STANDARDISATION DES OUTILS DE CALCUL POUR LES ADS ET LEUR APPLICATION À DIFFÉRENTS SCÉNARIOS DE TRANSMUTATION DES DÉCHETS

THÈSE Nº 2714 (2003)

PRÉSENTÉE À LA FACULTÉ SCIENCES DE BASE

SECTION DE PHYSIQUE

ÉCOLE POLYTECHNIQUE FÉDÉRALE DE LAUSANNE

POUR L'OBTENTION DU GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES TECHNIQUES

PAR

Marco COMETTO

Laurea in ingegneria nucleare, Politecnico di Torino, Italie et de nationalité italienne

acceptée sur proposition du jury:

Prof. R.Chawla, directeur de thèse Prof. P. Ravetto, rapporteur Dr G. Rimpault, rapporteur Prof. M.Q. Tran, rapporteur Dr P. Wydler, rapporteur

> Lausanne, EPFL 2003

Version abrégée

La gestion des déchets radioactifs résultants du cycle du combustible nucléaire est devenue un aspect important afin d'atteindre, dans le futur, les objectifs d'un développement durable dans le domaine énergétique. La séparation et la transmutation (P&T) des actinides et de certains produits de fission à vie longue permettraient de réduire la masse et la radiotoxicité des déchets à haute activité et d'atténuer ainsi les conditions à respecter pour leur stockage. Suite aux récents développements politiques et technologiques, de nombreux pays producteurs d'énergie nucléaire se sont intéressés à la technologie de la séparation et de la transmutation qui nécessite le développement de nouveaux types de réacteurs, critiques ou sous critiques, et la mise en place de stratégies très efficaces pour le cycle du combustible.

Ce travail de thèse est étroitement lié à deux projets sur la séparation et la transmutation organisés par l'Agence pour l'Energie Nucléaire (OCDE/AEN): un benchmark numérique sur un réacteur sous critique dédié à l'incinération des actinides mineurs et une étude analytique de système pour définir le rôle des réacteurs avancés à spectre rapide, critiques ou sous critiques, dans des cycles avancés du combustible. L'auteur a coordonné le benchmark et effectué l'analyse comparative des différentes stratégies de transmutation étudiées au cours de l'étude de système.

Le benchmark a contribué, d'une part, à améliorer la compréhension des phénomènes physiques caractéristiques de la transmutation des actinides avec un cycle fermé du combustible et a permis, d'autre part, de tester et d'améliorer les outils utilisés pour la modélisation des ADS et des correspondants cycles avancés du combustible. Ce travail a donc mené au développement d'une route de calcul efficace et complète qui a permis, dans la suite de la thèse, une analyse approfondie et fiable de différents scénarios de transmutation.

Afin de quantifier les bénéfices et les désavantages de la transmutation, on a étudié un nombre restreint de scénarios de transmutation "de base" qui constituent une enveloppe pour les différentes stratégies de transmutation possibles utilisant des systèmes à spectre rapide. On a ainsi évalué, dans une situation à l'équilibre, les principaux aspects qui caractérisent les différentes stratégies de transmutation, tels que la composition du parc nucléaire, la masse et la toxicité des déchets, le besoin d'uranium naturel, l'inventaire massique du combustible en pile et hors pile et, enfin, les principaux paramètres d'intérêt pour le cycle du combustible. Cette étude a donc permis de comparer fidèlement les performances des trois options principales de gestion des déchets nucléaires, c'est-à-dire cycle ouvert, recyclage du plutonium seul et recyclage de tous les actinides, ainsi que d'évaluer les avantages et les désavantages des ADS par rapport aux réacteurs critiques avancés pour la gestion et l'incinération des actinides mineurs ou des transuraniens.

i

La dernière partie de ce travail de thèse est dédiée à l'étude de "phase out" de l'option nucléaire pour deux schémas utilisant des ADS ou des réacteurs critiques. Cela a permis de vérifier que les systèmes avancés, optimisés pour un fonctionnement en conditions d'équilibre, peuvent être utilisés pour réduire l'inventaire des transuraniens et a permis de comparer les performances des ADS et des RNR dans un scénario de sortie de l'option nucléaire. On a ainsi pu quantifier les avantages réels de l'introduction d'une stratégie de transmutation par rapport au cycle ouvert de référence en tenant compte, de manière plus réaliste, de l'inventaire massique résiduel au moment de l'arrêt de toute installation nucléaire.

