pu} + N^{241Pu} \sigma_{absorption}^{241Pu}}$$
(1.28)



FIG. 1.16: Facteur de Conversion partiel<sup>232</sup> Th/<sup>233</sup> Uet enrichissement en <sup>233</sup> U en fonction du taux de combustion et de l'enrichissement en <sup>233</sup> U initial (calcul assemblage APOLLO2, RM=0.83)

Le vecteur plutonium simplifié est constitué des isotopes <sup>240</sup>Pu, <sup>239</sup>Pu et <sup>241</sup>Pu, associés chacun à une fraction isotopique  $n_{240}P_u$ ,  $n_{239}P_u$  et  $n_{241}P_u$ , qui vérifient la relation (1.29). De cette manière, les concentrations atomiques de chaque isotope du plutonium s'expriment simplement à partir de la concentration atomique en plutonium, selon la relation (1.30).

$$n_{240}P_u + n_{239}P_u + n_{241}P_u = 1 \tag{1.29}$$

$$N^{2iPu} = n_{2iPu} N^{Pu} \quad avec \quad i = \{39, 40, 41\}$$
(1.30)

Ainsi, en injectant (1.30) dans (1.28) pour  $FC_{UPu} = 1$ , et en faisant apparaître l'enrichissement en plutonium  $e_{Pu}$  (défini par  $e_{Pu} = N^{Pu}/(N^U + N^{Pu}))$ , on aboutit sur la relation (1.31), qui ne dépend que des fractions isotopiques du plutonium et des sections efficaces effectives condensées à 1 groupe d'énergie.

$$e_{Pu} = \frac{\sigma_{capture}^{238}U}{n_{239}P_{u}\sigma_{absorption}^{239}P_{u} + n_{241}P_{u}\sigma_{absorption}^{241}P_{u} - n_{240}P_{u}\sigma_{capture}^{240}P_{u} + \sigma_{capture}^{238}U}$$
(1.31)

En prenant un vecteur plutonium simplifié ayant pour composition isotopique : 56.38% de  $^{239}$ Pu, 35.13% de  $^{240}$ Pu et 8.49% de  $^{241}$ Pu, l'enrichissement en plutonium correspondant à la FFR de ce combustible est calculé à **8.6%**, à partir de la formule (1.31). La Fig. 1.17, sur laquelle sont portées les courbes du FC partiel U/Pu ainsi que l'évolution de l'enrichissement en plutonium en fonction du taux de combustion, permet de vérifier la valeur de 8.6%. Dans le cas du combustible à base de plutonium, la FFR est plus délicate à estimer du fait des doubles conversions  $^{238}$ U/ $^{239}$ Pu et  $^{240}$ Pu/ $^{241}$ Pu. Par ailleurs, le vecteur plutonium utilisé ne tient pas compte du  $^{242}$ Pu et de sa forte section d'absorption par exemple.

Ces informations permettent d'identifier dans quelles proportions recycler les matières fissiles, en particulier l'<sup>233</sup>U, afin que la consommation de cette matière fissile en réacteur n'excède pas sa production, ce qui permet de capitaliser cette ressource.



FIG. 1.17: Facteur de Conversion partiel U/Pu et enrichissement en plutonium en fonction du taux de combustion et de l'enrichissement en plutonium initial (calcul assemblage APOLLO2, RM=0.83)

Dans de ce chapitre, nous avons établi un critère de comparaison ( $FIR_{\acute{eq}}$ ) des capacités de conversion de systèmes {réacteur, combustible}, en termes de quantité, c'est-à-dire en fonction des masses fissiles au déchargement, mais également en termes de qualité en tenant compte du poids en réactivité de chaque noyau lourd. Le point important est que ce critère repose sur des **facteurs d'équivalence**, fonction des sections efficaces. Une étude de sensibilité a permis de vérifier l'adéquation de cette méthode appliquée au cas des REL, ainsi que des jeux de facteurs d'équivalence, fonction du rapport de modération et de la composition du combustible.

Les principaux paramètres modifiant les performances de conversion ont été identifiés et leurs effets ont été découplés, grâce à des études paramétriques menées dans les systèmes fissiles  $^{235}$  U et plutonium. Pour ces études, le vecteur isotopique du plutonium qui a été sélectionné est volontairement dégradé afin de se placer dans des hypothèses de déploiement réalistes. Le cadre des études se limitant aux réacteurs à eau légère, les rapports de modération ont été choisis afin de balayer les spectres thermiques et épithermiques dans les limites imposées par la thermohydraulique d'un côté, et l'optimum de modération de chaque combustible de l'autre. Des domaines d'utilisation spécifiques ont été déterminés : en spectre sous-modéré avec du plutonium sous la forme de combustible ThPuO<sub>2</sub> pour le premier, et en spectre thermique avec de l'uranium enrichi à 20% en <sup>235</sup> U pour le second.

Enfin, compte tenu des limites que nous nous sommes imposées sur la sous-modération, le paramètre déterminant restant pour accroître le facteur de conversion est le contrôle de la teneur en fissile du combustible. Nous avons donc proposé de considérer le critère dénommé Fraction Fissile Régénératrice (FFR) comme indication de la fraction massique maximale à respecter afin d'assurer un FC supérieur ou égal à l'unité. Ce critère sera particulièrement utile pour l'étude du recyclage de l<sup>233</sup>U.

L'étape suivante va consister en l'étude et la définition de cœurs sous-modérés à combustible ThPuO<sub>2</sub> ayant un facteur de conversion supérieur à 0.8 tout en conservant une longueur de cycle supérieure à 300 jepp. L'objectif est d'optimiser ces cœurs en fonction de la production  $d^{233}U$ et de la consommation de plutonium.

# Chapitre 2

# Définition de cœurs sous-modérés à combustible Th $Pu/U_{app}$ et $U_{app}Pu/Th$

Le premier chapitre a permis de mettre en évidence le potentiel de l<sup>233</sup> U en spectre épithermique. Cependant, l'utilisation d'<sup>233</sup> U n'est pas immédiate, elle est conditionnée par une étape intermédiaire d'irradiation du thorium dans des réacteurs dédiés. Il a été déterminé que ces réacteurs intermédiaires doivent être à combustible ThPuO<sub>2</sub> en spectre épithermique avec un FIR cible de 0.8. La production d'<sup>233</sup> U est par conséquent assujettie à une gestion économe du plutonium au sein de cette strate intermédiaire de réacteurs. Tout l'enjeu de ce chapitre est de parvenir à **définir un concept de cœur RSM qui soit un producteur "efficace" d'<sup>233</sup> U**, c'est-à-dire qui tire parti à la fois de la conversion <sup>238</sup> U/<sup>239</sup> Pu et <sup>232</sup> Th/<sup>233</sup> U afin de maximiser la production d'<sup>233</sup> U tout en minimisant la consommation de plutonium.

Pour répondre à ces objectifs, l'idée est de mêler les cycles uranium et thorium au sein d'un même cœur hétérogène. En effet, les structures de type seed/blanket sont les plus indiquées dans la recherche de haute conversion en réacteur à eau légère. Le cœur de référence qui a été sélectionné est un cœur hétérogène à réseau hexagonal, optimisé pour un combustible  $U_{app}PuO_2$ . Ainsi, nous allons commencer par étudier un cœur sous-modéré à combustible ThPuO<sub>2</sub> le plus simple qu'on puisse imaginer afin d'étudier la physique de ce combustible et d'évaluer ses caractéristiques neutroniques. Ensuite, l'étude de cœurs hétérogènes à combustibles mixtes se fera en deux temps. Le thorium sera tout d'abord étudié comme support du plutonium, l' $U_{app}$  étant cantonné au sein de zones "fertiles" (cas ThPu /  $U_{app}$ ). Puis dans un deuxième temps, nous passerons au contraire à l'étude des cas  $U_{app}Pu$  / Th où le thorium sera introduit en tant que "fertile" seul.

# 2.1 Présentation du cœur RSM de référence

Le cœur pris comme référence est le RSM à pas hexagonal décrit dans la référence [Damian et al., 2010]. Ce concept fait partie des trois cœurs à haut facteur de conversion actuellement à l'étude par le CEA, les deux autres étant un REB et un REP à pas carré et rapport de modération cellule  $RM_{cellule} = 1.02$ .

#### 2.1.1 Description géométrique du coeur

Le rapport de modération cellule sélectionné, RM=0.83, a conduit à un réseau hexagonal. En effet, à rapport de modération identique, le réseau hexagonal permet de gagner un facteur 1.07 sur la distance entre crayons [Cornelis et al., 1985]. Cette distance entre crayons s'écrit  $(p - \emptyset_g)$  où p est le pas du réseau et  $\emptyset_g$  le diamètre de la gaine. En exprimant le pas du réseau en fonction du rapport de modération (RM) et des diamètres crayon  $\emptyset_c$  et gaine  $\emptyset_g$ , on obtient

- En réseau carré :

$$p_{carre} = \sqrt{\frac{\pi}{4} \left( \mathscr{O}_g^2 + RM \times \mathscr{O}_c^2 \right)}$$
(2.1)

– En réseau hexagonal :

$$p_{hexa} = \sqrt{\frac{\pi}{2\sqrt{3}} \left( \varnothing_g^2 + RM \times \varnothing_c^2 \right)}$$
(2.2)

Ainsi, l'assemblage hexagonal sélectionné est celui illustré par le schéma de la Fig. 2.1. Cet assemblage comporte 469 cellules organisées en 13 couronnes de combustibles. Parmi les 469 emplacements disponibles, 30 sont réservés aux tubes guides. Le bore soluble du circuit primaire n'est pas nécessaire pour deux raisons. La première et principale raison est que la réactivité à piloter est faible, moins de 2000 pcm, ce qui peut être réalisé par des barres de contrôle. La seconde est qu'en spectre épithermique à combustible à forte teneur en plutonium, l'efficacité du bore est fortement réduite. En REP standard, l'efficacité du bore est d'environ 10 pcm/ppm tandis qu'en RSM l'efficacité du bore est évaluée à 2 pcm/ppm, soit cinq fois plus faible. Par conséquent, pour un même apport d'anti-réactivité qu'en REP standard, la concentration en ppm de bore dans le circuit primaire sera plus élevée, et le volume des effluents à traiter sera bien supérieur aux volumes des REP standards. De plus, la présence d'acide borique dans le modérateur nuit au coefficient modérateur et au coefficient de vidange.



FIG. 2.1: Schéma d'un assemblage à pas hexagonal constitué de 13 couronnes et de 30 tubes guides (en jaune)

Les caractéristiques géométriques de l'assemblage et du coeur, ainsi que son point de fonctionnement sont résumés au sein du Tab. 2.1. L'optimisation du facteur de conversion a conduit à introduire des zones fertiles en uranium appauvri dans le cœur. Les solutions correspondant à des crayons duplex à noyau central fertile, ainsi que les assemblages hétérogènes mélangeant crayons MOX et crayons fertiles ont été exclues car elle ne permettent pas d'accroître le FIR. La différenciation de zones fertiles a reporté la masse fissile au sein d'un volume combustible plus faible, ce qui explique que la fraction massique de plutonium soit élevée dans les zones MOX ( $21\% m_{NL}$ ). En l'état, l'effet en réactivité de la vidange (noté CVR pour *Coolant Void Reactivity*) de ce cœur est positif. Ce problème a été résolu par l'ajout de tranches fertiles en U<sub>app</sub>, équi-réparties sur la hauteur des crayons fissiles [Golfier et al., 2008]. Les tranches fertiles permettent en outre d'augmenter le FIR.

La simulation d'un cœur entier est trop longue pour les études de conception prospectives. La géométrie hexagonale du cœur autorise à ne modéliser qu'un sixième de la géométrie cœur grâce aux symétries. Cependant cela induit une contrainte sur le nombre d'assemblages fertiles du cœur, de même que le mode de gestion par quart. Remarquons en outre que le nombre total d'assemblages, égal à 211, n'est pas un multiple de 4. Cela implique que certains assemblages seront déchargés au bout de trois cycles seulement. Le choix de ces assemblages s'est naturel-lement porté vers les fertiles. Ainsi, le nombre total d'assemblages fertiles se déduit du nombre d'assemblages fissiles  $N_{fiss}$  qui doivent vérifier  $N_{fiss}$  divisible par 4 (gestion) et  $N_{fiss}$  divisible par 6 (symétrie), soit  $N_{fiss}$  multiple de 12. Le nombre total d'assemblage est fixé à 211, par conséquent les possibilités sont :

- 180 assemblages fissiles et 31 assemblages fertiles;
- 168 assemblages fissiles et 43 assemblages fertiles;
- 156 assemblages fissiles et 55 assemblages fertiles;

La solution de 43 assemblages fertiles a été retenue car elle constitue le meilleur compromis entre le coefficient de vidange et le FIR. Les assemblages sont répartis dans le cœur comme indiqué sur la Fig. 2.2. Enfin, la hauteur active a été réduite à 350 cm, en résultat d'un compromis entre charge plutonium, puissance spécifique, pertes de charge et coefficient de vidange.



FIG. 2.2: Schéma axial des crayons MOX et fertiles (à gauche) et coupe radiale du cœur RSM de référence

Crayon combustible				
Diamètre pastille (cm)	0.81			
Diamètre gaine (cm)	0.95			
Hauteur active (cm)	350			
Pas cellule (cm)	1.15			
Rapport de modération cellule	0.83			
Assemblag	çe			
Nombre de couronnes	13			
Côté de l'assemblage (cm)	14.56			
Epaisseur de la demi-lame d'eau (cm)	0.2			
Nombre de tubes guides	30			
Diamètre interne tubes guides (cm)	0.97			
Diamètre externe tubes guides (cm)	1.05			
Absorbants des barres de contrôle	$B_4C$ (enrichi à 65% en ${}^{10}B$ )			
Nombre de crayons combustibles par assemblage	439			
Rapport de modération assemblage	1.02			
Coeur				
Nombre d'assemblages	211			
Diamètre cœur (cm)	377			
Puissance thermique (MW)	4250			
Bore soluble dans le primaire	non			
Fractionnement	par quart			
Nombre d'assemblages par lot	$42 \mathrm{MOX} + 12 \mathrm{FERT}$			
Nombre d'assemblages MOX déchargés par cycle	42 MOX			
Nombre d'assemblages FERT déchargés par cycle	7  FERT  (4  cycles) + 5  FERT  (3  cycles)			
Température moyenne modérateur (°C)	311			
Température moyenne gaine (°C)	340			
Température moyenne combustible (°C)	650			

TAB. 2.1: Données géométriques et fonctionnelles du cœur RSM-HEXA

#### 2.1.2 Analyse de ses caractéristiques et de sa capacité de conversion

Les zones fertiles du coeur, c'est-à-dire les tranches fertiles des crayons appartenant aux assemblages MOX, ainsi que les crayons des assemblages fertiles, sont composées d'oxyde d'uranium appauvri  $U_{app}O_2$ , tandis que les zones fissiles sont composées d' $U_{app}PuO_2$  dont la fraction massique de plutonium s'élève à  $21\% m_{NL}$ . La teneur en plutonium élevée s'explique par le fait que les zones fertiles représentent 37% du volume total, fraction qui se décompose en 21.5% correspondant aux assemblages et 15.5% correspondant aux tranches, et par la mauvaise qualité du plutonium au chargement qui est de 56% fissile (*Pu2035*).

La longueur de cycle est de 320 jepp avec un inventaire plutonium en début de vie de 20 tonnes. Le taux de combustion moyen au déchargement est de 44 GWj/t pour les tranches MOX, 17 et 19 GWj/t respectivement pour les tranches et les assemblages fertiles.

Tout d'abord, rappelons que les principaux facteurs limitant le déploiement des RSM, et donc l'économie des ressources, sont leur bilan cœur et leur consommation de plutonium. À titre de démonstration, considérons un parc composé uniquement de REP à combustible UOX producteur de plutonium de qualité 62% fissile, et de RSM, dont la consommation de plutonium fissile est notée  $C_{Pu}^{RSM}$  en kg/TWhé. La production de plutonium d'un EPR à combustible UOX déchargé à 60 GWj/t est de 26.4 kg/TWhé [Bataille and Galley, 1998]. La qualité du plutonium produit en REP avoisine 62%, par conséquent, cela revient à une production de  $Pu_{fissile}$  en EPR, notée  $C_{Pu}^{PR}$ , de l'ordre de 16.4 kg/TWhé. Par conséquent, alimenter un RSM en plutonium fissile nécessite ( $C_{Pu}^{RSM}/C_{Pu}^{PR}$ ) EPR. La fraction de RSM qu'il est possible de déployer dans le parc est  $N_{RSM}$ , définie par l'équation (2.3). Ce nombre est fonction de l'inverse de la consommation de plutonium et n'est valable en ne considérant que le plutonium. Or, par la suite, l'utilisation du thorium va engendrer la production d'<sup>233</sup>U, ce qui modifiera ce critère indicatif. Cependant il permet de mettre en évidence la nécessité de limiter la consommation de plutonium.

$$N_{RSM} = \frac{1}{1 + \frac{C_{Pu}^{RSM}}{C_{Pu}^{PR}}} = \frac{16.4}{C_{Pu}^{RSM} + 16.4}$$
(2.3)

Une analyse détaillée de la consommation/production de plutonium selon les différentes zones permet de comprendre le rôle de chaque milieu. En particulier, les résultats du Tab. 2.2 démontrent clairement l'importance des parties fertiles pour limiter la consommation globale de plutonium : la somme des productions fertiles s'élève à 12.55 + 6.27 = 18.82 kg/TWhé de plutonium, dont 14.68 kg/TWhé de plutonium fissile tandis que 53.13 kg/TWhé de plutonium sont consommés dans les tranches fissiles. De plus, la comparaison des productions entre tranches et assemblages fertiles met en évidence que la conversion est plus efficace au sein des assemblages : la production de plutonium dans les assemblages est deux fois plus élevée que dans les tranches pour un volume combustible seulement 1.4 fois plus grand.

Paramètre		Tr. MOX	Tr. FERT	Ass. FERT	Coeur
Prod. Pu	(kg/TWhé)	-53.13	6.27	12.55	-34.30
Prod. Pu <sub>fissile</sub>	(kg/TWhé)	-40.74	4.64	10.04	-26.06
Qualité Pu DdV	(%m)	56.49*	-	-	56.49
Qualité Pu FdV	(%m)	53.03	73.66	79.55	54.93
Qualité Pu ${\rm FdV}$ +5 ans	(%m)	52.88	73.35	79.44	53.96
FIR		0.842	4.572	6.332	0.891
FIR + 5 ans		0.810	4.420	6.143	0.857
$\mathrm{FIR}_{\mathrm{\acute{e}q}}$		0.879	7.426	10.173	0.931
$FIR_{\acute{e}q} + 5$ ans		0.822	6.994	9.630	0.871

TAB. 2.2: Bilan matière DdV/FdV par lot du cœur RSM de référence (\* La qualité du Pu2035 était indiquée précédemment à 56.07% en prenant en compte l<sup>241</sup>Am. La valeur de 56.49% est calculée sans tenir compte de l<sup>241</sup>Am)

La différence fondamentale entre assemblages et tranches fertiles réside dans le spectre neutronique imposé à ces zones par le milieu nourricier environnant. En effet, les tranches fertiles, de petit volume, sont prises en sandwich entre les tranches MOX et bénéficient d'un haut flux de neutrons. Tandis que les assemblages voient un spectre très différent selon que l'on se place au centre ou en périphérie de l'assemblage, mais également un spectre qui évolue entre début et fin d'irradiation à cause de la production de plutonium (durcissement du spectre). La Fig. 2.3 illustre ces différences de spectre par comparaison à celui caractéristique d'une tranche MOX. Cette variation de spectre spatiale et temporelle pourra être exploitée au moment de l'étude des cœurs mixtes à combustibles thoriés. En effet, le <sup>232</sup>Th présente un avantage sur l'<sup>238</sup>U en terme de capture dans le domaine thermique où sa section est environ trois fois plus grande que celle de son homologue <sup>238</sup>U.



FIG. 2.3: Spectres neutroniques normalisés (intégrale = 1) dans les tranches MOX et les assemblages fertiles. Le spectre des assemblages fertiles est décomposé entre centre et périphérie de l'assemblage. Les courbes sont données à 0 et 25 GWj/t

Ainsi, la très haute conversion des zones fissiles permet de contrebalancer efficacement la consommation de plutonium au sein des zones MOX nourricières. Par ailleurs, un point qui n'a pas encore été mentionné est la quasi-conservation de la qualité du plutonium entre chargement et déchargement. Là encore, les fertiles ont un rôle primordial car la qualité du plutonium dans ces zones spécifiques est de l'ordre de 76% en moyenne après 5 ans de refroidissement. Cela permet de compenser la qualité du plutonium déchargé des zones MOX. Enfin, on remarque également qu'entre déchargement et refroidissement, la qualité moyenne du plutonium passe de 54.93 à 53.96 %, autrement dit en 5 ans, la qualité s'est détériorée de 1%, à cause de la décroissance hors flux du<sup>241</sup>Pu en <sup>241</sup>Am.

L'analyse de ce cœur montre le besoin de complémentarité entre les cycles uranium et thorium au sein d'un même réacteur à haut facteur de conversion. Le cœur présenté dans cette section constitue une image de base tout à fait indiquée pour l'étude de cœurs mixtes hétérogènes. Cependant, avant de passer à l'étude de cœurs thoriés complexes, nous allons nous attarder un moment sur un cas beaucoup plus simple, c'est-à-dire un cœur sous-modéré homogène à combustible ThPuO<sub>2</sub>, dans le but de comprendre la physique de ce système et d'évaluer l'ordre de grandeur des coefficients neutroniques.

# 2.2 Étude du cœur RSM homogène à combustible ThPuO<sub>2</sub>

Le RSM homogène à combustible ThPuO<sub>2</sub> est un cœur simple qui va nous permettre d'évaluer le comportement neutronique du combustible ThPuO<sub>2</sub> en réseau sous-modéré à pas hexagonal. Pour déterminer la fraction massique en plutonium Pu2035 au chargement, la méthode d'équivalence assemblage/cœur a été employée. Cette méthode consiste à assimiler le calcul assemblage en milieu infini au cœur lui-même. Dans ce cas, cette approximation est tout à fait pertinente dans la mesure où le cœur est homogène, ce qui rend l'assemblage représentatif du cœur. Le modèle de réactivité linéaire nous permet ainsi d'estimer la longueur de cycle à partir d'un calcul assemblage 2D, en prenant comme hypothèse 3250 pcm de fuites. Cette démarche conduit à une teneur massique initiale de  $16\% m_{NL}$  de plutonium au chargement (absence de zone fertile), en respectant les critères de longueur de cycle supérieure à 300 jepp et d'inventaire plutonium en cœur en début de vie (DdV) de l'ordre de 20 t<sup>1</sup>.

#### 2.2.1 Détermination d'un plan de chargement

L'étude de ce cœur simplifié à nécessité l'élaboration d'un plan de chargement/rechargement adapté. La définition de ces plans repose en pratique sur plusieurs critères. Parmi les plus importants, nous pouvons citer la fluence de la cuve, le coefficient de vidange et le facteur de point chaud. Le premier point est particulièrement important car la limitation de la fluence cuve va permettre d'allonger la durée de vie du réacteur. Cependant, l'utilisation de réflecteurs lourds limite considérablement la fluence de la cuve. Par contre, le problème récurrent des RSM à forte teneur en plutonium est le coefficient de vidange qui peut devenir positif. C'est pourquoi nous avons adopté une gestion de type OUT/IN, c'est-à-dire en positionnant les assemblages neufs en périphérie du cœur et en les faisant migrer vers le centre au fur et à mesure des cycles d'irradiation. Ce mode de gestion n'est pas optimal pour la gestion de la réactivité car il ne minimise pas les fuites neutroniques radiales. Par contre il permet d'augmenter la composante de fuite en cas de vidange et d'aplatir la nappe de puissance radiale.

La qualité du plan de chargement dépend également de la minimisation du facteur de point chaud. Or l'étude du point chaud est l'étude d'un phénomène local. Le facteur de point chaud est défini par (2.4) : c'est la puissance cœur 3D maximale, normalisée à la puissance moyenne.

$$F_q = \frac{\max_{(x,y,z)} (P(x,y,z))}{P_{moy}}$$
(2.4)

Ainsi, non seulement le facteur de point chaud est un problème 3D mais en plus il nécessite de se placer à l'échelle du crayon. Un tel niveau de raffinement géométrique est rédhibitoire pour les temps de calcul qu'il impose, spécialement dans le cadre d'études de conception prospectives. Ainsi, la maille spatiale unitaire radialement est souvent l'assemblage. Une première approximation permettant d'estimer le facteur de point chaud à partir du calcul cœur consiste à décomposer le facteur de point chaud en le produit d'un facteur de forme radial  $(F_{XY})$  par un facteur de forme axial  $(F_Z)$ , et à convoluer le  $F_{XY}$  cœur par un  $F_{XY}$  assemblage selon la relation (2.5). Le facteur de point chaud réel est en fait inférieur ou égal à ce produit. Les exposants *coeur* font référence à une valeur obtenue à partir du calcul cœur 3D, tandis que les exposants *ass*,  $\infty$  font référence à une valeur obtenue à partir d'un calcul assemblage 2D en milieu infini.

$$F_q \le F_Z^{coeur} \times F_{XY}^{coeur} \times F_{XY}^{ass,\infty} \times \| \overleftarrow{grad}_{x,y} \left( P^{coeur} \right) \|$$
(2.5)

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>L'inventaire plutonium cœur en DdV fait référence à la masse totale de plutonium en début de cycle dans le coeur, tous lots d'assemblage confondus. Ainsi, la masse totale de plutonium  $M_{Pu}(DdV)$  est égale à la somme  $M_{Pu}(DdV) = \frac{1}{4} (M_{Pu}(DdV) + M_{Pu}(DdV + 1C) + M_{Pu}(DdV + 2C) + M_{Pu}(DdV + 3C))$ 

$$\begin{cases} F_Z^{coeur} = \max_z \left( P_{XY}(z) \right) \\ P_{XY}(z) = \frac{1}{S_{coeur}} \iint_{S_{coeur}} P(x, y, z) dx dy \\ F_{XY}^{coeur} = \max_{x,y} \left( P_Z(x, y) \right) \\ P_Z(x, y) = \frac{1}{H_{act}} \int_{H_{act}} P(x, y, z) dz \end{cases}$$

$$(2.6)$$

Le terme  $\|\overline{grad}_{x,y}(P^{coeur})\|$  correspond au gradient radial de puissance 3D du cœur (forme cosinusoïdale, puissance maximale au centre, et déprimée en périphérie). Il est particulièrement important de prendre en compte la déformée de puissance assemblage dans le cas de cœurs hété-rogènes. Par exemple dans le cas de cœ cœur de référence, des assemblages "fertiles" (en uranium appauvri,  $^{235}\text{U/U} = 0.2\% m_{NL}$ ) côtoient des assemblages "fissiles" (composés de  $21\% m_{NL}$  de plutonium sur support uranium appauvri). Une forte remontée de la puissance est observée au niveau de la couronne périphérique des assemblages fissiles adjacents à cause de la remontée de flux thermique en périphérie des assemblages fertiles. Le calcul du terme  $F_{XY}^{ass,\infty} \times ||\overline{grad}_{x,y}(P^{coeur})||$  a été évalué de manière à être conservatif à partir d'un assemblage fertile neuf au contact d'un assemblage fissile neuf. Le pic de puissance vaut alors 1.7. Dans ce chapitre prospectif, les facteurs de forme assemblage n'ont pas été évalués aussi précisément : l'ordre de grandeur de 1.7 est pris comme référence.

La minimisation du facteur de point chaud est recherchée principalement pour éviter tout risque de fusion de la pastille combustible ou d'ébullition locale. Dans le cas du combustible UOX, la fusion se produit lorsque la température du crayon atteint  $2760^{\circ}$ C. La consigne de sûreté retenue par EDF pour un REP est de limiter la température combustible à  $2590^{\circ}$ C, ce qui fixe la puissance linéique maximale à ne pas dépasser à 590 W/cm [?] (470 W/cm en conditions normales de fonctionnement). Remarquons cependant que la température de fusion de l'oxyde de thorium est supérieure à celle des oxydes d'uranium ou de plutonium et se situe à  $3650^{\circ}$ C [Ronchi and Hiernaut, 1996]. La conductivité thermique du combustible ThPuO<sub>2</sub> est inférieure à celle du PuO<sub>2</sub> seul, mais supérieure à celle de l'UO<sub>2</sub> (voir Annexe C). Ainsi, des marges sont à attendre sur le critère de puissance linéique maximal. La puissance linéique moyenne du cœur RSM homogène à combustible ThPuO<sub>2</sub> est de :

$$\overline{P_{lin}} = \frac{P_{th}^{coeur}}{N_{crayons} \times H_{act}} = 131 \ W/cm \tag{2.7}$$

Le calcul assemblage en milieu infini réalisé avec le code réseau APOLLO2 à partir de cette composition de combustible nous permet de connaître la cartographie de puissance assemblage, détaillée Fig. 2.4. Le facteur de point chaud assemblage  $F_{XY}^{ass}$  vaut **1.095**. Les crayons qui dégagent une puissance supérieure à la valeur moyenne sont ceux qui bénéficient d'une sur-modération locale. Le crayon dans lequel est observé le point chaud est situé en coin d'assemblage, et est environné par la lame d'eau sur trois de ses faces. Les autres crayons de la couronne périphérique sont en regard de la lame d'eau sur deux faces et les crayons proches d'un trou d'eau sur une face uniquement. La sur-modération locale implique un meilleur taux de fission du plutonium, et donc un dégagement de puissance supérieur.



FIG. 2.4: Distribution de puissances normalisées à la puissance moyenne sur un  $12^{ime}$  d'assemblage hexagonal en DdV

Le plan de chargement élaboré est illustré par le schéma de la Fig. 2.5a. La cartographie des distributions de puissances associées est décrite par la Fig. 2.5.



FIG. 2.5: Plan de chargement en gestion par quart et distributions de puissances radiales par assemblage en DdV

En DdV, Le  $F_Z$  est de 1.270, le  $F_{XY}$  du cœur est de 1.405 et le  $F_{XY}$  de l'assemblage vaut 1.095. Par conséquent le facteur de point chaud du cœur est estimé à  $F_q = 1.954$  en début de vie, au moment où les différences de puissance entre assemblages sont les plus pénalisantes. Cette valeur correspond à une puissance linéique de 256 W/cm, ce qui est bien en-dessous du seuil de 470 W/cm (valeur limite REP recommandée en conditions normales de fonctionnement).

#### 2.2.2 Évaluation des coefficients neutroniques et des paramètres cinétiques

#### Évaluation des coefficients Doppler et modérateur

Le coefficient de réactivité  $\alpha_X$  du paramètre X est défini comme la dérivée partielle de la réactivité  $\rho(X, Y, Z, ...)$  par rapport à X (2.8). Ils permettent de déterminer le comportement du réacteur en cas de transitoire de réactivité. On note le coefficient de température combustible, encore appelé coefficient Doppler,  $\alpha_{Tcomb}$ , et le coefficient modérateur  $\alpha_{Tmod}$ . Ces coefficients doivent être négatifs afin que le cœur stabilise sa réactivité de façon passive lors d'une élévation de température (modérateur et/ou combustible).

$$\alpha_X = \left[\frac{d\rho}{dX}\right]_{Y,Z,\dots} \le 0 \tag{2.8}$$

Pour évaluer ces coefficients, deux méthodes sont couramment employées, la méthode des perturbations au premier ordre, et la méthode directe. La première est toute désignée dans le cas de petites perturbations locales, tandis que la seconde est adaptée aux modifications globales. La détermination des coefficients de réactivité par la méthode directe à partir des conditions nominales de fonctionnement nécessite de faire varier chaque paramètre autour de sa valeur nominale et de mesurer les effets en réactivité qui en résultent. Les coefficients sont donnés en début et fin de cycle, toutes barres de contrôles extraites, et à l'équilibre <sup>135</sup>Xe. Les variations employées sont :

- $-\pm 2^{\circ}$ C pour la température du modérateur  $(T_{\text{mod}})$ ,
- $-\pm 5$ °C pour la température du combustible ( $T_{\rm comb}$ ).

Le coefficient modérateur du RSM homogène à combustible ThPuO<sub>2</sub> a été évalué à -26 pcm/°C en début et fin de cycle (Tab. 2.3). L'ordre de grandeur usuel de  $\alpha_{Tmod}$  pour un REP à combustible UOX est de -5 pcm/°C avec 1000 ppm de bore (en début de cycle) et de -35 pcm/°C en fin de cycle (FdC). Ainsi  $\alpha_{mod}$  est plus faible en valeur absolue que dans le cas d'un REP conventionnel non boré.

La variation de température de l'eau modifie sa densité, par dilatation. Cette dilatation a pour conséquence une modification de la section efficace macroscopique d'absorption et de son pouvoir modérateur  $\xi \Sigma_s$  où  $\xi$  est le gain moyen de léthargie par collision, et  $\Sigma_s$  la section efficace macroscopique de diffusion. Ainsi, en reprenant la définition phénoménologique du k<sub>effectif</sub>, une variation de  $T_{\rm mod}$  va impacter principalement les facteurs p et f. En fait,  $\alpha_{mod}$  dépend de la différence (p - f) [Barjon, 1993]. Une formule approchée du facteur anti-trappe est donnée par (2.9) :

$$p \approx \exp\left[-\frac{V_C N_C I_{eff}}{V_m N_m (\xi \sigma_s)_m}\right]$$
 (2.9)

avec  $V_{C,m}$  le volume du combustible, du modérateur

 $N_{C,m}$  la densité atomique du combustible, du modérateur

- $I_{eff}$  l'intégrale de résonance effective
- $\xi$  gain moyen de léthargie par choc
- $\sigma_s$  section efficace microscopique de diffusion

On remarque alors que l'augmentation de la température modérateur va conduire à une réduction du facteur anti-trappe :

$$\nearrow T_{mod} \Rightarrow \searrow d_{mod} \Rightarrow \searrow (V_m N_m(\xi \sigma_s)_m) \Rightarrow \nearrow \frac{V_C N_C I_{eff}}{V_m N_m(\xi \sigma_s)_m} \Rightarrow \searrow p$$

Dans le même temps, le facteur d'utilisation thermique f sera amélioré par la réduction des absorptions parasites dans le modérateur. Or dans le spectre épithermique du RSM et compte tenu de la forte teneur en <sup>240</sup>Pu, le facteur anti-trappe est déjà beaucoup plus faible qu'un REP avec p de l'ordre de 0.25 en RSM MOX et 0.55 en RSM ThUO<sub>2</sub>, comparé à 0.80 en REP. Le

facteur d'utilisation thermique f est plus proche de l'unité avec f de l'ordre de 0.99 comparé à 0.91 en REP, du fait de la forte absorption du plutonium aux énergies thermiques. On constate que les variations de densité du modérateur engendrent une contre-réaction plus faible qu'en REP standard à concentration de bore nulle.

Coefficient	DdC	FdC
Modérateur (pcm/°C)	-25.88	-26.14
Doppler (pcm/°C)	-4.31	-4.42

TAB. 2.3: Coefficients de réactivité du cœur RSM homogène à combustible ThPuO2

Le coefficient Doppler ( $\alpha_{Tcomb}$ ) calculé en début et fin de vie reste presque constant autour de -4.35 pcm/°C. Il est supérieur à ce que l'on observe traditionnellement en REP à combustible UOX ou même à combustible ThPu avec -3 à -4 pcm/°C [Bjork and Fhager, 2009].

L'effet Doppler est l'effet stabilisateur principal de la réactivité car la variation de température du combustible suit presque instantanément les variations de puissance. L'augmentation de la température combustible augmente l'énergie d'agitation thermique des atomes le composant, engendrant une vibration des noyaux autour d'une position moyenne. À un niveau moins microscopique, tout se passe comme si les résonances des sections efficaces étaient écrasées : élargissement de la résonance et abaissement du pic, à intégrale de résonance constante. L'élargissement des résonances est plus important que l'abaissement du pic (ces deux effets ne se compensent pas à cause de la réduction de l'autoprotection). Par conséquent le taux d'absorption résonnante augmente avec la température du combustible.

Les principaux contributeurs à l'effet Doppler sont donc les noyaux à forte intégrale de résonance tels que l'<sup>238</sup>U, le <sup>232</sup>Th et le <sup>240</sup>Pu. Les résonances s'élargissant avec la température, plus la concentration atomique en noyaux résonnants augmente, et plus le taux d'absorption augmente avec l'élévation de température. C'est ce qui explique qu'en général le coefficient Doppler d'un combustible MOX (<sup>238</sup>U + <sup>240</sup>Pu) soit plus élevé que celui d'un combustible UOX.

Par ailleurs, en réseau serré, comparativement à un réseau REP standard, le volume modérateur est réduit et la distance entre crayons est réduite, ce qui implique un courant de ralentissement supérieur qui va dans le sens d'une absorption résonnante accrue.

Le coefficient Doppler évalué ici, de l'ordre de -4 pcm/°C est cohérent avec ceux mesurés en RSM à combustible UPuO<sub>2</sub> lors des premières évaluations de ces concepts [Cantaloube, 1987]. Cependant, il pourrait paraître surprenant que le passage à un support thorium ne dégrade pas ce coefficient Doppler, dans la mesure où son intégrale de résonance (86 b) est plus faible que celle de l'<sup>238</sup>U (275 b). En fait, la comparaison de la distance moyenne entre résonances montre que  $\langle D \rangle$  vaut 18 eV environ pour l'<sup>238</sup>U, tandis que  $\langle D \rangle$  vaut 7 eV environ pour le <sup>232</sup>Th [Mughabghab, 1984]. La section efficace de capture du <sup>232</sup>Th présente moins de résonances de très forte amplitude, mais des résonances noires est supérieur à celui de l'<sup>238</sup>U. Or l'élargissement des résonances prime sur la hauteur du pic. Par conséquent les résonances noires d'amplitude moyenne resteront des résonances noires malgré leur élargissement, ce qui implique que la contribution du <sup>232</sup>Th à l'augmentation du taux d'absorption résonant avec la température est du même ordre de grandeur que celle de l'<sup>238</sup>U.

#### Éffet de réactivité en vidange (CVR)

Le coefficient de vidange traduit la variation de réactivité concomitante à une variation de la densité du modérateur, à  $T_{mod}$  constant (2.10). Par rapport au coefficient modérateur où la variation de densité de l'eau est due à une augmentation de sa température, ici la variation de densité se fait à température modérateur constante (brêche dans le circuit primaire).

$$\alpha_{vid} = \left[\frac{\partial\rho}{\partial d_{mod}}\right]_{T_{mod}} \tag{2.10}$$

Le coefficient de vidange est un problème qui a été identifié depuis le début des études de concepts de réacteurs sous-modérés à forte teneur en plutonium [Cantaloube, 1987, Ronen and Leibson, 1988]. En réseau UOX traditionnel, ce coefficient est négatif car la vidange du modérateur réduit la thermalisation des neutrons (et donc le taux de fissions thermiques), tandis que les fissions rapides augmentent (effet négligeable en relatif). En réseau MOX, le premier effet est toujours observé (diminution du taux de fission thermique), mais le second effet (augmentation des fissions rapides) n'est plus négligeable. De plus, les fortes vidanges réduisent le taux de capture du <sup>240</sup>Pu, et donc la contribution négative des captures fertiles au coefficient de vidange.

Dans la pratique, nous évaluerons en fait l'effet en réactivité intégré, noté Coolant Void Reactivity (CVR) :

$$CVR = \Delta d_{mod} \left[ \frac{\overline{\partial \rho}}{\partial d_{mod}} \right]_{T_{mod}} \simeq \rho_{vide} - \rho_{plein} \simeq \ln \left( \frac{k_{effectif}^{vid}}{k_{effectif}^{plein}} \right) (en \ pcm)$$
(2.11)

Où

- k<sup>vide</sup><sub>effectif</sub> est la valeur du k<sub>effectif</sub> calculée lorsque le modérateur est vidangé,
- et k<sup>plein</sup><sub>effectif</sub> est la valeur du k<sub>effectif</sub> pour une densité modérateur moyenne égale à 0.705  $g/cm^3$  dans les conditions de température et pression nominales.



FIG. 2.6: CVR en début et fin de cycle pour les cœurs ThPu homogène et U<sub>app</sub>Pu hétérogène

Les courbes du CVR en fonction du taux de vide en début et en fin de cycle sont illustrées Fig. 2.6. Lorsque le taux de vide augmente, deux types d'effets sont observés. Le premier, qui tend à diminuer la réactivité avec la vidange, est la disparition des fissions thermiques des actinides impairs avec le durcissement du spectre. Le second, responsable d'une contribution positive à l'effet de vidange, est l'augmentation du taux de fission rapide des actinides pairs et impairs. En effet, le durcissement du spectre favorise à la fois les réactions de fissions à seuil (<sup>232</sup>Th, <sup>238</sup>U), et augmente le nombre moyen de neutrons produits par fission (facteur  $\nu$  en fonction de l'énergie incidente du neutron). On notera qu'il faut ajouter à ces effets positifs la contribution de la capture du <sup>240</sup>Pu, qui décroît fortement avec le durcissement du spectre.

La comparaison des courbes correspondant au cœur homogène ThPuO<sub>2</sub> pour les fortes vidanges illustre la modification des contributions positives au CVR. En fin de cycle, les composantes positives liées au <sup>240</sup>Pu et au <sup>239</sup>Pu sont réduites car une partie du plutonium a été consommé en cours d'irradiation. De plus, sur support thorium, la masse des noyaux <sup>239</sup>Pu et <sup>241</sup>Pu a diminué au profit de la formation d'<sup>233</sup>U, dont le facteur  $\eta$  augmente moins vite avec l'énergie.

	$\mathrm{U}_a$	ppPuO <sub>2</sub>				T	$hPuO_2$		
TCT	0 GV	$\mathrm{Vj/t}$	50 G	Wj/t	TCT	0 GV	Vj/t	50 G	Wj/t
Isotope	Capt.	Fiss.	Capt.	Fiss.	Isotope	Capt.	Fiss.	Capt.	Fiss.
$^{235}\mathrm{U}$	1	3	1	4	<sup>233</sup> U	18	114	9	99
$^{238}\mathrm{U}$	249	39	448	72	$^{232}$ Th	239	10	514	17
<sup>238</sup> Pu	8	4	4	10	<sup>238</sup> Pu	8	4	5	10
<sup>239</sup> Pu	126	227	58	207	<sup>239</sup> Pu	91	160	36	126
<sup>240</sup> Pu	155	11	40	32	$^{240}$ Pu	156	11	39	29
$^{241}$ Pu	29	94	15	79	$^{241}$ Pu	31	100	14	73
$^{242}$ Pu	34	3	13	7	$^{242}$ Pu	35	3	13	7
$^{241}Am$	16	1	8	1	$^{241}\mathrm{Am}$	19	1	8	1
Pairs	446	57	507	122	Pairs	438	28	570	63
Impairs	173	325	82	290	Impairs	159	375	68	299

TAB. 2.4: Taux de capture et de fission par isotope normalisés à 1000 absorptions, à 0 et 50 GWj/t en situation vidangée pour les combustibles  $U_{app}PuO_2$  (15%m<sub>NL</sub> de Pu) et <sup>232</sup> ThPuO<sub>2</sub> (16%m<sub>NL</sub> de Pu)

Nous avons cherché à comprendre en quelles proportions le thorium agissait sur le CVR en effectuant une comparaison des taux de réaction par isotope sur deux assemblages, l'un à support <sup>238</sup>U et l'autre à support <sup>232</sup>Th. La comparaison des résultats par nature d'assemblage entre le cas nominal (taux de vide = 0%) et le cas vidangé (taux de vide = 99%) fait l'objet du Tab. 2.4. L'observation des taux de réaction par isotope, normalisés à 1000 absorptions montre qu'en situation vidangée, le <sup>232</sup>Th contribue pour 514 captures et 17 fissions au taux d'absorption total, comparé à l'<sup>238</sup>U dont les captures s'élèvent à 448 seulement pour 72 fissions. La contribution du <sup>240</sup>Pu est identique dans les deux cas. Les contributions des fissiles <sup>233</sup>U, <sup>239</sup>Pu et <sup>241</sup>Pu s'équilibrent entre les deux configurations, mais le nombre moyen de neutrons produits par fission diminue (moins de plutonium et plus d'<sup>233</sup>U). Par conséquent le taux de fission rapide diminue avec un support thorium, tandis que la réactivité due aux fissions rapides est similaire (voir légèrement inférieure grâce au plus faible  $\nu$  de l'<sup>233</sup>U).

#### Évaluation des paramètres cinétiques

Le calcul des paramètres cinétiques est réalisé par CRONOS2. La méthode employée consiste à découpler les dépendances en temps et en énergie du flux. Cette décomposition permet de simplifier les équations de la cinétique en deux systèmes couplés d'équations différentielles dont les variables sont la fonction partielle temporelle du flux et la concentration effective de précurseurs de neutrons retardés. Les paramètres du système d'équations couplées sont la proportion de neutrons retardés ( $\beta$ ), le temps de génération moyen ( $\Lambda$ ), les périodes de décroissance par groupe de précurseurs ainsi que la réactivité. La résolution du système est effectuée en diffusion à deux groupes d'énergie.