Abstract

The management of radioactive wastes from the nuclear fuel cycle has become an important issue in the development of future, more sustainable nuclear energy systems. Partitioning and transmutation (P&T) of actinides and some long-lived fission products could reduce the mass and radiotoxicity of high-level wastes and possibly ease repository licensing requirements. Influenced by political and technological developments, an increasing number of countries employing nuclear power have become interested in P&T technology which involves the development of new types of critical and/or sub-critical reactors and very efficient fuel cycle strategies.

The present thesis is closely connected to two P&T related projects of the OECD Nuclear Energy Agency in Paris, a numerical benchmark exercise for an accelerator-driven minor actinides burner and a calculational system study on the role of accelerator-driven systems (ADS) and advanced fast reactors (FR) in advanced nuclear fuel cycles. The author co-coordinated the benchmark exercise and performed the comparative analysis of the different "fuel cycle schemes" investigated in the system study.

The benchmark exercise contributed to a greater understanding of the physical phenomena characteristic of the transmutation of actinides in a closed fuel cycle, and allowed to test and improve the tools used for modeling ADSs and corresponding advanced fuel cycles. This work thus effectively led to the development of an efficient and more complete calculational scheme, which has permitted an in-depth and reliable analysis of different transmutation scenarios to be carried out.

To quantitatively assess the advantages and drawbacks of transmutation, we considered a limited number of "base" transmutation scenarios which constitute an envelope for various possible transmutation strategies employing fast spectrum systems. We then evaluated, for an equilibrium situation, the main aspects which characterise the different transmutation strategies, such as the nuclear park composition, the mass and toxicity of the waste, the need for natural uranium, the in-pile and out-pile mass inventories and, finally, the fuel cycle requirements. Thus, this study has allowed for the reliable comparison of performances of the three main options in the nuclear waste management, viz. open cycle, recycling of plutonium alone and recycling of all the actinides, as well as an evaluation of the advantages and disadvantages of ADSs in comparison to advanced critical reactors in the management of minor actinides or transuranics.

The last part of the dissertation is dedicated to a phase-out study for two schemes employing either ADSs or critical reactors. It has been shown thereby that advanced systems, optimised for an equilibrium fuel composition, can indeed be used to reduce the inventory of transuranics. A comparison of ADS and FR performances has been made in this context, and the relative benefits of transmutation have been

quantified in each case taking into consideration, more realistically, the residual mass inventory after the shutdown of all nuclear installations.

Table des matières

VERSION ABREGEE		
ABSTRACT	III	
TABLE DES MATIERES	V	
ABREVIATIONS ET SYMBOLES	IX	
1 INTRODUCTION	1	
1.1 Considérations générales		
1.2 Transmutation des déchets nucléaires		
1.2.1 Activités internationales		
1.2.2 Cadre de la thèse		
1.3 Aperçu de la thèse		
2 BACKGROUND DE LA THESE	9	
2.1 Gestion du combustible irradié	9	
2.2 Quantification de la toxicité des déchets radioactifs		
2.2.1 Radiotoxicité		
2.2.2 Radiotoxicité du combustible irradié: cas de l'UOX		
2.3 Transmutation: concepts de base		
2.3.1 Motivations de la transmutation		
2.3.2 Transmutation des transuraniens		
2.3.3 Transmutation des produits de fission		
2.3.4 Objectif et consequences du programme de transmutation	19	
2.4 Description des systèmes pour la transmutation		
2.4.1 Conséquences de la transmutation sur les paramètres de sûreté		
2.4.2 Systemes hybrides.		
2.4.2.1 Farametres neutroinques propres aux systemes nyorides		
2.4.4 Combustibles		
2.4.5 Séparation du combustible irradié		
	21	
2.4.5.1 Procédés aqueux		
2.4.5.1 Procédés aqueux 2.4.5.2 Procédés pyrochimiques		

3 METHODES DE CALCUL	
3.1 Calculs en situation stationnaire	
3.1.1 Réacteurs critiques	
3.1.1.1 Calcul de cellule	
3.1.1.2 Calcul de cœur	37
3.1.2 Réacteurs hybrides	38
3.2 Calculs d'évolution	39
3.2.1 Créations des chaînes d'évolution des noyaux lourds	41
3.2.2 Traitement des PF	43
3.2.3 Normalisation du flux à la puissance	46
3.2.4 Méthodes d'évolution	48
3.2.5 Découpage du cœur en sous-régions d'évolution	50
3.3 Calculs d'activité, chaleur de décroissance, radiotoxicité	52
3.4 Calculs des scénarios de transmutation à l'équilibre	53
3.4.1 Modélisation du cycle du combustible	53
3.4.2 Remontage du parc	56
4 DEFINITION ET ANALYSE DU BENCHMARK 4.1 Rappel des résultats du benchmark précédent	59 60
4.2 Préparation du modèle du benchmark	62
4.2.1 Modèle géométrique du réacteur	64
4.2.2 Composition du combustible	66
4.2.3 Calcul de la distribution des neutrons de spallation	68
4.2.4 Etude paramétrique sur la hauteur de la cible	70
4.3 Analyse des résultats	73
4.3.1 Description des résultats requis	73
4.3.2 Participants et méthodes de calcul	75
4.3.3 Présentation et discussion des résultats en début d'irradiation	
4.3.3.1 Sections efficaces microscopiques condensées à 1 groupe énergétique	
4.3.3.2 Coefficients de multiplication en DDV	85
4.3.3.3 Spectre des neutrons	
4.5.5.4 Traverses du flux neutromque	
4.5.4 Fresentation et discussion des resultats d'évolution	93 07
4.3.4.2 Intensité de la source de neutrons externes	
4 3 4 3 Composition du combustible en fin d'irradiation	
4.3.5 Paramètres de sûreté	
4 4 Conclusions	111
7.7 CONCREDUTES	

5 COMPARAISON DE SCENARIOS DE TRANSMUTATION	115
5.1 Objectifs de l'étude	115
5.1.1 Définition d'équilibre	
5.2 Description des stratégies et des modèles utilisés	118
5.2.1 Stratégies de transmutation	118
5.2.2 Modèles des réacteurs et leur modification dans le calcul d'équilibre	120
5.2.3 Harmonisation des paramètres du cycle	124
5.3 Performances de transmutation des systèmes à cycle fermé	126
5.3.1 Comparaison de parcs nucléaires	
5.3.2 Paramètres d'efficacité pour des réacteurs opérant à cycle fermé	
5.4 Comparaison des réacteurs dédiés	131
5.4.1 Caractéristiques des réacteurs à l'équilibre	
5.4.2 Performances de transmutation	
5.5 Analyse des scénarios de transmutation	
5.5.1 Composition du parc nucleaire	
5.5.2 Floduction des dechets à naute activité	
5.5.4 Radiotoxicité des déchets	
5.5.4.1 Déchets à haute activité	
5.5.4.2 Contribution de l'uranium àal toxicité totale	151
5.6 Conséquences sur le cycle du combustible	155
5.6.1 Analyse des caractéristiques du combustible	156
5.6.2 Flux massiques	158
5.6.3 Méthodes pour la réduction de l'activité et de la chaleur de décroissance	
5.7 Etudes paramétriques	165
5.7.1 Taux de combustion moyen	165
5.7.2 Pertes au retraitement	
5.8 Inventaire massique en pile et hors pile	169
5.8.1 Calculs en conditions d'équilibre	
5.8.2 Prise en compte de la période de fonctionnement du parc	
5.8.5 Consequences pour la transmutation	1/4
5.9 Conclusions	175
6 ANALYSE DU PHASE-OUT DE L'OPTION NUCLEAIRE	177
6.1 Modélisation du transitoire	178
6.2 Composition du combustible au cours du "phase-out"	
6.2.1 Analyse de l'oméga étoile	
6.3 Résultats pour des parcs nucléaires de référence	187
6.4 Conclusions	193
7 CONCLUSIONS GENERALES	195
7.1 Standardisation des outils de calcul pour les ADS	195
7.2 Comparaison de stratégies de transmutation	197

REFERENCES	201
ANNEXE A (CHAPITRE 3)	207
ANNEXE B (CHAPITRE 4)	217
ANNEXE C (CHAPITRE 5)	
ANNEXE D (CHAPITRE 6)	
REMERCIEMENTS	291
CURRICULUM VITAE	291