Paramètre	DdC	FdC
$\beta_{eff}$ (pcm)	326	332
$\Lambda$ (µs)	2.56	2.49

TAB. 2.5: Proportion de neutrons retardés et temps de génération moyen du combustible ThPuO<sub>2</sub>

Le  $\beta_{eff}$  de ce cœur thorié est faible car la fraction  $\beta$  de neutrons retardés issus d'une fission thermique de l'<sup>233</sup>U (224 pcm) est plus faible que celle des fissiles <sup>235</sup>U (679 pcm), <sup>241</sup>Pu (535 pcm) et même <sup>239</sup>Pu (296 pcm). La valeur  $\beta$  du <sup>232</sup>Th (2433 pcm), bien supérieure à celle de l'<sup>238</sup>U (1828 pcm), ne compense pas celle de l'<sup>233</sup>U car le taux de fission du <sup>232</sup>Th est très faible, de l'ordre de 2% du taux de fission total du combustible. Ce combustible est plus "réactif" du point de vue cinétique, et donc plus difficile à piloter.

# 2.2.3 Analyse de la capacité de conversion du cœur RSM homogène

La longueur de cycle obtenue est de **352 jepp** en gestion par quart, ce qui conduit à un taux de combustion moyen au déchargement de **42 GWj/t**. On rappelle que l'évolution du combustible en réacteur se fait sans bore soluble dans le circuit primaire. Ce choix est encore justifié pour un cœur homogène à combustible ThPuO<sub>2</sub> car la réactivité en début de vie n'est que de **2012 pcm**.

Elément	DdV (kg)	FdV (kg)	Prod. (kg/TWhé)
Th	30861	29949	-74
Pa	-	31	3
U	-	636	51
$U_{fissile} \; (^{233}U + {}^{235}U)$	-	589	48
Pu	5858	4314	-125
$Pu_{fissile} (^{239}Pu + {}^{241}Pu)$	3309	2042	-103
Am	44	177	11
Np	-	0	0
Cm	-	56	5
Qualité (%)	DdV	FdV	FdV + 5 ans
Pu	56.49	47.34	45.88
U	-	92.64	92.95
FIR	-	0.804	0.769
FIR <sub>eq</sub>	-	0.951	0.890

TAB. 2.6: Bilans matières du cœur RSM à combustible ThPuO<sub>2</sub> par lot

Le Tab. 2.6 montre que la consommation globale nette de plutonium entre chargement et déchargement explose avec 125 kg/TWhé du fait de l'absence de conversion  $^{238}U/^{239}$ Pu. De plus, le plutonium déchargé est à présent fortement dégradé. Au chargement, sa proportion d'atomes

fissiles est de 56% tandis qu'au déchargement elle n'est plus que de 47%, et même 46% après 5 ans de refroidissement.

La Fig. 2.7 montre l'évolution des compositions isotopiques des vecteurs uranium et plutonium en fonction du taux de combustion. On constate que le plutonium s'appauvrit en <sup>239</sup>Pu et s'enrichit légèrement en <sup>240</sup>Pu et en <sup>241</sup>Pu. L'effet protactinium est illustré sur l'évolution de l'isotopie du vecteur uranium. Au déchargement la fraction d'<sup>233</sup>U additionné du <sup>233</sup>Pa est supérieure à 90%. On remarque également que la proportion d'<sup>234</sup>U croît avec l'irradiation. On rappelle que cet isotope est formé à partir de réaction  $(n,\gamma)$  sur le <sup>233</sup>Pa et l'<sup>233</sup>U et par décroissance  $\alpha$  du <sup>238</sup>Pu. Les captures neutroniques du <sup>233</sup>Pa parasitent doublement la formation d'<sup>233</sup>U, car un neutron perdu par capture par le <sup>233</sup>Pa est soit un noyau d'<sup>233</sup>U en moins, soit un neutron de moins pour une capture fertile.



FIG. 2.7: Évolution des vecteurs isotopiques de l'uranium et du plutonium en fonction du taux de combustion

Enfin, on constate que la forte consommation de plutonium est largement compensée par la production d'<sup>233</sup>U, comme en témoigne le FIR<sub>éq</sub> après 5 ans de refroidissement. La valeur de 0.89 indique que la masse fissile des assemblages déchargés est équivalente à 89% de la masse fissile initiale (entièrement composée de <sup>239</sup>Pu et <sup>241</sup>Pu). Nous rappelons que l'objectif suivi ici est de parvenir à produire de l'<sup>233</sup>U "efficacement". De manière générale, "efficacement" fait référence à une consommation de fissile équivalent qui soit limitée, c'est-à-dire qu'on cherche à minimiser  $\Delta m_{eq}$  (kg/TWhé) définie par (2.12).

$$\Delta m_{eq} = \sum_{X \in \{^{239}Pu,^{241}Pu,^{233}U,^{235}U\}} \omega^{X/^{239}Pu} \Delta m^X \ (en \ kg/TWhe)$$
(2.12)

Seulement, dans un cas on préfèrera une production maximale  $d^{233}U$ , à ce moment, le terme "efficace" fait référence à un "rendement de conversion  $^{239}Pu/^{233}U"^2$ . Dans l'autre cas, on cherchera à limiter la dégradation du plutonium, auquel cas le terme "efficace" signifie en "minimisant la consommation de plutonium".

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup>On ne suggère pas ici une réaction nucléaire qui transformerait le <sup>239</sup>Pu en <sup>233</sup>U, mais plutôt à un niveau macroscopique la consommation de plutonium d'un côté, dont les neutrons produits par fission induisent des captures neutroniques par le <sup>232</sup>Th et donc la production d'<sup>233</sup>U.

Á ce stade, aucun choix n'est fait sur l'objectif à privilégier. En effet, le recyclage de l'<sup>233</sup>U permettra sûrement de réduire significativement le besoin en plutonium ultérieurement. Cependant avant de recycler l'<sup>233</sup>U, le besoin en plutonium devient considérable. Si au contraire une production timide d'<sup>233</sup>U est préférée, la période de transition vers un cycle uranium/thorium à l'équilibre sera allongée. Pour le moment, nous souhaitons explorer les possibilités offertes par les RSM Th/U/Pu sans se fixer de critère en particulier, le juge de paix sera l'étude du multi-recyclage de l'<sup>233</sup>U.

Ces précisions effectuées, nous pouvons définir un critère permettant d'évaluer le rendement de conversion  $^{239}Pu/^{233}U$ . [Guillemin, 2009] propose de définir ce critère comme le rapport entre masse d' $^{233}$ U +  $^{233}$ Pa au déchargement ramené à la masse de plutonium au chargement. Ce critère est pertinent, toutefois nous proposons ici de le modifier en effectuant le rapport des productions ramenées à l'énergie électrique produite afin de s'affranchir des différences d'inventaires et de longueur de cycle des concepts comparés. D'autre part, la variation isotopique du plutonium est prise en compte en ne considérant que les isotopes fissiles du plutonium. Ce critère de rendement de conversion, noté  $C_{prod}$  est défini par la formule :

$$C_{prod} = -100 \times \frac{\Delta m (^{233}U + ^{233}Pa)/\Delta E}{\Delta m (^{239}Pu + ^{241}Pu)/\Delta E} (en \%)$$
(2.13)

Pour ce coeur,  $C_{prod} = 100 \times \frac{49.30}{102.57} = 48\%$ . Cela signifie que la quantité d'<sup>233</sup>U qui a été produite correspond à 48% de la quantité de plutonium fissile consommée : bien que la consommation du plutonium soit importante, la production d'<sup>233</sup>U (ramenée à la quantité d'énergie produite) est élevée.

La saturation du <sup>233</sup>Pa est observée à 3000 MWj/t environ à une concentration atomique de 0.7  $10^{-5} at/b.cm$ , ce qui correspond à 0.06  $\% m_{NL}$ . La production d'actinides mineurs, la production de Pa est de 3 kg/TWhé parmi lesquels 2.3 kg/TWhé correspondent au <sup>233</sup>Pa. La production de Np est presque nulle. En effet, le Np est formé essentiellement par désintégration  $\beta^-$  de <sup>237</sup>U et <sup>239</sup>U, eux même produits par réaction (n,2n) et (n, $\gamma$ ) sur <sup>238</sup>U, absent du combustible. Enfin, les productions d'Am et de Cm sont équivalentes à celles du cœur de référence présenté à la section précédente, tout simplement parce que ces corps sont produits à partir du plutonium par la réaction (n, $\gamma$ ) sur <sup>242</sup>Pu d'une part, et par décroissance du <sup>241</sup>Pu d'autre part.

L'étude de ce cœur sous-modéré homogène constitue un point de départ. Son intérêt a été de nous permettre de comprendre la physique du combustible  $ThPuO_2$  en spectre sous-modéré et d'évaluer l'ordre de grandeur des coefficients de réactivité et des paramètres cinétiques. Ces paramètres ne sont des grandeurs accessibles qu'à partir du calcul cœur 3D en tenant compte de ses hétérogénéités (différences de taux de combustion) grâce au module de thermique simplifiée. Les valeurs obtenues ont été confrontées à la littérature et leurs cohérences nous permettent d'avoir confiance dans les calculs réalisés.

La suite de cette étude consiste à évaluer les performances de conversion en jouant sur les hétérogénéités du cœur et la répartition des matières fertiles/fissiles. Le cœur RSM hétérogène à combustible  $U_{app}PuO_2$  présenté précédemment est particulièrement adapté à nos besoins car il permet d'étudier différents types de structures "seed/blanket". Deux types de concepts ont été étudiés, selon la composition des parties seed et blanket : soit ThPu /  $U_{app}$ , soit  $U_{app}Pu$  / Th.

# 2.3 Étude des performances de conversion de RSM hétérogènes à combustible ThPu/U

Cette section porte sur l'évaluation et la définition de cœurs RSM hétérogènes sur support thorium et à fissile plutonium. L'intérêt de placer le thorium dans les parties fissiles en tant que support du plutonium est d'occuper une grande fraction volumique du combustible et de bénéficier d'un niveau de flux supérieur à celui des zones fertiles. C'est l'optimisation du rendement de production  $^{233}$ U/ $^{239}$ Pu qui est recherché ici.

Le cœur hétérogène de référence est celui présenté section 2.1. Dans un premier temps, des assemblages fissiles homogènes ont été considérés, c'est-à-dire que les tranches fertiles axiales ont été supprimées. Cela a été possible car le <sup>232</sup>Th assure de plus grandes marges sur le coefficient de vidange. Ensuite, dans un deuxième temps, les tranches fertiles axiales ont été ajoutées, composées soit d'uranium appauvri, soit de thorium. Dans tous les cas, le paramètre d'ajustement est la teneur en plutonium des zones fissiles, afin d'assurer une longueur de cycle au moins égale à 300 jepp tout en limitant la masse de plutonium immobilisée en cœur en DdV autour de 20 t.

<u>Remarque sur les notations</u>: Les cœurs RSM hétérogènes possèdent trois types de milieux qui peuvent avoir des compositions initiales différentes, à savoir les tranches MOX, les tranches fertiles et les assemblages fertiles. Les cœurs seront différenciés par la notation "M-ThPu/T- $U_{app}/F-U_{app}$ ". Dans cette notation, les lettres "M", "T" et "F" font référence respectivement aux tranches MOX, aux tranches fertiles et aux assemblages fertiles. Chaque lettre est ensuite suivie de la composition du milieu oxyde. Un récapitulatif de toutes les notations employées est proposé dans la liste des abréviations.

#### 2.3.1 Suppression des tranches fertiles axiales

La suppression des tranches fertiles axiales diminue le volume fertile en cœur de 37.0% à 21.5% : le volume MOX en cœur passe donc de 63.0 % à 78.5%. La teneur en plutonium des pastilles MOX pourra donc être réduite afin de conserver une masse totale de plutonium en cœur similaire à celle du cœur avec tranches fertiles axiales. Les performances du cœur vont être évaluées en conservant une teneur massique de plutonium à  $21\% m_{NL}$ , puis avec une teneur réduite afin de se ramener à un inventaire initial de 20 t. On vérifie également que le CVR est négatif malgré la suppression des tranches fertiles axiales. Le CVR calculé est de -4659 pcm et -6211 pcm respectivement en début et fin de vie, dans le cas de la configuration à  $21\% m_{NL}$  de plutonium au sein des assemblages fissiles. Le facteur de point chaud en DdV, est évalué à 1.781.

Sans modifier la teneur en plutonium des crayons fissiles la longueur de cycle est de 423 jepp. Il est possible d'abaisser la fraction massique initiale de plutonium à  $19\% m_{NL}$  tout en conservant une longueur de cycle supérieure à 300 jepp. Les tendances qui se dégagent du Tab. 2.7 sont que :

– La consommation de plutonium en kg/TWhé est équivalente quelle que soit la teneur initiale. Cependant la qualité du plutonium au déchargement est meilleure dans le cas à  $19\% m_{NL}$  de Pu. La qualité du plutonium déchargé se répercute sur le rapport d'inventaire fissile évalué dans les zones fissiles.

Paramètre	M-ThPu/F-U <sub>app</sub>		
Longueur de cycle	(jepp)	423	315
Pu des ass. fiss. (DdV)	$(\% m_{NL})$	21.0	19.5
Masse Pu (DdV)	(t)	21.69	20.57
Prod. Pu $(Pu_{fissile})$	$(\mathrm{kg}/\mathrm{TWh\acute{e}})$	-93.72 (-78.44)	-94.87 (-79.56)
Prod. <sup>233</sup> U + <sup>233</sup> Pa	(kg/TWhé)	35.81	40.21
Qualité Pu (FdV $+5$ ans)	(%m)	47.33	49.12
FIR MOX	$\mathrm{FdV}$	0.775	0.823
FIR Global	$\mathrm{FdV}$	0.810	0.856
FIR Global	FdV + 5 ans	0.783	0.828
$\mathrm{FIR}_{\mathrm{\acute{e}q}}$	FdV + 5 ans	0.881	0.916
$C_{prod}$	(%)	46	50

TAB. 2.7: Bilans des capacités de production de fissile en fonction de la teneur initiale en plutonium des cœurs de type M-ThPu/F- $U_{app}$ 

– La production d'<sup>233</sup>U augmente avec la diminution de l'inventaire en plutonium. En effet, l'évolution de la concentration atomique de l'<sup>233</sup>U en fonction du temps d'irradiation suit une courbe hyperbolique jusqu'à arriver à saturation lorsque l'équilibre entre production et disparition est atteint. Ainsi, plus la longueur de cycle augmente et plus on se rapproche de la concentration de saturation de l'<sup>233</sup>U, ce qui explique que la production en kg/TWhé diminue avec la longueur de cycle : pour un même  $\Delta m$ , l'énergie électrique produite augmente. De plus, la conversion <sup>232</sup>Th/<sup>233</sup>U est indépendante de la teneur initiale en plutonium, ainsi que l'illustre la Fig. 2.8.



FIG. 2.8: Concentration atomique en <sup>233</sup> U+ <sup>233</sup>Pa au sein des assemblages fissiles en fonction de la durée d'irradiation

Par conséquent, le critère défini par la formule (2.13) est maximal pour la configuration ThPu-19.5% avec 50% contre 46% avec  $21\% m_{NL}$  de plutonium. Ce résultat découle en grande partie du temps de séjour en cœur plus faible. Le critère d'évaluation ne permet pas de prendre en compte l'influence de la longueur de cycle sur la "disponibilité" du plutonium dans le cycle. Peut être que l'optimum est le cœur à  $21\% m_{NL}$  car le besoin en plutonium fissile par an qui lui est associé est plus faible. Nous proposons donc de rajouter une ligne au Tab. 2.7 correspondant au besoin en plutonium fissile exprimé en kg/an en considérant un facteur de charge de 0.82 [?], qui nous permette de mettre en perspective le critère  $C_{prod}$  (Tab. 2.8).

Configuration	$21.0\% m_{NL}$	$19.5\% m_{NL}$
Besoin en $Pu_{fissile}$ (kg/réacteur/an)	814	829

TAB. 2.8: Besoin en plutonium fissile exprimé en kg/an en fonction des configurations M-ThPu/F-Uapp

Entre les deux configurations le besoin en plutonium fissile ne diffère que de 15 kg/an. Ces deux configurations se valent donc en terme de besoin de plutonium fissile.

#### 2.3.2 Augmentation de la teneur initiale en plutonium

La teneur initiale en plutonium de type Pu2035 des zones fissiles a été ajustée pour obtenir une longueur de cycle de l'ordre de 300 jepp tout en conservant les tranches axiales fertiles. Deux configurations de cœur sont étudiées dans ce paragraphe, l'une dont les tranches fertiles axiales sont en uranium appauvri, notée **M-ThPu**/T-U<sub>app</sub>/F-U<sub>app</sub>, et la seconde (**M-ThPu/T-Th**/F-U<sub>app</sub>) où les tranches sont en <sup>232</sup>Th.

La conservation des tranches fertiles axiales nécessite d'augmenter la teneur en plutonium des tranches MOX à  $23\% m_{NL}$ . La première configuration étudiée est celle à tranches fertiles axiales en uranium appauvri (les caractéristiques du cœur correspondant sont résumées dans le Tab. 2.9). Nous vérifions que le facteur de point chaud n'est pas trop augmenté par la présence de tranches en <sup>232</sup>Th en particulier. Pour cette configuration, le point chaud est estimé à 2.192, ce qui correspond à une puissance linéique de 287 W/cm, bien en-dessous du critère imposé.

Par rapport aux cœurs à support thorium sans tranches axiales fertiles, on remarque que le  $C_{prod}$  est du même ordre de grandeur avec 47%. Par contre, la qualité du plutonium au déchargement est améliorée par les tranches en U<sub>app</sub>, et le besoin en plutonium fissile baisse de 100 kg/an/réacteur. Cette configuration constitue une amélioration par rapport au concept sans tranche.

Paramèt	re	M-ThPu/T-	$\mathrm{U}_{app}/\mathrm{F} ext{-}\mathrm{U}_{app}$	M-ThPu/T-Th/F-U <sub>app</sub>
Longueur de cycle	(jepp)	307	343	330
Pu tranches. fiss. (DdV)	$(\%m_{NL})$	23.0	23.5	23.5
Masse Pu (DdV)	(t)	19.77	20.06	20.03
Prod. Pu $(Pu_{fissile})$	$(\mathrm{kg}/\mathrm{TWh\acute{e}})$	-80.60 (-70.11)	-80.29 (-69.60)	-88.25 (-75.81)
Prod. $^{233}$ U + $^{233}$ Pa	$(\mathrm{kg}/\mathrm{TWh\acute{e}})$	33.16	31.87	39.04
Qualité Pu (FdV)	(%m)	49.57	50.12	49.88
FIR MOX	FdV	0.825	0.808	0.819
FIR Global	$\mathrm{FdV}$	0.859	0.844	0.855
FIR Global	FdV + 5 ans	0.831	0.816	0.830
$\mathrm{FIR}_{\mathrm{\acute{e}q}}$	FdV + 5 ans	0.909	0.898	0.919
$C_{prod}$	(%)	47	46	51
Besoin en $Pu_{fissile}$	(kg/réacteur/an)	729	724	789

TAB. 2.9: Bilan des capacités de production fissile en M-ThPu/T-Uapp /F-Uapp et M-ThPu/T-Th/F-Uapp

Ensuite, nous avons cherché à substituer à ces tranches fertiles en  $U_{app}$ , des tranches fertiles en <sup>232</sup>Th (dernière colonne du Tab. 2.9). Une teneur en plutonium de 23.5% $m_{NL}$  permet de satisfaire au critère sur la longueur de cycle. On constate tout d'abord que le rendement de conversion est amélioré (il vaut 51%), de même que la qualité du plutonium au déchargement. Par ailleurs, le  $\text{FIR}_{\acute{eq}}$  de 0.919 calculé après 5 ans de refroidissement est excellent. Cependant, cette situation n'est pas directement comparable au cas à tranches fertiles en U<sub>app</sub> en l'état. En effet, l'inventaire plutonium initial et la longueur de cycle atteinte étant différents, l'analyse des bilans matières est faussée.

Pour pouvoir analyser correctement l'impact du remplacement de l' $U_{app}$  des tranches par du <sup>232</sup>Th, nous avons intercalé dans le Tab. 2.9 le résultat d'un calcul cœur de la configuration **M-ThPu**/T- $U_{app}$ /F- $U_{app}$  à même teneur plutonium initiale que la configuration **M-ThPu**/T-**Th**/F- $U_{app}$ . La comparaison directe de ces deux cas met en évidence que pour une faible augmentation du besoin en plutonium fissile (de par l'augmentation de sa consommation en coeur), le rendement de conversion est très fortement amélioré.

# 2.4 Étude des performances de conversion de RSM hétérogènes à combustible UPu/Th

Nous passons à présent à l'étude des cœurs RSM hétérogènes dont le combustible fissile des tranches MOX est en  $U_{app}PuO_2$  tandis que les zones fertiles (tranches axiales ou assemblages fertiles ou les deux à la fois) sont en ThO<sub>2</sub>. C'est donc la consommation limitée du plutonium qui est recherchée dans cette partie, au détriment d'une production d'<sup>233</sup>U qui sera nécessairement plus faible. L'étude est divisée en deux étapes afin de départager l'effet du <sup>232</sup>Th lorsque celui-ci est introduit dans les tranches ou dans les assemblages fertiles et réciproquement.

# 2.4.1 Évaluation du concept à tranches fertiles axiales en <sup>232</sup>Th

De cette configuration, nous attendons qu'elle engendre une consommation et une dégradation du plutonium faible, c'est-à-dire de l'ordre de 40 kg/TWhé tout en conservant une fraction fissile supérieure à 53%. Evidemment, la production d'<sup>233</sup>U sera plus faible, proportionnellement au volume combustible occupé par le <sup>232</sup>Th de 15.5% du volume combustible total (au lieu de 37% en comptabilisant tout le volume fertile). Il sera intéressant de voir par la suite dans quel cas la conversion  $^{232}$ Th/<sup>233</sup>U est la plus efficace (tranches ou assemblages).

Nous attirons également l'attention du lecteur sur deux points délicats liés à ce concept particulier. Tout d'abord, du point de vue de l'attrait économique, la fabrication de ces assemblages ainsi que leur retraitement nécessite des opérations et des contrôles supplémentaires. À l'étape de la fabrication des crayons, il faut s'assurer du bon empilement des pastilles axialement ( $U_{app}Pu/Th$ ). Au moment du retraitement, plutôt que de broyer la structure assemblage entièrement, il serait préférable de séparer les pastilles de ThO<sub>2</sub> et de  $U_{app}PuO_2$  afin d'éviter une séparation isotopique <sup>238</sup>U/<sup>233</sup>U par la suite.

Ensuite, un deuxième point délicat inhérent à cette structure hétérogène particulière est la déformation de la distribution de puissance axiale, évaluée par le facteur de forme  $F_Z$ . En effet, cet effet s'observe déjà sur le cœur de départ à combustible  $U_{app}PuO_2$  (tranches et assemblages fertiles en  $U_{app}$ ). Cependant, contrairement à l' $U_{app}$ , l'oxyde de thorium qui sera introduit dans les tranches est composé à 100% de l'isotope <sup>232</sup>Th, et la période de demi-vie du <sup>233</sup>Pa impose un délai significatif sur la production de fissile. Par conséquent, la déformation de la nappe de

puissance axiale sera exacerbée avec des tranches fertiles thorium. Nous devrons vérifier que la puissance linéique maximale reste inférieure aux limites imposées par la sûreté.

Les performances globales du cœur à trois tranches axiales fertiles sont détaillées dans la colonne centrale du Tab. 2.10. On remarque tout d'abord que le rendement de conversion  $C_{prod}$  n'est plus que de 21% (aux environs de 50% précédemment) mais que le besoin annuel en  $Pu_{fissile}$  est considérablement réduit à 338 kg/réacteur/an (aux environs de 800 kg/réacteur/an précédemment). Ces résultats sont cohérents avec nos attentes : la production d'<sup>233</sup>U est fortement réduite à 6 kg/TWhé, mais dans le même temps, la consommation de plutonium se limite à 42 kg/TWhé et sa qualité est supérieure à 54% au déchargement. Cette image constitue donc une alternative très différente aux concepts étudiés dans la section précédente.

Paramè	M-U <sub>app</sub> Pu/7	$\Gamma ext{-Th/F-U}_{app}$	
Nombre de tranches axia	ales (hauteur en cm)	3 (23.0)	5 (13.8)
Longueur de cycle	(jepp)	333	310
Pu des ass. fiss. (DdV)	$(\% m_{NL})$	21.5	21.0
Masse Pu (DdV)	(t)	20.29	19.93
Prod. Pu $(Pu_{fissile})$	$(\mathrm{kg}/\mathrm{TWh\acute{e}})$	-42.11 (-32.64)	-40.63 (-31.95)
Prod. ${}^{233}\text{U} + {}^{233}\text{Pa}$	$(\mathrm{kg}/\mathrm{TWh\acute{e}})$	7.20	7.89
Qualité Pu (FdV)	(%m)	54.45	54.58
FIR ass. fiss.	FdV	0.858	0.869
FIR Global	$\mathrm{FdV}$	0.893	0.905
FIR Global	FdV + 5 ans	0.862	0.874
$\mathrm{FIR}_{\mathrm{\acute{e}q}}$	FdV + 5 ans	0.886	0.898
$C_{prod}$	(%)	21	25
Besoin en $Pu_{fissile}$	(kg/réacteur/an)	338	328

TAB. 2.10: Bilan des capacités de production fissile des cœurs M-U<sub>app</sub>Pu/T-Th/F-U<sub>app</sub>

Observons plus en détail les résultats, et notamment l'influence du thorium au sein des tranches fertiles. Les valeurs des FIR peuvent être mises en perspective avec les résultats du cœur de référence sans thorium (voir page 108) pour lequel le FIR global a été évalué à 0.891 en FdV et à 0.862 après 5 ans de refroidissement. La substitution de l'U<sub>app</sub> en <sup>232</sup>Th dans les tranches conduit à un FIR global identique en FdV et légèrement supérieur après refroidissement du fait de la diminution de la proportion de <sup>241</sup>Pu au profit de celle d'<sup>233</sup>U, stable, dans le combustible déchargé. Pour compléter cette analyse, nous avons comparé les courbes des FC partiels, c'est-à-dire FC(<sup>232</sup>Th/<sup>233</sup>U) pour les tranches thorium et FC(<sup>238</sup>U/<sup>239</sup>Pu) pour les tranches en U<sub>app</sub>, en fonction du taux de combustion (Fig. 2.9). La comparaison montre que jusqu'à 20 GWj/t, ce qui correspond au taux de combustion au déchargement des tranches fertiles, le FC dans le cas thorium est toujours largement supérieur à celui du cas U<sub>app</sub>. Le faible taux de combustion atteint au niveau des tranches fertiles est un avantage. En effet, la puissance spécifique dégagée, ainsi que le niveau de flux, y seront plus faibles, limitant les captures parasites sur le <sup>233</sup>Pa.

Enfin, quant à la mise en garde sur la déformation de la nappe de puissance, nous vérifions que les facteurs de formes ne sont pas trop élevés, et surtout que la puissance linéique maximale se situe en-dessous de la valeur de 470 W/cm, limite tolérée en conditions normales de fonctionnement pour un REP. Ces données font l'objet du Tab. 2.11. On remarque que le  $F_Z$  obtenu ne constitue pas un point bloquant.



FIG. 2.9: Facteurs de conversion partiels dans les tanches fertiles axiales. On distingue axialement le volume des pastilles fertiles situées à l'interface des tranches fissiles (5 cm d'épaisseur, noté "FERT mox", de celui au centre de la tranche (13 cm, noté "FERT interne")

Ces résultats doivent cependant être nuancés car le facteur de point chaud du Tab. 2.11 ne prend pas en compte le pic de puissance assemblage, délicat à évaluer. On rappelle que dans le cas de fertile en uranium appauvri, ce pic de puissance assemblage a été évalué à 1.7. En multipliant le facteur de point chaud par cette pénalisation, on calcule une puissance linéique de 475 W/cm.

Factour	3 tranches		5 tranches		
Facteur	DdV	$\mathrm{FdV}$	DdV	$\mathrm{FdV}$	
$F_{XY}$	1.398	1.392	1.412	1.390	
$F_Z$	1.528	1.325	1.480	1.427	
$F_q = F_{XY} \times F_Z$	2.136	1.844	2.090	1.984	
$P_{lin}^{max}$ (W/cm)	280	242	274	260	

TAB. 2.11: F<sub>Z</sub> et F<sub>XY</sub> des cœurs M-U<sub>app</sub>Pu/T-Th/F-U<sub>app</sub> en DDV et FDV

Une étude de sensibilité a été réalisée sur le nombre et l'épaisseur de ces tranches fertiles, à hauteur fertile totale constante et égale à 69 cm. Cette étude poursuit l'objectif double de réduire la déformée de puissance axiale, et d'accroître l'efficacité de conversion des tranches fertiles. La hauteur fertile totale est maintenue constante car ce ratio fertile/fissile est la résultante d'un compromis délicat entre rapport d'inventaire fissile élevé et coefficient de vidange négatif.

L'aire de migration dans le fertile ThO<sub>2</sub> a été évaluée. L'aire de migration  $M^2$  est définie par  $M^2 = \overline{D}/\overline{\Sigma_a}$ , et correspond au sixième du carré moyen de la distance parcourue à vol d'oiseau  $(r^2)$  par un neutron avant d'être absorbé dans le milieu, caractérisé par une section d'absorption  $\Sigma_a$  et un coefficient de diffusion D. Ainsi, la longueur de migration associée,  $\lambda_{migration}$  vérifie la relation :

$$\lambda_{migration} = \sqrt{\langle r^2 \rangle} = \sqrt{6M^2} \tag{2.14}$$

La longueur de migration a été évaluée à  $\lambda_{migration} \approx 22 \ cm$  dans le ThO<sub>2</sub>. Par conséquent la taille des zones fertiles devrait être de l'ordre de cette longueur afin que les neutrons interagissent efficacement au sein des tranches. La hauteur des tranches dans le cas de référence à "3 tranches"

est de 23 cm (pour une hauteur totale fertile de 69 cm), ce qui est optimal du point de vue de l'aire de migration. Cependant la réduction du pic de puissance axial suggère plutôt de diminuer la hauteur des tranches.

Ensuite, se pose la question de la répartition axiale de ces tranches sur la hauteur du crayon. Compte tenu de la forme cosinusoïdale du flux axial, la position des tranches en tête et pied du crayon a été écartée. En effet, le niveau de flux est plus faible dans ces zones, et par conséquent, le FIR sera diminué. Les tranches ont ainsi été positionnées de manière équi-réparties sur la hauteur active.

Compte tenu de ces contraintes, les cas de 3 à 6 tranches axiales ont été étudiés. Les hauteurs fertiles par tranches s'échelonnent de 23 cm (3 tranches) à 11.5 cm (6 tranches). La comparaison de ces cœurs a porté sur les critères macroscopiques de  $C_{prod}$ , besoin en  $Pu_{fissile}$ , facteur de point chaud et production d'<sup>233</sup>U. La Fig. 2.10a montre que la production d'<sup>233</sup>U est maximale pour 5 tranches axiales tandis que le facteur de point chaud est minimal pour 4 tranches. La configuration 5 tranches est également la configuration optimale pour le besoin en  $Pu_{fissile}$  et le  $C_{prod}$  (Fig. 2.10b).



FIG. 2.10: Variation de la hauteur des tranches axiales fertiles,  $(21\% m_{NL} Pu)$ . Les couples (Nb tranches; hauteur des tranches) sont (3; 23 cm), (4; 17.5 cm); (5; 13.8 cm) et (6; 11.5 cm)

La déformation de la nappe de puissance axiale est détaillée pour les cas "3 tranches" (référence) et "5 tranches" (optimum) sur la Fig. 2.11 où sont tracées les puissances axiales normaliées en fonction de la hauteur combustible. Le résultat de cette modification géométrique conduit à une plus faible dispersion des puissances à la valeur moyenne. La Fig. 2.11 montre en particulier que le fractionnement des tranches (diminution de leur hauteur) réduit le creusement du flux au sein des tranches fertiles. La réduction de la hauteur des tranches fissiles en tête et pied d'assemblage contribue également à abaisser le pic de puissance. Toutefois, la remontée de puissance observée dans les tranches fissiles centrale est accentuée. Ces effets concourent à réduire globalement  $F_Z$  de 1.528 à 1.480 en DdV. En contrepartie, Le Tab. 2.11 indique que la nappe de puissance radiale est déformée par l'augmentation du nombre de tranches axiales, ce qui réduit les faibles marges gagnées sur  $F_Z$ . Finalement, le fractionnement des tranches ne modifie que très peu la distribution de puissance 3D du cœur.



FIG. 2.11: Distribution axiale des puissances cœur normalisées en DdV

Le fractionnement des tranches fertiles permet d'atteindre une longueur de cycle supérieure à 300 jepp avec un inventaire en plutonium plus faible : la teneur en Pu des tranches fissiles passe de  $21.5\%m_{NL}$  (configuration 3 tranches) à  $21.0\%m_{NL}$  (configuration 5 tranches). L'effet combiné de la longueur de cycle diminuée de 23 jepp et de l'inventaire plutonium conduisent à une diminution de la consommation de plutonium. De plus, la production des noyaux <sup>233</sup>U et <sup>233</sup>Pa augmente, passant de 6.26 à 7.23 kg/TWhé.

En conclusion, les configurations de type M-U<sub>app</sub>Pu/**T-Th**/F-U<sub>app</sub> permettent de réduire la consommation de plutonium et de conserver en partie sa proportion de fissile. Le facteur de point chaud reste élevé et leur rendement de conversion ne dépasse pas 25%. De plus, la fabrication des crayons nécessite des opérations de contrôle supplémentaires et complexifie le retraitement de ces assemblages car idéalement il est nécessaire de séparer les pastilles fertiles des pastilles fissiles afin d'extraire l'<sup>233</sup>U sans séparation isotopique d'avec l'<sup>238</sup>U. C'est pourquoi cette solution ne sera pas retenue par la suite.

## 2.4.2 Étude du RSM à assemblages fertiles en ThO<sub>2</sub>

Nous avons remarqué précédemment que la composante thermique du spectre neutronique est beaucoup plus marquée au sein des assemblages fertiles en début d'irradiation. Dans le cas d'assemblages fertiles en  $U_{app}$ , cette différence s'atténue fortement avec le temps de séjour, à cause de la production de plutonium et de ses résonances d'absorption thermiques géantes. On voit apparaître ici un avantage à placer le combustible ThO<sub>2</sub> au sein de ces assemblages fertiles, grâce à sa section de capture thermique trois fois plus importante que celle de l'<sup>238</sup>U. D'autre part, la gestion des flux de matière en sera facilité, à la fois à la fabrication et au retraitement. Les cycles uranium et thorium sont complètement séparés spatialement.

La première partie de cette étude consiste à substituer simplement l'uranium appauvri des 43 assemblages fertiles du cœur RSM hétérogène en <sup>232</sup>Th. Les compositions des autres zones restant inchangées : les assemblages fissiles sont en  $U_{app}PuO_2$  et les **trois tranches axiales en**  $U_{app}$  sont conservées pour leur effet bénéfique sur le FIR et la consommation de plutonium. Les résultats en terme de production fissile de ce cœur M- $U_{app}Pu/T-U_{app}/F-Th$  sont regroupés au sein du Tab. 2.12 suivant.

Paramètre		$\mathrm{M}\text{-}\mathrm{U}_{app}\mathrm{Pu}/\mathrm{T}\text{-}\mathrm{U}_{app}/\mathrm{F}\text{-}\mathrm{Th}$	
Longueur de cycle	(jepp)	304	
Pu ass. fiss. (DdV)	$(\% m_{NL})$	21.0	
Masse Pu (DdV)	(t)	20.03	
Prod. Pu $(Pu_{fissile})$	$(\mathrm{kg}/\mathrm{TWh\acute{e}})$	-48.53 (-37.68)	
Prod. ${}^{233}\text{U} + {}^{233}\text{Pa}$	$(\mathrm{kg}/\mathrm{TWh}\mathrm{\acute{e}})$	12.73	
Qualité Pu (FdV)	(%m)	54.24	
FIR MOX	FdV	0.861	
FIR Global	$\mathrm{FdV}$	0.904	
FIR Global	FdV + 5 ans	0.874	
$\operatorname{FIR}_{\operatorname{\acute{e}q}}$	FdV + 5 ans	0.905	
$C_{prod}$	(%)	34	
Besoin en $Pu_{fissile}$	(kg/réacteur/an)	392	

TAB. 2.12: Bilan des capacités de production fissile de la configuration M- $U_{app}Pu/T$ - $U_{app}/F$ -Th

Cette configuration est particulièrement intéressante car le besoin en plutonium fissile par an est réduit à 392 kg. D'autre part, la qualité du plutonium est beaucoup moins dégradée que dans le cas des matrices ThPu grâce à la conversion  $^{238}U/^{239}$ Pu. Ces deux points constituent des éléments favorables au déploiement de RSM. De plus, l'observation du rendement  $C_{prod}$  à 34% montre que celui-ci se situe de manière intermédiaire entre celui des tranches fertiles thorium (autour de 25%) et celui des configurations M-ThPu/T-U<sub>app</sub>/F-U<sub>app</sub> situé autour de 48%.

La configuration M-U<sub>app</sub>Pu/T-U<sub>app</sub>/**F-Th** est une alternative satisfaisante car son rendement de conversion  $^{233}$ U/Pu<sub>fissile</sub> est 10% plus élevé que dans le cas des tranches fertiles, la qualité du plutonium au déchargement est supérieure à 54% et le besoin en plutonium fissile est faible (392 kg/réacteur/an). De plus, le point fort de cette configuration est de permettre la gestion décorrélée des flux de matières liés au cycle thorium de ceux liés au cycle uranium.

Toutefois, le même problème que dans le cas des tranches fertiles axiales en thorium se pose. C'est-à-dire que la déformation de la nappe de puissance radiale est fortement accentuée en début de vie par le fait que les assemblages neufs en fertile ThO<sub>2</sub> dégagent très peu de puissance. Le  $F_{XY}$ cœur est évalué à 1.722 en DdV (Tab. 2.13), ce qui conduit localement à des puissances linéiques pouvant aller jusqu'à 325 W/cm. La modification des plans de chargement/rechargement, ou encore le zonage des assemblages fertiles ou des assemblages MOX adjacents pourrait permettre d'uniformiser la nappe de puissance 3D du cœur.

Facteur	DdV	FdV
$F_{XY}$	1.722	1.339
$F_Z$	1.439	1.307
$F_q = F_{XY} \times F_Z$	2.478	1.750
$P_{max}^{lin}$	325	228

TAB. 2.13:  $F_Z$  et  $F_{XY}$  du cœur M- $U_{app}Pu/T$ - $U_{app}/F$ -Th en DDV et FDV

Dans la pratique, l'optimisation des plans de chargement et de rechargement est une étape fastidieuse et délicate. Le zonage des assemblages fertiles en introduisant des crayons en  $U_{app}$ parmi les crayons en <sup>232</sup>Th pourrait permettre premièrement une réduction du facteur de point chaud (diminution du  $F_{XY}^{coeur}$ , et deuxièmement d'améliorer les facteurs de conversion  $FC(^{232}Th/^{233}U)$  et  $FC(^{238}U/^{239}Pu)$ . L'idée est de conserver l'hétérogénéité radiale du cœur  $U_{app}Pu/Th$ car elle constitue un bon compromis sur la conversion, tout en essayant d'obtenir un cœur plus "homogène". Cela revient à descendre l'hétérogénéité  $U_{app}/^{232}Th$  au niveau de l'assemblage.

## 2.4.3 Évaluation d'assemblages fertiles hétérogènes zonés $ThO_2 - UO_2$

Le zonage des assemblages fertiles hétérogènes est motivé par deux raisons. La première est la volonté de réduire le facteur de point chaud en introduisant un certain nombre de crayons en uranium appauvri au sein des assemblages fertiles en thorium. La seconde est la possibilité d'augmenter le FC des deux noyaux fertiles <sup>232</sup>Th et <sup>238</sup>U par rapport à la situation <sup>232</sup>Thhomogène et <sup>238</sup>U-homogène. Pour cela, les zonages ont été guidés par deux paramètres, tout d'abord le spectre neutronique au sein des assemblages fertiles, puis le phénomène de protection mutuelle des résonances dans un deuxième temps.

En ce qui concerne l'aspect retraitement, nous avons mentionné précédemment l'intérêt de séparer spatialement les crayons contenant de l'<sup>238</sup>U de ceux contenant du <sup>232</sup>Th. Le fait de ne pas mélanger <sup>238</sup>U et <sup>232</sup>Th en un combustible homogène permet de respecter cette contrainte. En effet, moyennant un surcoût, il sera toujours possible d'extraire séparément les crayons en  $U_{app}$  de ceux en <sup>232</sup>Th avant broyage des structures.

#### Zonage des assemblages fertiles en fonction du spectre neutronique

L'étude du spectre neutronique à deux groupes d'énergie au sein des assemblages fertiles illustré par la Fig. 2.12 montre une remontée du flux rapide en périphérie de l'assemblage, c'est-à-dire au voisinage des assemblages fissiles environnants à forte teneur en plutonium, qui s'accompagne d'une dépression du flux thermique en périphérie. On est ainsi tenté de placer des crayons en ThO<sub>2</sub> au centre de l'assemblage pour bénéficier d'un flux thermique plus important qu'en périphérie, et au contraire de placer des crayons en  $U_{app}O_2$  à l'interface avec les assemblages fissiles où le flux rapide est supérieur, et donc plus favorable aux captures résonnantes de l'<sup>238</sup>U. Cette configuration va également dans le sens d'une réduction du  $F_{XY}$ .

L'étude des sections efficaces effectives et des taux de capture du <sup>232</sup>Th et de l'<sup>238</sup>U par couronne (Fig. 2.13a) abonde en ce sens. En effet, une forte différence est observée sur la capture de ces deux noyaux fertiles en faveur du <sup>232</sup>Th au centre de l'assemblage, tandis que cette différence est fortement atténuée en périphérie, au niveau des deux dernières couronnes de l'assemblage.



FIG. 2.12: Niveau de flux par couronne dans un assemblage fertile. Le flux rapide est (G1, E > 0.625 eV) distingué du flux thermique (G2, E < 0.625 eV). Le flux est calculé à partir d'un motif 2D en milieu infini où l'assemblage fertile est environné par un milieu nourricier caractéristiques des assemblages fissiles adjacents, pris à un taux de combustion moyen de 20 GWj/t.

En début de vie, l'assemblage fertile en ThO<sub>2</sub> bénéficie d'un flux thermique important (absence de noyaux fissiles), donnant ainsi beaucoup de poids à la section thermique du <sup>232</sup>Th (7.40 b à 25 meV), supérieure à celle de l'<sup>238</sup>U (2.68 b à 25 meV). En cours d'irradiation, de l'<sup>233</sup>U est formé en particulier. La présence d'<sup>233</sup>U est responsable de la chute du flux thermique et d'une diminution de la section de capture effective du <sup>232</sup>Th, ce que l'on observe Fig. 2.13.



FIG. 2.13: Section et taux de capture par couronne dans les assemblages fertiles

Suite à ces remarques, différents zonages ont été étudiés. En particulier les configurations :

- M-U<sub>app</sub>Pu/T-U<sub>app</sub>/**F-9Th-4U**<sub>app</sub> (que l'on abrègera en F-9Th-4U<sub>app</sub>) dont les assemblages fertiles sont composés de 9 couronnes centrales en crayons de ThO<sub>2</sub>, et de 4 couronnes périphériques en crayons d'U<sub>app</sub>O<sub>2</sub>;
- M-U<sub>app</sub>Pu/T-U<sub>app</sub>/F-11Th-2U<sub>app</sub> (que l'on abrègera en F-11Th-2U<sub>app</sub>) dont les assemblages fertiles sont composés de 11 couronnes centrales en crayons de ThO<sub>2</sub>, et de 2 couronnes périphériques en crayons d'U<sub>app</sub>O<sub>2</sub>.
Pour ces deux configurations particulières, nous avons tracé le FC par couronne à deux taux de combustion : 4 et 15 GWj/t (Fig. 2.14). Comparons les FC moyens assemblage, obtenus en effectuant la moyenne pondérée des FC par couronne (FC(i)) en fonction du nombre de crayons par couronne  $(N_{crayon}(i))$  selon la formule (2.15),  $N_{crayons}$  étant le nombre total de crayons.

$$\overline{FC}_{ass} = \frac{1}{N_{crayons}} \sum_{couronne \ i} FC(i) \times N_{crayon}(i)$$
(2.15)

Les  $\overline{FC}_{ass}$  de la configuration F-9Th-4U<sub>app</sub> à 4 et 15 GWj/t sont évalués à 1.907 et 1.349 respectivement, tandis que les  $\overline{FC}_{ass}$  de la configuration F-11Th-2U<sub>app</sub> à 4 et 15 GWj/t sont évalué à 1.959 et 1.336. La dernière configuration possède un facteur de conversion moyen supérieur en début d'irradiation, puis inférieur en fin d'irradiation, comparé à la première. Il convient de vérifier à présent l'impact de ces configurations zonées sur le facteur de forme radial et sur la longueur de cycle, toutes choses étant égales par ailleurs.



FIG. 2.14: Facteur de conversion par couronne d'assemblage fertile

Le bilan global des cœurs à assemblages fertiles zonés fait l'objet du Tab. 2.14. La longueur de cycle est effectivement légèrement modifiée selon la composition des assemblages fertiles (43/211 assemblages) : une diminution de 10 jepp (configuration F-11Th/2U<sub>app</sub>), et une hausse de 14 jepp (configuration F-9Th/4U<sub>app</sub>) sont constatées. L'étude des productions de plutonium fissile et d'<sup>233</sup>U (en kg/TWhé) indique que la production fissile globale ramenée à l'énergie produite n'est pas sensiblement modifiée par le zonage des assemblages fertiles. Enfin, le facteur de point chaud  $F_q$  en début de vie reste élevé (2.304) avec deux couronnes périphériques en U<sub>app</sub> mais est réduit plus efficacement dans le cas de quatre couronnes (1.929).

En conclusion, cette approche permet de réduire le facteur de point chaud : la réduction est efficace lorsque le nombre de couronnes en  $U_{app}$  est de l'ordre de 3 à 4. Cependant, les performances globales de conversion à travers la production de noyaux fissiles et le rendement  $C_{prod}$  sont détériorées. Une approche différente est proposée au paragraphe suivant. Elle consiste à maximiser le taux de capture fertile en recréant des structures *seed/blanket* à l'échelle du crayon dans l'assemblage : on descend encore d'un cran dans le niveau d'hétérogénéité.

Paramètr	Paramètre M-U <sub>c</sub>		$F-11Th/2U_{app}$	$F-9Th/4U_{app}$
$^{232}{\rm Th}$ / ass. fertile	$(\% m_{NL})$	100	71	46
Longueur de cycle	(jepp)	304	294	316
Pu tr. fiss. (DdV)	$(\% m_{NL})$	21.0	21.0	21.0
Masse Pu (DdV)	(t)	20.03	19.98	19.98
Prod. Pu $(Pu_{fissile})$	$(\mathrm{kg}/\mathrm{TWh\acute{e}})$	-48.53 (-37.68)	-43.48 (-34.07)	-40.77 (-31.51)
Prod. <sup>233</sup> U + <sup>233</sup> Pa	$(\mathrm{kg}/\mathrm{TWh\acute{e}})$	12.73	9.32	5.80
Qualité Pu (FdV)	(%m)	54.24	54.48	54.58
FIR MOX	FdV	0.861	0.865	0.857
FIR Global	$\mathrm{FdV}$	0.904	0.906	0.896
FIR Global	${\rm FdV}$ +5 ans	0.874	0.875	0.864
$\mathrm{FIR}_{\mathrm{\acute{e}q}}$	FdV + 5 ans	0.905	0.900	0.886
$C_{prod}$	(%)	34	27	30
Besoin en $Pu_{fissile}$	(kg/an)	392	354	328
$F_{XY}$	DdV	1.722	1.589	1.367
$F_q$	DdV	2.478	2.304	1.929

TAB. 2.14: Bilan des capacités de production fissile des configurations fertiles zonées Zonage des assemblages fertiles afin de réduire les effets de protection

Le paragraphe précédent a montré les limites d'un zonage en fonction de la cartographie du flux intra assemblages fertiles. L'objectif suivant est d'augmenter le taux de capture du <sup>232</sup>Th en réduisant l'autoprotection de ses résonances. Cet effet est observé lorsque le combustible est un mélange homogène de noyaux d'<sup>238</sup>U et de <sup>232</sup>Th, l'autoprotection de chacun des isotopes est plus faible que si seul l'<sup>238</sup>U ou le <sup>232</sup>Th était présent, grâce au phénomène de protection mutuelle des résonances. Nous pourrions ainsi étudier des assemblages fertiles composés à  $50\% m_{NL}$  de <sup>232</sup>Th et  $50\% m_{NL}$  d'U<sub>app</sub>. Cependant nous perdrions l'avantage de séparer spatialement ces deux noyaux à l'étape du retraitement, et nous ne bénéficierions plus d'une compétition réduite en début d'irradiation entre captures fertiles et absorptions fissiles dans les zones <sup>232</sup>Th à cause de la présence d'<sup>235</sup>U (effet mineur) et de la présence de plutonium (après quelques MWj/t).

En effet, le FC est d'autant plus grand que la teneur en absorbants thermiques autres que le <sup>232</sup>Th est faible, et que le nombre de neutrons disponibles est grand (c'est-à-dire que le facteur de reproduction  $\eta$  du combustible est élevé). L'idéal se profile sous la forme d'une zone fertile constituée de <sup>232</sup>Th seul et entourée d'un milieu nourricier. Cela correspond déjà à la structure "assemblage fertile" entouré d'assemblages fissiles. Nous allons ici reproduire cette structure à plus petite échelle au sein de l'assemblage fertile avec le motif d'un crayon de ThO<sub>2</sub> entouré de crayons en U<sub>app</sub> (99.8%m<sub>NL</sub> d'<sup>238</sup>U et 0.2% d'<sup>235</sup>U). L'agencement des crayons doit permettre d'utiliser les neutrons produits par fission des noyaux <sup>235</sup>U et de <sup>239</sup>Pu dans crayons en U<sub>app</sub> au sein des crayons en <sup>232</sup>Th. C'est pourquoi une alternance des cellules en <sup>232</sup>Th avec celles en U<sub>app</sub> est proposée, car elle permet de profiter d'un effet Dancoff élevé caractéristique des réseaux sous-modérés.

Nous allons commencer par comparer les quatre configurations suivantes en début de vie :

- un assemblage **homogène** en  $U_{app}O_2$ ,
- un assemblage **homogène** en  $ThO_2$ ,

- un assemblage **homogène** de combustible mixte  $(50\% m_{NL} \ ^{232}$ Th  $50\% m_{NL} \ U_{app})O_2$ ,
- et un assemblage **hétérogène** alternant couronnes en ThO<sub>2</sub> et couronnes en U<sub>app</sub>O<sub>2</sub>.

L'observation des sections efficaces effectives d'absorption condensées sur un maillage énergétique à quatre groupes nous permet de comprendre comment sont modifiées ces sections effectives. Le maillage à quatre groupes retenu pour cette étude isole la partie thermique (E < 4 eV) de celle des premières grandes résonances de l'<sup>238</sup>U et du <sup>232</sup>Th ( 4 eV < E < 52 eV ). Le Tab. 2.15 compare la section effective de l'<sup>238</sup>U condensée à quatre groupes dans un assemblage homogène et dans les configurations mixtes. Le Tab. 2.16 concerne la section effective du <sup>232</sup>Th.

Sections multigroupes effectives d'absorption de $^{238}$ U (b)						
No. groupe	Ener. Sup.	HOMO - $U_{app}$	HOMO - $Th/U_{app}$	HETE - $Th/U_{app}$		
1	$20 { m MeV}$	0.44~(23%)	0.49~(23%)	0.46~(23%)		
2	411 eV	2.02~(12%)	3.01~(15%)	2.39 (14%)		
3	52  eV	4.08 (24%)	5.91 (30%)	4.70 (27%)		
4	4  eV	1.37 (41%)	1.32(32%)	1.33 (36%)		

TAB. 2.15: Section efficaces à 4 groupes, comparaison des cas homogènes et hétérogènes des assemblages fertiles. Les pourcentages entre parenthèses correspondent à la répartition des taux d'absorption par groupe

Le Tab. 2.15 met en évidence le rôle de la protection mutuelle des résonances de l'<sup>238</sup>U et du <sup>232</sup>Th entre les cas  $HOMO - U_{app}$  et  $HOMO - Th/U_{app}$ , et l'effet moindre mais significatif de la protection géométrique dans le cas hétérogène. La comparaison des cas homogènes révèle peu de changement dans le groupe 1, car le <sup>232</sup>Th est peu absorbant à ces énergies. Dans les groupes 2 et 3 (domaine des résonances) une forte augmentation de la section efficace effective (c'est-à-dire autoprotégée) est observée. Le mélange résonnant d'<sup>238</sup>U et de <sup>232</sup>Th conduit à une réduction de l'autoprotection individuelle de chacun des noyaux (car le niveau de flux dans les résonances chute), et par conséquent à une augmentation de la section effective (et donc du taux de capture) sur ce domaine énergétique. Enfin, dans le groupe 4, on observe surtout l'effet de la diminution du facteur anti-trappe : l'absorption résonnante ayant augmenté dans les groupes 2 et 3, la proportion de captures thermiques chute de 41% à 32% entre le cas  $HOMO - U_{app}$  et  $HOMO - Th/U_{app}$ .

L'observation des sections efficaces effectives du cas  $HETE - Th/U_{app}$  montre des résultats similaires, bien que plus faibles car la protection mutuelle a été remplacée par une autoprotection géométrique, moins efficace.

S	Sections multigroupes effectives d'absorption de $^{232}$ Th (b)						
No. groupe Ener. Sup. HOMO - $Th$ HOMO - $Th/U_{app}$ HETE - $Th/U_{app}$							
1	20 MeV	0.45~(16%)	0.48~(16%)	0.47~(16%)			
2	411 eV	2.66 (11%)	4.01 (15%)	3.33~(13%)			
3	52 eV	1.38 (7%)	2.30~(9%)	1.88 (8%)			
4	4  eV	3.31 (66%)	3.45~(60%)	3.44~(63%)			

TAB. 2.16: Section efficaces à 4 groupes, comparaison des cas homogènes et hétérogènes des assemblages fertiles

Détaillons à présent les modifications observées sur la section effective à quatre groupes du  $^{232}$ Th. Le Tab. 2.16 montre que les groupes 2 et 3 sont fortement impactés par la présence d' $^{238}$ U : la section effective du  $^{232}$ Th augmente de 25% dans le groupe 2 et de 36% dans le

groupe 3 entre le cas homogène et hétérogène. Le Tab. 2.16 met en évidence que plus de 60% des absorptions neutroniques par le <sup>232</sup>Th ont lieu dans le groupe 4. Dans ce groupe, la section effective passe de 3.31 b à 3.44 b, soit une hausse de seulement 4%. C'est l'effet spectral décrit précédemment qui est observé ici : la diminution du facteur anti-trappe engendre une baisse du taux de capture thermique de 66% à 60%.

Vérifions à présent le rôle nourricier de l'<sup>235</sup>U des crayons en  $U_{app}$  en comparant le niveau de flux entre configurations homogènes et hétérogènes (l'étude du niveau de flux plutôt que des taux de réaction permet de découpler l'effet "nourricier" de l'effet d'autoprotection géométrique). Le Tab. 2.17 nous permet de constater qu'en configuration hétérogène zonée, les crayons de ThO<sub>2</sub> voient un flux globalement plus élevé que dans le cas *HOMO - Th*, excepté dans le groupe 3 dans lequel ne s'effectuent que 8% de ses captures (Tab. 2.16). En contrepartie, le flux des crayons en U<sub>app</sub> est plus faible qu'en situation homogène. Les crayons en U<sub>app</sub> ont le rôle de "sélecteur de spectre" pour les crayons en  $^{232}$ Th : l'<sup>238</sup>U capture fortement dans le domaine épithermique/rapide, tandis que le  $^{232}$ Th capture plus dans le domaine thermique.

Flux moyen en volume et intégré en léthargie $(10^{12} n/cm^2/s)$						
No groupe	Ener Sup	HOMO - U	HOMO - Th	HETE	- mixte	
No. groupe	Eneri Supi nenite Capp nenite in	HOMO - U <sub>app</sub> HOMO - <i>I h</i>		cray. $^{232}$ Th	cray. $U_{app}$	
1	$20 { m MeV}$	15.3	12.7	13.8 $(\Phi \nearrow)$	14.0 ( <b>Φ</b> 🔪)	
2	411 eV	9.00	7.94	8.13 (Ф ↗)	8.21 <b>(Φ</b> ∖ <b>)</b>	
3	52  eV	7.10	7.60	6.92 <b>(Φ</b> ∖ <b>)</b>	6.75 <b>(Φ</b> ∖ <b>)</b>	
4	4  eV	8.98	7.50	7.68 ( $\Phi \nearrow$ )	7.75 <b>(Φ</b> ∖ <b>)</b>	

TAB. 2.17: Flux multigroupe fertile en fonction de la configuration homogène ou hétérogène

Cette étude préliminaire nous a permis de vérifier que les effets escomptés sont vérifiés avec le zonage proposé. C'est-à-dire que la section effective de capture du <sup>232</sup>Th et le flux dans les crayons thoriés sont supérieurs à ceux observés dans le cas homogène. Ces effets sont optimaux lorsque la taille des zones  $U_{app}$  et <sup>232</sup>Th est de l'ordre de la cellule. Deux configurations d'assemblage en ont résulté, "F-cour" (schématisé Fig. 2.15a) et "F-crayon" (schématisé Fig. 2.15b).



(a) F-cour (253 crayons Th / 216 crayons U<sub>app</sub>)
(b) F-crayon (127 crayons Th / 342 crayons U<sub>app</sub>)
FIG. 2.15: Schémas des assemblages fertiles zonés (6<sup>ème</sup> d'assemblage, Nord-Est). Les cellules en rouge contiennent des crayons en ThO<sub>2</sub>, et celles en blanc des crayons en U<sub>app</sub>O<sub>2</sub>

Pour les deux configurations illustrées Fig. 2.15, nous détaillons dans le Tab. 2.18 les résultats obtenus à l'issue d'un calcul cœur 3D permettant de prendre en compte un flux 3D cœur plus réaliste que celui utilisé lors de l'étude assemblage, et également de pouvoir calculer les facteurs de forme et l'impact du zonage sur le facteur de point chaud.

Configura	ation	F-Th	F-Cour	F-Crayon	$F-U_{app}$
$^{232}\mathrm{Th}$ / ass. fertile	$(\% m_{NL})$	100	54	27	0
Longueur de cycle	jepp	304	302	308	320
Pu tr. fiss.	$(\% m_{NL})$	21.0	21.0	21.0	21.0
Masse Pu (DdV)	(t)	20.03	20.02	20.00	19.96
Prod. Pu $(Pu_{fissile})$	(kg/TWhé)	-48.53 (-37.68)	-36.78 (-28.74)	-41.85 (-32.30)	-34.30 (-26.06)
Prod. <sup>233</sup> U+ <sup>233</sup> Pa	(kg/TWhé)	12.73	6.76	9.00	-
Qualité Pu (FdV)	(%m)	54.24	54.60	54.63	54.93
FIR MOX	$(\mathrm{FdV})$	0.861	0.863	0.849	0.857
FIR Global	$(\mathrm{FdV})$	0.904	0.904	0.898	0.891
FIR Global	$({ m FdV}+5~{ m ans})$	0.874	0.872	0.866	0.857
$\operatorname{FIR}_{eq}$	$({ m FdV}+5~{ m ans})$	0.905	0.896	0.890	0.871
$C_{prod}$	(%)	34	24	28	-
Besoin en $Pu_{fissile}$ (l	kg/réacteur/an)	392	336	335	273
$m_{FdV}(^{233}U)/m_{DdV}(^{233}U)$	$^{(32}Th)$ (%)	1.48	1.66	1.78	-
$m_{FdV}(^{239}Pu)/m_{DdV}$	$(^{238}U)$ (%)	-	1.17	1.18	1.22
F <sub>XY</sub>	$(\mathrm{DdV})$	1.722	1.402	1.388	1.432
$F_Z$	(DdV)	1.439	1.419	1.409	1.395
$F_q$	(DdV)	2.478	1.989	1.956	1.998

TAB. 2.18: Comparaison des configurations à assemblages fertiles zonés

On remarque tout d'abord que les configurations zonées ont toutes deux des longueurs de cycle équivalentes à celle de la configuration F-Th. Ensuite, le facteur de forme radial est bien diminué puisque il passe de 1.7 à 1.4 environ. Le facteur de forme axial est également plus lissé et plus proche de celui mesuré en configuration F-U<sub>app</sub>. En effet, la source principale de déformation de la distribution axiale de puissance est la présence des tranches fertiles équi-réparties sur la hauteur fissile. La puissance est maximale au centre des tranches fissiles et minimale au centre des tranches fertiles. Cependant, cette distribution axiale de puissance étant aplanie par le zonage radial, la distribution axiale de puissance en sera affectée positivement.

Enfin, en ce qui concerne l'efficacité de conversion, on remarque que le rapport  $m_{FdV}(^{233}U)$ /  $m_{DdV}(^{232}Th)$  augmente de 1.48% jusqu'à 1.78% dans le cas de F-crayon, au détriment d'une légère baisse du rendement de conversion de l'<sup>238</sup>U qui passe de 1.22 à 1.18. En particulier, la production d'<sup>233</sup>U est de 9.00 kg/TWhé en configuration F-crayon, alors qu'elle n'est que de 6.76 kg/TWhé en F-cour pour un inventaire thorium deux fois plus important. La configuration "F-cour" est celle qui réalise la meilleure "sélection de spectre" pour <sup>238</sup>U et <sup>232</sup>Th. Cependant dans ce cas, les proportions de ces deux noyaux sont du même ordre de grandeur (253 crayons de <sup>232</sup>Th pour 216 crayons d' $U_{app}$ ), ce qui implique que le flux dans l'assemblage fertile sera globalement plus thermique, et donc favorable à la consommation des noyaux fissiles. La configuration "F-crayon" constitue une alternative intéressante au cas  $M-U_{app}Pu/T-U_{app}/F-Th$ , bien que la proportion de <sup>232</sup>Th y soit plus faible. Le rendement de conversion <sup>232</sup>Th/ <sup>233</sup>U est augmenté (bien que la production d'<sup>233</sup>U est plus faible avec 8.40 kg/TWhé seulement), et le facteur de point chaud réduit à 1.956.

# 2.5 Conclusion sur les capacités de conversion en RSM hétérogène $U_{app}Pu/Th$ et Th $Pu/U_{app}$

Le cœur RSM à pas hexagonal de référence a été le support de cette étude. Ce cœur offre l'avantage de présenter plusieurs niveaux d'hétérogénéités qui ont été optimisés à partir du FIR et du CVR pour un combustible  $U_{app}$ PuO<sub>2</sub>. Le but poursuivi a été de voir en quoi l'introduction du cycle thorium en RSM peut améliorer les performances de conversion.

Pour cela nous avons commencé par établir un critère ( $C_{prod}$ ) permettant de comparer chaque concept en terme de *rendement de conversion*. Ce critère permet d'évaluer la capacité d'un réacteur à transformer (fictivement) son plutonium fissile en <sup>233</sup>U. Puis, l'influence du thorium a été découplée, selon que ce dernier a été introduit en tant que support du plutonium ou dans des zones fertiles spécifiques. Un large panel d'options a été constitué et les effets physiques liés à l'introduction du thorium ont été analysés.

Du point de vue du critère  $C_{prod}$ , les meilleures configurations sont celles à combustible fissile ThPuO<sub>2</sub> et à fertile  $U_{app}$ . Leur rendement de conversion Pu<sub>fissile</sub>/<sup>233</sup>U s'élève à 50%. Cependant, leur besoin en plutonium fissile est un point négatif avec plus que 700 kg/an et par réacteur. À l'opposé, une introduction modérée de thorium, au sein des tranches axiales fertiles par exemple, limite considérablement la dégradation et la consommation du plutonium, pour une production d'<sup>233</sup>U de l'ordre de 7 kg/TWhé. Le meilleur compromis semble être le cœur à assemblages fertiles thoriés. La production d'<sup>233</sup>U y est plus élevée (12 kg/TWhé) et le rendement de conversion satisfaisant (34%).

Dans un parc de réacteur constitué uniquement de RSM et de REP à combustible UOX, l'économie d'uranium naturel se mesure directement par la fraction de RSM dans le parc. Ainsi, en l'absence de thorium, il est aisé de prédire quelle sera la configuration la plus pertinente pour la gestion des ressources, c'est celle qui minimise la consommation de plutonium. Dans le cas de cœurs à cycles mixtes, il faut tenir compte de deux variables, la consommation de plutonium et la production d'<sup>233</sup>U, ce qui complexifie le problème. De plus, la lecture des résultats pourra être modifiée selon les stratégies de recyclages des matières fissiles qui sera sélectionné.

En conclusion, nous avons toutes les cartes en main pour établir un raisonnement et des stratégies de transition vers un parc à l'équilibre basé sur l'utilisation conjointe des cycles uranium et thorium. Ces stratégies pourront être établies simplement à partir des bilans matières à l'équilibre obtenus dans ce chapitre. Dans ce chapitre, nous avons commencé par réaliser l'étude d'un cœur RSM le plus simple possible afin d'étudier la physique du combustible  $ThPuO_2$  en spectre épithermique, et surtout de vérifier les ordres de grandeurs des coefficients de réactivité et des paramètres cinétiques.

Ensuite, nous avons sélectionné comme point de départ l'image d'un cœur RSM ( $RM_{cellule} = 0.83$ ) hétérogène optimisé pour un combustible  $U_{app}PuO_2$ . En effet, les caractéristiques de ce cœur correspondent au domaine d'étude mis en évidence Chapitre III.1. Partant de ce support, nous avons exploré différentes combinaisons et différents niveaux d'hétérogénéité dans le but d'augmenter le FIR. Un critère de comparaison a été déterminé,  $C_{prod}$  afin d'évaluer le "rendement de conversion"  $Pu_{fissile}/^{233}U$  de chaque cœur indépendamment de son inventaire initial et de sa longueur de cycle.

La conclusion de ces études est que le cœur parfait n'existe pas. Un compromis sera toujours nécessaire, soit sur la production  $d^{233}U$ , soit sur la consommation de plutonium. Un panel d'options permet de privilégier telle ou telle performance en fonction des besoins. Seule l'étude du multi-recyclage des matières fissiles, et en particulier de l'<sup>233</sup>U, pourra permettre de déterminer la configuration la plus pertinente au regard de l'économie des ressources naturelles.

# Chapitre 3

# Évaluation de l'impact du multi-recyclage de l'<sup>233</sup>U en RSM sur l'économie des ressources

Le chapitre précédent a mis en évidence deux potentialités opposées apportées par les cœurs RSM afin de réduire le besoin en ressources naturelles : d'un côté la **diminution de la consommation de plutonium** et de l'autre **une production d**<sup>2233</sup>**U** élevée. Il est difficile de savoir, a priori, celui qui sera le plus efficace. L'utilisation de thorium accroît la consommation de plutonium (dont les inventaires disponibles et la production sont limités) mais le multirecyclage de l<sup>233</sup>U permet de réduire le besoin en plutonium par réacteur.

L'objectif de ce chapitre est d'évaluer l'impact du recyclage de l'<sup>233</sup> U sur les performances des RSM et donc sur l'économie des ressources. Pour cela, deux cœurs ont été sélectionnés à partir des résultats du chapitre précédent : le premier pour sa production importante d'<sup>233</sup> U et le second pour sa consommation modérée de plutonium. Nous allons commencer par évaluer comment recycler l'uranium issu de l'irradiation du thorium, tout d'abord en substitution du plutonium au sein des RSM hétérogènes dans lequel il a été produit, soit au contraire au sein de RSM dédiés, à définir.

Les résultats conduiront à déterminer des stratégies de scénarios de transition à partir des bilans matières cœurs pour déterminer la situation d'équilibre. Ces résultats seront vérifiés par des études de scénarios réalisées avec le code de scénarios COSI6 couplé à CESAR5. Les réacteurs RSM étudiés au chapitre précédent ne consomment pas d'uranium naturel. En effet, leur combustible est constitué d'uranium appauvri (issu du processus d'enrichissement de l'uranium) et de plutonium (issu du retraitement de combustibles irradiés). Par conséquent, un réacteur RSM permet une économie directe d'uranium naturel. Il est donc intéressant de chercher à déployer la plus grande fraction de ces types de réacteur dans le parc. Cependant, la masse de plutonium immobilisée en réacteur et le besoin annuel en plutonium constituent des facteurs limitant leur déploiement.

L'utilisation de thorium en combinaison avec l'uranium appauvri et le plutonium permet d'augmenter le FIR<sub>éq</sub> et de substituer aux noyaux fissiles <sup>239</sup>Pu et <sup>241</sup>Pu de l'<sup>233</sup>U, stable et efficace en spectres thermique et épithermique. Cependant l'utilisation de thorium implique une augmentation de la consommation de plutonium. Les avantages ou les inconvénients apportés par l'introduction de thorium en RSM, conjointement à l'U<sub>app</sub> et au plutonium ne peut s'évaluer que sur le moyen et long terme, en prenant en compte le multi-recyclage de l'<sup>233</sup>U avec le plutonium. Deux possibilités sont envisagées. La première consiste à étudier le multi-recyclage de l'<sup>233</sup>U au sein des RSM hétérogènes qui l'ont produit. La seconde consiste à différencier les RSM producteurs d'<sup>233</sup>U et les RSM consommateurs d'<sup>233</sup>U.

<u>Notation</u> : le vecteur uranium issu de l'irradiation du thorium et composé majoritairement de l'isotope  $^{233}$ U sera noté U<sub>tho</sub>.

# 3.1 Étude du recyclage de l' $U_{tho}$ en RSM hétérogène à combustibles mixtes

Les deux cœurs RSM **M-ThPu**/F-U<sub>app</sub> et M-U<sub>app</sub>Pu/T-U<sub>app</sub>/**F-Th** vont être étudiés tour à tour dans une version intégrant de l'<sup>233</sup>U (en zone fissile pour le premier, et en zone fertile pour le second). Nous commencerons par déterminer la composition des combustibles U<sub>tho</sub> permettant d'assurer l'auto-suffisance en <sup>233</sup>U. En effet, nous supposons dans cette partie que le parc ne serait constitué que de deux types de réacteurs : des REP UOX producteurs de plutonium, et des RSM consommateurs de plutonium, producteurs et consommateurs d'U<sub>tho</sub>. Dans ces conditions, il est nécessaire que la consommation d'<sup>233</sup>U ne dépasse pas sa production, ce qui nous a amené à rechercher **l'auto-suffisance en** <sup>233</sup>U. Ensuite, nous évaluerons le potentiel de cette stratégie à partir de la situation à l'équilibre déduite des bilans matières cœurs.

#### 3.1.1 Évaluation du recyclage de l'U<sub>tho</sub> en RSM M-ThPu $U_{tho}/F$ -U<sub>app</sub>

Le cœur RSM M-ThPu/F-U<sub>app</sub> est un cœur hétérogène composé de 43 assemblages fertiles en  $U_{app}O_2$  et de 168 assemblages fissiles en ThPuO<sub>2</sub>. La teneur plutonium des assemblages fissiles au chargement est de 21% $m_{NL}$ , le vecteur plutonium est le *Pu2035* composé à 56% d'isotopes fissiles. La durée d'irradiation du combustible en cœur est de 4 × 423 jepp en gestion par quart, ce qui correspond à taux de combustion moyen<sup>1</sup> au déchargement de 48 GWj/t.

 $<sup>^{1}</sup>$ ce taux de combustion correspond à la moyenne pondérée par les masses des lots déchargés. Parmi les lots déchargés on compte 42 assemblages fissiles, 7 assemblages fertiles ayant passé 4 cycles en cœur et 5 assemblages fertiles ayant passé 3 cycles en cœur.

## Recherche de l'auto-suffisance en ${}^{233}$ U en RSM M-ThPu $U_{tho}/F$ -U<sub>app</sub>

L'étude des équivalences en réactivité entre isotopes fissiles a démontré l'efficacité de l'<sup>233</sup>U en spectre épithermique. En se référant aux valeurs calculées dans le Tab. 1.2 page 82, le facteur d'équivalence  ${}^{233}\text{U}/{}^{239}\text{Pu}$  est de 1.6 pour un  $\text{RM}_{assemblage}$  égal à 1.02. Cela signifie qu'en terme de réactivité, un atome d'<sup>233</sup>U est équivalent à 1.6 atomes de  ${}^{239}\text{Pu}$ . Par exemple, introduire  $1.5\% m_{NL}$  d'<sup>233</sup>U dans la composition des assemblages fissiles en ThPuO<sub>2</sub> permet de diminuer la fraction de plutonium de 21 à  $16\% m_{NL}$  tout en conservant une longueur de cycle de l'ordre de 420 jepp.

En quelles proportions ajouter alors l'U<sub>tho</sub> au nouveau combustible mixtes ThPuU<sub>tho</sub>O<sub>2</sub>? Pour déterminer cela, trois remarques sont à prendre en compte. Tout d'abord, il est exclu de recycler l'<sup>233</sup>U dans des réacteurs dont la consommation totale excèderait la production globale. Ensuite, le délai entre le début de la production d'U<sub>tho</sub> et le moment où il peut être réintroduit en réacteur est un paramètre important car pendant ce délai, la consommation de plutonium est maximale. Enfin, la teneur qui permet la plus grande réduction du besoin en plutonium par cycle est bien évidemment la teneur maximale qui vérifie les deux premiers critères.

Par conséquent, l'optimum apparaît comme étant la fraction massique correspondant à la Fraction Fissile Régénératrice (FFR) de ce système {cœur + combustible}, c'est-à-dire la valeur qui permet d'avoir en fin de vie un bilan net équilibré entre production et consommation. Cela se traduit par la condition (3.1) sur la concentration atomique en  $^{233}$ U au cours du temps.

$$\Delta N_{233U}(FdV - DdV) = \int_{DdV}^{FdV} \lambda_{233Pa} N_{233Pa}(t) dt - \int_{DdV}^{FdV} \tau_{233U}^{absorption}(t) dt = 0$$
(3.1)

La détermination de la teneur en <sup>233</sup>U permettant d'être auto-suffisant a été réalisée grâce à une étude paramétrique. La masse initiale en <sup>233</sup>U est la variable d'ajustement permettant d'obtenir une longueur de cycle équivalente au cas de référence ThPuO<sub>2</sub> avec  $21\% m_{NL}$  de plutonium. Le remontage de cette étude concernant la production d'<sup>233</sup>U,  $\Delta m(^{233}U + ^{233}Pa)(FdV - DdV)$ ainsi que la teneur plutonium initiale en fonction de la fraction massique d'<sup>233</sup>U dans le combustible neuf (Fig. 3.1) met en évidence que sur le domaine étudié, ces deux paramètres varient quasi linéairement avec la teneur initiale en <sup>233</sup>U.

La variation de teneur plutonium est fonction de la teneur en  $^{233}$ U à travers la relation (3.2). De même, la consommation d' $^{233}$ U varie quasi linéairement avec sa masse initiale, selon la relation (3.3). Les coefficients sont obtenus par régression linéaire.

$$m_{Pu}(DdV) = -3.134 \times m_{233U}(DdV) + 20.758(en \ \% m_{NLi}) \tag{3.2}$$

$$\Delta m_{233}_{U+233}_{Pa} = -3.816 \times m_{233}_{U}(DdV) + 12.597(en \ kg/ass)$$
(3.3)

Ainsi, la relation (3.2) montre que la teneur initiale en plutonium diminue de 3% lorsque la teneur en <sup>233</sup>U augmente de 1%. On retrouve ici l'ordre de grandeur calculé à l'aide des facteurs d'équivalence avec le <sup>239</sup>Pu : le coefficient d'équivalence  $\omega^{^{233}U/^{^{239}Pu}}$  a été évalué à 1.6 dans le cas d'un réseau à rapport de modération moyen de 1.02, et pour une teneur initiale en plutonium de 21% $m_{NL}$ . Un noyau d'<sup>233</sup>U est équivalent à 1.6 noyaux de <sup>239</sup>Pu. Donc 1%



FIG. 3.1: Remontage de l'étude paramétrique du combustible ThPuU<sub>tho</sub>O<sub>2</sub>

d'<sup>233</sup>U équivaut à 1.6% de <sup>239</sup>Pu, et à 2.9% de *Pu2035* à 56% fissile. On rappelle que les sections efficaces, qui servent à déterminer les facteurs d'équivalence, sont sensibles aux variations de compositions isotopiques : sur la plage de teneur Pu (5;  $21\% m_{NL}$ ) et de teneur en <sup>233</sup>U (0;  $5\% m_{NL}$ ), les facteurs d'équivalence ne sont plus égaux à ceux déterminés page 82. Par ailleurs, la détermination des teneurs fissiles au chargement à l'aide des facteurs d'équivalence doit être effectuée en tenant compte de tous les noyaux lourds, afin de comptabiliser par exemple la contribution négative du <sup>240</sup>Pu.

La production d'<sup>233</sup>U diminue également très fortement avec l'augmentation de sa concentration atomique dans le combustible : son coefficient directeur est évalué à -3.8 d'après (3.3). La relation (3.1) montre que la production d'<sup>233</sup>U est le résultat d'un terme de production (décroissance  $\beta$  du <sup>233</sup>Pa) et d'un terme de disparition (absorption de l'<sup>233</sup>U). Le terme de production à un instant t donné s'écrit  $\lambda_{233}P_a N_{233}P_a(t)$ . Le <sup>233</sup>Pa arrive rapidement à sa concentration de saturation  $N_{233}P_a(t_{sat})$  qui dépend quant à elle de la masse de thorium. À partir de  $t_{sat}$  la production instantanée d'<sup>233</sup>U est constante en fonction du taux de combustion à puissance constante.

On remarque enfin que le terme de disparition  $\tau_{233U}^{abs} = N_{233U}\sigma_{233U}^{abs}\Phi$  augmente avec la concentration atomique en <sup>233</sup>U. La section efficace microscopique d'absorption de l'<sup>233</sup>U diminue avec l'augmentation de la concentration, ce qui tend à réduire le taux d'absorption. Cependant l'effet lié à la section est mineur devant l'augmentation de  $N_{233U}$ . Finalement, la valeur de la *FFR* du combustible mixte ThPuU<sub>tho</sub>O<sub>2</sub> se situe aux environs de **3.5**% $m_{NL}$  **d'**<sup>233</sup>U. Pour cette valeur, le besoin en <sup>233</sup>U par cycle est nul et la teneur initiale en plutonium est réduite à **10**% $m_{NL}$  **de plutonium**, soit un gain de 50% sur l'inventaire plutonium. Cette valeur a été confirmée par un calcul cœur 3D (Tab. 3.1).

L'objectif est atteint. La longueur de cycle est conservée et la production d'<sup>233</sup>U n'est plus que de 0.81 kg/TWhé. L'inventaire initial en plutonium en cœur en début de vie s'élève à 10 t seulement, et sa consommation est réduite de 41%.

Paramètre		$\mathrm{M}\text{-}\mathrm{ThPu}/\mathrm{F}\text{-}\mathrm{U}_{\mathrm{app}}$	$M\text{-}ThPuU_{\rm tho}/F\text{-}U_{\rm app}$
TCT moyen cœur	(MWj/t)	48 360	48 712
Durée d'irradiation	(jepp)	$4 \times 423$	$4 \times 422$
Teneur Pu	$(\% m_{NL})$	21.0	10.0
Inventaire Pu initial	(t)	21.68	9.73
Teneur $U_{\rm tho}$	$(\% m_{NL})$	-	3.5
Inventaire U <sub>tho</sub> initial	(t)	-	4.23
Production Pu $(Pu_{fissile})$	(kg/TWhé)	-93.72 (-78.44)	-55.01 (-41.92)
Production <sup>233</sup> U	(kg/TWhé)	34.53	0.81
Production <sup>233</sup> Pa	$(\mathrm{kg}/\mathrm{TWh\acute{e}})$	1.28	1.43
Qualité Pu (FdV $+5$ ans)	(%)	47.32	46.57
Qualité U (FdV +5 ans)	(%)	91.94	86.31

TAB. 3.1: Caractéristiques des cœurs RSM hétérogènes

Néanmoins les qualités du plutonium et de l'uranium sont impactées. L'observation des variations de masse par isotope (Fig. 3.2) révèle que la masse de <sup>239</sup>Pu diminue de moitié entre chargement et déchargement tandis que les masses des autres isotopes du plutonium sont sensiblement identiques. En particulier, la masse de <sup>241</sup>Pu est constante en cours d'irradiation. Cela est dû au fait que les fractions massiques du <sup>240</sup>Pu et du <sup>241</sup>Pu déterminées par le vecteur *Pu2035* sont dans les conditions de régénération <sup>240</sup>Pu/<sup>241</sup>Pu : le ratio des masses <sup>241</sup>Pu/(<sup>241</sup>Pu+<sup>240</sup>Pu) est inférieur à la FFR liée au facteur de conversion partiel FC(<sup>240</sup>Pu/<sup>241</sup>Pu)<sup>2</sup>.



FIG. 3.2: Masses par isotope en fonction de la durée d'irradiation au sein du réacteur M-ThPuU<sub>tho</sub>/F-U<sub>app</sub>

Le besoin en plutonium fissile par RSM est un facteur déterminant. Ce besoin dépend de la composition isotopique du plutonium en entrée, en particulier de ses fractions massiques en  $^{239}$ Pu et  $^{241}$ Pu, mais également en  $^{240}$ Pu pour la conversion  $^{240}$ Pu/ $^{241}$ Pu. Le besoin en plutonium en fonction de sa qualité a été évalué pour différents vecteurs isotopiques simulant son multi-recyclage. Le Tab. 3.2 montre l'impact de la dégradation de la qualité du plutonium sur le besoin en  $Pu_{fissile}$  par an et par réacteur.

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup>La FFR <sup>240</sup>Pu/<sup>241</sup>Pu est calculée à 35% dans le spectre d'un RSM contenant  $21\% m_{NL}$  de plutonium au chargement, et vaut 28% à  $10\% m_{NL}$  de plutonium. Or le ratio des masses <sup>241</sup>Pu/(<sup>241</sup>Pu+<sup>240</sup>Pu) est de 19% dans le *Pu2035*, ce qui est inférieur à la FFR quelle que soit la teneur en plutonium.

Paramètre	Pu2035	<i>Pu2035-</i> A	Ри2035-В
Teneur Pu ( $\%m_{NL}$ )	21.0	23.5	25.5
Longueur de cycle (jepp)	423	420	420
Qualité Pu DdV (%)	56.07	50.80	46.48
Fraction <sup>240</sup> Pu/Pu (%m)	30.36	34.70	36.76
Qualité Pu FdV (%)	48.61	44.50	40.76
Prod. $Pu_{fissile}$ (kg/TWhé)	-78.44	-74.32	-71.77
Besoin $Pu_{fissile}$ (kg/an)	814	771	744

Chapitre 3. Étude du multirecyclage de l'<sup>233</sup>U en RSM

TAB. 3.2: Sensibilité du besoin en Pu<sub>fissile</sub> à la qualité du plutonium.

Le Pu2035-A correspond à la composition isotopique du Pu2035 irradié en réacteur **M**-**ThPu**/F-U<sub>app</sub> puis refroidi 7 ans. Le Pu2035-B correspond à un Pu2035 recyclé deux fois en M-U<sub>app</sub>Pu/T-U<sub>app</sub>/F-U<sub>app</sub>. On remarque que le besoin en plutonium fissile tend à diminuer avec la dégradation du vecteur isotopique à la fois grâce à la réduction du ratio  $N_{239}P_u/N_{238}U$  qui améliore la conversion  ${}^{238}U/{}^{239}Pu$ , mais surtout par l'augmentation de la concentration atomique en  ${}^{240}Pu$  dans le combustible qui accroît la production de  ${}^{241}Pu$ .

La Fig. 3.2b montre l'évolution du vecteur U<sub>tho</sub> en cours d'irradiation. On remarque que la somme des masses ( $^{233}$ U +  $^{233}$ Pa) est conservée, mais que la production continue d' $^{234}U$  en cours d'irradiation abaisse sa fraction fissile à 86%. Le temps de mise à l'équilibre de la concentration atomique en  $^{234}$ U est plus long que celui du  $^{233}$ Pa et de l' $^{233}$ U, car l' $^{234}$ U possède trois voies de formation : par capture radiative de  $^{233}$ U et  $^{233}$ Pa, et par décroissance  $\alpha$  de  $^{238}Pu$ .

#### Évaluation du parc REP - M-ThPu $U_{\rm tho}/{\rm F-U_{app}}$ à l'équilibre

Les bilans matières cœur permettent de calculer la part de RSM dans le parc en imaginant la situation d'équilibre suivante où le parc serait composé de REP à combustible UOX dont tout le plutonium servirait à alimenter des RSM M-ThPuU<sub>tho</sub>/F-U<sub>app</sub>, auto-suffisants en ressources U<sub>tho</sub>. Cependant, ce calcul n'est qu'indicatif, ne serait-ce qu'à cause des modifications de compositions isotopiques des vecteurs uranium et plutonium qui ne sont pas prises en compte.

Les RSM M-ThPuU<sub>tho</sub>/F-U<sub>app</sub> étant auto-suffisants en U<sub>tho</sub>, le raisonnement portera simplement sur le besoin en plutonium. D'autre part, c'est le plutonium fissile qui sera considéré afin de s'affranchir des variations de compositions isotopiques de ce dernier. Enfin, les temps hors cœur de refroidissement/fabrication/stockage ne sont pas pris en compte, pas plus que le vieillissement du plutonium pendant ces périodes hors cœur. La mise à l'équilibre des productions et consommations de plutonium fissile entre chaque type de réacteur, exprimé en kg/an/réacteur avec un facteur de charge de 0.82 indique que trois REP sont nécessaires pour alimenter un RSM (Tab. 3.3).

La part de RSM dans le parc s'élève à 25% seulement pour ce scénario. De plus, cette estimation ne tient pas compte des phases de démarrage des RSM très plutonivores. Effectuons une rapide estimation du besoin en plutonium avant que l'U<sub>tho</sub> ne soit refroidi, retraité et réintroduit en réacteur. Considérons un temps de refroidissement minimum de 5 ans et un délai de 2 ans supplémentaire pour la fabrication du combustible neuf. Soit un délai total de 7 ans (ou 5 cycles de fonctionnement en prenant un facteur de charge  $f_C$  de 0.82) avant que les

Réacteur	REP UOX	RSM M-ThPuU <sub>tho</sub> /F-U <sub>app</sub>
$\Delta P u_{fissile}$ (kg/réacteur/an)	+166	-462
Puissance installée (GWé)	45	15

TAB. 3.3: Besoin en plutonium fissile par réacteur et par an. La production annuelle de plutonium fissile par REP est calculée à partir de la production de plutonium pronostiquée pour l'EPR dans la référence [Bataille and Galley, 1998], et en prenant comme hypothèses une longueur de cycle de 367 jepp, une puissance thermique de 4250 MW avec un rendement électrique de 34.4% et un facteur de charge de 82% [Coquelet-Pascal et al., 2011].

premiers lots contenant de l'<sup>233</sup>U ne soient chargés en réacteur. À l'inventaire plutonium initial nécessaire au démarrage du réacteur (21 t) il faut additionner le besoin en plutonium pendant ce délai minimum de 5 cycles (5 × 6 t). La phase de démarrage d'un RSM nécessite donc 51 t de plutonium, dont **29.0 t de plutonium fissile**.

La génération actuelle de réacteur sera renouvelée entre 2020 et 2050. La date raisonnablement envisagée quant au déploiement des RSM est l'horizon 2035. À cette date, le total des stocks de plutonium disponibles en France se chiffrera à 400 t environ [Bataille and Galley, 1998]. Sachant que 52 t sont nécessaires au démarrage d'un seul RSM, l'ordre de grandeur du nombre de RSM déployables entre 2035 et 2050 est de 8 RSM, soit 12 GWé.

#### 3.1.2 Évaluation du recyclage de l' $U_{tho}$ en RSM M- $U_{app}$ Pu/T- $U_{app}$ /F-Th $U_{tho}$

Le cœur M-U<sub>app</sub>Pu/T-U<sub>app</sub>/F-Th est constitué de 43 assemblages fertiles en ThO<sub>2</sub> et de 168 assemblages fissiles en U<sub>app</sub>PuO<sub>2</sub>. Ces derniers sont hétérogènes axialement et possèdent trois tranches fertiles de 23 cm d'épaisseur composées d'U<sub>app</sub> et équi-réparties sur la hauteur du crayon. La durée d'irradiation est de 4 × 304 jepp et le taux de combustion moyen cœur au déchargement est de 34 GWj/t. Ce cœur est plus sobre que le précédent en terme de consommation de plutonium. Sa longueur de cycle et sa production d'<sup>233</sup>U sont également réduites.

## Recherche de l'auto-suffisance en $^{233}\mathrm{U}$

La teneur massique en <sup>233</sup>U d'un combustible ThU<sub>tho</sub>O<sub>2</sub> assurant l'auto-suffisance en <sup>233</sup>U a été déterminée Partie III chapitre 1. La FFR de ce combustible a été évaluée à  $2\% m_{NL}$  d'<sup>233</sup>U à partir d'une étude assemblage, puis vérifiée avec un calcul cœur. Le Tab. 3.4 compare les résultats obtenus sans U<sub>tho</sub> et avec  $2\% m_{NL}$  d'<sup>233</sup>U au sein des 43 assemblages fertiles sur les 211 du cœur. L'<sup>233</sup>U permet de réduire la teneur en plutonium des assemblages fissiles adjacents de  $21\% m_{NL}$  à  $18\% m_{NL}$ , tout en maintenant la masse d'<sup>233</sup>U constante entre chargement et déchargement.