Abréviations et symboles

ADS	Accelerator-Driven System
AEN	Agence pour l'Energie Nucléaire (NEA)
AIEA	Agence Internationale pour l'Energie Atomique (IAEA)
ALMR	Advanced Liquid Metal Reactor
AM	Actinides Mineurs
ANL	Argonne National Laboratory (Etats-Unis)
ATW	Accelerator driven Transmutation of Waste, projet de LANL (Etats-Unis)
CAPRA	Consommation Accrue du Plutonium dans les Réacteurs Avancés
CEA	Commissariat à l'Energie Atomique (France)
CIEMAT	Centro de Investigaciones Energeticas MedioAmbientales y Tecnologicas (Espagne)
COGEMA	COmpagnie GEnérale des MAtières nucléaires (France)
CR	Conversion Ratio - Rapport de conversion
CRIEPI	Central Research Institute of Electric Power Industry (Japon)
DDC	Début De Cycle
DDCE	Début De Cycle d'Equilibre
DDI	Début D'Irradiation
DDV	Début de Vie
ECCO	European Cell COde
EDF	Electricité De France
EFR	European Fast Reactor
ENDF	Evaluated Nuclear Data File, données nucléaires évaluées au "National Neutron Cross Section Center" de Brookhaven (Etats-Unis)
ERANOS	European Reactor ANalysis Optimized System
FDC	Fin De Cycle
FDCE	Fin De Cycle d'Equilibre
FDI	Fin D'Irradiation
FDV	Fin De Vie
fu	facteur de utilisation du réacteur
GE	General Electric (Etats-Unis)
HETC	High Energy Transport Code
ICRP	International Commission on Radiation Protection
IFR	Integrated Fast Reactor, programme de recherche de ANL (Etats-Unis)
JAERI	Japan Atomic Energy Research Institute (Japon)
JEF	Joint Evaluated File
JENDL	Japanese Evaluated Nuclear Data Library
jepn	jours équivalents à puissance nominale
JNC	Japan Nuclear Cycle development institute (Japon)
KAERI	Korean Atomic Energy Research Institute (Corée)

LANL	Los Alamos National Laboratory (Etats-Unis)
LINAC	LINear Accelerator - ACcélérateur linéaire
MAB	Minor Actinide Burner (Brûleur d'Actinides Mineurs), modèle de réacteur hybride dérivé du projet PRISM et dédié à l'incinération des actinides mineurs
MOX	Mixed OXide fuel, combustible oxyde mixte UO ₂ -PuO ₂
NDC	Nuclear Development Committee
NL	Noyaux Lourds
NSC	Nuclear Science Committee
OCDE	Organisation de Coopération et de Développement Economique (OECD)
OMEGA	Option for Making Extra Gain of Actinides and fission products, programme de recherche japonais sur la séparation et transmutation
PF	Produits de Fission
PFVL	Produits de Fission à Vie Longue
PRISM	Power Reactor Inherently Safe Module, project de RNR de GE-ANL (Etats-Unis)
PSI	Paul Scherrer Institute (Suisse)
PUREX	Plutonium and Uranium Recovery by Extraction - séparation par voie liquide de l'uranium et du plutonium
REP	Réacteurs à Eau Pressurisée (PWR)
RIT	Royal Institute of Technology (Suède)
RNR	Réacteurs à Neutrons Rapides (FR)
SCK-CEN	StudienCentrum voor Kernenergie – Centre d'Etudes de l'énergie Nucléaire (Belgique)
SPIN	SéParation et INcinération, programme de recherche français sur la séparation et la transmutation
TRU	TRansUraniens (Np, Am, Cm, Bk, Cf)
UNSCEAR	United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation
UOX	Uranium OXide
UREX	Uranium Recovery by Extraction - séparation par voie liquide de l'uranium
WPPT	Working party on Partitioning and Transmutation
η_e	Efficacité de conversion de l'énergie thermique en énergie électrique
η_p	Efficacité de conversion de l'énergie électrique en faisceau de protons

1 Introduction¹

Dans ce chapitre introductif on considère d'abord la compatibilité de l'énergie nucléaire avec les objectifs d'un développement durable. On mettra ainsi en évidence les problèmes que l'énergie nucléaire doit résoudre pour atteindre les critères du développement durable avant d'être en mesure de jouer un rôle plus important dans le contexte énergétique global. On décrira ensuite quelques importantes activités de coopération internationale pour la transmutation des déchets nucléaires avec une attention particulière à deux projets de l'OCDE/AEN auxquels ce travail de thèse a contribué d'une façon considérable. On donnera enfin un aperçu de la structure et des contenus des différents chapitres de la thèse.