Le Tab. 3.4 montre qu'une fraction massique de  $2\% m_{NL}$  d'<sup>233</sup>U au sein des 43 assemblages "fertiles" thoriés permet d'obtenir l'équilibre entre production et consommation d'<sup>233</sup>U, à longueur de cycle identique au cas de référence. Les performances globales sont modifiées dans le bon sens, l'inventaire plutonium en cœur est réduit de 3 t en début de vie et sa consommation n'est plus que de 42 kg/TWhé. En ce qui concerne les variations de compositions isotopiques, le Tab. 3.4 montre que la fraction fissile du plutonium des assemblages déchargés varie peu avec

Paramètre		$M-U_{app}Pu/T-U_{app}/F-Th$	$M-U_{app}Pu/T-U_{app}/F-ThU_{tho}$
TCT moyen cœur	(MWj/t)	33 552	33 832
Durée d'irradiation	(jepp)	$4 \times 304$	$4 \times 303$
Teneur Pu	$(\% m_{NL})$	21.0	18.0
Inventaire Pu initial	(t)	20.03	17.11
Teneur U <sub>tho</sub>	$(\% m_{NL})$	-	2.0
Inventaire $U_{\rm tho}$ initial	(t)	-	0.63
Production Pu $(Pu_{fissile})$	$(\mathrm{kg}/\mathrm{TWh\acute{e}})$	-48.53 (-37.68)	-41.79 (-33.89)
Production <sup>233</sup> U	$(\mathrm{kg}/\mathrm{TWh\acute{e}})$	11.94	0.22
Production <sup>233</sup> Pa	(kg/TWhé)	0.79	0.79
Qualité Pu (FdV $+5$ ans)	(%)	53.28	52.82
Qualité U ( $\overline{FdV}$ +5 ans)	(%)	88.40	79.79

ou sans recyclage de l'<sup>233</sup>U (-0.4%) tandis que la fraction fissile de l' $U_{tho}$  subit une dégradation significative (-8.6%).

TAB. 3.4: Comparaison des cœurs RSM hétérogènes M-U<sub>app</sub>Pu/T-U<sub>app</sub>/F-Th et M-U<sub>app</sub>Pu/T-U<sub>app</sub>/F-ThU<sub>tho</sub>

L'évolution des masses par isotope des vecteurs uranium (assemblages fertiles) et plutonium (assemblages fissiles) de la Fig. 3.3 montre que la masse de  $^{240}Pu$  se stabilise tandis que celle de  $^{239}$ Pu diminue. Cette tendance va s'accentuer avec le multi-recyclage du plutonium, son vecteur isotopique va s'enrichir en  $^{241}$ Pu au détriment du  $^{239}$ Pu. Cependant cette dégradation est faible et devrait permettre de converger assez rapidement vers une fraction fissile asymptotique d'équilibre.



FIG. 3.3: Masses par isotopes en fonction de la durée d'irradiation en  $M-U_{app}Pu/T-U_{app}/F-ThU_{tho}$ 

La courbe 3.3b confirme la conservation de la somme des masses ( $^{233}U + {}^{233}Pa$ ) et l'augmentation de la part de l' $^{234}U$  dans ce vecteur. Les RSM M-U<sub>app</sub>Pu/T-U<sub>app</sub>/**F-ThU<sub>tho</sub>** constituent la seule source d'U<sub>tho</sub>. La prise en compte des modifications de sa composition isotopique avec le multi-recyclage est ici encore absolument indispensable.

#### Évaluation du parc REP - $M-U_{app}Pu/T-U_{app}/F-ThU_{tho}$ à l'équilibre

Avec l'U<sub>tho</sub> recyclé au sein des assemblages fertiles, le besoin en plutonium fissile par réacteur et par an passe de 392 à 352 kg/réacteur/an, ce qui porte la puissance RSM installée à 19 GWé

(contre 15 GWé pour le scénario A), soit environ 32% du parc. Ce ratio est légèrement meilleur que celui calculé dans le cas du RSM **M-ThPu** $U_{\text{tho}}$ /F-U<sub>app</sub> (5 RSM sur 19 réacteurs) mais reste toujours limité aux environs de 30% du parc.

Réacteur	REP UOX	$\rm RSM \ M-U_{app}Pu/T-U_{app}/F-ThU_{tho}$
$\Delta P u_{fissile} \; (\mathrm{kg/réacteur/an})$	+166	-352
Puissance installée (GWé)	41	19

TAB. 3.5: Besoin en plutonium fissile par réacteur et par an

En considérant des hypothèses similaires à celles employées précédemment, c'est-à-dire 5 ans de refroidissement après déchargement, puis un délai de 2 ans pour retraiter et fabriquer un combustible RSM neuf, nous calculons le besoin en plutonium pour démarrer un réacteur  $M-U_{app}Pu/T-U_{app}/F-Th$ . Compte tenu de la longueur de cycle, l'U<sub>tho</sub> ne sera incorporé au combustible neuf qu'au bout de 8 cycles suivant le démarrage du réacteur. Pendant ces 8 premiers cycles, le besoin en plutonium fissile est de 20.0 t au démarrage du cœur puis de 5.2 t par cycle. Par conséquent, démarrer et alimenter un RSM  $M-U_{app}Pu/T-U_{app}/F-Th$  pendant 8 cycles nécessite une réserve de  $20 + (8 \times 5.2) = 61.6$  t de plutonium, soit **34.5 t de plutonium fissile**.

On constate le besoin cumulé en plutonium au démarrage est supérieur à celui calculé pour le RSM **M-ThPu**/F-U<sub>app</sub> bien que le besoin par cycle soit inférieur. Cela est dû à la longueur de cycle plus courte d'environ 100 jepp.

#### 3.1.3 Conclusion sur le recyclage de l'U<sub>tho</sub> en RSM hétérogène

En conclusion de cette première approche, la réintroduction de l'<sup>233</sup>U en RSM hétérogène offre des possibilités limitées. La capitalisation des ressources en <sup>233</sup>U a été recherchée : sa réintroduction en cœur s'effectue en vérifiant que la différence production - consommation d'<sup>233</sup>U soit nulle sur le cycle, ce qui conduit à une masse d'<sup>233</sup>U au déchargement identique à celle du chargement. La séparation des zones <sup>232</sup>Th et U<sub>app</sub> a été conservée dans le but de faciliter l'étape du retraitement, qui n'exigera pas de séparation isotopique entre <sup>233</sup>U et <sup>238</sup>U.

Le facteur limitant le déploiement des RSM est le fort besoin en plutonium au démarrage de ces réacteurs, et par la suite en fonctionnement. L'objectif qui est poursuivi est de parvenir à réduire ce besoin en plutonium par l'intermédiaire de l'<sup>233</sup>U. Or les premières estimations reposant sur les bilans matières d'équilibre montrent qu'avec cette stratégie de recyclage, l'U<sub>tho</sub> parvient seulement à compenser le déficit de plutonium.

L'étape suivante va consister à étudier le recyclage de l'U<sub>tho</sub> au sein de RSM dédiés, sans plutonium et en limitant la consommation d'U<sub>tho</sub>. Les combustibles ThU<sub>tho</sub>O<sub>2</sub> et U<sub>app</sub>U<sub>tho</sub>O<sub>2</sub> seront tous deux évalués en tant que candidat potentiel pour recycler l'U<sub>tho</sub>. En effet, l'introduction de RSM à combustible ThU<sub>tho</sub>O<sub>2</sub> permet de limiter la consommation de plutonium, tandis que le RSM U<sub>app</sub>U<sub>tho</sub>O<sub>2</sub> constitue une alternative issue de la réfléxion autour de scénarios symbiotiques (voir Partie I, chapitre 2).

# 3.2 Évaluation des capacités de production en RSM homogène à combustible $U_{tho}$ sur supports $U_{app}$ et <sup>232</sup>Th

### 3.2.1 Évaluation du RSM homogène à combustible $ThU_{tho}O_2$

#### Revue des RSM régénérateurs en combustible $ThU_{tho}O_2$ dans la littérature

Les concepts de cœurs REP à combustible ThU<sub>tho</sub>O<sub>2</sub> isogénérateurs à caloporteur/modérateur  $H_2O$  dans la littérature sont peu nombreux. Les études publiées dans ce cadre très particulier font toutes appel au concept *seed/blanket* à différentes échelles. Les pistes qui se dégagent pour obtenir un FIR égal à l'unité au déchargement du combustible sont de recourir à des assemblages hétérogènes dans lesquels le diamètre des crayons *blanket* est augmenté de façon à ce que la sous-modération soit accentuée dans cette zone [Volaski et al., 2009], et les crayons *seed* sont de géométrie duplex ou annulaire pour des raisons thermohydraulique [Bae and Kim, 2005] ou de pilotage de la réactivité par insertion de poisons consommables.

La difficulté majeure liée à ces concepts où les noyaux fissiles sont fortement concentrés dans des zones de faible volume, sont les pics de puissance et des problèmes thermohydrauliques liés à la très faible distance entre crayons des zones *blanket*. Les auteurs recourent alors à la réduction de la puissance spécifique du combustible, de l'ordre de 5 à 7 W/g [Yun et al., 2010]. La réduction drastique de la puissance spécifique conduit à imaginer des cœurs de grandes dimensions, ou bien à devoir accepter une baisse de la puissance électrique d'un facteur 3 à 4 par réacteur.

Une étude paramétrique réalisée à puissance spécifique réduite à 4.7 W/g a permis de déterminer les domaines de faisabilité en fonction des critères de surgénération et CVR négatif, en fonction du taux de combustion au déchargement et du rapport de modération, le tout avec un modérateur à eau légère [Takaki et al., 2007]. Les résultats obtenus (Fig. 3.4) montrent qu'en se limitant à un RM de 0.8, la surgénération est théoriquement possible jusqu'à un taux de combustion de 22 GWj/t. Dans ce cas particulier, le diamètre cœur est de 5.5 m et la hauteur active de 3.7 m pour compenser la faible densité de puissance dans le combustible, ce qui conduit à un inventaire en  $^{233}$ U en cœur de l'ordre de 20 t pour une puissance thermique de 1000 MW par réacteur. Non seulement le diamètre cœur envisagé ici est irréaliste au vu des contraintes technologiques actuelles<sup>3</sup>, mais en plus l'inventaire cœur de 20 t d'<sup>233</sup>U est une contrainte forte.

Ces résultats issus de la littérature soulignent ici encore la difficulté à atteindre l'isogénération en combustible ThU<sub>tho</sub>O<sub>2</sub> en spectre épithermique, même en exploitant les structures de type *seed/blanket*. Les pistes consistent essentiellement à réduire la puissance spécifique pour accentuer les effets géométriques (crayons *blanket* de gros diamètre). La réduction de la puissance conduit à une cinétique de déploiement beaucoup plus lente du fait des inventaires importants en  $^{233}$ U immobilisés par réacteur. Par conséquent, l'objectif visé ici ne sera pas d'obtenir un FIR supérieur à l'unité à tous prix, mais de rechercher à atteindre des FIR de l'ordre de 0.8.

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup>Pour information, le diamètre du cœur EPR est de 3.8 m et la cuve de l'EPR est la plus grande que l'on sait construire à l'heure actuelle pour un réacteur à eau pressurisée.



FIG. 3.4: Domaine de faisabilité mis en évidence par [Takaki et al., 2007] avec un combustible oxyde  $Th^{233} U$  et un modérateur  $H_2O$ 

#### Complément d'étude sur le combustible $ThU_{tho}O_2$

Un complément d'étude est proposé pour le combustible oxyde  $ThU_{tho}O_2$ . Le vecteur uranium  $U_{tho}$  considéré est issu du retraitement du combustible irradié en **M-ThPu**/F-U<sub>app</sub>. Sa teneur en <sup>233</sup>U est de 90% et la fraction totale de fissile est de 92%. Le Tab. 3.6 met en évidence qu'avec une fraction massique de  $3.5\% m_{NL}$  d'U<sub>tho</sub>, la longueur de cycle est de l'ordre de 300 jepp pour un FIR de 0.782. Le facteur de conversion augmente avec le taux de combustion et diminue avec la fraction massique d'U<sub>tho</sub>. L'étude paramétrique indique également que le rapport d'inventaire fissile au déchargement sera supérieur à 0.8 à condition de réduire la durée d'irradiation et donc la teneur en U<sub>tho</sub> au chargement.

U <sub>tho</sub> (% $m_{NL}$ )	TCT au déchargement $(MWj/t)$	LC (jepp)	FC (DdV/FdV)	FIR
2.5	8 440	62	$0.867 \ / \ 0.954$	0.976
3.0	24 960	182	$0.763\ /\ 0.912$	0.878
3.5	39 000	285	0.688 / 0.892	0.782
4.0	51 320	376	$0.632\ /\ 0.880$	0.701
4.5	62 920	456	$0.587 \ / \ 0.871$	0.635

TAB. 3.6: Complément d'étude sur le combustible  $ThU_{tho}O_2$  en RSM (RM=0.83)

Les deux RSM producteurs d'<sup>233</sup>U étudiés dans ce chapitre et à partir desquels vont être construits deux scénarios de transition ont des longueurs de cycle différentes : 300 jepp pour le RSM M-U<sub>app</sub>Pu/T-U<sub>app</sub>/**F-Th** et 420 jepp pour le RSM **M-ThPu**/F-U<sub>app</sub>. Dans les deux cas, l'U<sub>tho</sub> produit sera recyclé, totalement ou en partie, au sein de RSM homogènes à combustible ThU<sub>tho</sub>O<sub>2</sub>. Ainsi, pour simplifier au maximum les scénarios et faciliter les flux de matière entre usines et réacteurs par la suite, la teneur en U<sub>tho</sub> des RSM homogènes est ajustée afin d'harmoniser les longueurs de cycle.

#### Application au scénario A de déploiement de RSM M-ThPu $U_{\rm tho}/{\rm F-U_{app}}$

La très forte consommation de plutonium dans le réacteur producteur d'U<sub>tho</sub> initial **M**-**ThPu**/F-U<sub>app</sub>impose de recycler en partie l'U<sub>tho</sub> au sein des assemblages fissiles ThPuO<sub>2</sub> afin de réduire le besoin en plutonium. Le vecteur U<sub>tho</sub> qui a été utilisé pour le calcul du cœur **M**-**ThU<sub>tho</sub>** est volontairement dégradé avec 84% d'isotopes fissiles seulement. Il correspond à un vecteur U<sub>tho</sub> de deuxième génération après recyclages de l'U<sub>tho</sub> en RSM **M-ThPu**U<sub>tho</sub>/F-U<sub>app</sub>. La teneur estimée en U<sub>tho</sub> de 4.0 % $m_{NL}$  conduit à une longueur de cycle de 407 jepp (Tab. 3.7). Les masses d'U<sub>tho</sub> en cœur sont équivalentes entre les deux concepts, aux environs de 4 t.

Il est intéressant de noter qu'en RSM homogène, le FIR de ce concept à taux de combustion et puissance spécifique élevés est de 0.736. Cette valeur pourrait être améliorée par le recours à des structures de type *seed/blanket* et par une optimisation fine de tous les paramètres géométriques. Cependant l'objectif de ce chapitre est de réaliser une première évaluation du recyclage de l'U<sub>tho</sub>, de définir des stratégies et par la suite d'identifier les points particuliers sur lesquels des efforts d'optimisation devront être faits.

Paramètre		$\rm M\text{-}ThPuU_{tho}/F\text{-}U_{app}$	$M-ThU_{tho}$
TCT moyen cœur	(MWj/t)	48 712	51 112
Durée d'irradiation	(jepp)	$4 \times 422$	$4 \times 407$
Teneur fissile	$(\% m_{NL})$	10.0 (Pu2035)	$4.0 (U_{\rm tho})$
Inventaire Pu DdV/FdV	(t)	$9.73 \ / \ 8.75$	- / -
Inventaire $\rm U_{tho}~DdV/FdV$	(t)	$4.23 \ / \ 4.37$	$5.21 \ / \ 4.84$
Production Pu	(kg/TWhé)	-55.01	-
Production $^{233}$ U + $^{233}$ Pa	(kg/TWhé)	2.24	-22.65
FIR	$(\mathrm{FdV})$	0.746	0.736
Qualité Pu $(DdV/FdV + 5 ans)$	(%)	$56.07 \ / \ 46.57$	- / -
Qualité U <sub>tho</sub> (DdV/FdV $+5$ ans)	(%)	92.22 / 86.41	$83.67 \ / \ 73.35$

TAB. 3.7: Caractéristiques comparées des RSM M-ThPuU<sub>tho</sub>/F-U<sub>app</sub> et M-ThU<sub>tho</sub>

Un parc mixte à trois types de réacteurs est à présent envisagé. L'étude des besoins en matière fissile met en évidence un gain faible mais substantiel d'environ 30% (Tab. 3.8). La mise à l'équilibre du parc doit être effectuée en fonction des besoins en  $U_{fissile}$  et  $Pu_{fissile}$ . Ces résultats suggèrent qu'avec une production d'U<sub>tho</sub> en **M-ThPu** $U_{tho}$ /F-U<sub>app</sub> légèrement supérieure, le ratio de **M-ThU**<sub>tho</sub> par rapport aux **M-ThPu** $U_{tho}$ /F-U<sub>app</sub> serait meilleur. Cependant, si la production d'U<sub>tho</sub> est améliorée, cela signifie que le besoin en  $Pu_{fissile}$  augmente en contrepartie.

La question qui se pose est de savoir ce qui est le plus important entre limiter le besoin en plutonium ou augmenter la production d'<sup>233</sup>U. Etudions ce point avec un exemple concret : plutôt que de rechercher l'auto-suffisance en U<sub>tho</sub> des réacteurs **M-ThPu**U<sub>tho</sub>/F-U<sub>app</sub>, nous diminuons la teneur en U<sub>tho</sub> à  $1.5\% m_{NL}$  afin d'augmenter la production d'U<sub>tho</sub>. La fraction massique de plutonium dans le combustible au chargement passe à  $16.0\% m_{NL}$  pour conserver la longueur de cycle. Les résultats modifiés sont en rouge dans le Tab. 3.8

Réacteur	REP UOX	RSM M-ThPuU <sub>tho</sub> /F-U <sub>app</sub>	RSM M-Th $U_{tho}$
$\Delta P u_{fissile}$ (kg/réacteur/an)	+166	-462 (-658)	-
$\Delta U_{fissile}$ (kg/réacteur/an)	-	+42 (+217)	-234
Nombre de réacteurs	16 <mark>(18</mark> )	6 (5)	1
% du parc	70 (73)	25 (18)	5 (9)

TAB. 3.8: Besoin en matière fissile par réacteur et par an à l'équilibre pour le parc EPR UOX / RSM M-ThPuU<sub>tho</sub>/F-U<sub>app</sub> et RSM M-ThU<sub>tho</sub>. Les résultats en noir correspondent à une fraction massique d<sup>233</sup> U initiale de 3.5%m<sub>NL</sub> dans les assemblages fissiles, les valeurs en rouge entre parenthèses correspondent à la configuration de teneur en <sup>233</sup> U réduite à 1.5%m<sub>NL</sub>

L'augmentation du besoin en plutonium est déterminant. Le Tab. 3.8 montre qu'une augmentation de 200 kg/reacteur/an du besoin en  $Pu_{fissile}$  modifie le rapport REP/M-ThPu $U_{tho}$ /F- $U_{app}$  de 3 REP pour 1 M-ThPu $U_{tho}$ /F- $U_{app}$  à 4 pour 1. La priorité est donc bien de diminuer au maximum le besoin en plutonium des RSM producteurs.

#### Application au scénario B de déploiement de RSM $M-U_{app}Pu/T-U_{app}/F-Th$

Au contraire du scénario A, le recyclage de l'U<sub>tho</sub> est ici envisagé exclusivement au sein de RSM homogènes à combustible ThU<sub>tho</sub>O<sub>2</sub>. Cela est permis par la consommation de plutonium modérée du réacteur M-U<sub>app</sub>Pu/T-U<sub>app</sub>/**F-Th**. La composition initiale du combustible ThU<sub>tho</sub>O<sub>2</sub> chargé en réacteur **M-ThU<sub>tho</sub>** a été déterminée afin d'atteindre une longueur de cycle équivalente à celle du réacteur producteur. Ainsi, avec une teneur initiale en U<sub>tho</sub> de  $3\% m_{NL}$ , la longueur de cycle obtenue est de 274 jepp (Tab. 3.9).

Paramètre		$M-U_{app}Pu/T-U_{app}/F-Th$	$\mathrm{M} ext{-}\mathrm{Th}\mathrm{U}_\mathrm{tho}$
TCT moyen cœur	(MWj/t)	33 553	33 144
Durée d'irradiation	(jepp)	$4 \times 304$	$4 \times 274$
Teneur Pu	$(\% m_{NL})$	21.0	-
Inventaire Pu $\mathrm{D}\mathrm{d}\mathrm{V}/\mathrm{F}\mathrm{d}\mathrm{V}$	(t)	$20.03 \ / \ 19.51$	- / -
Teneur $U_{\rm tho}$	$(\% m_{NL})$	-	4.0
Inventaire $U_{tho} DdV/FdV$	(t)	- / 0.38	$4.20 \ / \ 4.07$
Production Pu	(kg/TWhé)	-48.53	-
$Production \ ^{233}\mathrm{U} + \ ^{233}\mathrm{Pa}$	(kg/TWhé)	12.73	-17.67
FIR	$(\mathrm{FdV})$	0.904	0.852
Qualité Pu (DdV/FdV $+5$ ans)	(%)	56.07 / 53.28	- / -
Qualité U <sub>tho</sub> (DdV/FdV +5 ans)	(%)	- / 88.40	88.40 / 78.82

TAB. 3.9: Caractéristiques comparées des RSM M-U<sub>app</sub>Pu/T-U<sub>app</sub>/F-Th et M-ThU<sub>tho</sub>

L'inventaire en U<sub>tho</sub> immobilisé en cœur est de l'ordre de 4 t. La consommation d'<sup>233</sup>U ne dépasse pas 18 kg/TWhé grâce à une conversion  $^{232}$ Th/<sup>233</sup>U efficace, ce qui conduit à un FIR au déchargement de 0.852. Cependant, le vecteur isotopique de l'uranium se dégrade : sur les 937 kg d'<sup>233</sup>U chargés par cycle en réacteur, 212 kg sont consommés, tandis que les noyaux  $^{234}U$  et  $^{235}$ U voient leurs masses doubler entre chargement et déchargement.

Réacteur	REP UOX	RSM M- $U_{app}Pu/T-U_{app}/F-Th$	$RSM M-ThU_{tho}$
$\Delta Pu_{fissile}$ (kg/réacteur/an)	+166	-392	-
$\Delta U_{fissile}$ (kg/réacteur/an)	-	+132	-155
Nombre de réacteurs	5	2	1
% du parc	63	25	12

TAB. 3.10: Besoin en matière fissile par réacteur et par an à l'équilibre pour le parc EPR UOX / RSM M-U<sub>app</sub>Pu/T-U<sub>app</sub>/**F-Th** et RSM **M-ThU<sub>tho</sub>** 

Le bilan à l'équilibre est modifié dans le sens d'une plus grande économie des ressources (Tab. 3.10). Les résulats indiquent qu'il serait possible de substituer **37%** des REP UOX par des RSM à haut facteur de conversion. Cependant, tout comme pour le scénario A, ces estimations à l'équilibre sont sensibles aux variations de qualité des vecteurs uranium et plutonium. Le bilan en matière fissile étant très tendu, ces estimations seront probablement à revoir à la baisse. En effet, nous comptabilisons ici les besoins en plutonium et en uranium fissile. Avec le multirecyclage, la fraction  $^{241}$ Pu / ( $^{239}$ Pu +  $^{241}$ Pu) augmente, tandis que celle en  $^{233}$ U / ( $^{233}$ U +  $^{235}$ U) diminue. Ainsi, bien que la quantité de plutonium fissile diminue, il s'enrichit en isotope  $^{241}$ Pu, dont le facteur de reproduction est supérieur à celui du  $^{239}$ Pu. C'est le contraire pour le vecteur uranium, avec le multi-recyclage, les proportions d' $^{234}$ U et  $^{235}$ U augmentent au détriment de celle en  $^{233}$ U. Or le facteur de reproduction de l' $^{235}$ U en RSM n'est que de 1.6 comparé à 2.1 pour l' $^{233}$ U, ce qui amènera probablement à accroître la teneur fissile de l'inventaire initial au cours du temps.

# 3.2.2 Évaluation du RSM homogène à combustible $U_{app}U_{tho}O_2$

L'idée est ici de s'inspirer du concept de scénario symbiotique de [Carmona et al., 1981] qui a été présenté brièvement Partie I page 25. L'idéal est d'aboutir in fine à un parc composé de deux types de réacteurs à haut facteur de conversion : des RSM à combustible  $^{232}$ Th /Pu alimentant en  $^{233}$ U des RSM à combustible  $^{238}$ U/ $^{233}$ U, et consommant le plutonium produit à partir de la conversion  $^{238}$ U/ $^{239}$ Pu.

Le concept à haute conversion et à combustible  ${}^{238}U/{}^{233}U$  a été moins étudié dans la littérature en dehors du contexte restreint de ce type de scénario symbiotique. Et même dans ce cadre, c'est un REP conventionnel chargé avec du combustible  $U_{app}U_{tho}O_2$ , et non un réacteur à haut facteur de conversion, qui a été proposé [Carmona et al., 1981]. Par conséquent dans un premier temps une évaluation des performances de conversion du concept RSM à combustible  ${}^{238}U/{}^{233}U$  sera réalisée afin de déterminer ensuite son potentiel en scénario symbiotique.

#### Compléments d'étude paramétrique

Une étude cellule montre que les performances de conversion du combustible  $U_{app}U_{tho}O_2$ sont très similaires à ce qui est observé en combustible  $ThU_{tho}O_2$ . Le Tab. 3.11 détaille les résultats de l'étude paramétrique, les valeurs en rouge entre parenthèses correspondant aux cas  $ThU_{tho}O_2$ .

On remarque qu'à teneur fissile initiale identique, les longueurs de cycles obtenues en combustible  $U_{app}U_{tho}O_2$  sont supérieures à celles observées en combustible  $ThU_{tho}O_2$  (où l'empoi-

sonnement par le <sup>232</sup>Th et le <sup>233</sup>Pa en début de cycle est préjudiciable pour la longueur de cycle). Enfin, pour une teneur en U<sub>tho</sub> de  $4.5\% m_{NL}$ , la LC obtenue est de 455 jepp quelque soit le support. À ce moment, on observe que le FIR est plus favorable pour la configuration à support U<sub>app</sub>.

U <sub>tho</sub> (% $m_{NL}$ )	TCT au déchargement $(MWj/t)$	LC (jepp)	FC (DdV/FdV)	FIR
2.5	23 920	192 (62)	$0.745 \ / \ 0.897$	0.865 (0.976)
3.0	32 160	256 (182)	0.687 / 0.887	0.813 (0.878)
3.5	40 560	323 (285)	$0.642\ /\ 0.885$	0.765 (0.782)
4.0	48 720	389 (376)	0.606 / 0.883	0.723 (0.701)
4.5	57 200	455 (456)	$0.576 \ / \ 0.877$	$0.684 \ (0.635)$

TAB. 3.11: Complément d'étude sur le combustible  $U_{app}U_{tho}O_2$  en RSM (RM=0.83)

La configuration à  $3.5\% m_{NL}$  d'U<sub>tho</sub> au chargement satisfait nos besoins en termes de FIR et de LC et peut être directement comparée au cœur RSM homogène **M-Th**U<sub>tho</sub>. L'intérêt du scénario symbiotique se dégage de l'inventaire en U<sub>tho</sub> minimal en début de vie associé à une production de plutonium élevée d'excellente qualité (76% fissile). Les autres caractéristiques du cœur M-U<sub>app</sub>U<sub>tho</sub> regroupées au sein du Tab. 3.12 révèlent, qu'à teneur initiale équivalente en U<sub>tho</sub>, la longueur de cycle augmente de 43 jepp. La consommation globale de noyaux fissiles (U<sub>fissile</sub> + Pu<sub>fissile</sub>) s'élève à 20.41 kg/TWhé, contre 19.13 kg/TWhé sur support thorium.

Paramètre	$\mathrm{M} ext{-}\mathrm{Th}\mathrm{U}_{\mathrm{tho}}$	$M-U_{\rm app}U_{\rm tho}$	
TCT moyen cœur	(MWj/t)	33 144	35 016
Durée d'irradiation	(jepp)	$4 \times 274$	$4 \times 317$
Teneur $U_{\rm tho}$	$(\% m_{NL})$	3.0	3.0
Inventaire Pu $\mathrm{DdV}/\mathrm{FdV}$	(t)	- / -	$1.13\ /\ 1.74$
Inventaire $U_{tho} DdV/FdV$	(t)	$4.20 \ / \ 4.07$	$3.61 \ / \ 2.84$
Production Pu ( $Pu_{fissile}$ )	(kg/TWhé)	-	57.17 (45.26)
Production $U_{\text{tho}}$ ( $U_{fissile}$ )	$(\mathrm{kg}/\mathrm{TWh\acute{e}})$	-8.85 (-19.13)	-62.46 (-65.67)
FIR	$(\mathrm{FdV})$	0.852	0.798
Qualité Pu (DdV/FdV $+5$ ans)	(%)	- / -	- / 76.57
Qualité U <sub>tho</sub> (DdV/FdV $+5$ ans)	(%)	88.40 / 78.82	89.50 / 70.14*

TAB. 3.12: Caractéristiques comparées des RSM **M-ThU**<sub>tho</sub> et M-U<sub>app</sub>U<sub>tho</sub>. \*La qualité de l'U<sub>tho</sub> correspond à la fraction massique  $\binom{233}{U+} \frac{235}{U} (U - \frac{238}{U+} U)$ , on ne tient pas compte de l<sup>238</sup>U, constituant le support du combustible.

Ce concept est particulièrement intéressant pour l'apport significatif en excellent plutonium qu'il procure avec une production d'environ 45 kg/TWhé de plutonium fissile. Il a été montré précédemment que le facteur limitant le nombre de RSM dans le parc est le besoin en plutonium par réacteur et par an. Le facteur limitant est à présent l'<sup>233</sup>U.

Le choix du RSM producteur d'U<sub>tho</sub> pour alimenter le RSM M-U<sub>app</sub>U<sub>tho</sub> s'est porté sur le concept M-U<sub>app</sub>Pu/T-U<sub>app</sub>/**F-Th**. En effet, l'étude des bilans matières cœur en privilégiant le concept **M-ThPu**/F-U<sub>app</sub> en tant que producteur d'<sup>233</sup>U montre qu'il n'est possible de déployer que 30% de RSM au maximum, tandis qu'avec le RSM M-U<sub>app</sub>Pu/T-U<sub>app</sub>/**F-Th**, la fraction de RSM dans le parc s'élève à **37%**.

Réacteur	REP UOX	RSM M- $U_{app}$ Pu/T- $U_{app}$ / <b>F-Th</b>	RSM M- $U_{app}U_{tho}$
$\Delta P u_{fissile}$ (kg/réacteur/an)	+166	-392	+475
$\Delta U_{fissile}$ (kg/réacteur/an)	-	+132	-690
Puissance installée (GWé)	38	19	3
% du parc	63	32	5

TAB. 3.13: Besoin en matière fissile par réacteur et par an à l'équilibre pour le parc EPR UOX / RSM M-U<sub>app</sub>Pu/T-U<sub>app</sub>/**F-Th** et RSM **M-ThU**<sub>tho</sub>

Cette fraction de RSM producteurs et consommateurs d'<sup>233</sup>U dans le parc signifie une économie d'uranium naturel de **37%**. Cependant cette valeur théorique est identique à celle estimée au paragraphe précédent. Les deux concepts semblent équivalents. Cependant, dans la mesure où le RSM producteur d'<sup>233</sup>U est le concept M-U<sub>app</sub>Pu/T-U<sub>app</sub>/**F-Th**, l'<sup>233</sup>U est produit au sein de crayons de ThO<sub>2</sub>. Ce qui signifie qu'il sera plus facile de retraiter et fabriquer un combustible neuf de type ThU<sub>tho</sub>O<sub>2</sub> qu'un combustible de type <sup>238</sup>U<sup>233</sup>UO<sub>2</sub> à partir des assemblages fertiles thoriés irradiés. C'est pourquoi nous avons retenu cette solution par la suite.

## 3.3 Hypothèses et description des scénarios de transition

Les concepts RSM qui ont été sélectionnés pour cette étude sont les cœurs M-ThPu/F-  $U_{app}$  et M- $U_{app}$ Pu/T- $U_{app}$ /F-Th. Le premier a été retenu pour sa production élevée d'<sup>233</sup>U. Parmi les cœurs M-ThPu/F- $U_{app}$ , nous avons retenu celui sans tranche fertile axiale avec une teneur plutonium de 21% $m_{NL}$  dans les assemblages fissiles car c'est le concept pour lequel le besoin en plutonium fissile, exprimé en kg/an est le plus faible. Quant au second cœur qui donnera lieu à une seconde étude de scénario, il correspond au contraire à un concept plus sobre en consommation de plutonium et production d'<sup>233</sup>U. Etant donnés l'impact relativement faible des études d'optimisation qui ont été réalisées au chapitre précédent, nous avons choisi de considérer ici les cœurs les plus simples à modéliser, à performances équivalentes.

L'objectif de ces études est de déterminer quelle est la stratégie à privilégier entre production accrue d'<sup>233</sup>U ou consommation modérée de plutonium, quelle sera la durée de la période de transition vers une situation d'équilibre, et bien sûr, quelle sera l'économie d'uranium naturel comparé aux cycles UOX et mono-recyclage du MOX.

#### 3.3.1 Hypothèses générales des études de scénarios

Les hypothèses générales retenues pour les études de scénario sont :

- La puissance installée dans le parc nucléaire français est maintenue constante et égale à 60 GWé tout au long du scénario;
- Les réacteurs de génération II actuellement en exploitation seront remplacés par des réacteurs de génération III (REP UOX ou RSM) entre 2020 et 2050 au rythme de 2 GWé/an;
- La durée de vie des réacteurs de génération III est fixée à 60 ans, ce qui fixe les dates des renouvellements de parc ultérieurs à 2080 puis 2140;
- Les réacteurs de type RSM ne seront pas exploitables avant 2035 compte tenu des études complémentaires à mener et des dossiers de sûreté à élaborer;

- Le recyclage du plutonium au sein des REP (programme MONO-MOX) est abandonné en 2020 afin de préserver le plutonium pour le déploiement de RSM;
- Les stock de matières initiaux en 2005 sont ceux répertoriés par l'ANDRA [ANDRA, 2006], et détaillés dans le Tab. 3.14;
- Les temps de refroidissement après irradiation et avant transport sont fixés à 5 ans. La période de retraitement/fabrication est fixée à 2 ans.
- La dernière hypothèse qui a été prise dans le cadre de ce travail est de considérer une capacité au retraitement illimitée. Cette hypothèse nous permet d'ajuster exactement les besoins par réacteur aux stocks disponibles et de limiter le vieillissement du plutonium.

Matière	Inventaire au $31/12/04$ (t)
Uranium appauvri $(U_{app})$	240 000
Uranium de retraitement (URT)	18 000
Combustibles usés REP UOX	10 700
Combustibles usés REP MOX	700
Combustibles usés REP URE	200
Combustibles usés RNR (hors fertiles)	75
Plutonium non irradié	49

TAB. 3.14: Inventaire national 2006 de l'ANDRA [ANDRA, 2006]

Les ressources mondiales identifiées en thorium et à un prix de revient n'excédant pas 80\$ le kg sont répertoriées sur le diagramme 3.5.



FIG. 3.5: Ressources mondiales identifiées en thorium par pays, exprimées en 10<sup>3</sup> tonnes. Ces estimations concernent les ressources dont le prix de revient n'excède pas 80\$ le kg (Source : [IAEA, 2008b])

Au cours des sections précédentes, des estimations du parc à l'équilibre ont été réalisées, grâce aux bilans matières issus des calculs cœurs 3D effectués avec CRONOS2. Ces estimations sont le fruit de calculs à vecteurs isotopiques constants à la fois pour le plutonium et l'uranium. En effet, une chaîne de calcul neutronique complète, depuis la création des bibliothèques de sections efficaces au calcul cœur lui-même, nécessite plusieurs jours. Ce temps de calcul est rédhibitoire pour l'étude du multi-recyclage en l'état. Par la suite, nous utiliserons le code de scénarios COSI6 [Boucher, 2005, Meyer and Boucher, 2009] couplé à CESAR5 [Vidal, 2006]. La description de ces codes ainsi que l'élaboration des modèles physiques (bibliothèques CESAR et modèles d'équivalence teneur/isotopie) sont détaillées dans l'Annexe D.

#### 3.3.2 Description des scénarios

#### Scénario A de déploiement de RSM M-Th $PuU_{tho}/F-U_{app}$

Ce scénario se déroule en deux étapes :

- 1. Des REP à combustible UOX enrichi à 5% $m_{NL}$  en isotope <sup>235</sup>U sont déployés en remplacement du parc GEN-II à partir de 2020, puis les RSM producteurs d'U<sub>tho</sub> sont déployés après 2035 selon les stocks de plutonium (Fig. 3.6a).
- 2. Dès que les premiers combustibles irradiés provenant des  $\mathbf{M}$ -Th $\mathbf{Pu}/\mathbf{F}$ -U<sub>app</sub> sont retraités et incorporés à du combustible neuf, ils sont réintroduits au sein des  $\mathbf{M}$ -Th $\mathbf{Pu}U_{\mathbf{tho}}/\mathbf{F}$ - $U_{\mathrm{app}}$ . La composition des assemblages fissiles est alors de  $3.5\% m_{NL}$  d'U<sub>tho</sub> pour  $10\% m_{NL}$ de plutonium, sur support thorium. Les nouveaux assemblages combustibles se substituent aux assemblages Th $\mathbf{PuO}_2$ . Puis, dès que les stocks d'U<sub>tho</sub> disponibles le permettent, des RSM **M**-ThU<sub>tho</sub> sont déployés en remplacement de REP (Fig. 3.6b).



FIG. 3.6: Schéma simplifié de déploiement des M-ThPuU<sub>tho</sub>/F-U<sub>app</sub>

#### Scénario B de déploiement de RSM $M-U_{app}Pu/T-U_{app}/F-Th$

Le schéma de principe de ce scénario est presque identique au scénario A, excepté que cette fois, tout l'U<sub>tho</sub> produit est multirecyclé au sein des RSM **M-Th** $U_{tho}$ . Ainsi, pendant la première strate (Fig. 3.7a), l'U<sub>tho</sub> est entreposé en attendant le renouvellement de parc suivant en 2080. À partir de cette date, les **M-ThU<sub>tho</sub>** sont introduits en lieu et place de REP selon les stocks d'U<sub>tho</sub> disponibles (Fig. 3.7b). Cette gestion est rendue possible grâce au meilleur bilan plutonium des M-U<sub>app</sub>Pu/T-U<sub>app</sub>/**F-Th** comparé aux **M-ThPu**/F-U<sub>app</sub>.



FIG. 3.7: Schéma simplifié de déploiement des  $M-U_{app}Pu/T-U_{app}/F-Th$ 

# 3.4 Analyse des études de scénarios de transition

### 3.4.1 Scénario A de déploiement des RSM M-ThPu/F-U<sub>app</sub>

La fraction de RSM qu'il est possible d'introduire dans le parc en complément des REP à combustible UOX s'élève à **30%**, soit 18 GWé sur les 60 au total. Cela représente une économie d'uranium annuelle à l'équilibre de 30% directement. Le déroulement du scénario et les différentes phases sont illustrés par la Fig. **3**.8.

Une caractéristique propre au passage d'un parc basé sur le cycle uranium à un parc incluant le cycle thorium est la durée de la période de transition. On remarque sur la Fig. 3.8 que cette période est de l'ordre d'une génération de réacteur et que le parc n'est à l'équilibre qu'à partir de 2110 pour un premier déploiement de RSM en 2040.

Par rapport aux estimations préliminaires réalisées à partir des bilans de matières issus des calculs cœurs de référence, on remarque que les résultats sont bien en-dessous des prévisions avec 30% au lieu de 37%. En fait, le nombre de **M-ThPu** $U_{\text{tho}}$ /F-U<sub>app</sub> déployés correspond aux prévisions, mais ce n'est pas du tout le cas des **M-Th** $U_{\text{tho}}$ . Afin de comprendre pourquoi et



FIG. 3.8: Répartition des réacteurs dans le parc en fonction du temps

de vérifier si les besoins en matières sont bien stabilisés, nous traçons l'évolution des stocks de plutonium et d'uranium disponibles dans le cycle pour la fabrication de combustible neuf.



FIG. 3.9: Inventaires en ressources plutonium et  $U_{tho}$  disponibles (c'est-à-dire refroidies et retraitées, et pas encore en usine de fabrication de combustible neuf) dans le cycle pour la fabrication de combustible neuf

La Fig. 3.9a montre que les flux de plutonium fissile sont stabilisés avec un inventaire plancher de 150 t en 2130. Les réserves de plutonium augmentent continûment jusqu'en 2040 environ, suite à l'arrêt du programme de recyclage du MOX. Le déploiement des RSM débute à partir de 2040, ce qui explique la chute brutale de l'inventaire en plutonium. Une diminution des stocks est observée de nouveau à partir de 2100, date à laquelle 2 GWé de réacteur **M-ThU**<sub>tho</sub> sont introduits dans le parc en remplacement de 2 GWé de REP UOX. Cependant, les réserves en  $U_{tho}$  au début du siècle prochain (Fir. 3.9b) sont beaucoup plus limitées et sont en-dessous des 10 t en 2130. On observe une légère tendance à la hausse à partir de 2130, ce qui pourrait permettre, compte tenu des réserves en plutonium, de continuer à déployer très lentement un ou deux **M-ThU**<sub>tho</sub> supplémentaire.

Le point important révélé par ces courbes est la très forte dégradation du vecteur  $U_{tho}$ à cause des multi-recyclages en **M-ThPu** $U_{tho}$ /F-U<sub>app</sub>. Ainsi, en 2070 l'U<sub>tho</sub> disponible à la fabrication possède plus de 85% d'isotopes fissiles, tandis que cette qualité chute à un peu plus de 65% fissile en fin de scénario. Cependant, il n'est pas possible d'éviter qu'une partie de l'U<sub>tho</sub> ne soit recyclée en **M-ThPu** $U_{tho}$ /F-U<sub>app</sub>, ainsi que le démontre la pente de la courbe des stocks de plutonium entre 2040 et 2050, date à laquelle l'U<sub>tho</sub> commence à être recyclé. Evidemment, une optimisation fine et laborieuse année par année des réacteurs et des flux de matière pourrait permettre d'améliorer le bilan final. Cependant, compte tenu des incertitudes liées à la modélisation du parc et des hypothèses retenues, l'ordre de grandeur calculé est valide.

Revenons aux variations isotopiques des vecteurs  $U_{tho}$  et plutonium. Le nombre de RSM mixtes de type M-ThPu $U_{tho}$ /F-U<sub>app</sub> est bien supérieur à la fraction de RSM M-Th $U_{tho}$  dans le parc. Par conséquent, ce sont ces premiers qui imposeront la composition isotopique de l'U<sub>tho</sub> à un instant donné. La Fig. 3.10b montre que la qualité de l'uranium se stabilise aux environs de 75% en entrée et 65% en sortie. La composition isotopique du plutonium se stabilise plus rapidement autour de 40% (voir Fig. 3.10a), car l'équilibre s'effectue entre le plutonium issu des REP UOX et celui des RSM M-ThPu $U_{tho}$ /F-U<sub>app</sub> dont le combustible n'est plus modifié après 2110. Des "pics de qualité" sont observés à certaines dates. En particulier le plutonium connaît une forte augmentation de sa fraction fissile peu après 2050, directement en phase avec le pic de retraitement du plutonium des REP UOX d'excellente qualité (62% fissile). Un deuxième pic est observé vers 2095, qui correspond cette foix à l'incorporation du plutonium issu de l'irradiation des assemblages fertiles en U<sub>app</sub>, à plus de 80% fissile.



FIG. 3.10: Qualité des vecteurs plutonium et U<sub>tho</sub> en entrée et sortie des réacteurs **M-ThPu**U<sub>tho</sub>/F-U<sub>app</sub> pour le plutonium et **M-ThU**<sub>tho</sub> pour l'U<sub>tho</sub>

Enfin, bien qu'une économie annuelle de 30% de l'uranium naturel soit réalisée en comparaison à un cycle UOX ouvert, et de 22% par rapport au monorecyclage du MOX, le besoin cumulé en thorium naturel est à prendre en considération. En effet, en 2130, le besoin cumulé en <sup>232</sup>Th se chiffre à 17 000 t, soit l'équivalent de **0.8%** des ressources mondiales identifiées et dont le prix de revient est inférieur à 80\$ le kg [IAEA, 2008b]. Le <sup>232</sup>Th des assemblages irradiés peut être retraité et servir à la fabrication de combustible neuf, moyennant soit une séparation isotopique avec le <sup>228</sup>Th, soit une séparation chimique avec l'uranium et un temps de refroidissement suffisant, soit encore en envisageant son retraitement derrière des blindages radiologiques en raison des émétteurs  $\gamma$  issus de la chaîne de filiation de l'<sup>232</sup>U (voir page 29). En conclusion de ce scénario, une économie de 30% d'uranium naturel par rapport au cycle UOX ouvert est réalisée. Cependant la durée de la période de transition est de l'ordre de 60 ans. Des hypothèses volontaristes ont été retenues quand à la capacité au retraitement des usines afin de limiter le vieillissement du plutonium lors de son stockage. Cependant, malgré cela, la qualité du plutonium en sortie des **M-ThPu**U<sub>tho</sub>/F-U<sub>app</sub> n'est que de 40% à l'équilibre, compensée par la production de plutonium en REP. Sans le recyclage partiel de l'U<sub>tho</sub> au sein de ces réacteurs, le plutonium deviendrait le facteur limitant au déploiement des RSM. Dans cette situation précise, le facteur limitant est en fait l'U<sub>tho</sub>. En effet, ce vecteur s'enrichit de plus en plus en isotopes  $^{234}$ U et  $^{235}$ U au fur et à mesure des multi-recyclages, ce qui nécessite d'augmenter sa teneur initiale dans le combustible neuf, et donc nuance fortement les prévisions des paragraphes précédents.

#### 3.4.2 Scénario B de déploiement des RSM M- $U_{app}Pu/T-U_{app}/F-Th$

Ce scénario conduit également à une fraction maximale de RSM dans le parc de 30%, soit une économie annuelle d'uranium naturel à l'équilibre de 30% par rapport au cycle ouvert UOX. Toutefois ce scénario est plus complexe et surtout sa période de transition est multipliée par deux. La situation d'équilibre est tout juste atteinte en 2200. Des prévisions à cette échelle de temps sont utopistes et incertaines, néanmoins elles fournissent des informations pour orienter les recherches.

Trois phases se distinguent essentiellement dans ce scénario. Une première étape entre 2020 et 2050 permet de déployer 14 GWé de RSM M-U<sub>app</sub>Pu/T-U<sub>app</sub>/**F-Th** compte tenu des stocks de plutonium disponibles à ces dates. Pendant ce temps, l'U<sub>tho</sub> est stocké jusqu'en 2080, date à laquelle il servira à la fabrication de combustible ThU<sub>tho</sub>O<sub>2</sub>. Un équilibre s'est instauré entre production de plutonium en REP et consommation en RSM, ainsi que l'illustre la Fig. 3.12a. À partir de 2060 les stocks augmentent suite au remplacement d'un RSM M-U<sub>app</sub>Pu/T-U<sub>app</sub>/**F-Th** par un RSM homogène **M-Th**U<sub>tho</sub>.



FIG. 3.11: Répartition REP/RSM des réacteurs dans le parc

On remarque également que les résultats de cette étude de scénario sont bien loin de ceux prévus à partir des bilans matières cœur. En effet, ce calcul n'a pas permis d'anticiper la dégradation de la teneur en <sup>233</sup>U du vecteur U<sub>tho</sub> et l'augmentation du besoin en uranium qui en

résulte (Fig. 3.12b). En 2200, date de fin du scénario, l'équilibre n'est pas encore atteint sur la composition isotopique de l'uranium.



FIG. 3.12: Inventaires en ressources plutonium et  $U_{tho}$  disponibles dans le cycle pour la fabrication de combustible neuf

Ce scénario s'appuie sur un concept de RSM producteur d' $U_{tho}$  plus sobre et modéré en terme de consommation de plutonium. Cependant, la conclusion des résultats obtenus est que ce cas est en fait moins favorable à une transition vers un parc mixte à RSM thoriés.

#### 3.4.3 Analyse des résultats comparés des scénarios RSM

Les deux scénarios étudiés conduisent au même résultat : la fraction de RSM qu'il est possible de déployer dans le parc se limite à 30%. Cependant, des points importants ont émergé de cette étude. Tout d'abord, la différence entre un concept de type **M-ThPu**/F-U<sub>app</sub> qui produit vite une quantité importante d'<sup>233</sup>U au détriment d'une consommation de plutonium accrue et un concept de type M-U<sub>app</sub>Pu/T-U<sub>app</sub>/**F-Th** plus sobre, réside principalement dans la durée de la période de transition entre le déploiement des premiers RSM à combustible thorié et le parc final à l'équilibre. Cette période de transition peut aller de une à deux générations de réacteur.

Ensuite, bien que sa période de transition soit plus longue, le scénario B de déploiement des  $M-U_{app}Pu/T-U_{app}/F-Th$  est plus souple et permet de séparer les cycles  $U_{app}/Pu$  et  $Th/U_{tho}$ . Dans tous les cas, les résultats obtenus sont à comparer avec les scénarios de référence du parc français, c'est-à-dire la poursuite du mono-recyclage du plutonium dans des REP chargés partiellement en combustible MOX (gestion parité MOX), ou passage à un cycle ouvert avec parc REP chargé exclusivement avec des combustibles UOX. Dans le premier cas, l'UOX irradié est retraité et sert à la fabrication de combustible MOX neuf. Dans le second cas, le mono-recyclage du plutonium est stoppé en 2038.

Les résultats obtenus sont à comparer avec les deux scénarios de références que sont "UOX ouvert" (passage en cycle ouvert à partir de 2038 avec un parc REP chargé exclusivement avec des combustibles UOX) et "Mono-MOX" (c'est-à-dire de poursuite du mono-recyclage du plutonium dans des REP chargés partiellement en combustible MOX selon la gestion parité MOX). La Fig. 3.13 met en évidence la similarité des deux scénarios en terme de besoin en uranium naturel au cours du temps. D'autre part, jusqu'en 2100 environ les gains en uranium naturel sont très faibles. Ce n'est qu'à partir de cette date que la fraction de RSM dans le parc permet de modifier significativement la pente de la courbe du besoin en U<sub>nat</sub>.



FIG. 3.13: Comparaison des besoins en uranium naturel entre les scénarios À et B, le scénario de poursuite du mono-recyclage du MOX en REP et le scénario REP UOX en cycle ouvert

Les besoins annuels et cumulés en uranium naturel des scénarios À et B ont été comparés à ceux des scénarios de référence aux dates 2140 et 2180 (Tab. 3.15). La date 2140 constitue la date charnière entre la 2<sup>ème</sup> et la 3<sup>ème</sup> génération de RSM thoriés. À cette date, le parc du scénario A a atteint sa situation d'équilibre, ce qui n'est pas le cas du scénario B. La date 2180 permet de comparer les deux scénarios dans leur situation d'équilibre (fraction de RSM maximale).

Annóc	Année	Économio	Comparaison au cycle "UOX ouvert"		Comparaison au cycle "MONO-MOX"	
Annee		Economie	Scénario A	Scénario B	Scénario A	Scénario B
9140	2140	annuelle	-30%	-30%	-22%	-22%
	2140	cumulée	-20 %	-21%	-13%	-14%
	2180	annuelle	-31%	-34%	-23%	-26%
		cumulée	-23%	-24%	-15%	-16%

TAB. 3.15: Comparaison des besoins en uranium naturel des scénarios À et B par rapport aux scénarios de références "UOX ouvert" et "mono-MOX" en 2140 et 2180

Le Tab. 3.15 met en évidence que le gain annuel moyen par rapport au cycle "UOX ouvert" et de **30%** (**20%** en cumulé) tandis que le gain annuel par rapport au scénario "Mono-MOX" se situe autour de **22%** en 2140, et de **14%** si l'on compare les besoins cumulés.

Enfin, l'analyse du multi-recyclage des ressources fissiles, plutonium et  $U_{tho}$ , amène aux deux conclusions suivantes. La première est qu'un effort d'optimisation sur les réacteurs de la dernière strate, c'est-à-dire les RSM homogènes à combustible Th $U_{tho}O_2$ , pourrait permettre

d'assouplir l'approvisionnement en  $^{233}$ U et d'accroître légèrement le nombre de RSM dans le parc à l'équilibre.

La seconde conclusion est que tout le potentiel du passage à un cycle mixte uranium-thorium n'est pas exploité car la production d'<sup>233</sup>U (et son recyclage) est conditionnée par la part de RSM producteurs d'<sup>233</sup>U qu'il est possible de déployer dans le parc. Or cette strate intermédiaire est elle-même limitée par les inventaires de plutonium disponibles. Cette remarque conduit à une conclusion : la constitution d'un stock de démarrage d'<sup>233</sup>U(pour 2040), permettrait d'assouplir considérablement les contraintes, à la fois sur le besoin en plutonium et sur le besoin en U<sub>tho</sub>.

Cela est rendu possible en irradiant du thorium en REP UOX ou REP MOX standard.

Dans ce chapitre nous avons mis en place des méthodes d'estimation des teneurs fissiles en fonction de leurs variations isotopiques par l'intermédiaire de la théorie des facteurs d'équivalence. Des études préliminaires assemblage/cœur nous ont permis d'appréhender la physique du multi-recyclage de l' $U_{tho}$  et du plutonium afin d'élaborer les stratégies les plus pertinentes, c'est-à-dire visant la plus grande économie d'uranium naturel. L'attention s'est focalisée principalement sur deux concepts de cœur producteurs d' $U_{tho}$ , le **M-ThPu** $U_{tho}/F$ - $U_{app}$  et le M- $U_{app}Pu/T$ - $U_{app}/F$ -**Th**. Ces réacteurs ont été sélectionnés en fonction des deux critères FIR et production d' $U_{tho}$ , et également en fonction de leur simplicité de mise en oeuvre.

Des études de scénarios réalisées avec le code COSI6 couplé à CESAR5 ont permis de vérifier les résultats estimés à partir des bilans matières cœur. En particulier, la prise en compte des dégradations isotopiques des vecteurs uranium et plutonium dans le cycle modifient les résultats et pénalisent les estimations à l'équilibre. Par ailleurs, la période de transition relativement longue (allant de une à deux générations de réacteurs) est un résultat particulièrement important.

L'ordre de grandeur de l'économie d'uranium naturel par rapport au cycle UOX ouvert (quel que soit le scénario) se limite à 30%. Les résultats pourraient être considérablement modifiés si un stock initial d' $U_{tho}$  était déjà constitué au moment du déploiement des premiers RSM à l'horizon 2040. Cela n'est possible qu'en irradiant du thorium en REP UOX ou MOX standard.
## Chapitre 4

# Évaluation de l'impact de la production anticipée d'<sup>233</sup>U en REP

Le chapitre précédent a mis en évidence que le déploiement des RSM à haut facteur de conversion était limité par le besoin en plutonium. Par ailleurs, la cinétique de transition très lente d'un parc REP à un parc mixte REP-RSM, est de l'ordre de deux générations de réacteurs. Enfin, la consommation en flux tendu de l'U<sub>tho</sub> favorise sa dégradation isotopique au cours des multi-recyclages et accroît le besoin en U<sub>tho</sub>. Dans le cadre de ces hypothèses, l'économie annuelle d'uranium naturel qui est réalisée à l'équilibre est de 30% par rapport au cycle ouvert. Cependant, le potentiel du cycle  $^{232}$  Th/ $^{233}$ U n'est pas exploité au maximum du fait de la dépendance aux ressources en plutonium. Ce bilan serait sûrement modifié si un stock d'U<sub>tho</sub> était disponible aux environs de 2040, date probable de déploiement des RSM, afin d'alléger la contrainte sur le plutonium.

Ainsi, l'objectif de ce chapitre est d'évaluer comment la production anticipée d'<sup>233</sup> U au sein de REP dès 2020 peut permettre de favoriser la transition vers un cycle symbiotique REP/RSM. Pour cela, nous déterminerons un (ou plusieurs) concept d'assemblage REP thorié en privilégiant la simplicité et la séparation spatiale des zones thorium et uranium. Il est important de souligner que la constitution d'un stock d'U<sub>tho</sub> se fera au détriment du stock de plutonium. Par conséquent cette détermination se fera en évaluant les capacités de production en <sup>233</sup> U et en plutonium sur un parc entièrement composé de REP thoriés sur la période 2020-2040. Enfin, ces cœurs seront intégrés à une stratégie de transition vers un parc mixte composé de REP et de RSM et l'impact sur l'économie des ressources sera évaluée.

## 4.1 Stratégie de déploiement des RSM avec production d'<sup>233</sup>U anticipée en REP

Le chapitre précédent a montré des résultats similaires en terme d'économie des ressources pour les deux scénarios étudiés. Cependant, le scénario construit à partir du réacteur M-U<sub>app</sub>Pu/T- $U_{app}/F$ -Th est plus simple dans le sens où les aspects production et recyclage de l'<sup>233</sup>U sont complètement séparés, et surtout les besoins en matière fissile par réacteur sont plus faibles. En effet, le besoin en uranium fissile de type U<sub>tho</sub> dans les réacteurs M-ThU<sub>tho</sub> est de 155 kg/réacteur/an. Ce besoin correspond à l'ordre de grandeur de la production d' $U_{fissile}$  en M- $U_{app}$ Pu/T-U<sub>app</sub>/F-Th (+132 kg/réacteur/an). De plus, ce RSM consomme peu et dégrade peu son plutonium : son besoin en  $Pu_{fissile}$  n'est que de 392 kg/réacteur/an (hors période de démarrage).



FIG. 4.1: Stockage des matières fissiles à partir de 2020 jusqu'à la date de déploiement des RSM

L'idée est donc de se servir de la nouvelle génération de réacteurs REP qui va remplacer le parc GEN II à partir de 2020, afin de constituer les stocks de démarrage des RSM **M**-**Th** $U_{tho}$ . La disponibilité de ressources en U<sub>tho</sub> à l'horizon 2040 - 2050 devrait permettre de déployer conjointement (et non plus l'un après l'autre) à la fois des RSM au plutonium (de type M-U<sub>app</sub>Pu/T-U<sub>app</sub>/**F-Th**) et des RSM à l'U<sub>tho</sub> (de type **M-Th** $U_{tho}$ ), selon le schéma de la Fig. 4.1. Auparavant, le choix du concept de RSM se faisait en fonction d'un compromis sur la consommation de plutonium et la production d'U<sub>tho</sub>. À présent, il paraît judicieux au contraire de sélectionner un cœur qui permette d'apporter un appoint en U<sub>tho</sub>, mais surtout qui consomme peu de plutonium. Ces remarques nous conduisent à envisager le schéma de la Fig. 4.2.



FIG. 4.2: Schéma du parc à l'équilibre ( $U_{fissile}$  correspond aux masses  $d^{235}U$  et  $d^{233}U$  du vecteur  $U_{tho}$ )

Ce parc à trois strates présente l'avantage de son inconvénient, c'est-à-dire qu'il est composé de trois types de réacteurs hétérogènes ou homogènes à combustibles mixtes, ce qui permet beaucoup de flexibilité et une grande liberté d'ajustement. Cependant la liberté des paramètres rend complexe l'optimisation de ce système à trois corps. L'étude doit permettre d'aboutir sur un concept équilibrant production et consommation d'U<sub>tho</sub> et de plutonium selon les ordres de grandeur des besoins en ressources fissiles de la Fig. 4.2.

### 4.2 Détermination d'un cœur REP thorié pour la production d'<sup>233</sup>U anticipée

Le domaine d'étude déterminé au chapitre III.1 a montré un gain potentiel sur le facteur de conversion à utiliser un combustible de nature ThUO<sub>2</sub> en spectre thermique. Le gain sur le FC est d'autant plus élevé que le rapport des masses Th/(Th+U) est grand. En restant dans les limites d'un enrichissement à 20% de l'uranium en isotope <sup>235</sup>U, nous considèrerons le combustible oxyde thorié composé de 75% $m_{NL}$  de <sup>232</sup>Th, 20% $m_{NL}$  d'<sup>238</sup>U et de 5% $m_{NL}$  d'<sup>235</sup>U.

#### 4.2.1 Potentiel du concept à assemblages homogènes ThUO<sub>2</sub>

Nous rappelons que la simplicité et la flexibilité sont des critères de conception et de choix importants à ce niveau. Par conséquent nous commençons par étudier le cas d'un assemblage homogène constitué d'un mélange d'oxyde de thorium  $(75\% m_{NL})$  et d'oxyde d'uranium  $(25\% m_{NL})$ . L'uranium est enrichi à 20% en isotope <sup>235</sup>U, ce qui conduit à une fraction massique d'<sup>235</sup>U dans l'assemblage de  $5\% m_{NL}$ . Nous comparons les masses par noyau fissile à un taux de combustion final de 60 GWj/t avec le bilan matière d'un assemblage UO<sub>2</sub> traditionnel d'uranium enrichi à  $5\% m_{NL}$ . Les résultats font l'objet du Tab. 4.1.

Isotope	homogène $UO_2$	homogène $ThUO_2$
$^{233}\mathrm{U}$	-	425
$^{235}\mathrm{U}$	-1343	-1340
<sup>239</sup> Pu	181	64
$^{241}$ Pu	58	24
total	-1105	-827

TAB. 4.1:  $\Delta m \ (kg/lot \ de \ 60 \ assemblages)$  par noyaux fissiles entre 0 et 60 GWj/t

Nous constatons une différence significative sur la production globale d'isotopes fissiles en passant à un combustible mixte contenant du thorium. Pour comprendre l'impact du mélange homogène  $^{232}$ Th/ $^{238}$ U sur la production fissile, nous observons la répartition des taux d'absorption neutroniques entre noyaux fertiles et noyaux fissiles dans le combustible entre début et fin d'irradiation (Tab. 4.2). Les taux normalisés à cent absorptions mettent en évidence que l'absorption fissile diminue au profit des fertiles, et ce tout au long de l'irradiation, d'où une meilleure conversion.

% absorptions	homogè	ne $UO_2$	homogène $ThUO_2$		
	$\tau_{abs}$ fertile	$\tau_{abs}$ fissile	$\tau_{abs}$ fertile	$\tau_{abs}$ fissile	
$0~{ m GWj/t}$	29	71	35	65	
$60 \ \mathrm{GWj/t}$	39	61	43	57	

TAB. 4.2: Répartition des taux d'absorptions, normalisés à 100 absorptions

Cela s'explique par la complémentarité des noyaux  $^{238}$ U et  $^{232}$ Th : les sections efficaces de capture de ces deux noyaux, condensées à 26 groupes d'énergie sur le spectre d'un REP (Fig. 4.3) indiquent que la capture du  $^{232}$ Th sera prépondérante dans le domaine thermique, tandis que le domaine épithermique sera privilégié par l'<sup>238</sup>U.



FIG. 4.3: Sections efficaces de capture de <sup>232</sup> Th et <sup>238</sup> U condensées à 26 groupes d'énergie

L'introduction de  $^{232}$ Th en REP est d'autant plus intéressante que pour une même longueur de cycle, la réactivité en début de vie diminue et la conversion augmente (Fig. 4.4).



FIG. 4.4: Évolution du k<sub>infini</sub> avec le taux de combustion (assemblage en milieu infini)

L'assemblage homogène mixte ThUO<sub>2</sub> nécessite cependant que 25% de la masse combustible soit de l'uranium enrichi à 20%. Or, l'adaptation des usines d'enrichissement mis à part, enrichir 25% du combustible à 20% en <sup>235</sup>U ne nécessite pas plus d'uranium naturel que d'enrichir 100% du combustible à 5%. Un rapide calcul montre que dans les deux cas il faut environ 6.5 t d'uranium naturel pour fabriquer le combustible d'un assemblage REP, que celui-ci soit constitué de 100% d'UO<sub>2</sub> enrichi à 5% en <sup>235</sup>U ou de 25% d'UO<sub>2</sub> enrichi à 20% en <sup>235</sup>U.

Calculons le déficit cumulé en plutonium entre 2020 et 2040, date prévisionnelle de déploiement des RSM, ainsi que la production cumulée en <sup>233</sup>U pour le démarrage des RSM **M-Th** $U_{\text{tho}}$ . La lecture du Tab. 4.1 indique que l'assemblage UO<sub>2</sub> produit (181 + 58) = 239 kg de Pu<sub>fissile</sub> tandis que l'assemblage ThUO<sub>2</sub> produit  $(64 + 24) = 88 \ kg$  de  $Pu_{fissile}$ , soit 151 kg de moins par lot d'assemblages déchargés. Cela correspond à :

- 100 kg/réacteur/an environ sachant que la longueur de cycle est estimée à 450 jepp à partir du calcul assemblage en prenant comme hypothèse 2500 pcm de fuites neutroniques;
- 4 t/an pour le parc français environ, sachant que la production électrique du parc nucléaire est de 60 GWé, soit 40 réacteurs de 1500 MWé;
- 80 t de  $Pu_{fissile}$  sur la période 2020 2040.

De la même manière, la production d'<sup>233</sup>U par cycle dans un REP est de 425 kg/lot, soit une production annuelle de 283 kg/réacteur/an. Ramené à un parc de 40 réacteurs sur 20 ans, la production cumulée s'élève à 226 t. Sachant que le besoin en <sup>233</sup>U pour démarrer et alimenter un **M-ThU**<sub>tho</sub> pendant 8 ans s'élève à 11 t environ, cette production est trop élevée, comparée au déficit en plutonium fissile de 80 t. En effet, soit cette réserve est entièrement mobilisée afin de démarrer le maximum de réacteurs à <sup>233</sup>U, soit le nombre de réacteurs consommateurs d'<sup>233</sup>U est limité, et déployé conjointement avec des réacteurs consommateurs de plutonium. Le premier cas est exclu car le nombre de réacteurs à entretenir sera limité par la capacité annuelle de production en <sup>233</sup>U du parc (qui seront nécessairement des REP à combustible thorié). Dans le second cas, il est préférable de conserver une capacité de production de plutonium, en visant un inventaire d'<sup>233</sup>U en 2040 juste suffisant pour démarrer les RSM consommateurs d'<sup>233</sup>U.

Le recensement des stocks de plutonium acquis, ainsi que la projection de l'évolution de ce stock jusqu'en 2040 dans un parc français constitué de REP à combustible UOX avec arrêt du programme de mono-recyclage du MOX, amènent à un bilan en  $Pu_{fissile}$  de 220 t en 2040 [Coquelet-Pascal et al., 2011]. Par conséquent, une réduction de 80 t correspond à une perte de plus de 36% de l'inventaire prévisionnel de  $Pu_{fissile}$  que l'on obtiendrait sans déploiement de REP thoriés. Or, pour utiliser pleinement l'inventaire de plutonium et pouvoir déployer à la fois des RSM M-U<sub>app</sub>Pu/T-U<sub>app</sub>/**F-Th** et des RSM ThU<sub>tho</sub>O<sub>2</sub> il faut d'une part que les stocks de démarrage soient disponibles à partir de 2040, et d'autre part que les besoins/productions en matières fissiles par réacteur s'équilibrent hors phases de démarrage. C'est pourquoi il n'est pas recherché ici la production d'U<sub>tho</sub> maximale, mais plutôt la production cumulée d'U<sub>tho</sub> suffisante pour constituer les stocks de démarrage, ainsi qu'il l'a été présenté Fig. 4.1.

#### 4.2.2 Revue bibliographique des concepts de REP thoriés

L'étude de REP à combustible thorium a fait l'objet de nombreuses publications, motivées par des objectifs très variés. Nous ne retiendrons ici que celles qui évaluent des concepts sans rupture technologique avec les REP actuels pour être mises en oeuvre d'ici 2020. Les deux concepts les plus pertinents vis-à-vis de ce cahier des charges sont les concepts Whole Assembly as Seed and Blanket (WASB) [Wang et al., 2002] et Seed Blanket Unit (SBU) [Todosow and Kazimi, 2004]. Le premier consiste à disposer en damier dans le cœur des assemblages composés d'UO<sub>2</sub> et des assemblages composés de ThUO<sub>2</sub> tandis que le second descend le niveau d'hétérogénéité à l'assemblage avec une partie centrale en crayons d'UO<sub>2</sub> et 2 ou 3 couronnes périphériques en ThUO<sub>2</sub>. Les auteurs ont démontré en particulier que les deux concepts permettent d'aboutir aux mêmes performances en terme de conversion.

Le concept WASB facilité le retraitement des assemblages mais complique l'élaboration des plans de chargement et de la gestion des variations de puissances inter assemblages. Les études thermohydrauliques préliminaires font apparaître notamment un  $\text{REC}_{min}$  en-dessous de la valeur seuil de 1.3 [Wang et al., 2002]. La gestion des assemblages *seed* et *blanket* est décorrélée : les premiers sont rechargés par tiers tous les 18 mois, tandis que les seconds resteront en cœur pendant l'équivalent de neuf cycles de lots *seed*. Le problème associé à un temps de résidence très long est la tenue de la gaine et la rétention des produits de fission [Lee et al., 2004]. Les crayons *seed* sont annulaires afin de pouvoir accueillir des crayons de poisons consommables pour la gestion de la réactivité en début de vie et de laisser de l'espace aux PF gazeux. Ils permettent également de pouvoir augmenter le rapport de modération localement.

Le concept SBU implique des opérations de contrôle supplémentaires à la fabrication de l'assemblage et des opérations de séparation après irradiation afin de diviser en deux lots les crayons UOX et ThUO<sub>2</sub>. Cependant, un plan de chargement classique peut être employé, et les pics de puissance sont atténués au niveau du cœur car le niveau d'hétérogénéité se situe à l'échelle du crayon dans l'assemblage. L'uniformisation des distributions de puissance peut être recherchée en jouant sur les teneurs fissiles par crayon [Shwageraus et al., 2004].

Par conséquent, compte tenu de la similarité des performances de conversion et des particularités de gestion, le concept SBU sera préféré au concept WASB. Maintenant que cette voie a été sélectionnée, nous allons passer à sa réappropriation et à son étude.

#### 4.2.3 Compléments d'étude d'assemblages REP thoriés

#### Étude d'assemblages hétérogènes UO<sub>2</sub>-ThUO<sub>2</sub>

Pour déterminer la répartition seed/blanket au sein de l'assemblage, nous commençons par observer le spectre neutronique en différents crayons. Un  $8^{\rm ème}$  d'assemblage REP 17 × 17 est illustré sur la Fig. 4.5 et les crayons particularisés sont repérés par un fond jaune. Leur choix permet de caractériser le spectre de flux dans l'assemblage : le crayon 1 au centre de l'assemblage, loin des trous d'eau, les crayons 10 et 24 en milieu d'assemblage, influencés par les trous d'eau, et le crayon 38 proche de la lame d'eau inter-assemblage. On remarque que le spectre neutronique diffère très peu entre deux cellules de l'assemblage. De la même manière, le niveau de flux est identique quelque soit le crayon considéré.

Par conséquent, cela semble indifférent de zoner le centre ou la périphérie de l'assemblage. Nous choisissons donc d'étudier les assemblages dont les couronnes périphériques sont composées de crayons en ThUO<sub>2</sub>. L'unique paramètre à déterminer est en réalité la proportion *seed / blanket* dans l'assemblage.

Les configurations à 1, 2 et 3 couronnes périphériques en ThUO<sub>2</sub> ont été évaluées. La composition des crayons *seed* est de l'UOX (uranium enrichi à 5% $m_{NL}$  en isotope <sup>235</sup>U). Les crayons *blanket* sont composés de 75% $m_{NL}$  de ThO<sub>2</sub> et 25% $m_{NL}$  d'UO<sub>2</sub> (uranium enrichi à 20% $m_{NL}$  en <sup>235</sup>U). La fraction massique totale d'<sup>235</sup>U dans le combustible des crayons blanket est de 5% $m_{NL}$ (4.1).

$$\% m_{NL} \ ^{235}U = 100 \times \frac{m(^{235}U)}{m(^{232}Th) + m(^{235}U) + m(^{238}U)}$$
(4.1)



FIG. 4.5: Spectres neutroniques normalisés

Pour sélectionner la configuration d'assemblage la plus pertinente au regard des besoins mis en évidence, les capacités de production en noyaux fissiles ont été évaluées sur un parc composé à 100% de REP thoriés sur la période 2020-2040. Les résultats de la comparaison des trois configurations hétérogènes font l'objet du Tab. 4.3 et mettent en évidence que la consommation d'<sup>235</sup>U est peu sensible au nombre de couronnes thoriées d'une part, et que la production d'<sup>233</sup>U est sensiblement proportionnelle au nombre de crayons thoriés d'autre part. Enfin, une forte diminution du déficit cumulé en  $Pu_{fissile}$  est constaté par rapport au cas homogène sur la période 2020 - 2040. Par exemple, pour deux couronnes thoriées (soit 45% du volume combustible de l'assemblage), le déficit en  $Pu_{fissile}$  est réduit à 46 t, tandis que le stock d'<sup>233</sup>U pronostiqué en 2040 se chiffre à 94 t, soit de quoi démarrer environ 8 RSM **M-Th** $U_{tho}$ . Le déficit en plutonium se creuse avec le nombre de crayons thoriés tandis que la production d'<sup>233</sup>U augmente. Par conséquent la configuration à deux couronnes périphériques a été sélectionnée car elle constitue un compromis entre ces deux ressources. L'assemblage qui en résulte possède un nombre de crayons en ThUO<sub>2</sub> équivalent au nombre de crayons en UO<sub>2</sub>.

Paramètre		1 cour.	2 cour.	3 cour.
Nb cray. Seed $(UO_2)$		201	145	109
Nb cray. Blanket $(ThUO_2)$		64	120	156
Production <sup>233</sup> U	(kg/an)	64	117	152
Excédent cumulé d' $^{233}$ U	(t)	51	94	121
Production $Pu_{fissile}$	(kg/an)	122	101	87
Déficit cumulé en $Pu_{fissile}$	(t)	29	46	57
Production <sup>235</sup> U	(kg/an)	-901	-885	-875

TAB. 4.3: Caractéristiques principales par configuration et par assemblage REP

Compte tenu des plus fortes réactivités observées en début de vie, une gestion par modification de la concentration en bore par paliers a été effectuée. Le bore est un absorbant neutronique, particulièrement efficace en spectre thermique. Par conséquent l'introduction de bore va modifier le spectre neutronique. La concentration initiale en bore a été prise à 2000 ppm (pour la configuration d'assemblage à 2 couronnes périphériques thoriées) et l'évolution du  $k_{infini}$  assemblage et du  $k_{effectif}$  cœur (calculé à partir du  $k_{infini}$  assemblage) sont illustrés Fig. 4.6.



FIG. 4.6: Évolution du  $k_{infini}$  assemblage et du  $k_{effectif}$  cœur en fonction de la concentration en ppm de bore en cours d'irradiation (2 couronnes thoriées)

Nous vérifions également que la distribution de puissance de l'assemblage ne subit pas de trop grandes variations en changeant le support des deux couronnes périphériques. Le calcul du facteur de point chaud assemblage en fonction du taux de combustion (Fig. 4.7b) montre une inversion de sens de variation à partir d'un certain taux de combustion : le facteur de point chaud assemblage passe de la zone *seed* vers la zone *blanket* grâce à la production d'<sup>233</sup>U. Le  $F_{XY}$  assemblage s'élève à 1.095 en début de vie, au niveau d'un crayon UO<sub>2</sub> situé entre deux trous d'eau, près de la zone *seed* (Fig. 4.7a). Cette valeur pourrait être encore atténuée en affinant les enrichissements par zone. Pour illustration, les facteurs de point chaud calculés pour les assemblages où la teneur en <sup>235</sup>U des crayons *seed* est abaissée à 4.5% $m_{NL}$  ou augmentée à 5.5% $m_{NL}$  dans la partie *blanket*, ont été ajoutés à la Fig. 4.7b.



FIG. 4.7: Évolution et emplacement du facteur de point chaud assemblage  $F_{XY}$  (les cellules en bleu correspondent aux trous d'eau, les cellules en orange aux cellules de combustible ThUO<sub>2</sub>, et les cellules en blanc aux crayons UO<sub>2</sub>)

**Remarque sur les notations** : Par la suite, les REP de type seed/blanket seront notés sous la forme "S-compo seed/B-compo blanket". Les lettres S et B font référence aux parties seed et blanket, suivies de leurs compositions de combustible sous forme oxyde (compo seed et compo blanket). Par exemple le REP à seed UO<sub>2</sub> et à blanket ThUO<sub>2</sub> sera noté S-U/B-ThU.

Paramètre	REP S-U/B-ThU	
Longueur de cycle	(jepp)	411
Taux de combustion (FdV)	(MWj/t)	15848
Concentration initiale en bore	(ppm)	1345
Production <sup>235</sup> U	(kg/TWhé)	-81.09
Production $^{233}$ U + $^{233}$ Pa	(kg/TWhé)	12.21
Production Pu $(Pu_{fissile})$	(kg/TWhé)	20.59(13.41)
Production <sup>233</sup> U + <sup>233</sup> Pa	(kg/an)	128
Production $Pu_{fissile}$	(kg/an)	141

TAB. 4.4: Bilan matière et performances du cœur REP U-ThU à deux couronnes périphériques thoriées

Les résultats du calcul cœur (Tab. 4.4) permettent d'évaluer la part de RSM dans un parc mixte REP-RSM à l'équilibre, selon le diagramme de la Fig. 4.2. Les besoins en matière fissile par réacteur et par an indiquent une fraction théorique de RSM estimée à **56% environ** (Tab. 4.5), ce qui amène à pouvoir déployer théoriquement **26 GWé** de REP S-U/B-ThU, **8 GWé** de RSM  $M-U_{app}Pu/T-U_{app}/F-Th$  et **26 GWé** de RSM **M-Th** $U_{tho}$ .

Réacteur		REP S-U/B-ThU	RSM F-Th	$\mathrm{RSM}\ \mathbf{M}\text{-}\mathbf{Th}\mathbf{U_{tho}}$	total
$\Delta m \ Pu_{fissile}$	(kg/réac./an)	141	-392	-	-251
$\Delta m \ U_{fissile}$	(kg/réac./an)	128	132	-155	105
Puissance installée	$(GW\acute{e})$	26	8	26	60
Nb de Réacteurs	(%)	18	5	18	41
Fraction du parc	(%)	43	13	43	100
Bilan en $Pu_{fissile}$	(kg/an)	2538	-1960	_	578
Bilan en $U_{fissile}$	(kg/an)	2304	660	-2790	174

TAB. 4.5: Éstimation du parc à l'équilibre (le terme  $Pu_{fissile}$  correspond aux masses de <sup>239</sup> $Pu+^{241}Pu$ , tandis que le terme  $U_{fissile}$  fait référence aux masses d <sup>233</sup> $U+^{235}U$  de l' $U_{tho}$ )

Les bilans en  $Pu_{fissile}$  et  $U_{fissile}$  indiqués en fin de Tab. 4.5 correspondent aux bilans par réacteur (kg/réacteur/an) multipliés par le nombre de réacteurs correspondant. On remarque ainsi un léger excédent en ressources fissiles.

L'économie d'uranium naturel apportée par les REP thoriés seuls est nulle puisque nous avons montré que le besoin en uranium naturel pour fabriquer le combustible des parties *blanket* était identique à celui nécessaire à la fabrication d'un combustible  $UO_2$  standard. L'économie annuelle d' $U_{nat}$  se mesure par le nombre de RSM dans le parc, soit 56%.

#### Étude d'assemblages hétérogènes UO<sub>2</sub>-ThPuO<sub>2</sub>

La production d'<sup>233</sup>U en REP conjointement à la production de plutonium permet plus de flexibilité quant au choix des RSM à déployer. Cela a pour effet de relâcher légèrement la contrainte sur le plutonium. Par ailleurs l'étape d'enrichissement de l'uranium à 20% en isotope <sup>235</sup>U est une contrainte non négligeable et nécessite des flux de matière importants (il faut environ 44 t d'U<sub>nat</sub> pour fabriquer 1 t d'U<sub>enrichi</sub>). Il paraît donc tentant de substituer le plutonium à l'uranium enrichi afin d'éviter cette étape et d'augmenter la fraction de thorium des zones *blanket* (et donc la production d'<sup>233</sup>U). La teneur initiale en plutonium des crayons blanket est de  $8\% m_{NL}$ . Les résultats du Tab. 4.6 montrent une production d'<sup>233</sup>U supérieure pour le concept S-U/B-ThPu, mais pas suffisamment en regard de la consommation accrue de plutonium. La consommation cumulée en  $Pu_{fissile}$  sur 20 ans en considérant que tous les REP installés à partir de 2020 sont thoriés, s'élève à 214 t. Cela revient à consommer intégralement les stocks disponibles de plutonium. On voit bien ici que si cette voie est empruntée, le scénario prévisionnel présenté en début de chapitre ne peut pas être employé. La stratégie à suivre doit être modifiée.

Paramètre	S-U/B-ThPu	S-U/B-ThU
Nb cray. Seed $(UO_2)$	145	145
Nb cray. Blanket $(ThPuO_2)$	120	-
Nb cray. Blanket $(ThUO_2)$	-	120
Production <sup>233</sup> U (kg/an)	142	117
Excédent cumulé d' $^{233}$ U (t)	113	94
Production $Pu_{fissile}$ (kg/an)	-294	101
Déficit cumulé en $Pu_{fissile}$ (t)	214	46
Production <sup>235</sup> U (kg/an)	-487	-885

TAB. 4.6: Bilans matières et performances comparées des cœurs REP S-U/B-ThU et S-U/B-ThPu à deux couronnes périphériques thoriées

L'utilisation du plutonium en REP pour amorcer la production d'<sup>233</sup>U réduit le besoin en uranium naturel dès 2020 (comparé au passage en cycle UOX ouvert). De plus, il n'est pas obligatoire de charger tous les REP du parc avec des assemblages *seed/blanket* thoriés. Un REP standard chargé avec du combustible UO<sub>2</sub> produit environ 166 kg/réacteur/an de  $Pu_{fissile}$ , tandis que la consommation de  $Pu_{fissile}$  en REP *seed/blanket* se situe autour de 294 kg/réacteur/an. Par conséquent, un ratio de 1 pour 2 permettrait d'équilibrer le besoin en plutonium fissile.

Le bilan matière de ce cœur issu d'un calcul CRONOS avec mise à l'équilibre du bore est détaillé dans le Tab. 4.7. Les besoins en ressources fissiles sont cohérents avec ceux prédits par le calcul assemblage.

Paramètre		REP U-ThPu
Longueur de cycle	(jepp)	411
Taux de combustion (FdV)	(MWj/t)	14577
Concentration initiale en bore	(ppm)	1580
Production <sup>235</sup> U	(kg/TWhé)	-43.46
Production $^{233}U + ^{233}Pa$	$(\mathrm{kg}/\mathrm{TWh\acute{e}})$	13.70
Production Pu $(Pu_{fissile})$	(kg/TWhé)	-26.30 (-25.50)
Production <sup>233</sup> U + <sup>233</sup> Pa	(kg/an)	144
Production $Pu_{fissile}$	(kg/an)	-268

TAB. 4.7: Bilan matière et performances du cœur REP U-ThPu à deux couronnes périphériques thoriées

Une prévision du cycle à l'équilibre est plus difficile à évaluer dans ce cas de figure. En effet, la philosophie de ce scénario est différente des précédents dans la mesure où on ne cherchera pas à obtenir un cycle à l'équilibre mais à optimiser la gestion des ressources jusqu'en 2140 environ (c'est-à-dire deux générations de réacteurs). Dans ce contexte, le parc serait constitué de trois types de réacteurs : des REP UO<sub>2</sub> standards, fournissant un appoint de plutonium, des REP *seed/blanket* U-ThPu producteurs d'U<sub>tho</sub>, et des RSM **M-ThU<sub>tho</sub>** consommant l'<sup>233</sup>U.

#### III. Démarche

La fraction de chaque type de réacteur dans le parc est plus délicate à évaluer car nous ne tenons pas compte des inventaires de plutonium disponibles en plus de la production globale du parc. Nous pouvons cependant nous placer dans l'hypothèse où toutes les ressources existantes en plutonium ont été utilisées et où les REP  $UO_2$  sont la seule source d'approvisionnement en plutonium (voir Tab. 4.8).

Dans ce cas, les bilans matières indiquent qu'il faudrait environ 17 GWé de REP seed/blanket pour alimenter 15 GWé de RSM **M-Th** $U_{tho}$ , et en amont 28 GWé de REP UO<sub>2</sub> producteurs de plutonium. Dans ces conditions, une économie d'uranium naturel de 100% est réalisée au sein des RSM **M-Th** $U_{tho}$ , et de 45% dans les REP seed/blanket (ratio de crayons ThPu / U). L'économie d'uranium naturel annuelle calculée à partir de ces bilan se chiffre à  $(25 + 0.45 \times 28) = 38\%$ environ.

Réacteur		REP S-U/B-ThPu	REP UOX	$\mathrm{RSM}\ \mathbf{M}\text{-}\mathbf{Th}\mathbf{U_{tho}}$	total
Besoin en $Pu_{fissile}$	(kg/réac./an)	-268	166	-	-102
Besoin en $U_{fissile}$	(kg/réac./an)	144	-	-155	-11
Puissance installée	$(GW\acute{e})$	17	28	15	60
Nb de Réacteurs	(%)	28	47	25	100
Bilan en $Pu_{fissile}$	(kg/réac./an)	-4556	4648	-	92
Bilan en $U_{fissile}$	(kg/réac./an)	2448	-	-2325	123

TAB. 4.8: Éstimation du parc "à l'équilibre", c'est-à-dire à partir des bilans matières coeur

#### 4.2.4 Conclusion sur les concepts et les stratégies de scénario

L'étude de REP hétérogènes de type *seed/blanket* nous a conduit à deux concepts d'assemblages de rapport de modération assemblage standard RM=2.01, tous deux constitués d'une partie centrale (*seed*) en UOX (enrichi à 5% $m_{NL}$  en <sup>235</sup>U), et d'une partie périphérique (*blanket*) englobant les deux couronnes périphériques de crayons, constitués de ThUO<sub>2</sub> dans un cas et de ThPuO<sub>2</sub> dans l'autre cas.

L'avantage du premier concept est de préserver les stocks de plutonium, ce qui permet de déployer théoriquement plus de RSM dans le parc. L'inconvénient est qu'il faut enrichir l'uranium de la partie *blanket* à  $20\% m_{NL}$  en <sup>235</sup>U, et qu'une séparation isotopique <sup>238</sup>U/U<sub>tho</sub> sera à prévoir. Le second concept permet quant à lui de poursuivre le mono-recyclage du plutonium pour constituer le fissile des parties *blanket* et de limiter ainsi son vieillissement hors réacteur. L'économie d'uranium naturel commence plus tôt, dès le déploiement des premiers REP thoriés. Dans ce cas, tous les stocks de plutonium sont mobilisés pour la production d'U<sub>tho</sub> en REP. Le déploiement de RSM hétérogènes à base de plutonium n'est plus permis et seuls les RSM homogènes de type **M-ThU<sub>tho</sub>** sera possible. Leur nombre dépendra de la quantité annuelle d'<sup>233</sup>U produite en REP.

Ainsi, les scénarios de transition envisagés sont très différents selon le choix du REP thorié qui permettra d'amorcer la production d'<sup>233</sup>U. Nous allons par conséquent étudier tout à tour ces deux solutions.

## 4.3 Scénario C de transition vers un parc symbiotique REP (S-U/B-ThU) - RSM (M- $U_{app}Pu/T-U_{app}/F-Th$ ) - RSM (M-Th $U_{tho}$ )

Ce scénario est basé sur le déploiement de REP de type seed/blanket (sans plutonium) dans une première étape, puis peu à peu vers le déploiement de RSM de type M-U<sub>app</sub>Pu/T-U<sub>app</sub>/**F**-**Th** et **M-ThU<sub>tho</sub>** dès que les inventaires de plutonium et d'U<sub>tho</sub> le permettent, à partir de 2035. Ce scénario conduit à une image du parc à l'équilibre qui correspond au schéma de la Fig. 4.2 présentée au début de ce chapitre. Les hypothèses générales du scénario sont identiques à celles prises au chapitre précédent.

#### 4.3.1 Choix de modélisation

Lors de ce scénario, nous aurons besoin de modéliser les assemblages REP seed/blanket du cœur S-U/B-ThU qui sont composés de crayons seed en UO<sub>2</sub> dont l'uranium est enrichi à  $4.9\%m_{NL}$  en isotope <sup>235</sup>U, et de crayons blanket en ThUO<sub>2</sub> dont le ratio Th/U est de  $75/25\%m_{NL}$  (et <sup>235</sup>U/U =  $20\%m_{NL}$ ). La composition initiale de ces assemblages est fixée et ne varie pas au cours du scénario, ce qui impose le bilan matière au déchargement. Par conséquent ces milieux peuvent être traités de manière très simple en imposant leurs bilans matière au chargement et au déchargement (issus des résultats du calcul coeur). Les bilans matière concernant les principaux noyaux lourds sont détaillés dans le Tab. 4.9.

Masses	Chargement			Déchargement					
kg/lot (% $m_{NL}$ )	Seed		Blanket		S	Seed		Blanket	
<sup>232</sup> Th	-	-	10124	(74.95)	-	-	9700	(76.48)	
<sup>233</sup> Pa	-	-	-	-	-	-	11	(0.09)	
$^{232}\mathrm{U}$	-	-	-	-	-	-	1	(0.01)	
$^{233}\mathrm{U}$	-	-	-	-	-	-	173	(1.36)	
$^{234}\mathrm{U}$	-	-	-	-	0	(0.00)	26	(0.20)	
$^{235}\mathrm{U}$	857	(4.90)	668	(4.95)	145	(0.88)	138	(1.085)	
$^{236}\mathrm{U}$	-	-	-	-	118	(0.71)	91	(0.71)	
$^{238}\mathrm{U}$	16642	(95.10)	2716	(20.10)	15990	(97.12)	2449	(19.31)	
<sup>238</sup> Pu	-	-	-	-	7	(0.04)	4	(0.03)	
<sup>239</sup> Pu	-	-	-	-	103	(0.63)	48	(0.38)	
<sup>240</sup> Pu	-	-	-	-	52	(0.32)	50	(0.16)	
$^{241}$ Pu	-	-	-	-	31	(0.19)	16	(0.12)	
$^{242}$ Pu	-	-	-	-	17	(0.10)	8	(0.06)	
<sup>241</sup> Am	-	-	-	-	1	(0.01)	1	( 0.00)	
Total	17500	(100.00)	13508	(100.00)	16464	(100.00)	12683	(100.00)	

TAB. 4.9: Bilan matière du cœur REP S-U/B-ThU entre chargement et déchargement en kg/lot d'assemblages, les valeurs entre parenthèses sont les fractions massiques de noyaux lourds correspondantes

En ce qui concerne la modélisation des réacteurs RSM  $M-U_{app}Pu/T-U_{app}/F-Th$  et  $M-ThU_{tho}$ , rien n'est modifié par rapport au chapitre précédent : les modèles physiques (modèles d'équivalence et bibliothèques de sections efficaces) sont conservés.