1.1 Considérations générales

Le concept de développement durable a été introduit à la fin des années 80 dans le rapport Brundtland [Bru-87] comme "un développement qui répond aux besoins du présent sans compromettre la capacité des générations futures de répondre aux leurs". Dans son sens plus large, cette définition relie et englobe trois dimensions différentes telles que croissance économique, protection de l'environnement et bien être social; elle préconise aussi implicitement l'équité entre citoyens d'un même pays, entre pays et entre générations. Dans une optique de développement durable, toute activité humaine doit donc être jugée non seulement sur la base de ses actifs, c'est à dire des bénéfices directs ou indirects qu'elle apporte à l'humanité, mais aussi sur la base de ses répercussions, actuelles et à long terme, sur la population et sur les systèmes écologique et macro-économique.

Le secteur énergétique ne fait pas exception à cette règle: la disponibilité d'énergie est indispensable pour le bien-être social, pour la prospérité et le développement économique. D'autre part, tout le cycle de production, de distribution et de consommation d'énergie a un impact majeur, à niveau local et global, sur la santé et l'environnement. Une politique énergétique équilibrée doit tenir compte des quatre facteurs suivants: le coût de production de l'énergie électrique, la disponibilité et la diversification des ressources naturelles, les conséquences d'accidents possibles dans tout le cycle de production et l'émission de polluants ou les modifications à l'écosystème liées au fonctionnement normal des installations. En particulier ce dernier aspect est devenu prioritaire au fur et à mesure que les connaissances scientifiques ont permis de déterminer les conséquences de la production de l'énergie électrique sur l'environnement et sur l'homme. La combustion des combustibles fossiles est associée à des émissions de particules et de gaz acides qui détériorent la qualité de l'air au niveau local et de gaz à effet de serre qui contribuent au changement du climat à l'échelle de la planète. D'autre part la fission des noyaux lourds dans les installations nucléaires produit des déchets radioactifs à vie très longue qui sont extrêmement nuisibles

¹ Références générales pour ce chapitre: [AEN-99a] [BM-01] [EU-00] [Len-01] [TWG-01].

pour l'homme et pour l'environnement en cas de contact avec la biosphère. Les sources d'énergie renouvelables, telles que l'énergie éolienne, hydroélectrique et solaire, ont aussi un impact non négligeable sur l'écosystème, compte tenu des importantes modifications sur le territoire nécessaires à leur exploitation. Le défi principal pour le secteur énergétique est donc d'assurer les services énergétiques à l'ensemble de la population mondiale tout en garantissant aux générations futures les mêmes opportunités en terme de qualité de l'environnement et de disponibilité de ressources pour la production d'énergie.

Du point de vue de la gestion des ressources naturelles, l'énergie nucléaire a de nombreux avantages par rapport aux combustibles fossiles: l'uranium n'a d'autres utilisations importantes que la production d'énergie et les réserves de ce minéral sont abondantes et réparties dans plusieurs régions du monde. En plus, on peut envisager d'utiliser le thorium comme combustible alternatif à l'uranium et de brûler l'uranium naturel dans des réacteurs avancés en recyclant le combustible irradié, ce qui permettrait de produire environ 180 fois plus d'énergie qu'avec la technologie actuelle². En cas de fonctionnement normal, les risques environnementaux associés à l'énergie nucléaire proviennent essentiellement des émissions de substances radioactives et des déchets de l'irradiation. L'exposition aux radiations du personnel des installations nucléaires et des membres du public est largement en dessous des limites annuelles prescrites (1mSv pour le public et 20 mSv pour le personnel des centrales). Selon une étude de UNSCEAR (United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiations) [UNS-94], l'énergie nucléaire contribue seulement pour le 0.4% à l'exposition annuelle aux radiations. La gestion des déchets radioactifs constitue, au contraire, un problème significatif pour le futur de l'énergie nucléaire; quoique limités en masse et en volume, les déchets radioactifs sont toxiques pour des centaines de milliers d'années. Les méthodes actuelles de gestion sont mises en discussion par l'opinion publique et, si on fait des hypothèses conservatives, ne satisfont pas les principes du développement durable. Ainsi, par exemple, le stockage à temps indéterminé des déchets en formations géologiques stables ne peut pas éliminer le danger de contamination associé à une intrusion humaine. Par contre les centrales nucléaires ne produisent pratiquement pas de CO₂ ni de gaz ou particules responsables de l'effet de serre, des pluies acides, du smog urbain ou de l'appauvrissement de la couche d'ozone. L'énergie électronucléaire, par conséquent, peut limiter les effets des combustibles fossiles sur l'environnement: en 1990 l'utilisation de l'énergie nucléaire a évité l'émission de $1.92 \cdot 10^9$ tonnes de CO₂ dans le monde entier, c'est à dire le 9% du total [NEA-00] [IAEA-00]. Pour ce qui est la prévention des accidents graves, l'industrie nucléaire s'est imposée des systèmes de sûreté très complexes, de façon à minimiser le risque d'un accident grave dans les réacteurs modernes. La prévention des accidents graves et la mitigation de leurs conséquences