#### 4.3.2 Analyse des résultats

Les résultats de l'étude de scénario de transition réalisée avec COSI6 couplé à CESAR5 montrent que la fraction de RSM dans le parc à l'équilibre s'élève à **53%**, ce qui est proche de la valeur estimée à 56% à partir des bilans matières cœur.Ce ratio est obtenu dès la fin du  $2^{eme}$  renouvellement de parc sur la période 2080 - 2110 (Fig. 4.8).

Le très bon accord entre prédiction et résultat de l'étude de scénario découle du fait que seuls les RSM de type **M-ThU<sub>tho</sub>** doivent prendre en compte des variations importantes d'isotopie de l'U<sub>tho</sub>. Les REP S-U/B-ThU n'utilisent pas de fissile issu du recyclage, ce qui permet une maîtrise totale de la composition en entrée et sortie de réacteur. Ceci est également vrai pour l'U<sub>tho</sub> produit en RSM M-U<sub>app</sub>Pu/T-U<sub>app</sub>/**F-Th**. Quant aux variations isotopiques du plutonium, elles restent faibles car il est peu dégradé en M-U<sub>app</sub>Pu/T-U<sub>app</sub>/**F-Th** et complété par du plutonium de bonne qualité issu des REP S-U/B-ThU pour le multi-recyclage.

Lors de la première phase (2020 - 2080), les REP de deuxième génération sont peu à peu remplacés par des REP thoriés de type S-U/B-ThU. À partir de 2035 les RSM sont déployés en partie en remplacement des REP. Les RSM  $M-U_{app}Pu/T-U_{app}/F-Th$  utilisent le stock de plutonium accumulé et contribuent à accroître le stock d'U<sub>tho</sub>, ce qui permet d'avoir un parc mixte composé de 30% de RSM dès 2050. Ensuite, lors du second renouvellement de parc, des RSM supplémentaires sont substitués aux REP de type S-U/B-ThU.



FIG. 4.8: Évolution de la puissance installée par nature de réacteur au cours du temps

L'évolution des stocks de matières stratégiques (U<sub>tho</sub> et plutonium) montrent que les ressources fissiles sont bien utilisées, avec une réserve stratégique qui tend à diminuer avec le temps Fig. 4.9a. L'excédent de plutonium varie au cours du temps : le stock croît jusqu'en 2035, date de déploiement des RSM M-U<sub>app</sub>Pu/T-U<sub>app</sub>/**F-Th**. Le stock chute brusquement avant d'augmenter de nouveau de manière progressive (la production globale de plutonium dans le parc excède toujours sa consommation). À partir de 2080, la puissance REP S-U/B-ThU installée passe de 42 à 28 GWé, ce qui abaisse le niveau de production de plutonium en dessous de sa consommation. D'autre part, on constate que la qualité du plutonium se stabilise très vite aux environs de 60% d'isotopes fissiles car le RSM M-U<sub>app</sub>Pu/T-U<sub>app</sub>/**F-Th** dégrade peu la fraction



fissile de son plutonium, et que sa faible dégradation, est compensée par le plutonium issu des combustibles REP.

FIG. 4.9: Inventaires de plutonium et d'U<sub>tho</sub> disponibles dans le cycle pour la fabrication de combustible neuf (on rappelle que le terme "disponible" signifie qui a été retraité, mais qui n'est pas encore envoyé dans les usines de fabrication de combustible)

L'inventaire d'U<sub>tho</sub> disponible pour la fabrication de combustible neuf augmente entre 2020 et 2040 environ (Fig. 4.9b). Cette période correspond à la génération du stock d'U<sub>tho</sub> de démarrage par les S-U/B-ThU. Entre 2040 et 2050, 8 GWé de RSM **M-ThU<sub>tho</sub>** font leur apparition et consomment les réserves accumulées par les REP S-U/B-ThU, ce qui explique la baisse observée. Par la suite, une forte augmentation des réserves est observée entre 2050 et 2080, ce qui indique que la production d'U<sub>tho</sub> excède largement sa consommation en RSM **M-ThU<sub>tho</sub>**. À partir de 2080, le ratio s'inverse car 20 GWé de RSM **M-ThU<sub>tho</sub>** (soit 12 GWé de plus) doivent à présent être alimentés en U<sub>tho</sub>, tandis que la puissance installée de RSM M-U<sub>app</sub>Pu/T-U<sub>app</sub>/**F-Th** est de 12 GWé et que la puissance installée de REP S-U/B-ThU producteurs d'U<sub>tho</sub> est réduit à 28GWé.

La qualité de l'U<sub>tho</sub> produit (en REP S-U/B-ThU et en RSM M-U<sub>app</sub>Pu/T-U<sub>app</sub>/**F-Th**) est constante au cours du scénario mais le multi-recyclage au sein des RSM **M-Th** $U_{tho}$ , qui débute vers 2040, dégrade progressivement la qualité moyenne de l'U<sub>tho</sub> retraité, jusqu'à la valeur de 70% à l'horizon 2130.

L'étude des variations de stocks nous permettent de constater que le parc n'est pas à l'équilibre, mais que la gestion des ressources est efficace sur la période 2020 - 2140. Un stock plancher de 100 t de plutonium et de 60 t d'U<sub>tho</sub> sont observés jusqu'à cette date. Une optimisation plus fine pourrait être effectuée afin d'ajuster encore plus précisément le parc en fonction des ressources. Nous avons toutefois le bon ordre de grandeur, compte tenu des incertitudes de modélisation.

Ce scénario repose sur l'hypothèse forte que l'<sup>233</sup>U est extrait du combustible des *blanket* irradiées à l'aide d'une séparation isotopique d'avec l'<sup>238</sup>U notamment. Cela implique un coût supplémentaire au retraitement<sup>1</sup>. On constate cependant un véritable gain à procéder de la sorte

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>Il est possible d'extraire l'<sup>233</sup>U de l'uranium des *blanket*. Par contre il est probable qu'il soit difficile de séparer <sup>232</sup>U et <sup>233</sup>U compte tenu de la faible différence de masse entre ces deux isotopes. Le problème majeur réside en fait dans la très haute activité des produits de filiation de l'<sup>232</sup>U (voir page29).

en observant la composition isotopique de l'uranium des crayons blanket dans le cas où l'<sup>233</sup>U a été séparé de l'uranium des combustibles déchargés : environ  $0.03\% m_{NL}$  d'<sup>232</sup>U,  $0.94\% m_{NL}$  d'<sup>234</sup>U, **5.32**% $m_{NL}$  d'<sup>235</sup>U,  $3.31\% m_{NL}$  d'<sup>236</sup>U et 90.40% d'<sup>238</sup>U. En 2140, le stock cumulé d'uranium retraité à valoriser s'élève à un peu moins de 6000 t.



FIG. 4.10: Stock d'uranium issu du retraitement des combustibles blanket après séparation de l<sup>233</sup> U.

Enfin, calculons l'économie d'uranium naturel cumulée ainsi que le besoin cumulé en thorium. On remarque que le résultat de ce calcul dépend de la gestion de l'uranium des *blanket* et de sa valorisation. Soit ce combustible sert à fabriquer la partie *seed* d'assemblages REP S-U/B-ThU, soit ce combustible est enrichi à hauteur de 20% en  $^{235}$ U afin d'être incorporé au combustible des parties *blanket*.

Enrichissement initial en <sup>235</sup> U	Enrichissement souhaité	Besoin en $U_{nat}$
$(\%m_{NL})$	$(\%m_{NL})$	(t)
0.71	4.9	10
0.71	20.0	44
5.33	20.0	4

TAB. 4.10: Besoin en uranium naturel pour la fabrication d'uranium enrichi, avec un taux de rejet de 0.25%

On remarque que le ré-enrichissement de l'uranium des *blanket* irradiées à 20% permet d'économiser (44 - 4) = 40 t d'uranium naturel Tab. 4.10. Sans valoriser cet uranium de retraitement, ce scénario est déjà le plus prometteur car il permet une économie annuelle d'U<sub>nat</sub> de **30% à partir de 2050**, puis de **53% à partir de 2110**. En valorisant de plus l'uranium des *blanket*, l'économie annuelle après 2110 s'élève à 68%.

# 4.4 Scénario D de transition vers un parc symbiotique REP (S-U/B-ThPu) - RSM (M-Th $U_{tho}$ )

#### 4.4.1 Choix de modélisation

La composition des combustibles *blanket* en ThPuO<sub>2</sub> ne peut plus être modélisée par une composition initiale et finale. En effet, le vecteur isotopique du plutonium varie au cours du scénario, et ces variations doivent être prises en compte afin d'ajuster la teneur massique en plutonium. Ainsi, une bibliothèque a été élaborée afin de décrire l'évolution du combustible ThPuO<sub>2</sub> des parties blanket en REP. Le Tab. 4.11 détaille les bilans matières entre chargement et déchargement des combustibles seed et blanket des REP thoriés. On remarque que le plutonium des crayons blanket au déchargement est assez faible en volume  $(3\% m_{NL})$  et en qualité (26% fissile). Ce plutonium ne sera pas recyclé. Une séparation chimique de l'U<sub>tho</sub> permettra d'extraire les ressources fissiles valorisables.

Masses		Chargement				Déchar	gement	
kg/lot (% $m_{NL}$ )	S	leed	Blanket		Seed		Blanket	
<sup>232</sup> Th	-	-	12273	(91.97)	-	-	11804	(94.85)
<sup>233</sup> Pa	-	-	-	-	-	-	13	(0.10)
<sup>232</sup> U	-	-	-	-	-	-	1	(0.01)
$^{233}\mathrm{U}$	-	-	-	-	-	-	208	(1.67)
$^{234}\mathrm{U}$	-	-	-	-	0	(0.00)	29	(0.23)
$^{235}\mathrm{U}$	857	(4.90)	-	-	140	(0.85)	5	(0.04)
$^{236}\mathrm{U}$	-	-	-	-	120	(0.73)	1	(0.00)
$^{238}\mathrm{U}$	16642	(95.10)	-	-	15923	(97.02)	-	-
<sup>238</sup> Pu	-	-	43	(0.32)	8	(0.05)	33	(0.27)
<sup>239</sup> Pu	-	-	536	(4.01)	110	(0.67)	26	(0.20)
$^{240}$ Pu	-	-	246	(1.85)	57	(0.35)	114	(0.92)
$^{241}$ Pu	-	-	129	(0.96)	34	(0.21)	72	(0.58)
$^{242}$ Pu	-	-	102	(0.76)	19	(0.11)	132	(1.06)
$^{241}\mathrm{Am}$	-	-	16	(0.12)	1	(0.01)	7	(0.05)
Total	17500	(100.00)	13344	(100.00)	16412	(100.00)	12445	(100.00)

TAB. 4.11: Bilan matière du cœur REP S-U/B-ThPu entre chargement et déchargement, les valeurs entre parenthèses sont les fractions massiques de noyaux lourds correspondantes

#### 4.4.2 Analyse des résultats

L'étude de scénario de transition d'un parc REP  $UO_2$  vers un parc mixte REP - RSM montre qu'il est possible d'obtenir à l'équilibre 30 GWé de REP  $UO_2$ , 15 GWé de REP thoriés et 15 GWé de RSM thoriés (Fig. 4.11). Cette configuration est observée à partir de 2110 au moment du second renouvellement de parc.



FIG. 4.11: puissance installée par type de réacteur au cours du scénario D

Le déploiement s'effectue ici encore en deux étapes. Tout d'abord, ne sont déployés entre 2020 et 2080 que des REP, à la fois thoriés et non thoriés, selon le ratio d'un REP S-U/B-ThPu pour deux REP UO<sub>2</sub>. Lors de cette période de transition, le plutonium est utilisé au sein des parties *blanket*, réalisant ainsi une économie d'uranium naturel de 45% par rapport à un REP UO<sub>2</sub>, et un stock de démarrage d'U<sub>tho</sub> est constitué. Ensuite, à partir de 2080, les RSM **M-ThU<sub>tho</sub>** sont introduits dans la limite des ressources en U<sub>tho</sub>. L'économie annuelle d'uranium naturel à partir de 2110 (et au moins jusqu'en 2140) est alors de **36%**.

Néanmoins, l'évolution des excédents de stocks d'U<sub>tho</sub> et de plutonium en fonction du temps montrent que la situation d'équilibre n'est pas atteinte. La Fig. 4.12 met en évidence une diminution régulière de l'inventaire plutonium entre 2040 et 2080, période pendant laquelle il est consommé en REP S-U/B-ThPu. Cette diminution s'accentue par la suite, à cause de la réduction de la part de REP UO<sub>2</sub> producteurs de plutonium dans le parc. De la même manière, à partir de 2080, la consommation d'U<sub>tho</sub> excède son niveau de production et la réserve d'U<sub>tho</sub> disponible tend à diminuer au cours du temps.



FIG. 4.12: Inventaires disponibles dans le cycle pour la fabrication de combustible neuf

En conclusion, l'économie annuelle d'uranium naturelle est du même ordre de grandeur que sans recours à des REP thoriés. Cependant la période de transition est réduite et la complexité des RSM hétérogènes ne devient plus nécessaire. La comparaison du besoin en uranium naturel cumulé en 2140 montre par contre que ce scénario est équivalent à la poursuite du mono-recyclage du MOX en REP standard.

#### 4.5 Conclusion sur l'économie des ressources naturelles

Les résultats obtenus dans ce chapitre ont permis de montrer l'intérêt d'amorcer la production d'U<sub>tho</sub> en REP dès 2020. En effet, la constitution d'une réserve stratégique d'U<sub>tho</sub> permet d'alléger la contrainte en plutonium qui limitait considérablement le déploiement des RSM, et par conséquent la production d'U<sub>tho</sub> et son multi-recyclage en RSM par la suite. Tout d'abord, la période de transition est fortement réduite par rapport aux scénarios où la production exclusive d' $U_{\text{tho}}$  s'effectue en RSM. Le délai de la transition est réduit à une génération de réacteur environ.



FIG. 4.13: Besoins cumulés en uranium naturel des scénarios C et D comparés aux cycles UOX ouvert et poursuite du mono-recyclage MOX

Ensuite, une économie accrue des ressources est observée dans le cas du scénario C. Dans ce scénario, trois types de réacteurs symbiotiques coexistent : des REP thoriés alimentent des RSM  $M-U_{app}Pu/T-U_{app}/F-Th$  en plutonium et des RSM  $M-ThU_{tho}$  en  $U_{tho}$ . Le besoin cumulé en thorium et en uranium naturel a été comparé aux résultats des autres stratégies sur la période 2020 - 2140 (Fig. 4.13) ainsi qu'aux scénarios de référence "cycles UOX ouvert" (avec arrêt du programme de mono-recyclage du MOX à partir de 2020) et "Mono-MOX" (poursuite du mono-recyclage du MOX). On remarque que le scénario C avec valorisation de l'uranium des *blanket* pour le réenrichissement de l'uranium à 20% se démarque significativement des autres stratégies tandis que le scénario D est similaire à la stratégie "Mono-MOX".

Dans le cas du scénario C, l'économie annuelle d'uranium naturel en 2140 est évaluée à 65% par rapport à la poursuite du monorecyclage du MOX, et à 42% pour la production cumulée sur la période 2020 - 2140. Cette forte économie des ressources s'accompagne cependant d'efforts industriels nécessaires pour séparer l'<sup>233</sup>U du reste de l'uranium (en particulier l'<sup>238</sup>U) au moment du retraitement des crayons *blanket* en ThUO<sub>2</sub>. Cette étape génère un coût supplémentaire mais apporte un gain très significatif sur l'économie des ressources. Sans séparation isotopique, on remarque que le vecteur uranium des crayons *blanket* au déchargement est composé de  $8\% m_{NL}$  d'<sup>233</sup>U. Cet uranium pourrait être dilué avec de l'uranium appauvri et constituer un combustible

neuf pour RSM  $U_{app}$  <sup>233</sup>UO<sub>2</sub>. La stratégie de transition est alors à revoir entièrement. Cette variante n'a pas été étudiée et pourrait constituer une alternative intéressante permettant d'éviter l'étape de séparation isotopique.

La fabrication d'un assemblage *seed/blanket* thorié ne nécessite pas plus d'uranium naturel à la fabrication qu'un assemblage REP classique, et ce besoin pourrait même être réduit en remarquant qu'au déchargement, la fraction massique d'<sup>235</sup>U des crayons *blanket* est de 5% $m_{NL}$ . L'enrichissement à 20% de l'uranium à partir de cet uranium de retraitement ne nécessite plus que 4 tonnes d'uranium naturel pour fabriquer 1 tonne d'uranium enrichi à 20%, contre 44 tonnes à partir d'uranium naturel.

L'évaluation des besoins en ressources naturelles pour cette variante, notée *Scénario*  $C^*$  a été réalisée et comparée aux résultats des autres scénarios présentés dans ce mémoire (Tab. 4.12).

	Scénario	А	В	С	C*	D
Répartition des puissances installées par réacteur (GWé)						
	REP UOX	42	42	-	-	30
	REP S-U/B-ThU	-	-	28	28	-
	REP S-U/B-ThPu	-	-	-	-	15
	RSM <b>M-ThPu</b> $U_{tho}$ /F-U <sub>app</sub>	16	-	-	-	-
	$\rm RSM~M\text{-}U_{app}Pu/T\text{-}U_{app}/\textbf{F-Th}$	-	12	20	20	-
	$\operatorname{RSM}$ M-ThU <sub>tho</sub>	2	6	12	12	15
	Besoin annuel en $U_{nat}$ en 2140 (t)	5563	5563	4045	2530	5663
	Besoin cumulé en U <sub>nat</sub> en 2140 (t)	773325	766164	679478	513723	861760
	Besoin annuel en $^{232}$ Th en 2140 (t)	211	188	537	537	389
	Besoin cumulé en $^{232}\mathrm{Th}$ en 2140 (t)	18914	14613	50950	50950	28384
	Économie en $U_{nat}$ par rapport au cyc	ele ouvert	UOX (%)	)		
	annuelle (en 2140)	-30	-30	-54	-71	-35
	cumulée (en 2140)	-20	-21	-37	-52	-20
Économie en U <sub>nat</sub> par rapport au mono-recyclage du MOX (%)						
	annuelle (en 2140)	-22	-22	-44	-65	-21
	cumulée (en 2140)	-13	-14	-24	-42	-3

TAB. 4.12: Comparaison des besoins annuels et cumulés en uranium naturel entre les différents scénarios. Le bilan des besoins annuels et cumulés en  $U_{nat}$  et en <sup>232</sup> Th est fait en 2140. Le scénario C\* correspond au scénario C où l'uranium des parties blanket est retraité et réenrichi à 20% en isotopie <sup>235</sup> U pour la fabrication de combustible blanket neuf.

Dans ce chapitre, nous avons tout d'abord étudié et sélectionné deux concepts particuliers de REP thoriés. Ces réacteurs doivent être opérationnels dès 2020 et donc ne présenter que de faibles modifications en regard des REP actuels. L'idée étant que même si la technologie et la maturité industrielle liée au retraitement de combustibles mixtes Th/U/Pu n'était pas disponible dès 2020, ces combustibles pourraient être retraités plus tard car l<sup>233</sup> U est stable et ne se dégrade pas au cours du temps. Les deux concepts d'assemblage qui ont été retenus sont hétérogènes : les deux couronnes périphériques se distinguent des couronnes centrales par leur composition initiale, soit du ThUO<sub>2</sub> avec 25%m<sub>NL</sub> d'uranium (enrichi ) 20% en <sup>235</sup> U), soit du ThPuO<sub>2</sub> avec 8%m<sub>NL</sub> de plutonium. La partie centrale est constituée de crayons UO<sub>2</sub> enrichi à 4.9% en <sup>235</sup> U.

A partir de ces concepts et des bilans matière coeur, deux scénarios de transition ont été élaborés. Le scénario utilisant les REP S-U/B-ThPu en première strate permettent une économie annuelle d'uranium naturel maximale de 36%. Le scénario utilisant les REP S-U/B-ThU permet quand à lui une économie annuelle maximale de 53%. Une estimation de l'économie cumulée ainsi que des besoins en <sup>232</sup>Th mettent en évidence que la stratégie la plus pertinente du point de vue de la gestion des ressources est la stratégie appliquée pour le scénario C.

## Discussion

L'analyse des publications dans le domaine de la conception de cœurs de réacteurs nucléaires à combustibles thoriés montre une dynamique de publication aux environs des années 80 et un très fort regain au cours de la décennie passée Fig. 5.1. L'objectif de cette partie est d'analyser brièvement et de manière critique la démarche et les résultats présentés dans ce mémoire, par rapport aux publications scientifiques de ces dernières années. Nous souhaitons en particulier nous pencher sur les aspects que sont les **méthodes de calcul et la modélisation numérique**, les **critères et les choix de conception des RSM à haut facteur de conversion** et enfin les **hypothèses et les stratégies des études de scénarios de transition**.



FIG. 5.1: nombre de publications sur la thématique "conception de cœurs nucléaires à combustible thorié et modéré à l'eau (légère ou lourde)"

#### Méthode des facteurs d'équivalence

L'étude de la haute conversion et du multirecyclage impliquant des combustibles mixtes comprenant un ou plusieurs noyaux fissiles parmi <sup>233</sup>U, <sup>235</sup>U, <sup>239</sup>Pu et <sup>241</sup>Pu a conduit à définir un critère de comparaison permettant de rendre compte des qualités neutroniques de chacun selon le spectre neutronique. Ce critère de comparaison est en fait un critère en réactivité, basé sur la méthode des facteurs d'équivalence. Cette méthode a été proposée en spectre thermique par [Schaeffer, 1981] et a donné lieu à quelques applications dans les années 90. Nous pouvons citer en particulier les travaux de [Azzoug, 1990] avec la constitution d'une abaque teneur/isotopie pour les combustibles MOX en REP, et l'application au calcul du RCVS [Hittner et al., 1988] pour un combustible UPuO<sub>2</sub>. Le travail réalisé dans cette thèse a permis d'élargir l'utilisation des facteurs d'équivalence et de définir leur sensibilité à la composition du combustible (teneur fissile, isotopie) et au taux de combustion, à la fois en spectre thermique et épithermique. Cette méthode a en outre été appliquée sans retenue pour les études de multi-recyclage afin de déterminer la composition initiale d'un combustible permettant d'atteindre une longueur de cycle déterminée. Un calcul assemblage 2D à un taux de combustion de 0 MWj/t permet de déterminer un jeu de facteurs d'équivalence caractéristique du combustible et de son spectre. Ces données seules suffisent pour estimer la teneur fissile et s'épargner ainsi plusieurs calculs cœurs 3D (avec une précision de l'ordre de 500 MWj/t sur le taux de combustion au déchargement).

#### Méthode de simulation numérique

Deux méthodes de simulation numériques existent actuellement : les méthodes déterministes qui ont vocation à résoudre l'équation du transport multigroupe par des méthodes numériques suite à un certain nombre d'hypothèses et d'approximations, et les méthodes probabilistes de type Monte-Carlo qui permettent de s'affranchir des approximations de calcul mais qui requièrent de simuler un grand nombre d'histoires de neutrons avec une population statistique suffisante afin d'atteindre les critères de convergence souhaités.

Les méthodes déterministes sont toutes indiquées pour les études de conception prospectives du fait de leur souplesse et de leur temps de calcul réduit. Les schémas de calcul basés sur la constitution de bibliothèques 2D au niveau assemblage suivi d'un calcul cœur 3D en diffusion sont répandus. Cependant, contrairement à CRONOS2, tous n'intègrent pas obligatoirement de modèles simplifiés de thermique et de thermohydraulique au niveau du calcul cœur permettant de rendre compte des profils de densité modérateur et des nappes de températures combustibles. Les travaux réalisés dans le cadre de ce mémoire ont bénéficié d'améliorations récentes (maillage énergétique à 281G optimisé [Hfaiedh, 2006], méthode des caractéristiques [Sanchez et al., 2010]) et les chaînes de calcul mises en places font l'objet d'un processus de validation du cœur 3D avec TRIPOLI4 [Laureau, 2012] et de qualification du schéma de calcul assemblage par la réinterprétation du programme ERASME/R [Vidal et al., 2012].

Cependant, les programmes expérimentaux concernant les combustibles  $ThPuO_2$  ou  $ThUO_2$ en réseau sous-modéré se réduisent au LWBR de Shippingport [Freeman et al., 1989], ce qui constitue une base de qualification mince. Une solution alternative peut résider dans l'emploi de méthodes de résolution probabilistes couplées à des modules d'évolution, telle que celle employée par [Michel-Sendis, 2006].

#### Mise en perspective des concepts de RSM HFC proposés

Les concepts de cœurs RSM et les stratégies d'irradiation du thorium proposées dans ce document peuvent être directement confrontés à ceux étudiés par l'équipe chinoise [Si, 2010] et [Bi and Si, 2011]. Leur approche de la transition vers un cycle  $^{232}$ Th/ $^{233}$ U régénérateur passe par deux étapes en différenciant les cœurs producteurs et consommateurs d' $^{233}$ U. Les premiers sont composés pour moitié d'assemblages UOX standards et pour moitié d'assemblages en ThPuO<sub>2</sub>, disposés en damier. Les teneurs fissiles permettent de lisser les pics de puissance. L' $^{233}$ U obtenu permet de fabriquer des assemblages de  $^{232}$ Th $^{233}$ UO<sub>2</sub> introduits en tant que couvertures radiales, en périphérie d'un cœur REP standard (36 assemblages sur 193). Le rapport d'inventaire fissile évalué après 6 cycles de 445 jepp s'élève à 1.05 dans les couvertures. Cette étude de faisabilité démontre que la simplicité et la flexibilité permettent d'atteindre des résultats tout à fait remarquables et surtout appuient le fait que l'objectif principal dans la recherche de haute conversion en REP avec du thorium doit reposer sur la symbiose entre cycles uranium et thorium.

Le travail réalisé permet d'étendre la démonstration en modélisant les flux de matière dans un parc complet. La valeur ajoutée de ces études est de quantifier la durée de la période de transition, et surtout de rendre compte des facteurs limitant les résultats théoriques calculés à l'équilibre. Le "cercle vertueux" ainsi mis en place entre résultats de scénarios et conception de réacteur permet d'affiner l'ordre de priorité dans les critères de conception.

D'autres études se sont également penchées sur la recherche de haute conversion en réacteur à eau légère, et notamment sur les optimisations géométriques des zones seed/blanket. En particulier, des méthodes d'optimisations peuvent être employées, telle que le "recuit simulé" [Kotlyar and Shwageraus, 2012]. Cette méthode découle de la métallurgie : le recuit consiste à alterner des cycles de refroidissement lent et de rechauffage afin de minimiser l'énergie du matériaux. En optimisation, cette technique est employée afin de déterminer les extremums d'une fonction. Le critère à minimiser (pour l'optimisation géométrique d'assemblage) a été le rapport (Temps de séjour) / (Durée pendant laquelle FIR  $\geq 1$ ). Les résultats de l'optimisation permettent de définir l'emplacement des crayons seed et blanket, la teneur fissile et le rapport de modération et conduisent à un  $FIR \geq 1$  pendant 704 jours. Cette méthode est coûteuse en temps et puissance de calcul, mais se révèle très efficace pour optimiser et affiner un concept dès qu'une image a été précisée par des analyses physiques préliminaires. Ces méthodes ouvrent des perspectives pour les cœurs REP et RSM thoriés les plus prometteurs révélés par les études de scénario.

Enfin, un bref coup d'oeil à d'autres concepts de Générations II et III tels que les Réacteur à Eau Bouillante (REB) et les CANada Deuterium Uranium (CANDU) nous permettent de mettre en perspective les résultats obtenus. Les travaux de [Guillemin, 2009] sur la haute conversion en CANDU permet d'atteindre la régénération en combustible  $^{232}$ Th/ $^{233}$ U mais au prix d'un cycle court (5 à 6 GWj/t) et donc d'une capacité de retraitement capable de suivre la fréquence et le volume des matières combustibles à retraiter.

Parallèlement, en REB, des travaux ont démontré très tôt la surgénération en combustible  $^{232}$ Th/ $^{233}$ U [Okumura et al., 1990], à condition de réduire le rapport de modération en-dessous de 0.25 et d'agencer les parties *seed/blanket* sous la forme d'une alternance de couches *seed* et *blanket*. Plus récemment, [Nuñez-Carrera et al., 2008] en combustible ThUO<sub>2</sub> (enri.  $^{235}$ U = 7.5% $m_{NL}$ ) et [Jagannathan and Pal, 2006] ont démontré la faisabilité économique du concept producteur d' $^{233}$ U pour le premier, et qu'il était possible d'atteindre un FIR de 0.96 pour le second, au prix de grandes modifications (modérateur  $D_2O$ , caloporteur  $H_2O$  bouillant, clusters hétérogènes avec un cœur en BeO).

On observe des difficultés similaires aussi bien en CANDU (où l'économie de neutrons est meilleure et le rechargement en ligne plus bénéfique pour la haute conversion), qu'en REB (où l'on s'affranchit de la limite basse sur la sous-modération). La régénération est le fruit de compromis douloureux, ou bien ne s'acquiert qu'au prix d'ingéniosité et de complexité beaucoup trop importantes en regard des gains obtenus. Ces travaux nous confortent dans les efforts et les pistes à suivre et montrent une vraie dynamique mondiale, à la fois de réappropriation de concepts exotiques du passé, et d'innovations récentes.

#### Discussion des hypothèses prises pour les études de scénario

Le recours à des codes de scénario tels que COSI6 n'est pas toujours justifié, en amont une première estimation à partir des bilans matières cœur donne des indications. Cependant, cela s'avère indispensable dans le cas d'un parc de réacteurs symbiotiques où la gestion des ressources s'effectue en flux tendu. C'est ce qui fait l'intérêt et la force des résultats présentés dans ce mémoire, comparativement à des études menées avec des codes d'optimisation tels que OSCAR par exemple [Chambon et al., 2007] qui n'offrent pas encore la possibilité d'inclure des modèles physiques d'évolution du combustible.

Les hypothèses de scénario utilisées sont communes à celles retenues dans le cadre de la loi française N°2006-739 du 28 juin 2006 relative à la gestion durable des matières et déchets radioactifs. Après 2020, l'hypothèse a été prise d'un parc nucléaire à puissance installée constante. Le renouvellement du parc s'effectue au rythme de 2 GWé/an. Cette hypothèse est tout à fait pertinente. En effet, si l'on regarde la chronologie de construction des centrales nucléaires françaises sur la période 1970-2000 Fig. 5.2 on constate que 54 tranches ont été démarrées entre 1972 et 1996, soit 57 GWé en 24 ans (environ 2.4 GWé/an).



FIG. 5.2: Chronologie de construction des centrales nucléaires françaises (1970-2000) [IRSN, 2009]

Ensuite, nous avons choisi des délais de fabrication de 2 ans et de refroidissement de 5 ans (en incluant les temps de transport). Ces options sont similaires à celles des études de scénario prospectives actuellement menées dans le cadre de l'étude du déploiement des Sodium Fast Reactor (SFR) [Coquelet-Pascal et al., 2011]. En réalité, le délai de fabrication dépend du combustible à fabriquer (besoin d'enrichissement ou non par exemple), et une réduction de 2 ans à 6 mois permettrait d'assouplir le besoin en plutonium par exemple.

Enfin, le choix des outils mis à part, cette étude a été initiée dans l'hypothèse d'un retard probable de réacteurs régénérateurs de GEN IV. Or les RSM ne sont pas un frein au déploiement des réacteurs rapides, ainsi que l'a démontré [Ishikawa and Okubo, 2011]. Selon lui, le déploiement des RSM permet de faciliter la transition dans le sens où l'isotopie du plutonium est conservée (stockage "dynamique" du plutonium) par rapport au recyclage du MOX en REP. Plus généralement, plusieurs études soulignent de ce fait la nécessité de considérer des parcs symbiotiques dans un "mix-nucléaire". En particulier [Subki et al., 2008] et leur étude de cœurs de puissance comprise entre 20 et 300 MWth chargés en ThUO<sub>2</sub>, l'uranium étant enrichi en isotope  $^{233}$ U, qui peuvent fonctionner pendant 10 ans et venir en complément de réacteurs de plus forte puissance, et [Ismail et al., 2009] qui proposent un parc symbiotique composé de RNR et de petits réacteurs satellites à eau légère et à combustible  $^{232}$ Th/ $^{233}$ U.

## Conclusion

La mise en place d'une énergie nucléaire durable repose sur trois points cruciaux que sont l'amélioration de la sûreté, la minimisation de la quantité des déchets radiotoxiques, et l'augmentation du taux d'utilisation des ressources naturelles. Ce dernier point est d'autant plus primordial que dans l'hypothèse d'un doublement de la puissance électrique d'origine nucléaire installée d'ici à 2050 suivi d'une stabilisation du parc mondial, toutes les ressources conventionnelles en uranium naturel seront engagées à l'horizon 2050. Le recours à des sources d'approvisionnement moins conventionnelles (récupération de l'uranium de l'eau de mer, sous-produit de la production industrielle de phosphates par exemple) permet de repousser l'échéance, mais des tensions sont prévisibles sur le marché de l'uranium d'ici la fin du siècle. Par ailleurs, les ressources mondiales en thorium sont plus dispersées mondialement que les ressources en uranium, et elles sont fortement concentrées dans certains pays dont les ressources minières en uranium sont au contraire plutôt faibles (Inde, Brésil, Turquie, Norvège...). Ainsi, compte tenu de l'augmentation prévisible de la demande énergétique mondiale, et afin de prévenir des conflits dans les pays d'approvisionnement en uranium (indépendance énergétique), il est absolument nécessaire de poursuivre l'étude de solutions alternatives à inclure au sein du mix-énergétique, aussi bien en France que dans les autres pays nucléarisés. Par ailleurs, les délais de conception, de qualification et de fabrication des réacteurs nucléaires futurs, imposent de concevoir dès aujourd'hui des solutions alternatives permettant de rendre "évolutionnaires" les REP (majoritairement répandus dans le monde, et acteurs incontournable du futur) et d'accroître à la fois leur utilisation des ressources naturelles et leur flexibilité. C'est dans ce cadre qu'à été réalisé ce travail de thèse, portant sur la recherche d'économie des ressources naturelles en REP, par des études de conception de cœurs sous-modérés à combustibles mixtes (thorium/uranium/plutonium) et complété par des analyses de scénarios de transition.

La recherche d'économie des ressources correspond en fait à l'accroissement du facteur de conversion, c'est à dire de l'équilibre précaire entre production et disparition de matière fissile. Bien que théoriquement possible en cycle thorium en spectre thermique, la haute conversion représente un défi de taille et requiert des solutions complexes aux différentes échelles géométriques d'un cœur nucléaire, mais également au niveau de la gestion des neutrons disponibles tout au long de l'irradiation. La restriction de l'étude aux réacteurs à eau légère pressurisée a été posée car cette étude s'inscrit dans le cadre d'un retard possible des réacteurs GENIV : la disponibilité de ces concepts doit être assurée pour l'horizon 2040. Cette contrainte, alliée au principe fondamental d'un réacteur nucléaire de produire de l'énergie (c'est à dire de délivrer 4000 MWth pendant un temps de séjour de l'ordre de 1500 jepp) empêchent d'atteindre la régénération. Des rapports d'inventaire fissile de l'ordre de 0.8 ont été visés, permettant une économie potentielle d'un facteur 2 à 3, à comparer aux réacteurs isogénérateurs pour lesquels une économie d'un facteur 50 à 100 est estimée.

Une analyse bibliographique des nombreuses études menées périodiquement depuis les années 1950 a montré que les leviers permettant d'accroître le facteur de conversion ont été mis très tôt en évidence. Il s'agit de durcir le spectre pour accroître les captures résonnantes fertiles. Ceci a pour conséquence un bilan neutronique beaucoup plus tendu qu'en REP car les neutrons capturés par des noyaux fertiles sont autant de neutrons en moins pour assurer la réaction en chaîne. De plus la haute conversion n'est possible que si l'excédent de neutrons disponibles (hors fuites et fissions neutroniques) est suffisant, ces mêmes neutrons étant produits par fission des noyaux fissiles. Nous apercevons déjà toute la complexité sous-jacente. La recherche de haute conversion peut se définir comme une recherche de **compromis**. Il n'y a pas une solution idéale, mais un échantillon de concepts fruits de ces différents compromis.

Le problème est ici d'autant plus complexe qu'il met en jeu à la fois le cycle thorium et le cycle uranium, et donc une gestion en flux tendu des ressources en uranium fissile ( $^{233}$ U) et en plutonium. En effet, l' $^{233}$ U n'étant pas présent naturellement du fait de sa période courte devant les temps géologiques, sa production en réacteur nucléaire de puissance doit être amorcée à l'aide d'un autre noyau fissile ( $^{235}$ U ou  $^{239}$ Pu). Le potentiel du thorium n'est véritablement utilisé qu'avec le multirecyclage de son fissile fils, l' $^{233}$ U. Par conséquent une réflexion a été engagée sur les stratégies à employer et sur l'aspect global du problème : l'analyse physique permet de déterminer des concepts *a priori*. Ces concepts ne peuvent être évalués qu'avec la prise en compte du multirecyclage des ressources. Des limites et des besoins apparaissent alors qui nécessitent de reboucler sur l'étape de conception, permettant de déterminer les potentiels d'un concept de cœur *a posteriori*.

Dans ce contexte, nous avons mis en place une chaîne de calcul (RSM2009-HEXA) adaptée aux cœurs hétérogènes à pas hexagonal sous-modérés et à forte teneur en plutonium, pouvant faire cohabiter des combustibles mixtes à base d' $U_{app}$ , de plutonium, de <sup>232</sup>Th et d'<sup>233</sup>U. Chaque étape a été validée par comparaison à des calculs probabilistes de référence. La validation de la section à 281 groupes du <sup>232</sup>Th a en particulier mis en évidence une sous-estimation systématique de la section de capture dans le domaine des résonances non-résolues, tandis que la section de  $l'^{233}$ U est correctement calculée. Les hétérogénéités à tous les niveaux sont bien représentées et montrent des résultats satisfaisants par rapport au calcul probabiliste. L'étape suivante résiderait en la confrontation de ce schéma de calcul avec l'expérience, et notamment en la réinterprétation du programme ERASME dans EOLE et au lancement de nouveaux programmes expérimentaux liés à des combustibles thoriés en réseaux sous-modérés. En effet, les résultats des simulations numériques sont actuellement justifiés indirectement par le fait que les codes de calcul sont qualifiés pour les combustibles UOX et MOX en REP et REB. Ainsi, le passage à un combustible thorié en réseau hexagonal sous-modéré ne devrait pas induire, a priori, de biais conséquent. Une seconde perspective s'ouvre sur l'extension du maillage SHEM à 281G d'énergie vers un maillage optimisé également pour les noyaux résonnants du cycle thorium.

Du fait de cette spécificité liée aux combustibles complexes étudiés (ThPuO<sub>2</sub>, ThUPuO<sub>2</sub>, ThUO<sub>2</sub>), des méthodes basées sur la théorie des facteurs d'équivalence ont été mises en place. Des outils ont été définis, permettant d'une part de comparer les performances de conversion de combustibles mixtes et d'autre part d'établir des modèles d'équivalence teneur/isotopie afin d'estimer simplement et rapidement la teneur fissile d'un combustible, quel que soit sa composi-

tion, en fonction d'un critère lié à la longueur de cycle. Ces méthodes ont été vérifiées et validées tout au long des études.

Fort de ce schéma de calcul et de ces outils d'analyse, une réappropriation des résultats a été entreprise. En particulier, les mécanismes physiques sous-jacents ainsi que les liens entre les différents leviers et paramètres impactant le facteur de conversion ont été analysés et mis en perspective avec les contraintes de l'étude portant notamment sur la longueur de cycle ou encore les dimensions géométriques. Cette première étape a permis de dégager des domaines d'études, c'est-à-dire des domaines où l'ajout de thorium permet d'accroître le facteur de conversion par rapport à un support  $U_{app}$  seul. Cette étude a mis en évidence deux voies, d'une part à faible rapport de modération et combustible ThPuO<sub>2</sub>, et d'autre part à rapport de modération standard ou accru avec de l'uranium fortement enrichi en isotope <sup>235</sup>U (20% $m_{NL}$ ).

L'étape suivante a consisté en la conception de cœurs RSM hétérogènes suivant le concept seed/blanket dans lequel des zones fertiles sont séparées spatialement de zones fissiles nourricières. Cet agencement particulier permet d'une part de séparer physiquement les crayons thoriés des crayons non-thoriés pour le retraitement, et d'augmenter le rapport d'inventaire fissile grâce à un facteur de conversion accru dans les zones fertiles. Les configurations ThPu / U et UPu / Th ont été évaluées et analysées tour à tour. En particulier, deux concepts ont été retenus pour une étude approfondie du multirecyclage des ressources fissiles. Le premier a été sélectionné pour sa forte production d'U<sub>tho</sub>, 36 kg/TWhé, au détriment d'une consommation accrue de plutonium de 94 kg/TWhé. Le second a été choisi pour sa consommation limitée de plutonium de 49 kg/TWhé, au prix d'une production d'<sup>233</sup>U plus faible avec 12 kg/TWhé. Bien qu'aucune analyse en transitoire accidentel n'ait été évaluée, nous savons que les points délicats inhérents aux réacteurs sous-modérés à forte teneur en plutonium sont le coefficient de vidange (variation de réactivité engendrée par une diminution de la densité de modérateur) et la fraction de neutrons retardés (qui régissent la cinétique). Ces paramètres impactent directement la sûreté du réacteur nucléaire. Nous avons pu vérifier que l'ajout de thorium accroît les marges à la vidange, mais que la proportion de neutrons retardés ( $\approx 300$  pcm) est plus faible qu'en REP MOX. Par rapport à ce dernier point, seuls des calculs de transitoires cinétiques permettront de conclure. Quant au coefficient de vidange, un travail de qualification sera nécessaire afin de conforter les tendances mises en évidence. Par ailleurs, des études de thermohydraulique ont été engagées afin de démontrer la faisabilité (ou de mettre en évidence les points faibles) de ces cœurs RSM thoriés du point de vue de la thermique et de la thermohydraulique. Il sera nécessaire par la suite de vérifier le comportement du cœur en transitoire accidentel et d'élaborer une nouvelle corrélation du Rapport à l'Echauffement Critique (REC) adaptée aux cœurs de RSM actuellement étudiés (actuellement, un grand nombre de mailles de calcul sont hors du domaine de validité de la corrélation de Courtaud).

Par la suite, les études de conception, aussi bien des RSM que des REP thoriés, ont permis de dégager des pistes et de déterminer les voies exploratoires les plus pertinentes en interaction avec des études de scénario permettant de prendre en compte le multirecyclage des ressources fissiles. Des hypothèses de travail les plus réalistes possibles ont été prises, hypothèses qui seront certainement à moduler en fonction de l'évolution de la R&D, notamment en termes de procédés de fabrication d'une part, et de techniques de retraitement et de séparation isotopique d'autre part. En particulier, un travail a été réalisé (encadrement d'un stage de Projet de Fin d'Etudes) sur l'apport de crayons annulaires à double gaine (c'est-à-dire avec gaine externe pastille et interne pour la circulation d'eau dans le trou central) sur la production d'<sup>233</sup>U en REP [Privas, 2012]. Une certaine flexibilité est offerte par ce concept au niveau de l'augmentation de la puissance grâce à une plus grande surface d'échange avec le caloporteur d'une part, et au niveau du pilotage par l'insertion de poisons consommables au centre des pastilles annulaires d'autre part. Les résultats encourageants à l'issue de l'étude neutronique (production d'<sup>233</sup>U d'environ 34 kg/TWhé pour un temps de séjour d'environ 1600 jepp), font parallèlement l'objet d'analyses au niveau de la fabrication des pastilles et du comportement sous irradiation du combustible et des doubles gaines.

Les concepts retenus à l'issue de l'étape de conception ont fait l'objet d'étude de scénarios de transition et de stratégies de multirecyclage des ressources fissiles  $U_{tho}$  et plutonium. Les principaux résultats obtenus sont que la cinétique de transition vers un parc à l'équilibre est lente (deux générations de réacteurs) pour un gain de 30% sur le besoin annuel en uranium naturel. Ce gain reste faible comparé au scénario de poursuite du mono-recyclage du MOX en REP (26%). Il a été mis en évidence que le facteur limitant le déploiement des RSM thoriés, et donc l'économie des ressources, est le très fort besoin en plutonium au regard des stocks limités. Les RSM producteurs d'<sup>233</sup>U sont le maillon indispensable entre les REP producteurs de plutonium et les RSM consommateurs d'<sup>233</sup>U. Pour relâcher la contrainte sur les stocks de plutonium et passer d'un déploiement linéaire à un déploiement conjoint des RSM producteurs et consommateurs d'<sup>233</sup>U, nous avons proposé d'anticiper la production d'<sup>233</sup>U dès 2020 au sein de REP standards. Ces REP sont constitués d'assemblages identiques zonés : une partie centrale en UO<sub>2</sub> alimentant les stocks de plutonium, et une partie périphérique thoriée alimentant les stocks d'U<sub>tho</sub>. Cette stratégie est de loin la plus favorable car elle permet une économie annuelle d'uranium naturel de 65% par rapport au scénario de poursuite du mono-recyclage du MOX en REP.

Quatrième partie

## Annexes

## Annexe A

# Résultats des études de sensibilité des facteurs d'équivalence

#### A.1 Étude du combustible $ThU_{tho}O_2$

La notation "U<sub>tho</sub>" désigne le vecteur uranium composé majoritairement de l'isotope <sup>233</sup>U, et issu de l'irradiation du thorium en réacteur. Les facteurs d'équivalences  $\omega^{X/^{233}U}$  des noyaux Xpar rapport à l'<sup>233</sup>U dépendent des sensibilités des sections efficaces microscopiques, condensées à un groupe d'énergie. Les résultats de l'étude de sensibilité des sections efficaces d'absorption au taux de combustion, à la composition isotopique et à la teneur en U<sub>tho</sub> sont proposées, pour un  $RM_{cellule}$  de 0.83.

Pour cela, trois vecteurs isotopiques ont été sélectionnés (détaillés dans le Tab. A.1). Le vecteur V1 correspond à l'uranium issu de l'irradiation d'un combustible ThPuO<sub>2</sub> en réacteur **M-ThPu**/F-U<sub>app</sub>. Le vecteur V2 correspond au vecteur V1 ayant fait un deuxième séjour en réacteur **M-ThPu**/F-U<sub>app</sub> au sein du combustible ThU<sub>tho</sub>PuO<sub>2</sub> et enfin le vecteur V3 correspond au vecteur V2 suivi d'un séjour au sein d'un RSM **M-ThU<sub>tho</sub>** au sein d'un combustible ThU<sub>tho</sub>O<sub>2</sub>.

Isotope	$U_{\rm tho}$ -V1	$U_{\rm tho}$ -V2	$U_{\rm tho}$ -V3
$^{233}U$	91.29	82.83	74.10
$^{234}\mathrm{U}$	7.28	12.92	20.80
$^{235}\mathrm{U}$	1.42	4.25	5.10
%m fissile	92.72	87.08	79.20

TAB. A.1: Vecteurs isotopiques  $U_{tho}$ 

A l'instar du combustible ThPuO<sub>2</sub>, les sections efficaces microscopiques d'absorption 1groupe sont principalement sensibles à teneur en  $^{233}$ U, par l'intermédiaire du spectre neutronique. Plus la teneur en  $^{233}$ U est faible et plus l'importance de la partie thermique des sections condensées augmente.



FIG. A.1: Résultats de l'étude de sensibilité des facteurs d'équivalence  $\omega^{X/^{233}U}$  au vecteur isotopique  $U_{tho}$ , à la teneur en  $U_{tho}$ , et au taux de combustion
## A.2 Étude du combustible $U_{app}$ PuO<sub>2</sub>

Ce paragraphe regroupe les résultats de l'étude de sensibilités des sections efficaces d'absorption des principaux noyaux lourds au taux de combustible, à la qualité et à la teneur en plutonium, pour un combustible  $U_{app}PuO_2$  à  $RM_{cellule}$  de 0.83. Les vecteurs isotopiques du plutonium considérés sont identiques à ceux détaillés dans le Tab. 1.1 (voir page 82).



FIG. A.2: Résultats de l'étude de sensibilité des facteurs d'équivalence  $\omega^{X/^{239}Pu}$  au taux de combustion, à la qualité et à la teneur en plutonium

Les résultats font l'objet des courbes de la Fig. A.2. Ici encore on remarque que les sections (et donc les facteurs d'équivalence) sont principalement sensibles à la teneur en plutonium. Par conséquent, si la teneur en plutonium du combustible à évaluer s'éloigne trop fortement de celle employée pour déterminer les facteurs d'équivalence, il sera nécessaire d'ajuster les facteurs en fonction.

# Annexe B

# La chaîne de calcul RSM2009-HEXA

Le schéma REL2005, présenté succinctement au chapitre II.2.6, a été optimisé pour le calcul des REP et REB à pas carré et à combustible UOX / MOX. Ce schéma à dû être adapté au calcul de réacteurs à pas hexagonal, sous modérés, et à très forte teneur en plutonium et avec des combustibles mixtes Th/U/Pu.

D'autre part, les cœurs RSM étudiés dans ce mémoire sont hétérogènes radialement (assemblages fertiles/fissiles) et axialement (tranches fertiles axiales). Des variations importantes des sections à l'endroit des interfaces fissiles/fertiles ont été mises en évidence et ont nécessité de différencier les zones interfaciales lors du calcul cœur.

Cette annexe a pour objectif de décrire le formalisme d'autoprotection des éléments de la chaîne thorium, non pris en compte au moment de l'élaboration et de l'optimisation du schéma *REL2005*, ainsi que les différentes géométries de calcul qui ont été employées et la chaîne de calcul qui a été mise en place, depuis la constitution des bibliothèques multi-paramétrées par APOLLO2 jusqu'au calcul de cycle d'équilibre avec CRONOS2.

### B.1 Le formalisme d'autoprotection

Le formalisme d'autoprotection des principaux actinides basé sur le maillage SHEM est décrit en [Hfaiedh, 2006]. Les noyaux résonnants <sup>232</sup>Th et <sup>233</sup>U de la chaîne thorium ont été inclus au formalisme d'autoprotection développé pour *REL2005*. Les options d'autoprotection qui ont été retenues sont celles décrites sur les diagrammes Fig. B.1.

En-dessous de 22.5 eV, le maillage fin SHEM suffit et seul un élargissement Doppler des résonances est effectué. Le <sup>232</sup>Th est autoprotégé en mélange par la méthode des tables de probabilité entre 33 et 198 eV. L'<sup>233</sup>U et le <sup>232</sup>Th sont autoprotégés avec le modèle de ralentissement standard *ST* avec courants d'interfaces isotropes (*UP0*), calculés sur une géométrie 1D cylindrisée (*ROTH*) sur le reste du domaine énergétique.

Ces options ont validées en réseau hexagonal sous-modéré par comparaison à TRIPOLI4. Les résultats relatifs en particulier aux cas suivants vont être détaillés  $(RM_{cellule} = 0.83)$ :

- combustible ThPuO<sub>2</sub> ( $21\% m_{NL}$  de plutonium);
- combustible Th<sup>233</sup>UO<sub>2</sub> (3% $m_{NL}$  d'<sup>233</sup>U).



FIG. B.1: Options d'autoprotection des isotopes  $^{232}\,Th$  et  $^{233}\,U$ 

#### Étude du combustible ThPuO<sub>2</sub> ( $21\% m_{NL}$ de plutonium)

Sont détaillés dans ce paragraphe les résultats issus de la comparaison des sections efficaces de capture du <sup>232</sup>Th et du <sup>240</sup>Pu, ainsi que des sections efficaces de fission du <sup>239</sup>Pu et du <sup>241</sup>Pu, condensées à 26 groupes d'énergie. Ces études visent à valider l'autoprotection de ces principaux noyaux lourds en réseau hexagonal sous-modéré et à forte teneur en plutonium. Le choix du maillage de condensation à 26 groupes provient d'un compromis. En effet, le schéma de calcul RSM2009-HEXA est à double niveau : un premier calcul de flux par la méthode  $P_{ij}$  à 281 groupes est réalisé, puis les sections efficaces autoprotegées sont condensées à 26 groupes d'énergie grâce à ce spectre, afin de permettre un calcul par la méthode MOC sur un nombre de groupes énergétiques restreint. Les sections et le spectre sont ainsi comparés sur ce maillage 26 groupes entre APOLLO2 et TRIPOLI4 en correspondance avec le deuxième niveau du schéma.



FIG. B.2: Comparaison des écarts APOLLO2 / TRIPOLI4 sur la section de capture du <sup>232</sup> Th condensée à 26 groupes d'énergie, et spectre neutronique normalisé (incertitude TRIPOLI  $\sigma < 0.7\%$ )

La comparaison APOLLO2 / TRIPOLI4 montre que la section efficace de capture est très bien calculée, excepté dans les groupes 8 et 9, soit entre 2 et 25 keV environ (Fig. B.2). Par exemple, dans le groupe 9, la section APOLLO2 est sous-estimée de 5% environ (incertitude TRIPOLI  $\sigma = 0.06\%$ ) tandis que la section multigroupe vaut 1.60 b, ce qui correspond à un écart absolu de 80 mb. L'écart reste faible mais est non négligeable car les captures dans ces deux groupes d'énergie représentent 19% du taux de capture total du <sup>232</sup>Th. Cette sous-estimation

de l'ordre de 4 à 5% de la capture du <sup>232</sup>Th dans le domaine non résolu est systématiquement observée. Le calcul d'autoprotection des sections multigroupes est basé sur une méthode d'équivalence. Des modèles de l'opérateur de ralentissement lourd sont nécessaires afin de résoudre l'équation du ralentissement permettant de calculer les taux de réaction en géométrie hétérogène (puis de remonter aux taux de réactions réels par équivalence avec les taux de réaction en géométrie homogène). L'opérateur de ralentissement lourd utilisé pour E > 198 eV est le modèle "ST" (Résonances Statistiques). Les résonances sont supposées étroites, statistiquement distribuées dans le groupe et l'espacement entre deux résonances est supposé faible devant le gain maximum de léthargie. Les modèles NR (Narrow Resonance) et TR (Toute Résonance) ont été testés également sans amélioration notable sur le calcul de la section. La précision de calcul des flux (Pij) pour l'autoprotection étant dépendante de l'énergie, l'option UP1-HETE a été testée, sans amélioration.



FIG. B.3: Comparaison des résultats APOLLO2 / TRIPOLI4 sur les sections de capture (fission) des isotopes  $^{240}Pu$  ( $^{239}Pu$ ,  $^{241}Pu$ ) condensées à 26 groupes d'énergie (incertitude TRIPOLI  $\sigma < 0.7\%$ )

La Fig. B.3 détaille les écarts APOLLO2 / TRIPOLI4 relatifs aux isotopes <sup>239</sup>Pu, <sup>240</sup>Pu et <sup>241</sup>Pu. On remarque que les sections sont un peu chahutées au niveau de la résonance à 1 eV du <sup>240</sup>Pu, mais que les écarts sont inférieurs à 2%. Par ailleurs, de légères sous-estimations sont observées sur tout le domaine du ralentissement en ce qui concerne le <sup>240</sup>Pu, avec au maximum -2% pour cet isotope, et -1.5% pour le <sup>239</sup>Pu. La section de fission du <sup>241</sup>Pu est calculée à mieux que 1.5%.

La comparaison des spectres neutroniques entre APOLLO2 et TRIPOLI4 fait l'objet de la Fig. B.4. Les écarts observés sur le flux multigroupe sont cohérents avec ceux observés sur les sections, c'est-à-dire une sous-estimation du flux autour de 1 eV et une faible surestimation sur la plage énergétique correspondant au domaine d'autoprotection en mélange (33 - 198 eV). Toutefois des écarts notables ( $\approx 4\%$ ) apparaissent aux énergies très thermiques (E < 0.01 eV). Cependant, la superposition de ces écarts avec le spectre neutronique montre qu'à ces énergies ne subsiste quasiment aucun neutron.

Enfin, la décomposition du  $k_{infini}$  en six facteurs (Tab. B.1) permet d'analyser le bilan neutronique de la cellule. Les incertitudes associées à chaque facteur sont reconstituées à partir des incertitudes liées aux taux de réaction. Cette reconstitution est cependant grossière car les



FIG. B.4: Comparaison des résultats APOLLO2 / TRIPOLI4 sur le spectre (incertitude TRIPOLI $\sigma < 0.7\%$ )

incertitudes sont calculées par une somme quadratique alors qu'en réalité les incertitudes sont corrélées entres elles. L'incertitude TRIPOLI4 sur le facteur de multiplication infini est de 31 pcm pour 15 000 000 histoires de neutron.

$$\sigma_{R,i,g}^{TRIPOLI} = \frac{\tau_{R,i,g}^{TRIPOLI}}{N_i \times \Phi_g^{TRIPOLI}} \quad et \quad \sigma = \sqrt{\sigma_{flux}^2 + \sigma_{taux}^2} \tag{B.1}$$

Facteur	APOLLO	TRIPOLI	$\sigma$ (pcm)	Ecart (pcm)
$\chi$	1.00249	1.00253	315	-5
$\epsilon_{pair}$	1.05966	1.06008	181	-39
$\epsilon_{impair}$	2.99048	3.00411	181	-455
p	0.22897	0.22731	126	724
f	0.99365	0.99387	120	-22
η	1.57732	1.57546	122	117
kinfini	1.14001	1.13636	31	321

TAB. B.1: Comparaison du bilan neutronique APOLLO2 / TRIPOLI4 (combustible ThPuO<sub>2</sub>,  $21\% m_{NL}$ )

L'écart global sur le  $k_{infini}$  est de 321 pcm. On remarque que les écarts les plus importants proviennent du calcul du facteur de fission rapide des actinides impairs  $\epsilon_{impair}$  (-455 pcm) et du facteur anti-trappe p (+724 pcm). Ces deux facteurs sont liés : si les fissions dans le groupe rapide sont sous-estimées, le nombre de neutrons qui passent le domaine du ralentissement et atteignent l'énergie thermique augmente, et ce, que la capture résonnante soit bien calculée ou non. Par ailleurs un combustible à base de plutonium (en forte concentration) est plus délicat à calculer, du fait que presque tous ses isotopes sont résonnants. Le calcul est d'autant plus délicat en réseau sous-modéré où le spectre est décalé vers les hautes énergies : le taux de réaction dans le groupe rapide (E > 0.625 eV) est bien supérieur à celui du groupe thermique (E < 0.625 eV).

#### Étude du combustible <sup>232</sup>Th<sup>233</sup>UO<sub>2</sub> ( $3\% m_{NL}$ d'<sup>233</sup>U)

La comparaison du bilan neutronique entre APOLLO2 et TRIPOLI4 concernant le combustible  $^{232}$ Th $^{233}$ UO<sub>2</sub> montre que le k<sub>infini</sub> est surestimé de 614 pcm (Tab. B.2). Ici encore la source principale des biais observés est le facteur anti-trappe (+763 pcm) et dans une moindre mesure

Facteur	APOLLO	TRIPOLI	$\sigma$ (pcm)	Ecart (pcm)
$\chi$	1.00238	1.00240	320	-3
$\epsilon_{pair}$	1.00976	1.00996	125	-20
$\epsilon_{impair}$	1.50322	1.50526	125	-136
p	0.52991	0.52589	83	763
f	0.96574	0.96577	73	-3
η	1.62144	1.62144	73	0
kinfini	1.26251	1.25478	33	614

le facteur de fission rapide de l'<sup>233</sup>U  $\epsilon_{impair}$  (-136 pcm). L'écart sur le facteur anti-trappe découle directement de la sous-estimation de la capture résonnante du <sup>232</sup>Th.

TAB. B.2: Comparaison du bilan neutronique APOLLO2 / TRIPOLI4 (combustible Th<sup>233</sup>UO<sub>2</sub>, 3%m<sub>NL</sub>)

La comparaison des sections efficaces effectives de capture du <sup>232</sup>Th et de fission de l'<sup>233</sup>U fait apparaître une sous-estimation de la capture résonnante du <sup>232</sup>Th sur la plage 2 - 100 keV, déjà observée pour le combustible ThPuO<sub>2</sub>. En revanche la section de fission de l'<sup>233</sup>U est très bien calculée (les écarts ne dépassent pas 1% en valeur absolue, pour une incertitude TRIPOLI de 0.4% au maximum).



FIG. B.5: Comparaison des résultats APOLLO2 / TRIPOLI4 sur les sections de capture du <sup>232</sup> Th et de fission de l<sup>233</sup> U, ainsi que le spectre neutronique, à 26 groupes d'énergie

Afin d'identifier plus précisément l'origine des écarts sur la capture résonnante du <sup>232</sup>Th, la comparaison des sections à 281 groupes est proposée Fig. B.6. Cette figure met en évidence que la section APOLLO2 est très fortement sous-estimée entre 5 keV et 500 keV (domaine non-résolu). La section à 281 groupes de l'<sup>233</sup>U est quant à elle correctement calculée (Fig. B.7).



FIG. B.6: Comparaison APOLLO2 / TRIPOLI4 de la section de capture du <sup>232</sup>Th à 281 groupes (SHEM)



FIG. B.7: Comparaison APOLLO2 / TRIPOLI4 de la section de fission de l $^{233}$ U à 281 groupes (SHEM)

### B.2 Méthode d'élaboration des SAPHYB en fonction du milieu

La création des SAPHYB se fait en deux étapes. Tout d'abord un calcul d'évolution dans les conditions nominales de fonctionnement est réalisé jusqu'à un taux de combustion final d'environ trois fois le taux de combustion maximal au déchargement visé (c'est-à-dire environ  $3 \times 60 = 180 \text{ GWj/t}$ ). La constitution des SAPHYB est décrite au chapitre II.3. Le temps de calcul croît fortement avec le paramétrage des SAPHYB. Par exemple, celles constituées pour les RSM (c'est-à-dire sans bore) sont paramétrés selon les points décrits dans le Tab. B.3 : 10 taux de combustion  $\times 6$  températures combustibles  $\times 10$  températures (densités) modérateur = 600 calculs d'autoprotection et de flux double niveau, pour la création d'une SAPHYB.

Taux de combustion	Températures combustible	Températures modérateur (densité)
MWj/t	$^{\circ}\mathrm{C}$	$^\circ\mathrm{C}~\mathrm{(kg/m^3)}$
0	40	$311\ (702.456)$
500	280	$280\ (764.643)$
1000	650	200 (869.036)
5000	800	125 (942.392)
10000	1200	40 (992.210)
25000	2000	324~(668.083)
50000		344 (602.250)
100000		311 (210.000)
140000		311 (21.000)
180000		311 (7.000)

TAB. B.3: Paramètres des SAPHYBS (en gras les conditions de température et de densité nominales, en rouge les points spécifiques relatifs aux calculs de vidange)

Trois géométries de calcul sont employées afin de constituer ces bibliothèques de sections efficaces multi-paramétrées relatives à chaque milieu. On distinguera cinq milieux : les assemblages fertiles (voir Fig. B.8b), les tranches fissiles (voir Fig. B.8a), les tranches fertiles, et les 5 cm de volume combustible de part et d'autre de chaque interface tranche (voir Fig. B.8c) fertile/fissile.

Les tranches fissiles (excepté les 5 cm à l'interface avec les tranches fertiles) seront dénommées "MOX-asymptotique" par la suite. La géométrie correspondante est une géométrie multicellule 2D assemblage sans environnement particulier, en milieu infini. Sur la Fig. B.8a sont précisés les regroupements de cellules physiques pour le calcul d'autoprotection.

Le schéma de calcul employé permet de prendre en compte la géométrie exacte avec un temps de calcul limité. En effet, en géométrie hexagonale, la modélisation de la lame d'eau est particulièrement importante et nécessite une modélisation de type Two/Three Dimensional Transport (TDT) pour transcrire les mailles non régulières. Une première étape consiste à calculer un flux de condensation à 281 groupes par la méthode  $P_{ij}$  sur une géométrie régulière, puis de condenser les sections efficaces multigroupes à l'aide de ce flux sur un maillage plus restreint (26 groupes). Le calcul de flux par la méthode MOC à 26 groupes d'énergie constitue un très bon compromis entre temps de calcul et précision et permet de calculer très précisément le flux sur cette géométrie non régulière. Sans géométrie TDT, la lame d'eau est modélisée par une couronne supplémentaire hexagonale, constituée de modérateur à eau légère dont la concentration atomique est diluée afin de respecter le bilan matière.

Les sections représentatives des assemblages fertiles sont également calculées sur une géométrie multicellule assemblage en réseau hexagonal par une méthode en double niveau (Fig. B.8b). Le flux des zones fertiles est gouverné par celui des milieux nourriciers adjacents. Il est donc primordial de prendre en compte cet environnement à forte teneur en plutonium pour le calcul d'évolution permettant la constitution des SAPHYB. Pour cela, une étape préliminaire est nécessaire, afin de constituer le milieu nourricier environnant. Ce milieu appelé "HOMOGE" est obtenu après une homogénéisation spatiale d'un assemblage d' $U_{app}$ PuO<sub>2</sub> à un taux de combustion moyen de 20 GWj/t. Par la suite, ce milieu est employé pour imposer un flux nourricier aux assemblages fertiles. La validité de cette modélisation a été vérifiée par comparaison au calcul étalon TRIPOLI4.



FIG. B.8: Schémas des géométries de calcul

# Annexe C

# Évaluations thermique et thermohydraulique du cœur M-ThPu/F-U<sub>app</sub>

Parmi les critères de sûreté que doivent vérifier les réacteurs nucléaires, le plus important est le maintien de l'intégrité de la gaine du combustible car c'est la première barrière de confinement. Ainsi, certains points sont à vérifier en conditions normales d'opération et pendant certains transitoires, identifiés comme dimensionnant. Ces points portent sur :

- La température maximale de la pastille combustible, qui doit rester inférieure à la température de fusion de l'oxyde, ce qui conditionne également la densité de puissance linéique maximale autorisée. Par exemple, la température de fusion de l'oxyde d'uranium est de 2590°C, ce qui correspond à une puissance linéique de 720 W/cm dans le cas d'un REP 1300 MWé. Une marge de sécurité abaisse la valeur maximale autorisée à 590 W/cm, soit une température combustible de 2260°C [Delhaye, 2008]. Cette valeur est également celle retenue pour le rapport préliminaire de sûreté de l'EPR de Flammanville 3 [?].

La température de fusion de l'oxyde de thorium est supérieure à celles des oxydes d'uranium et de plutonium. Des mesures récentes effectuées par [Ronchi and Hiernaut, 1996], en accord avec des mesures antérieures, ont déterminé cette température de fusion à  $3651^{\circ}$ C en 1996, contre 2760 et 2400°C pour UO<sub>2</sub> et PuO<sub>2</sub> respectivement. Le point de fusion du ThO<sub>2</sub> est l'un des plus élevés des oxydes réfractaires. L'avantage liée à cette température de fusion élevée est la possibilité d'accroître la puissance spécifique du combustible [Lee et al., 2004].

– Le Rapport à l'Echauffement Critique (REC), défini par l'équation (C.1), où  $\Phi_{critique}$  correspond au flux de chaleur conduisant à la crise d'ébullition, et  $\Phi_{gaine}(z)$  le flux de chaleur au niveau de la gaine de l'assemblage le plus chaud à la côte z.

$$REC = \frac{\Phi_{critique}}{\Phi_{gaine}(z)} \tag{C.1}$$

La crise d'ébullition se produit lorsque l'échauffement local conduit à la formation d'un film de vapeur autour des crayons. Le transfert thermique entre la gaine et le caloporteur s'écrit selon la loi (C.2). Dans ces conditions, on observe une détérioration du coefficient d'échange thermique (h) alors que le flux de chaleur $(\Phi_{th})$  et la température du fluide caloporteur  $(T_{caloporteur})$  sont imposés. La diminution de h avec l'ébullition entraîne immédiatement l'augmentation de la température de paroi  $(T_{paroi})$  et peut conduire à la rupture de la gaine par fusion, et à la contamination du circuit primaire.

$$\Phi_{th} = h \left( T_{paroi} - T_{caloporteur} \right) \tag{C.2}$$

Le flux de chaleur critique est évalué sur le canal le plus chaud et varie en fonction de la côte z. La courbe du flux passe par un maximum en fonction de la côte z, qui correspond à un minimum pour le REC. Ce minimum est noté  $REC_{min}$ . Le flux critique est estimé à partir de corrélations établies à partir de résultats expérimentaux. Ces corrélations sont associées à des domaines de validité. Les exigences de sûreté imposent  $REC_{min} > 1.5$ .

- La limitation de la température de la gaine afin d'éviter l'emballement de la réaction exothermique  $Zr - H_2O$  et de la libération d'hydrogène associée (C.3).

$$Zr + 2 H_2O \rightarrow ZrO_2 + 2H + \Delta H \ (\Delta H \approx -650 \ kJ/mole \ Zr)$$
 (C.3)

La cinétique rapide de cette réaction est déclenchée à la température seuil de 1200°C pour la gaine et s'accélère aux environs de 1500°C [IRSN, 2008]. Le levier permettant de contrôler ce phénomène en conditions normales de fonctionnement est également la densité de puissance linéique maximale autorisée.

- Enfin, une puissance localement élevée peut conduire au gonflement de la pastille et à l'Interaction Pastille-Gaine (IPG). L'IPG est responsable de contraintes mécaniques sur la gaine, et de contraintes chimiques avec la corrosion sous contrainte de la gaine engendrée par certains PF, et l'augmentation de la pression interne du crayon [Delhaye, 2008].

Ces critères sont tous liés à la densité de puissance du combustible, elle-même évaluée par l'intermédiaire des facteurs de forme  $F_{XY}$  et  $F_Z$  mesurant les déformations maximales des nappes de puissances axiale et radiale du cœur. La distribution de puissance du cœur est fonction principalement du plan de chargement et des hétérogénéités liées à la composition du combustible. D'autres paramètres l'impactent à plus faible échelle, parmi lesquels la position des crayons empoisonnés, la position des grappes de contrôle, le taux de combustion, les coefficients modérateur et Doppler, et enfin la répartition axiale des isotopes Xe et Sm.

L'objectif de cette évaluation thermohydraulique succincte est de vérifier que le passage à un combustible thorié ne modifie pas les marges de sûreté relatives aux points spécifiques mentionnés précédemment. Pour cela, nous avons sélectionné le cœur M-ThPu/F-U<sub>app</sub>. En effet, le concept RSM hétérogène de référence sans thorium a déjà fait l'objet d'étude thermohydrauliques qui n'ont pas révélé de point bloquant. Par conséquent nous souhaitons à présent évaluer le comportement du combustible oxyde ThPuO<sub>2</sub>. Les calculs ont été réalisés avec le code FLICA4 du système SAPHYR [Akherraz et al., 2003]. Les données d'entrée du calcul neutronique nécessaire à FLICA4 sont les distributions de puissance par maille, obtenues par le calcul cœur CRONOS2.

## C.1 Sélection bibliographique des propriétés thermiques du ThPuO<sub>2</sub>

La capacité calorifique ainsi que la conductivité thermique du combustible oxyde ThPu sont fonction à la fois de la température, mais également de la fraction massique de plutonium. Afin de simplifier la modélisation, nous avons choisi de retenir les valeurs correspondant à la fraction massique moyenne de plutonium des assemblages fissiles en coeur, soit **18.87**  $\% m_{NL}$ .

La conductivité thermique de l'oxyde ThPuO<sub>2</sub> pour 0, 3, 8, 30 et  $100\%m_{NL}$  de plutonium a été mesurée par [Cozzo et al., 2011]. Les résultats analysés montrent un comportement similaire à ce qui peut être observé dans le cas d'un oxyde mixte UPuO<sub>2</sub>. Une nouvelle corrélation a été élaborée à partir du modèle classique de transport des phonons dans un réseau critallin, et ce à différentes températures (Fig. C.1).



FIG. C.1: Conductivité thermique de ThPuO<sub>2</sub> en fonction de la température (Source : [Cozzo et al., 2011])

La capacité calorifique  $C_p(T)$  est extraite de la référence [IAEA, 2005a]. C'est une combinaison linéaire des capacités calorifiques du ThO<sub>2</sub> et du PuO<sub>2</sub> en fonction de leur fraction massique :

$$C_p^{[Th_{(1-y)}Pu_{(y)}O_2]}(T) = (1-y) \times C_p^{[ThO_2]}(T) + y \times C_p^{[PuO_2]}(T)$$
(C.4)

Les capacités calorifiques  $C_p^{[ThO_2]}(T)$  et  $C_p^{[PuO_2]}(T)$  utilisées pour l'étude sont détaillées par les équations (C.5) et (C.6) [IAEA, 2005a].

$$C_p^{[ThO_2]}(T) = 55.96 + 51.26.10^{-3}T - 36.80.10^{-6}T^2 + 9.22.10^{-9}T^3 - \frac{5.74.10^{-5}}{T^2}$$
(C.5)

$$C_p^{[PuO_2]}(T) = \frac{1.13.10^8 \exp{\frac{572}{T}}}{T^2 \left[\exp{\frac{571}{T}} - 1\right]} + 3.95.10^{-4}T + \frac{3.66.10^{12}}{RT^2} \exp{\frac{-1.96.10^5}{RT}}$$
(C.6)

Les conductivités thermiques  $\lambda(T)$  aux points 500, 1000 et 1500°C sont lues sur le graphique issu de la référence [Cozzo et al., 2011] (voir Partie I, Fig. C.1 page 215). En effet, le domaine d'étude couvert par les mesures expérimentales à l'origine de cette courbe correspondent à nos besoins, à savoir une densité égale à 95% de sa valeur théorique, une fraction massique en plutonium allant jusqu'à  $30\% m_{NL}$ , et une plage de température de 500 à 1500K.

## C.2 Distribution de puissance cœur CRONOS2

La puissance radiale normalisée, par assemblage, montre que l'assemblage le plus chaud est l'assemblage numéroté 20 sur la Fig. C.2a. Les études dont les résultats vont être détaillés ensuite se sont focalisées sur les assemblages à fond jaune, c'est-à-dire l'assemblage le plus chaud (20), les assemblages (30), (19) (adjacents) et l'assemblage (169), qui est un assemblage fertile (Fig. C.2b). Les assemblages (19) et (30) font partie des assemblages aux taux de combustion les plus élevés, adjacents à l'assemblage le plus chaud, afin d'observer la tenue des matériaux.



FIG. C.2: Puissances radiales normalisées et numérotation des assemblages

Les distributions de puissances font apparaître une puissance axiale maximale de 967 kW (Fig. C.3) tandis que la puissance moyenne dans les assemblages fissiles ne dépasse pas 750 kW et 350 kW dans les assemblages fertiles, dont la puissance dégagée est environ deux fois plus faible.

## C.3 Modélisation thermohydraulique du cœur pour FLICA4

L'unité modélisée par FLICA4 est l'assemblage. Le code réalise un calcul crayon afin d'évaluer le gradient de température dans le combustible et la gaine. Ensuite, chaque assemblage est assimilé à un crayon unique. Le découpage axial des mailles de calcul est identique à celui de CRONOS2.

Le diamètre hydraulique est calculé à partir des dimensions assemblages, les tubes guides remplis d'eau. Les grilles de maintien, de mélange et d'écartement sont celles proposées par FRAMATOME pour le RCVS en 1987 [Hittner et al., 1988]. Au total, 8 grilles sont réparties sur la hauteur du crayon modélisés par des coefficients de pertes de charge singulières détaillés dans le Tab. C.1.



FIG. C.3: Puissances axiales coeur

Grille	Nombre	Κ
Mélange	2	1.84
Maintien inférieur	1	2.70
Maintien supérieur	1	1.30
Mécanique	2	2.20
Ecartement	2	1.30
Embout supérieur	1	1.57
Embout inférieur	1	2.44

TAB. C.1: Coefficient de pertes de charges singulières des différentes grilles et embouts

## C.4 Analyse des résultats

#### C.4.1 Températures caloporteur

Le Tab. C.2 regroupe les valeurs des températures du caloporteur eau légère entre entrée et sortie cœur. L'échauffement moyen est de 33°C tandis que le  $\Delta T_{max}$  est de 46°C (canal chaud).

Du  $\Delta T_{coeur}$  va dépendre le rendement électrique du réacteur. Ainsi, pour l'EPR, le rendement prévu est de 36%, ce qui correspond à un  $\Delta T$  moyen cœur de 32.8°C. Or, avec le resserremment du pas du réseau, les pertes de charges attendues sont supposées plus élevées qu'en REP traditionnel. L'augmentation des pertes de charges implique d'augmenter le débit dans le coeur, et donc la puissance de pompage. Cette modification entraîne par la suite l'adaptation des circuits secondaires en conséquence, et notamment les dimensions et le point de fonctionnement des générateurs de vapeur.

	$T_{entree}$ (°C)	291.60
Moyen coeur	$T_{sortie}$ (°C)	325.05
	$\Delta T$ (°C)	33.45
	$T_{entree}$ (°C)	291.60
Canal chaud	$T_{sortie}$ (°C)	338.14
	$\Delta T$ (°C)	46.54

TAB. C.2: Températures du caloporteur

#### C.4.2 Températures combustible et gaine

Les températures maximales évaluées pour la gaine et le combustible de l'assemblage le plus chaud sont respectivement  $T_{max \ gaine} = 367^{\circ}C$  et  $T_{max \ comb} = 1192^{\circ}C$ . Sachant que les températures de fusion du PuO<sub>2</sub> et du ThO<sub>2</sub> sont de 2400°C et 3650°C [Ronchi and Hiernaut, 1996], les marges sur la température combustible sont confortables, à l'instar de celles pour la gaine.

Notons  $\Delta T_{sat}$  la surchauffe de la paroi, liée à la stabilité thermodynamique (la formation d'une bulle se fait à l'équilibre thermodynamique, c'est-à-dire lorsque  $T_{vap} = T_{liq}$ , et à l'équilibre mécanique, c'est-à-dire que la bulle de rayon r se maintient si la tension superficielle  $\sigma$  résiste à la pression du liquide :  $p_{vap} - p_{liq} = 2\sigma/r$ . Or la température de saturation est une fonction croissante de la pression, ce qui implique (C.7).

$$T_{sat}(p_{vap}) > T_{sat}(p_{liq}) \tag{C.7}$$

La création de bulle survient lorsque la température vapeur est à sa valeur de saturation, soit (C.8).

$$T_{lig} = T_{vap} = T_{sat}(p_{vap}) > T_{sat}(p_{lig}) \tag{C.8}$$

Par conséquent l'ébullition survient à température surchauffée. Nous vérifions donc que la température du caloporteur en paroi en fonction de la côte axiale ne dépasse pas la température de saturation (Fig. C.4).

L'assemblage chaud s'approche de la température de saturation au niveau de la côte axiale 325 cm. Cependant, une ébullition nuclée faible est tolérée, d'autant plus que l'ébullition ne commence que lorsque la température de paroi est à  $T_{sat} + \Delta T_{sat}$ .

#### C.4.3 Évaluation du $REC_{min}$

Le REC<sub>min</sub> fait partie des critères dimensionnant. Sa valeur doit être impérativement supérieure à 1.5 afin d'assurer les marges nécessaires pour éviter la crise d'ébullition. Nous rappelons ici que son calcul passe par la détermination du flux critique  $\Phi_{crit}(z)$ , obtenu par des corrélations. Les trois principales corrélations à notre disposition spécifiques aux réseaux serrés à pas hexagonal sont celles de Groeneveld (1996), Tong (Westinghouse W3, 1972) et Courtaud (GSM6, 1988). Une étude comparative réalisée par [Cheng and Muller, 1998] préconise d'utiliser la corrélation de Courtaud [Courtaud et al., 1988]. Son domaine de validité est délimité par :



FIG. C.4: Température en paroi en fonction de la hauteur

76	<	pression $P$ (bars)	<	160
2000	<	vit. massique G $\left(kg/m^2/s\right)$	<	8000
-0.2	<	titre thermodynamique	<	$^{+0,4}$

La corrélation de Courtaud est définie par (C.9).

$$\Phi_c = -B \times X \tag{C.9}$$

$$\begin{cases} = a_1 + (a_2 \times G) + (a_3 \times \frac{P}{P_c} + (a_4 \times R_D)) \\ B = b_1 + (b_2 \times G + (b_3 \times \frac{P}{P_c}) \\ R_D = 1 - \left(\frac{D_{ch}}{D_{hy}}\right)^{0.25} \end{cases}$$
(C.10)

1.5606débit massique surfacique  $(t/m^2/s)$ G  $a_1$ 0.3360 Р pression (Pa)  $a_2$ 0.3723Х titre thermodynamique débitant  $a_3$ pression critique (=  $20.105510^6$  Pa) -2.5971 $P_c$  $a_4$  $b_1$ -1.7364 $D_{ch}$ diamètre chauffant (= 0.0065m) $D_{hy}$  $b_2$ 0.9740 diamètre hydraulique (= 0.0061m)  $b_3$ 6.5283 $\Phi_c$ flux critique  $(MW/m^2)$ 

Cependant, bien que cette corrélation soit la plus indiquée, un grand nombre de mailles thermodynamiques sont hors du domaine de validité, ce qui ajoute de l'incertitude au résultat sur le  $\text{REC}_{min}$ . Ainsi, à titre indicatif, environ 68% des mailles de calcul sont hors du domaine, pour un débit égal au débit nominal, et 50% des mailles lorsque le débit est réduit à 70%.

Malgré cette incertitude importante, le  $\text{REC}_{min}$  est évalué à **6.72**, ce qui est bien supérieur aux limites minimales imposées par la sûreté. Cette valeur ne prend cependant pas en compte le facteur de puissance assemblage. La valeur du  $\text{REC}_{min}$  est donc inférieure à celle calculée ici, sans oublier le fait qu'un grand nombre de mailles sont hors du domaine de validité de la corrélation. Cette valeur est indicative et nécessitera des vérifications et des études ultérieures.

#### C.4.4 Calcul des pertes de charges

Deux causes sont responsables des pertes de charges. La première est le frottement du caloporteur contre les parois des gaines, et la seconde la présente des différentes grilles et embouts présents sur la hauteur de l'assemblage. Le calcul des pertes de charges associées aux grilles décrites précédemment a été réalisé grâce à la corrélation *Destorder* (C.13).

$$\Delta P = C_s \times \epsilon^2 \times \left(\frac{\rho u^2}{2}\right) \tag{C.11}$$

$$\epsilon = \frac{S_{grille}}{S_{grille} + S_{fluide}} \tag{C.12}$$

$$C_s = 3.21 + \frac{4.810^5}{Re^{1.07}} \tag{C.13}$$

Cette corrélation permet le calcul des pertes de charge singulières en fonction des coefficients de perte de charge de chacune des grilles  $(C_s)$ . Ces derniers tiennent compte du nombre de Reynolds (Re) et du taux d'occupation de la grille dans le canal  $(\epsilon)$ .

Ainsi, le profil des pertes de charge obtenu, décrit par la Fig. C.5, montre que  $\Delta P_{coeur}$  reste inférieur à 4.5 bars. Les discontinuités observées correspondent aux grilles. Une perte de charge de 4.5 bars correspond à la valeur du critère établi pour les RSM afin de limiter la puissance de pompage et l'augmentation de la force d'envol, force avec laquelle le caloporteur est susceptible de soulever l'assemblage.



FIG. C.5: Pertes de charges en fonction de la côte axiale z

#### C.4.5 Conclusion sur l'évaluation thermohydraulique

En conclusion de évaluation, aucun point bloquant n'a été mis en évidence. Les critères de sûreté sont respectés. Cependant, nous attirons l'attention sur deux points importants. Le premier est que la précision du calcul s'arrête à l'assemblage. En effet, il serait important de passer à une description par crayon afin de mettre en évidence des limitations éventuelles dues à des facteurs de points chauds locaux, sous-estimés jusqu'à présent. Enfin, la corrélation employée pour le calcul du flux critique a montré ses limites avec à peine 50% des mailles thermodynamiques comprises dans le domaine de validité de la corrélation, ce qui remet en cause la valeur du  $REC_{min}$  calculée.

# Annexe D

# Élaboration des modèles physiques utilisés dans COSI6 couplé à CESAR5

# D.1 Présentation du code de scénario COSI6 couplé au code d'évolution simplifié CESAR5

Le code de scénario COSI6 permet de gérer les flux de matière entre chaque installation d'un parc nucléaire, tel que décrit Fig. D.1.



FIG. D.1: Schéma de principe des installations et des flux de matières gérés par COSI. Les étoiles en jaune repèrent les endroits où des modèles physiques déterminés par l'utilisateur sont utilisés.

Ce code de scénario n'est pas un code d'optimisation, l'optimisation étant laissée à l'utilisateur. Cependant il permet une gestion globale de tous les flux de matières entre réacteurs et infrastructures. Le schéma de principe des installations et des flux de matières gérés par COSI6 est illustré Fig. D.1. Des modèles physiques sont intégrés à COSI6 [Coquelet-Pascal and Kieffer, 2011]. Ces modèles physiques sont de deux natures. Le premier consiste en des *lois d'équivalence teneur/isotopie* pour déterminer la teneur initiale en plutonium/uranium en fonction de la composition isotopique moyenne dans les stocks disponibles pour la fabrication de combustible neuf. Le second réside dans le couplage de COSI6 au code CESAR5 (Code d'Evolution Simplifié Appliqué au Retraitement). CESAR5 intervient au niveau de la case "réacteur". C'est un outil de calcul d'évolution simplifié permettant de simuler un combustible sous flux et donc d'en déduire le bilan matière au déchargement. Le calcul d'évolution se base sur la donnée de bibliothèques de sections efficaces BBL issues d'un calcul d'évolution assemblage avec le code APOLLO2. Les sections efficaces par isotopes sont condensées à un groupe d'énergie, paramétrées en taux de combustion et lissées en isotopie et teneurs fissiles dans le cas où plusieurs vecteurs isotopiques sont utilisés.

## D.2 Détermination des modèles d'équivalence teneur/isotopie par nature de milieu

Le scénario À de déploiement des RSM **M-ThPu** $U_{tho}$ /F-U<sub>app</sub> fait appel à quatre types de combustibles spécifiques :

- les assemblages fertiles en  $U_{app}O_2$ ;
- les assemblages fissiles en ThPuO<sub>2</sub>;
- les assemblages fissiles en ThPuU<sub>tho</sub>O<sub>2</sub>;
- les assemblages en ThU<sub>tho</sub>O<sub>2</sub>.

Le scénario B de déploiement des RSM  $M-U_{app}Pu/T-U_{app}/F-Th$  fait appel à deux types de combustibles supplémentaires :

- les assemblages fertiles en ThO<sub>2</sub>;
- les assemblages fissiles en  $U_{app}PuO_2$ .

#### Les assemblages fertiles

Pour ces milieux constitués d' $U_{app}$  ou de ThO<sub>2</sub>, la donnée des bilans matières au chargement et au déchargement du réacteur suffit. En effet, les assemblages fertiles des RSM hétérogènes sont des milieux qui participent peu à la puissance cœur (environ 10%) et qui se comportent comme des couvertures fertiles dont le flux est imposé par les assemblages fissiles adjacents. Par conséquent, la composition de ces assemblages au déchargement sera peu sensible aux variations de teneur et de qualité des fissiles des assemblages environnants.

A titre de justification, les bilans matières au déchargement des assemblages fertiles du réacteur **M-ThPu**/F-U<sub>app</sub> ont été comparés après une irradiation de  $4 \times 423$  jepp, et ce pour différents couples (teneur, qualité) du plutonium des assemblages fissiles voisins. Les résultats du Tab. D.1 montrent que les écarts observés sont très faibles et que ce choix de modélisation constitue une hypothèse tout à fait légitime.

Le vecteur  $Pu \ R0$  est le vecteur Pu2035 de référence qui à servi à la conception neutronique des RSM. Le vecteur  $Pu \ R1$  correspond au plutonium Pu2035 irradié en **M-ThPu** $U_{\text{tho}}$ /F-U<sub>app</sub>, puis refroidi 5 ans, tandis que le vecteur  $Pu \ R2$  correspond à un vecteur moyen issu d'une irradiation en **M-ThPu**/F-U<sub>app</sub> et mélangé à du Pu<sub>UOX</sub>.

Des écarts un peu élevés sont observés sur le <sup>238</sup>Pu qui se répercutent sur l'<sup>234</sup>U produit à partir d'une décroissance  $\alpha$  de ce dernier. L'écart observé sur l'<sup>235</sup>U croît avec la teneur en plutonium des assemblages adjacents. En effet, cet isotope tout comme les isotopes du plutonium produits à partir de l'<sup>238</sup>U, sont sensibles aux variations de spectres induites en périphérie par la

Qualité Pu (%)	56.07	46.48	50.80	$\Delta m$	$\Delta m$
Teneur Pu (%)	21.00	25.50	23.50	R1/R0	R2/R0
Isotope	Pu R0	Pu R1	Pu R2	(%)	(%)
$^{234}U$	0.01	0.01	0.01	-4.39	-0.84
$^{235}U$	2.67	2.72	2.69	1.94	0.69
$^{236}U$	1.33	1.32	1.32	-0.25	-0.15
$^{237}U$	0.01	0.01	0.01	0.04	-0.02
$^{238}U$	5212.67	5217.05	5213.85	0.08	0.02
$^{238}Pu$	0.92	0.89	0.91	-3.44	-0.74
$^{239}Pu$	67.14	66.41	66.92	-1.09	-0.33
$^{240}Pu$	17.87	17.60	17.79	-1.49	-0.43
$^{241}Pu$	12.94	12.72	12.87	-1.68	-0.50
$^{242}Pu$	3.45	3.36	3.43	-2.41	-0.63
Np	1.29	1.27	1.28	-0.92	-0.28
Am	1.91	1.85	1.90	-3.11	-0.73
Cm	0.99	0.95	0.98	-4.13	-0.83

TAB. D.1: Comparaison des bilans matières dans les lots fertiles au déchargement pour différentes (teneur, qualité) de plutonium dans les assemblages fissiles adjacents. Les masses par isotopes sont en kg/lot d'assemblages fertiles.

forte teneur en plutonium, mais nous vérifions que ces écarts restent faibles. Enfin, les masses des actinides mineurs sont sous-estimées avec l'augmentation de la teneur plutonium des assemblages fissiles car ils sont produits par décroissances radioactives  $\beta$  en compétition avec les captures neutroniques. Ainsi, plus le flux est élevé et moins leur formation est favorisée. De plus, on remarque que l'écart sur le Np produit à partir des noyaux <sup>238</sup>U présents initialement en coeur, est beaucoup plus faible que l'écart observé sur l'Am ( $\beta^-$  du <sup>241</sup>Pu, (n, $\gamma$ ) et  $\beta^-$  du <sup>242</sup>Pu) ou le Cm formé à partir de l'Am.