² Un parc électronucléaire composé de réacteurs à neutrons rapides (RNR), avec recyclage du 99.9% des noyaux lourds, permettrait d'incinérer complètement l'uranium et utiliserait seulement 112.8 kg/TWh_e d'uranium naturel par rapport aux 20513 kg/TWh_e nécessaires si on n'utilisait que des réacteurs à eau pressurisée (REP). Pour plus de détails, voir le paragraphe 5.5.3.

sont constamment améliorées dans les installations plus modernes. Néanmoins, étant données les conséquences d'un accident grave sur la population et sur l'environnement, il est nécessaire d'augmenter encore le degré de sûreté des installations nucléaires et l'information du public.

Le rôle du nucléaire dans le panorama énergétique de ce siècle est encore incertain et dépendra essentiellement de comment il pourra contribuer à réaliser les objectifs du développement durable. D'une part la croissance des besoins énergétiques mondiaux³, surtout dans les pays non-OCDE (Organisation de Coopération et de Développement Economique) en cours de développement, et la nécessité de réduire l'émission de gaz à effet de serre plaident pour un développement considérable des sources d'énergie non fossiles, telles que les énergies renouvelables et l'énergie nucléaire. D'autre part l'établissement d'une stratégie valable en terme de sûreté, de coût de production de l'énergie, d'utilisation des ressources et surtout de gestion des déchets est une exigence incontournable pour l'acceptation du nucléaire dans ce siècle. L'importance de l'énergie nucléaire en Europe et la nécessité de focaliser les activités de recherche sur l'aval du cycle du combustible et en particulier sur la séparation et la transmutation des isotopes à vie longue ont été clairement soulignés par la Direction Générale pour l'Energie et les Transports de la Communauté Européenne [EU-00].

1.2 Transmutation des déchets nucléaires

1.2.1 Activités internationales

Les premières études sur la séparation et la transmutation des isotopes radioactifs à vie longue, commencées dans les années 70 au Japon, aux Etats-Unis et dans la Communauté Européenne, se terminèrent au début des années 80 sans aboutir à un consensus international sur les bénéfices et la faisabilité d'une telle technologie. Ce n'est qu'après une décennie, suite aux difficultés croissantes pour la concession et l'exploitation des dépôts souterrains pour les déchets nucléaires, que deux ambitieux programmes de recherche ont été approuvés au Japon et en France. En 1988 le gouvernement japonais, avec le soutien de JAERI (Japan Atomic Energy Research Institute), JNC (Japan Nuclear Cycle development institute) et CRIEPI (Central Research Institute of Electric Power Industry), a lancé le programme de recherche OMEGA (Options Making Extra Gains from Actinides and fission products) pour évaluer différents concepts de réacteurs et pour développer de nouvelles technologies pour l'aval du cycle du combustible [Nak-92]. En 1992, suite à l'approbation par le parlement français de la loi Bataille, le CEA (Commissariat à l'Energie Atomique), EDF (Electricité De France) et COGEMA (COmpagnie GEnérale des MAtières nucléaires) ont commencé un ample programme de recherche et développement

³ Selon un rapport de l'Agence Internationale de l'Energie [IEA-98], la capacité mondiale de production d'énergie devrait doubler d'ici à l'an 2020.

qui a pour but d'analyser en détail les options possibles de gestion des déchets nucléaires. En particulier le CEA a lancé le programme SPIN (SéParation et INcinération) qui étudie la possibilité de transmuter les actinides mineurs dans des réacteurs classiques ou dans des systèmes innovants [VS-95].