#### Assemblages ThPuO<sub>2</sub> et ThPuU<sub>tho</sub>O<sub>2</sub>

Ces combustibles sont associés à un modèle d'équivalence de type polynomial de degré 2 (D.1). Dans cette équation, la qualité du plutonium, c'est-à-dire sa fraction d'isotopes fissiles, est notée  $Q_{Pu}$ , exprimée en % massique, en tenant compte de l'<sup>241</sup>Am. La teneur en plutonium du combustible, notée  $T_{Pu}$  est exprimée en % $m_{NL}$ .

$$T_{Pu} = a \times Q_{Pu}^2 + b \times Q_{Pu} + c \tag{D.1}$$

Où a, b et c sont des coefficients à déterminer à partir de calculs cœurs en faisant varier l'isotopie et la teneur en plutonium de manière à conserver la longueur de cycle, toutes choses étant égales par ailleurs. Les vecteurs isotopiques du plutonium sont ceux décrits Tab. D.1. La courbe d'équivalence obtenue est illustrée Fig. D.2.

La description du combustible ThPuU<sub>tho</sub>O<sub>2</sub> est plus complexe car ces assemblages mélangent uranium fissile (U<sub>tho</sub>) et plutonium. En effet, bien que la teneur en <sup>233</sup>U soit limitée à  $3.5\% m_{NL}$ afin d'être isogénérateur en <sup>233</sup>U, nous avons vu que la composition isotopique de l'uranium variait elle de manière significative. Par conséquent, la teneur en U<sub>tho</sub> devra être ajustée afin de maintenir la teneur en  $^{233}$ U constante. Dans le même temps, la teneur en plutonium doit également être ajustée pour compenser à la fois ses variations isotopiques mais également l'augmentation de la teneur en U<sub>tho</sub>. Or, il n'existe actuellement pas de modèle d'équivalence à deux éléments qui répondent à notre besoin, c'est-à-dire qui permette de donner une contrainte sur un isotope (l'<sup>233</sup>U) tout en ajustant les teneurs en plutonium et U<sub>tho</sub>.

Par conséquent, la stratégie proposée est d'ajuster artificiellement la teneur en  $U_{tho}$  par paliers. En effet, la composition isotopique à un instant donné du scénario est principalement fonction des types de réacteurs producteurs et consommateurs d'<sup>233</sup>U installés dans le parc. Le scénario peut ainsi être découpé selon les périodes de déploiement. La complétion par le plutonium est ensuite déterminée en fonction d'un modèle d'équivalence de type polynomial (Fig. D.2).



FIG. D.2: Modèles d'équivalence des combustibles ThPuO<sub>2</sub> et ThPuU<sub>tho</sub>O<sub>2</sub>

On remarque sur les courbes de la Fig. D.2 que même si la qualité du plutonium devait chuter à 40% de noyaux fissiles, la teneur initiale ne dépasserait pas les  $30\% m_{NL}$  qui sont la limite de ce que l'on peut fabriquer actuellement par le procédé MIMAS [Bairiot et al., 1999] (mélange de poudre mère UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub> à 30% de Pu). Le multirecyclage du plutonium est actuellement limité pour deux raisons essentiellement. La première est l'augmentation de la teneur en plutonium concomittante avec sa dégradation, ce qui engendre des variations de puissances encore plus prononcées en REP MOXé. Et la seconde est la détérioration du coefficient de vidange et de l'efficacité du bore. En effet, l'augmentation de la teneur Pu et de la part de l'isotope <sup>240</sup>Pu sont des composantes positives à l'effet de vidange. Or dans le cas des RSM M-ThPu/F-U<sub>app</sub> et M-ThPuU<sub>tho</sub>/F-U<sub>app</sub>, des marges supplémentaires ont été acquises. Par exemple, le CVR calculé en début de vie pour une vidange totale du cœur M-ThPu/F-U<sub>app</sub> est de -4660 pcm. En ce qui concerne l'efficacité du bore et son impact sur le coefficient modérateur, ce n'est pas un problème ici puisque le bore soluble du circuit primaire a été supprimé.

#### Assemblages U<sub>app</sub>PuO<sub>2</sub>

A ce milieu est également associé un modèle de type polynomial d'ordre 2. Pour établir la courbe d'équivalence, les vecteurs isotopiques obtenus en multi-recyclant le Pu2035 au sein du réacteur M-U<sub>app</sub>Pu/T-U<sub>app</sub>/**F-Th** ont été utilisés. Le domaine de validité de ce modèle couvre

une grande plage de qualité plutonium et a été vérifié a posteriori avec les résultats du scénario. La courbe d'équivalence est illustrée Fig. D.3.



FIG. D.3: Modèle d'équivalence du combustible  $U_{app}PuO_2$ 

#### Assemblages $ThU_{tho}O_2$

Les principaux noyaux constituant ces assemblages en début de vie sont le  $^{232}$ Th, l' $^{233}$ U, l' $^{234}$ U, l' $^{235}$ U et en plus faible proportion l' $^{232}$ U et l' $^{236}$ U(quelques centaines de pcm). Ces deux derniers noyaux ne seront pas pris en compte pour l'élaboration des modèles d'équivalence.

Des résultats préliminaires ont mis en évidence que la qualité de l'U<sub>tho</sub> en entrée réacteur est susceptible de varier de 70 à 85%. Ainsi il est indispensable de prendre en compte ces variations pour ajuster la fraction d'uranium du combustible car cela peut impacter très fortement les résultats finaux en sous-estimant considérablement le besoin en uranium au sein des **M-Th** $U_{tho}$ .

Pour décrire ce combustible, nous avons choisi d'adapter le formalisme des facteurs d'équivalence en <sup>239</sup>Pu au mélange <sup>232</sup>Th  $/U_{\text{tho}}^{1}$ . Un facteur d'équivalence en réactivité est calculé pour chaque noyau du combustible à partir d'un calcul assemblage step 0, selon la formule (D.2).

$$\omega^{X/^{233}U} = \frac{\nu^X \sigma_{fission}^X - \sigma_{absorption}^X}{\nu^{233}U \sigma_{fission}^{233}U - \sigma_{absorption}^{233}U}$$
(D.2)

 $\begin{array}{lll} {\rm Ou} & \nu^X & {\rm est \ le \ nombre \ de \ neutrons \ produits \ par \ une \ fission \ du \ noyau \ X,} \\ & \sigma^X_{absorption} & {\rm est \ la \ section \ microscopique \ d'absorption \ du \ noyau \ X \ condensée \ à \ 1 \ groupe,} \\ & \sigma^X_{fission} & {\rm est \ la \ section \ microscopique \ de \ fission \ du \ noyau \ X \ condensée \ à \ 1 \ groupe.} \end{array}$ 

La teneur en  $^{233}$ U-équivalent s'écrit alors (D.3) :

$$N^{233U-eq} = \sum_{i \in isotopes} N^i \omega^{i/233U}$$
(D.3)

 $\begin{array}{lll} & \operatorname{Ou} & \operatorname{N}^{^{233}U-eq} & \text{est la fraction atomique en noyaux d'}^{^{233}}\mathrm{U}\mbox{-}\acute{\mathrm{equivalent}} \\ & \mathrm{et} & N^i & \mathrm{celle \ de \ l'isotope \ }i, \ \mathrm{avec} \ i \in \left\{ {}^{233}U, {}^{234}U, {}^{235}U, {}^{232}Th \right\}. \end{array}$ 

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>Cette méthode a été décrite Partie III, chapitre 1, page 78.

La théorie des facteurs d'équivalence nous permet d'écrire qu'entre deux combustibles ne différant que par leurs fractions atomiques, ils conduiront à la même longueur de cycle, toutes choses étant égales par ailleurs, si et seulement si ils possèdent la même teneur initiale en  $^{233}$ Uéquivalent, définie par (D.3).

Les facteurs d'équivalence par isotope qui interviennent dans cette formule sont déterminés simplement à partir du combustible de référence en début de vie. Nous vérifierons a posteriori que ces coefficients ne sont pas impactés par les variations de teneur/isotopie de l'U<sub>tho</sub>. Ainsi, pour un vecteur isotopique de l'U<sub>tho</sub> donné, le terme  $N^{233U-eq}$  est calculé une fois pour toutes à partir du combustible de référence, de même que les coefficients d'équivalence. Par conséquent, la seule inconnue est la fraction massique en uranium.

L'équation D.3 peut se décomposer en (D.4), faisant ainsi apparaître la fraction massique en U<sub>tho</sub>.

$$N^{^{233}U-eq} = N^{^{232}Th}\omega^{^{232}Th/^{233}U} + N^U \sum_{i \in \{^{233}U, \ ^{234}U, \ ^{235}U\}} x^i \omega^{i/^{233}U}$$
(D.4)

Оù  $\omega^{^{232}Th/^{233}U}$ 

 $N^{^{232}Th}$  est la fraction massique de l'isotope  $^{232}$ Th, est le facteur d'équivalence de l'isotope <sup>232</sup>Th,  $x^i$ est la fraction isotopique de l'isotope i de l'uranium, qui vérifie  $\sum_i x^i = 1$ ,  $.i/^{233}U$ est le facteur d'équivalence de l'isotope i.

D'autre part,  $N^{232}Th$  et  $N^U$  sont reliés par la relation (D.5) :

$$N^{^{232}Th} = (1 - N^U) \tag{D.5}$$

Finalement, en injectant (D.5) dans (D.4), nous extrayons l'expression de la fraction massique en  $U_{\text{tho}}$  en fonction des données grâce à la formule (D.6) :

$$N^{U} = \frac{N^{233}U - eq}{x^{233}U + x^{234}U\omega^{234}U/^{233}U + x^{235}U\omega^{235}U/^{233}U - \omega^{232}Th/^{233}U}$$
(D.6)

Les facteurs d'équivalence par isotope sont détaillés dans le Tab. D.2. Ces facteurs nous permettent d'en déduire les teneurs équivalentes en RSM  $M-ThU_{tho}$  correspondant aux scénarios À et B :  $N^{233}U-eq = 1.18\% m_{NL}$  et  $1.00\% m_{NL}$ .

Isotope	$^{232}\mathrm{Th}$	$^{233}\mathrm{U}$	$^{234}\mathrm{U}$	$^{235}\mathrm{U}$
$\omega^{X/^{233}U}$	-0.02	1.00	-0.24	0.64

TAB. D.2: Facteurs d'équivalence avec <sup>233</sup> U

Nous avons vérifié la validité de ce modèle sur un exemple particulier. Le réacteur  $M-ThU_{tho}$ qui a été pris pour référence est celui de composition initiale  $3\% m_{NL}$  d'U<sub>tho</sub> à 88% fissile, conduisant à une longueur de cycle de 274 jepp. Nous souhaitons vérifier ici que pour un vecteur isotopique différent, extrait des résultats du scénario B, nous sommes capables de déterminer la teneur en U<sub>tho</sub> qui conduit à la même longueur de cycle par ce modèle d'équivalence. La teneur en  $U_{\text{tho}}$  est calculée à partir de la formule (D.6).

Isotope	$\mathrm{U}_{\mathrm{tho}}$ - Référence	$\rm U_{tho}$ - second vecteur	Ecarts absolus
<sup>233</sup> U (%m)	86.74	77.50	-9.24
$^{234}$ U (%m)	11.18	16.33	+5.15
$^{235}$ U (%m)	2.08	6.17	+4.09
Qualité $U_{\text{tho}}$ (%m)	88.82	83.67	-5.15
Teneur U <sub>tho</sub> calculée avec (D.6) (%m)	3.00	3.30	+0.30
Longueur de cycle (CRONOS2) (jepp)	$4 \times 270$	$4 \times 272$	+8
TCT au déchargement (MWj/t)	32768	33009	+241

TAB. D.3: Validation de la méthode de détermination de la teneur en  $U_{tho}$ 

Cette méthode donne des résultats satisfaisants pour des études de scénarios prospectives. Ces modèles pourront être affinés par la suite.

#### Élaboration et validation des BBL de sections efficaces

Les BBL qui ont été construites spécifiquement pour les scénarios 1 et 2 de déploiement de RSM à combustibles thoriés ont été validées par comparaison des bilans matières en fin d'irradiation obtenus avec APOLLO2 et CESAR5. L'enjeu est à présent de vérifier que les bilans matières calculés avec CESAR5 par milieu sont suffisamment précis par rapport au résultat d'un calcul cœur APOLLO2-CRONOS2. En effet, les cœurs RSM M-ThPuU<sub>tho</sub>/F-U<sub>app</sub> et M-U<sub>app</sub>Pu/T-U<sub>app</sub>/F-Th sont très hétérogènes d'une part, ce qui complexifie le calcul du flux dans le coeur, et d'autre part tous les milieux sont fortement résonnants.

Le calcul d'évolution sous flux réalisé par CESAR5 permet de déterminer les bilans matières à la suite d'un historique d'irradiation défini par l'utilisateur. Cet historique comprend les temps de refroidissement/vieillissement et la donnée de deux paramètres parmi les trois suivants :

- taux de combustion au déchargement (MWj/t);
- puissance spécifique du combustible (W/g);
- temps d'irradiation (jepp).

La donnée de deux de ces paramètres suffit, le troisième étant recalculé et permettant de vérifier les données d'entrée. À partir de ces informations et de la composition initiale du combustible, et des bases de données nucléaires<sup>2</sup>, CESAR5 est capable de déterminer un niveau de flux. Le niveau de flux est évalué à chaque pas de temps ( $\Delta t = 1$  jour) à partir des données liées au pas de temps précédent (D.7).

$$\Phi(t) = \frac{p_{spec}^* \times M_{NLi}}{\sum_{i \in isotopes} N^i(t-1) \left(\sigma_{fission}^i(t-1) E_{fission}^i + \sigma_{capture}^i(t-1) E_{capture}^i\right)}$$
(D.7)

 $<sup>^{2}</sup>$ CESAR5 s'appuie sur les données de l'évaluation JEFF-3.1.1. Cette base de données contient notamment les énergies libérées par capture et par fission par isotope, ainsi que les données de décroissances radioactives de chaque noyaux lourds et leurs rendements de fission.

Où	$p_{spec}^{*}$	est la puis sance spécifique du combustible exprimée en ${\rm MeV/g};$
	$M_{NLi}$	est la masse initiale de noyaux lourds dans le combustible, exprimée en g;
	$N^i(t-1)$	est le nombre d'atomes de l'isotope i au pas de temps $(t-1)$ ;
	$\sigma^i_{fission}$	est la section microscopique de fission de l'isotope i;
	$\sigma^i_{capture}$	est la section microscopique de capture de l'isotope i;
	$E^i_{fission}$	est l'énergie libérée par fission de l'isotope i ;
	$E^i_{capture}$	est l'énergie libérée par capture par l'isotope i.

Le niveau de flux et les sections permettent de calculer les taux de réactions, tandis que les chaînes d'évolution et les périodes radioactives permettent de calculer les productions/disparitions par décroissances, à travers la résolution des équations de Bateman. Un système d'équations différentielles est obtenu, résolu dans CESAR5 par intégration numérique.

Compte tenu des grandes différences entre les deux schémas de calcul (APOLLO2/CRONOS2 et APOLLO2/CESAR5), les écarts sur les paramètres macroscopiques que constituent le FIR et la qualité du plutonium au déchargement ont été évalués par BBL par confrontation aux résultats de calcul cœur CRONOS2. Pour illustration, les résultats des comparaisons relatives aux cœurs M-ThPu $U_{tho}$ /F-U<sub>app</sub> et M-ThU<sub>tho</sub> sont regroupés dans les Tab. D.4 et D.5.

Paramètre	CESAR	CRONOS	Ecart (%)
FIR	0.714	0.724	-1.35
Qualité Pu au déchargement (%)	44.50	45.56	-2.34
Masse de Pu fissile au déchargement (kg/ass)	43.54	44.01	-1.07
Qualité $U_{tho}$ au déchargement (%)	88.13	88.06	0.08
Masse d'U <sub>tho</sub> fissile au déchargement (kg/ass)	26.70	26.62	0.31

Paramètre	CESAR	CRONOS	Ecart (%)
FIR	0.838	0.849	-1.25
Qualité $U_{tho}$ au déchargement (%)	78.07	78.44	-0.47
Masse d'U <sub>tho</sub> fissile au déchargement (kg/ass)	14.89	15.08	-1.25

TAB. D.4: Comparaison CRONOS2/CESAR5 pour le calcul du M-ThPuU<sub>tho</sub>/F-U<sub>app</sub>

TAB. D.5: Comparaison CRONOS2/CESAR5 pour le calcul du M-ThU<sub>tho</sub>

Ces résultats font apparaître une sous-estimation de la qualité du plutonium et de l'uranium et par conséquent une sous-estimation du FIR par CESAR5. Ces résultats sont très satisfaisants compte tenu des disparités importantes entre les deux calculs. En effet, les masses fissiles sont calculées à mieux que 1.5% par rapport à CRONOS2.

# Bibliographie

- Akherraz, B., Baudron, A., Buiron, L., Coste-Delclaux, M., Fedon-Magnaud, C., Lautard, J., Moreau, F., Nicolas, A., Sanchez, R., Zmijarevic, I., Bergeron, A., Caruge, D., Fillion, P., Gallo, D., Royer, E., and Loubiere, S. (2003). SAPHYR : a code system from reactor design to reference calculations. In *Nuclear Mathematical and Computational Sciences, Gatlinburg, Tenessee.*
- Akie, H., Ishiguro, Y., and Morimoto, Y. (1992). Water Moderated Th/<sup>233</sup>U breeder reactor.
- Aktogu, A. (1981). Contribution à l'étude de l'utilisation du cycle thorium dans un réacteur *PWR*. PhD thesis, Université de Paris Sud, centre d'Orsay.
- Anantharaman, K., Shivakumar, V., and Saha, D. (2008). Utilization of thorium in reactors. Journal of Nuclear Materials, 383 :119–121.
- ANDRA (2006). Déchets radioactifs valorisables en France. Résumé de l'inventaire national. Agence Nationale pour la gestion des Déchets Radioactifs.
- Azzoug, D. (1990). Etude phénoménologique du comportement des combustibles au plutonium dans les cycles de réacteurs à eau. Elaboration d'un modèle d'équivalence des plutoniums. PhD thesis, Université de Paris-Sud, centre d'Orsay.
- Bae, K.-M. and Kim, M.-H. (2005). Core design for heterogeneous thorium fuel assemblies for PWR(I) - nuclear design and fuel cycle economy. *Nuclear Engineering and Technology*, 37(1):91–100.
- Bairiot, H., Vliet, J. V., Chiarelli, G., Edwards, J., Nagai, S., and Reshetnikov, F. (1999). Overview f MOX fuel fabrication achivements. In MOX fuel cycle technologies for medium and long term deployment (Symposium organisé en coopération avec OCDE Nuclear Energy Agency).
- Baker, A. and Ross, R. (1963). Comparison of the value of plutonium and uranium isotopes in fast reactors. In proceedings of the conference on breeding, economics and safety in large fast power reactors.
- Balakrishnan, K., Majumdar, S., Ramanujam, A., and Kakodkar, A. (2002). The Indian perspective on thorium fuel cycles. *IAEA-TECDOC-1319*, pages 257–265.
- Barjon, R. (1993). Physique des réacteurs nucléaires. Institut des Sciences Nucléaires.
- Bataille, G. and Galley, R. (1998). L'aval du cycle nucléaire. Technical Report 612, Office parlementaire d'évaluation des choix scientifiques et technologiques.
- Bellier, P., Coste-Delclaux, M., Sanchez, R., Zmijarevic, I., Hebert, A., and Stankovski, Z. (2002). APOLLO2.5 : notice théorique. CEA/DMT/SERMA/LENR.
- Bi, G. and Si, S. (2011). Core designs for thorium-uranium breeding recycle in PWRs. In *GLOBAL 2011, Makuhari, Japan.*

- Bjork, K. and Fhager, V. (2009). Comparison of Thorium-Plutonium fuel and MOX fuel for PWR. In Proceedings of GLOBAL2009, Paris, France.
- Blanc-Tranchant, P. (1999). Elaboration et qualification de schémas de calcul de référence pour les absorbants dans les Réacteurs à Eau Pressurisée. PhD thesis, Université Aix-Marseille I.
- Boucher, L. (2005). COSI, simulation software for a pool of reactors and fuel cycle plants. In *ICONE, Beijing, China.*
- Brooksbank, R., Parrot, J., Youngblood, E., and McDuffee, W. (1974). The containment of <sup>233</sup>U in the processing facilities of the ORNL pilot plant. In *For presentation at the VII International Congress of the Societe Française de Radioprotection, Versaille, France.*
- Calloo, A., Vidal, J.-F., Tellier, R. L., and Rimpault, G. (2012). Mixed Legendre moments and discrete scattering cross-sections for anisotropy representation. In *PHYSOR 2012, Knoxville,* USA.
- Cantaloube, R. (1987). Contribution du CEA à l'évaluation de la faisabilité des RSM. Rapport de faisabilité SCOS N°001, CEA.
- Carmona, S., Galperin, A., and Ronen, Y. (1981). Epithermal-Thermal symbiotic reactor system. In *Transaction of the American Nuclear Society, San Francisco*, volume 39.
- Chambon, R., Guillemin, P., Nuttin, A., Capellan, N., David, S., Méplan, O., and Wilson, J. (2007). Neutronic study of slightly modified water reactors and application to transition scenarios. In *GLOBAL 2007, Boise, Idaho, USA*.
- Chebeskov, A., Chizhikova, Z., Dekusar, V., Kalashnikov, A., Kapranova, E., and Korobitsyn, V. (2005). Feasability study on plutonium utilization in Light Water Reactors with plutoniumthorium fuel. In *Proceedings of GLOBAL 2005, Tsukuba, Japan.*
- Cheng, X. and Muller, U. (1998). Critical Heat Flux and turbulent mixing in hexagonal tight rod bundles. *International Journal of Multiphase Flow*, 24 :1245–1263.
- Cohen, I. and Berman, R. (1966). A metallographic and X-ray study of the limits of oxygen solubility in the UO<sub>2</sub>-ThO<sub>2</sub> system. *Journal of Nuclear Materials*, 18(2) :77–107.
- Coquelet-Pascal, C. and Kieffer, C. (2011). Validation of physical models used in scenarios studies by coupling COSI with ERANOS package. In *GLOBAL 2011, Makuhari, Japan*.
- Coquelet-Pascal, C., Meyer, M., Girieud, R., Eschbach, R., Chabert, C., Garzenne, C., Barbault, P., Durpel, L. V. D., Duquesnoy, T., Caron-Charles, M., Carlier, B., and Lefevre, J.-C. (2011). Comparison of different scenarios for the deployment of fast reactors in France - results obtaines with COSI. In *GLOBAL 2011, Makuhari, Japan.*
- Cornelis, H., Broeders, M., and Donne, M. D. (1985). Conceptual design of a  $(Pu,U)O_2$  core with a tight lattice for an Advanced Pressurized Light Water Reactor. *Nuclear Technology*, 71:82–95.
- Coste-Delclaux, M. and Mengelle, S. (2004). New resonant mixture self-shielding treatment in the code APOLLO2. In *Proceedings of PHYSOR2004, Chicago, Illinois*.
- Courau, T. (2008). Eléments de transport neutronique. schéma industriel appliqué aux calculs de réacteurs. Support de cours d'initation au code de simulation DRAGON dispensé à l'ENSPG.
- Courtaud, M., Deruaz, R., and D'Aillon, L. (1988). The French thermalhydraulic program addressing the requirements of the future pressurized water reactors. *Nuclear Technology*, 80:73–82.

- Cozzo, C., Staicu, D., Somers, J., Fernandez, A., and Konings, R. (2011). Thermal diffusivity and conductivity of thorium-plutonium mixed oxides. *Journal of Nuclear Materials*, 416:135–141.
- Damian, F., Douce, S., Bergeron, A., Gastaldi, B., Conti, A., Moutin, F., and Pialla, D. (2010). Improvement of the conversion Ratio in PWR. In PHYSOR 2010, Pittsburgh, Pennsylvania, USA.
- Delhaye, J. (2008). Thermohydraulique des réacteurs. Génie Atomique.
- Delpech, M., Greneche, D., Zaetta, A., Tommasi, J., Boucher, L., Durin, M., and Carlier, B. (2009). Enhancing the uranium utilization rate in LWRs : a step toward a sustainable nuclear energy. In *ICAPP'09, Tokyo, Japan.*
- Demkowicz, P., jr, J. J., Cunnane, J., Shibuya, N., Baney, R., and Tulenko, J. (2004). Aqueous dissolution of urania-thoria nuclear fuel. *Nuclear Technology*, 147 :157–170.
- Donne, M. D. and Hame, W. (1985). Critical Heat Flux correlation for triangular arrays of rod bundles with tight lattices, including the spiral spacer effect. *Nuclear Technology*, 71:111–124.
- Edlund, M. (1975). High Conversion Ratio plutonium recycle in Pressurized Water Reactors. Annals of Nuclear Energy, 2:801–807.
- Fevotte, F. (2008). Techniques de traçage pour la méthode des caractéristiques appliquée à la résolution de l'équation du transport des neutrons en modèles multi-dimensionnels. PhD thesis, Université de Paris-Sud XI.
- Flanary, J., Goode, J., Kibbey, A., Roberts, J., and Wymer, R. (1964). Chemical developments of the 25-TBP process. Technical Report ORNL-1993, ORNL.
- Freeman, L., Beaudoin, B., Frederickson, R., Hartfield, G., Hecker, H., Milani, S., Sarber, W., and Schick, W. (1989). Physics experiments and lifetime performance of the light water breeder reactor. *Nuclear Science and Engineering*, 102:341–364.
- Fukuda, K., Choi, J., Shani, R., Durpel, L. V. D., Berthel, E., and Sartori, E. (1999). MOX fuel use as a back-end option : trends, main issues and impacts on fuel cycle management. In IAEA, editor, MOX fuel cycle technologies for medium and long term deployment (Symposium organisé en coopération avec OCDE Nuclear Energy Agency).
- Galperin, A., Shwageraus, E., and Todosow, M. (2002). Assessment of homogeneous thorium/uranium fuel for pressurized water reactors. *Nuclear Technology*, 138 :111–122.
- Golfier, H. (2007). Advanced High Conversion PWR : preliminary analysis. In *Proceedings of ICAPP 2007, Nice, France*, number 7389.
- Golfier, H., Bergeron, A., Conti, A., Damian, F., Do, J., Douce, S., Gastaldi, B., Moutin, F., and Pialla, D. (2008). PWR with a hardened spectrum for improved conversion ratio. In *PHYSOR workshop 2008, Interlaken, Switzerland.*
- Greneche, D. and Lecomte, M. (2010). Optimisation de l'utilisation des ressources dans les réacteurs à eau légère. *Revue Générale du Nucléaire*, 5.
- Greneche, D., Szymczak, W., Buchheit, J., Delpech, M., Vasile, A., and Golfier, H. (2007). Rethinking the thorium fuel cycle : an industrial point of view. In *Proceedings of ICAPP2007*, *Nice, France.*
- Gresky, A. (1956). Solvent extraction separation of <sup>233</sup>U and thorium from fission products by means of tributyl phosphate. In *International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva*, volume 9, pages 505–510.

- Guillemin, P. (2009). Recherche de la haute conversion en cycle thorium dans les réacteurs CANDU et REP. Développement des méthodes de simulation associées et étude de scénarios symbiotiques. PhD thesis, Institut Polytechnique de Grenoble.
- Hfaiedh, N. (2006). Nouvelle méthodologie de calcul de l'absorption résonnante. PhD thesis, Université Louis Pasteur, Strasbourg.
- Hfaiedh, N. and Santamarina, A. (2005). Determination of the optimized SHEM mesh for neutron transport calculations. In *Mathematics and Computation, Avignon, France.*
- Hittner, D., Millot, J., and Vallee, A. (1988). Preliminary results of the feasibility study on the Convertible Spectral Shift Reactor concept. Nuclear Technology, 80 :181–189.
- IAEA (2005a). Thermophysical properties database of materials for Light Water Reactors and Heavy Water Reactors. Technical Report TECDOC-1496, IAEA.
- IAEA (2005b). Thorium fuel cycle potential benefits and challenges. Technical Report IAEA-TECDOC-1450, IAEA.
- IAEA (2008a). IAEA handbook of nuclear data for safeguards.
- IAEA (2008b). Uranium 2007 : Resources, production and demand. Technical Report 6345, NEA.
- IRSN (2008). Accidents graves des réacteurs à eau de production d'éléctricité. Technical Report IRSN-2008/98, IRSN.
- IRSN (2009). Le réexamen de sûreté des réacteurs à eau sous pression de 922 mwé à l'occasion de leurs troisièmes visites décennales. Technical Report DSR N°285, IRSN.
- Ishikawa, N. and Okubo, T. (2011). Consideration on effective Pu utilization in high conversion type LWR for better transition to FBR cycle. In *GLOBAL 2011, Makuhari, Japan.*
- Ismail, Liem, P., Permana, S., Takaki, N., and Sekimoto, H. (2009). Symbiotic systems consisting of large-FBR and small water-cooled thorium reactors (WTR). Annals of Nuclear Energy, 36(8) :1076–1085.
- Jagannathan, V. and Pal, U. (2006). Towards an intrinsically sage and economic thorium breeder reactor. *Energy Conversion and Management*, 47 :2781–2793.
- Joo, H.-K., Noh, J.-M., Yoo, J.-W., Cho, J.-Y., Park, S.-Y., and Chang, M.-H. (2004). Homogeneous thoria-urania fuel in light water reactors to enhance the economics of the thorium fuel cycle. *Nuclear Technology*, 147:37–52.
- Kasten, P. (1998). Review of the Radkowsky Thorium Reactor concept. Science and Global Security, 7 :237–269.
- Kim, T. and Downar, T. (2002). Thorium fuel performance in a tight pitch Light Water Reactor lattice. Nuclear Technology, 138(1):17–29.
- Kiriyama, E. and Pickett, S. (2000). Non-proliferation criteria for nuclear fuel cycle options. Progress in Nuclear Energy, 37:71–76.
- Kotlyar, D. and Shwageraus, E. (2012). Neutronic optimization in high conversion Th-<sup>233</sup>U fuel assembly with simulated annealing. In *PHYSOR 2012, Knoxville, USA*.
- Kutty, T., Somayajulu, P., Khan, K., Kumar, A., and Kamath, H. (2009). Characterization of (Th,U)O<sub>2</sub> pellet made by advanced CAP process. *Journal of Nuclear Materials*, 384(3) :303–310.

- Lang, L. and Stetson, R. (1982). Process of operating a nuclear reactor to minimize production of <sup>232</sup>U.
- Lathuiliere, B. (2010). Méthode de décomposition de domaine pour les équations du transport simplifié en neutronique. PhD thesis, Université de Bordeaux I.
- Laureau, A. (2012). Validation du coeur hétérogène 3D RSM-HEXA avec TRIPOLI4-ROOT. Technical report, Projet de Fin d'Etudes, PHELMA, Grenoble INP.
- Lautard, J., Loubiere, S., and Fedon-Magnaud, C. (1990). CRONOS a modular computational system for neutronic code calculations. In IAEA specialists meeting on Advanced Calculation Methods for power reactors, Cadarache, France.
- Laveissiere, S. (2008). Cycle du combustible : faire la transition vers les  $3^{eme}$  et de  $4^{eme}$  générations de réacteurs. In CEA, editor, *Dossier de presse : Cycle du combustible*.
- Leclere, J., Bibilashvili, Y., Reshetnikov, F., Antipov, S., Poplavski, V., Zabudko, I., Tsykanov, V., Mayorshin, A., and Ikegami, T. (1999). MOX fuel fabrication and utilization in fast reactors worldwide. In IAEA, editor, MOX fuel cycle technologies for medium and long term deployment (Symposium organisé en coopération avec OCDE Nuclear Energy Agency).
- Lee, C., Yang, Y., Kim, Y., Kim, D., and Jung, Y. (2004). Irradiation behavior of thoria-urania fuel in a PWR. Nuclear Technology, 147(1) :140–148.
- Meyer, M. and Boucher, L. (2009). New developments on COSI6, the simulation software for fuel cycle analysis. In *GLOBAL*, *Paris*, *France*.
- Michel-Sendis, F. (2006). Contribution à l'étude de la production d'<sup>233</sup> U en combustible MOX-ThPu en réacteur à eau sous pression. Application aux scénarios de transition vers des concepts isogénérateurs Th/<sup>233</sup> U en spectre thermique. Développement du code MURE d'évolution du combustible. PhD thesis, Université de Paris XI Orsay.
- Miguirditchian, M., Chareyre, L., Sorel, C., Bisel, I., Baron, P., and Masson, M. (2008). Development of the GANEX process for the reprocessing of GENIV spent nuclear fuels. In ATALANTE 2008, Montpellier, France.
- Millot, J. (1982). Considérations sur les réacteurs PWR sous-modérés. Revue Générale du Nucléaire, 4 :405–408.
- Mughabghab, S. (1984). Neutron cross sections Volume 1, Neutron resonance parameters and thermal cross sections, Part B: Z = 61-100.
- Murray, P., Bailly, F., Gain, T., Lelièvre, F., Senentz, G., and Collins, E. (2012). Opportunities for the multi recycling of used MOX fuel in the US - 12122. In WM2012, Phoenix, Arizona, USA.
- Nuñez-Carrera, A., Lacouture, J. F., Campo, C. D., and Espinosa-Paredes, G. (2008). Feasibility study of boiling water reactor core based on thorium-uranium fuel concept. *Energy Conversion* and Management, 49 :47–53.
- Okumura, K., Akie, H., and Ishiguro, Y. (1990). The concept of axially heterogeneous High Conversion Light Water Reactor and its application. *The physics of reactors : operation, design and computation*, 4 :III-101 III-110.
- Olson, G., McCardell, R., and Illum, D. (2002). Fuel summary report : Shippingport Light Water Breeder Reactor. Technical report, Idaho National Engineering and Environmental Laboratory.
- Penndorf, K. (1988). Constraints on the plutonium recovery achievable in homogeneous Pressurized Water Reactors. *Nuclear Technology*, 80:282–291.

- Permana, S., Takaki, N., and Sekimoto, H. (2008). Preliminary study on feasibility of large and small water cooled thorium breeder reactor in equilibrium states. *Progress in Nuclear Energy*, 50:320–324.
- Privas, E. (2012). Evaluation de l'impact des crayons annulaires en REP sur la production d'uranium 233 en combustible mixte ThUO<sub>2</sub>. Technical report, Projet de Fin d'Etudes, PHELMA, Grenoble INP.
- Pronyaev, V. (1999). Assessments on nuclear data needs for thorium and other advanced cycles. Technical report, IAEA.
- Radkowski, A. and Shayer, Z. (1988). The High Gain Light Water Breeder Reactor with a uranium-plutonium cycle. *Nuclear Technology*, 80 :190–215.
- Rainey, R. and Moore, J. (1962). Laboratory development of the acid THOREX process for recovery or consolidated Edison Thorium Reactor fuel. Technical Report ORNL-3155, ORNL.
- Reuss, P. (2003). Précis de neutronique.
- Ronchi, C. and Hiernaut, J. (1996). Experimental measurement of pre-melting and melting of thorium dioxide. *Journal of Alloys and Compounds*, 240 :179–185.
- Ronen, Y. (1990). High Converting Water Reactors. CRC press.
- Ronen, Y. and Dali, Y. (1998). A High-Conversion Water Reactor design. Nuclear Science and Engineering, 130 :239–253.
- Ronen, Y. and Leibson, M. (1988). Analysis of <sup>235</sup>U-Pu-<sup>238</sup>U-fueled tight-lattice water reactors. Nuclear Technology, 80 :216–224.
- Sanchez, R. and Santandrea, S. (2005). Analysis and improvements of the DPn acceleration technique for the method of characteristics in unstructured meshes. *Annals of Nuclear Energy*, 32 :163–193.
- Sanchez, R. and Stankovski, Z. (1993). SILENE and TDT : A code for collision probability calculations in XY geometries. Transaction of the American Nuclear Society (ANS) annual meeting, San Diego, CA (United States), 68:459–460.
- Sanchez, R., Zmijarevic, I., Coste-Delclaux, M., Masiello, E., Santandrea, S., Martinolli, E., Villate, L., Schwartz, N., and Guler, N. (2010). APOLLO year 2010. Nuclear Engineering and Technology, 42 :474–499.
- Santamarina, A., Hfaiedh, N., Marotte, V., Misu, S., Sargeni, A., Vaglio, C., and Zmijarevic, I. (2008). Advanced neutronics tools for bwr design calculations. *Nuclear Engineering and Design*, 238 :1965–1974.
- Schaeffer, H. (1981). Etude du cycle thorium dans les Réacteurs à Eau Pressurisée. PhD thesis, Université de Paris-Sud, Orsay.
- Schillebeeckx, P. and Trkov, A. (2006). Evaluated nuclear data for the Th-U fuel cycle. Technical report, IAEA.
- Sehgal, B. (2010). Feasability and desirability of employing the thorium fuel cycle for power generation. In *Proceedings of PHYSOR 2010*.
- Shwageraus, E., Zhao, X., Driscoll, M., Hejzlar, P., Kazimi, M., and Herring, J. (2004). Microheterogenous thoria-urania fuels for Pressurized Water Reactors. *Nuclear Technology*, 147:20–36.
- Si, S. (2010). Roadmap design for thorium-uranium breeding recycle in PWR. In *PHYSOR* 2010, *Pittsburgh*, *Pennsylvania*.

- Sider, F. and Matzie, R. (1980). Plutonium fuel cycles in the Spectral Shift Controlled Reactor. Nuclear Technology, 47 :444–450.
- Subki, I., Pramutadi, A., Rida, S., Su'ud, Z., Sapta, R. E., Nurul, S., Astuti, Y., and Soentono, S. (2008). The utilization of thorium for long-life small thermal reactors without on-site refueling. *Progress in Nuclear Energy*, 50 :152–156.
- Sullivan, J. and Hamilton, H. (1999). Process for recycling irradiated fuels.
- Takaki, N., Permana, S., and Sekimoto, H. (2007). Feasibility of water cooled thorium breeder reactor based on LWR technology. In GLOBAL 2007, Boise, Idaho.
- Todosow, M. and Kazimi, M. (2004). Optimization of heterogeneous utilization of thorium in PWR to enhance proliferation resistance and reduce waste. Technical Report BNL-73152-2004 & MIT-NFC-065, Brookhaven National Laboratory & Massachussets Institute of Technology.
- Vallet, V., Gastaldi, B., Politello, J., Santamarina, A., and Durpel, L. V. D. (2012). Introduction of thorium-based fuels in high converting pressurized water reactors. *Nuclear Technology*, à paraître.
- Vallet, V., Gastaldi, B., Santamarina, A., and Chhor, M. (2011). Introduction of thorium in under-moderated PWR cores and optimization to enhance the conversion factor. In *Procee*dings of GLOBAL2011.
- Vidal, J. (2006). CESAR : a code for nuclear fuel and waste characterisation. In WM Conference, Tucson, ZA, USA.
- Vidal, J.-F., Noguere, G., Peneliau, Y., and Santamarina, A. (2012). Qualification of JEFF3.1.1 library for high conversion reactor calculations using the ERASME/R experiment. In *PHY-SOR 2012, Knoxville, USA*.
- Volaski, D., Fridman, E., and Shwageraus, E. (2009). Thermal design feasibility of Th-<sup>233</sup>*u* PWR breeder. In *GLOBAL 2009, Paris, France.*
- Wang, D., Driscoll, M., Kazimi, M., and Pilat, E. (2002). A heterogeneous Th/U core for improved PWR core and spent fuel characteristics. In *ICAPP 2002, Hollywood, USA*.
- Yang, J., Kang, K., Song, K., Lee, C., and Jung, Y. (2004). Fabrication and thermal conductivity of (Th,U)O<sub>2</sub> pellets. *Nuclear Technology*, 147 :113–119.
- Yiftah, S. and Okrent, D. (1960). Some physics calculations on the performance of large fast breeder power reactors. Technical report, Argonne National Laboratory.
- Yun, D., Kim, T., and Taiwo, T. (2010). Th-U233 multi-recycle in PWRs. Technical Report ANL-FCRD-309, Argonne National Laboratory.

## Résumé Général

Dans le cadre des études neutroniques d'innovation sur les cœurs de réacteurs à eau légère pressurisée (REP) de 3<sup>ème</sup> génération, la recherche de l'économie des ressources naturelles est fondamentale afin de pérenniser la filière électronucléaire. Cette étude consiste à rechercher l'économie des ressources par la conception de cœurs de réacteurs à hauts facteurs de conversion, s'appuyant sur des combustibles oxydes mixtes à base de thorium / uranium / plutonium, ainsi que d'élaborer des stratégies de multirecyclage des matières fissiles (plutonium et <sup>233</sup>U). La démarche s'est déroulée en quatre étapes. Deux domaines d'étude ont tout d'abord été identifiés, le premier concerne les faibles rapports de modération (RM) et un combustible ThPuO<sub>2</sub>, le second les RM standards à accrus et un combustible  $ThUO_2$ . La première voie a conduit à l'étude de Réacteurs Sous-Modérés (RSM) selon les critères de production d'<sup>233</sup>U accrue et de consommation limitée de plutonium. Deux concepts ont été retenus en particulier, à partir desquels des stratégies de multirecyclage des matières fissiles ont été élaborées. La production et le recyclage de l'<sup>233</sup>U exclusivement en RSM limitent l'économie annuelle d'U<sub>nat</sub> à 30% environ. Il a été mis en évidence que le besoin en plutonium des RSM producteurs d'<sup>233</sup>U est le facteur limitant. C'est pourquoi un dernier chapitre évalue comment la production d'<sup>233</sup>U au sein de REP, dès 2020, permet de favoriser la transition vers un cycle symbiotique REP/RSM en relâchant la contrainte sur les inventaires de plutonium. Cette stratégie laisse présager une économie annuelle de l'ordre de 65% d'U<sub>nat</sub> par rapport à la poursuite du monorecyclage du MOX en REP.

**Mots clés** : économie des ressources naturelles, Réacteurs à Eau Légère et à Haut Facteur de Conversion, ThPuO<sub>2</sub>, ThUO<sub>2</sub>, scénarios symbiotiques, simulations neutronique.

#### Abstract

Within the framework of innovative neutronic conception of Pressurized Light Water Reactors (PWR) of  $3^{rd}$  generation, saving of natural resources is of paramount importance for sustainable nuclear energy production. This study consists in the one hand to design high Conversion Reactors exploiting mixed oxide fuels composed of thorium / uranium / plutonium, and in the other hand, to elaborate multirecycling strategies of both plutonium and <sup>233</sup>U, in order to maximize natural resources economy. This study has two main objectives : first the design of High Conversion PWR (HCPWR) with mixed oxide fuels composed of thorium / uranium plutonium, and secondly the setting up of multirecycling strategies of both plutonium and  $^{233}$ U, to better natural resources economy. The approach took place in four stages. Two ways of introducing thorium into PWR have been identified : the first is with low moderator to fuel volume ratios (MR) and ThPuO<sub>2</sub> fuel, and the second is with standard or high MR and ThUO<sub>2</sub> fuel. The first way led to the design of under-moderated HCPWR following the criteria of high <sup>233</sup>U production and low plutonium consumption. This second step came up with two specific concepts, from which multirecycling strategies have been elaborated. The exclusive production and recycling of <sup>233</sup>U inside HCPWR limits the annual economy of natural uranium to approximately 30%. It was brought to light that the strong need in plutonium in the HCPWR dedicated to <sup>233</sup>U production is the limiting factor. That is why it was eventually proposed to study how the production of <sup>233</sup>U within PWR (with standard MR), from 2020. It was shown that the anticipated production of <sup>233</sup>U in dedicated PWR relaxes the constraint on plutonium inventories and favours the transition toward a symbiotic reactor fleet composed of both PWR and HCPWR loaded with thorium fuel. This strategy is more adapted and leads to an annual economy of natural uranium of about 65%.

**Keywords** : natural resources economy, High Conversion Pressurized Light Water Reactors,  $ThPuO_2$ ,  $ThUO_2$ , symbiotic scenarios, neutronic simulations.