A l'heure actuelle la plupart des nations industrialisées se sont engagées dans des projets communs sur la séparation et la transmutation et, en particulier, sur les systèmes sous critiques dédiés à l'incinération des transuraniens. Dans ce cadre il est utile de souligner l'importance des organisations de coopération internationale, telles que l'Agence Internationale de l'Energie Atomique (AIEA) et l'Agence de l'Energie Nucléaire (AEN), qui coordonnent les activités de recherche des états membres et organisent des projets communs pour échanger et améliorer les connaissances dans le domaine de l'énergie nucléaire. Depuis la fin des années 80 l'AEN s'est activement occupée de séparation et de transmutation. Actuellement deux comités d'experts, le Nuclear Development Committee (NDC) et le Nuclear Science Committee (NSC), sont impliqués dans ces projets et un groupe de travail dédié exclusivement à la séparation et à la transmutation (WPPT - Working Party on Partitioning and Transmutation) vient d'être crée en 2000.

1.2.2 Cadre de la thèse

Le NSC, qui s'occupe des aspects scientifiques et techniques du calcul des réacteurs nucléaires, a organisé deux benchmark internationaux sur plusieurs concepts de transmutation [NEA-96] [NEA-00a] [WT-99] [NEA-01]. L'objectif du premier exercice, initié en 1996, était de mieux étudier différents systèmes, REP (Réacteurs à Eau Pressurisée), RNR (Réacteurs à Neutrons Rapides) et ADS (Accelerator-Driven Systems), dédiés à recycler les transuraniens issus de REP standard et donc de mieux comprendre la physique des cycles complexes du combustible. Les incertitudes dans le calcul des systèmes hybrides observées au cours de cet exercice sont beaucoup plus élevées que celles des systèmes critiques à spectre thermique ou rapide; le groupe d'experts du NSC a donc souligné la nécessité de réaliser un nouveau benchmark ciblé sur les ADS et avec une participation moins limitée. Suite à ces considérations et à l'intérêt croissant pour les systèmes hybrides, un deuxième benchmark international a été approuvé par l'AEN en 1999 dans le but de résoudre les différences observées au cours de l'exercice précédent et de mieux évaluer les performances des outils de calcul en particulier pour des systèmes sous critiques fortement chargés en AM (Actinides Mineurs). La modélisation d'un réacteur hybride optimisé pour l'incinération des actinides mineurs, la définition des spécifications du benchmark et la successive analyse et publication des résultats ont été faites principalement au PSI (Paul Scherrer Institute) dans le cadre de ce travail de thèse. La participation à cet exercice a été remarquable: sept instituts de recherche ont contribué à la réussite de ce benchmark en utilisant les trois principales bibliothèques de données nucléaires de base et différentes méthodes de calcul de cœur.

Le NDC, qui a une perspective globale sur l'énergie nucléaire et sur le cycle du combustible, s'est engagé dans une série d'analyses de systèmes dans le domaine de la séparation et transmutation. Dans un premier rapport, paru en 2000 [NEA-99], un groupe d'experts décrit l'état de l'art des procédés de fabrication et de séparation du combustible, analyse les différents réacteurs à spectre rapide et thermique dédiés à la transmutation et présente les techniques actuelles de confinement des déchets radioactifs. Une deuxième phase de ce projet, approuvé par le NDC en 1999, a comme objectif de comparer de façon cohérente et efficace les principaux schémas de cycle du combustible établis par les nations les plus avancées dans l'industrie nucléaire et en particulier de définir le rôle que les systèmes à spectre rapide, critiques ou hybrides, peuvent avoir pour clore le cycle du combustible. Le point de vue très ample sur tous les domaines de l'industrie nucléaire est un atout très important de cette deuxième phase du projet: à côté de la comparaison des réacteurs dédiés à la transmutation et des performances en terme de réduction de masse et de toxicité des déchets nucléaires, cette étude évalue aussi l'impact de la transmutation sur tout le cycle du combustible, sur la sûreté des réacteurs et sur le coût de production de l'énergie. Une telle comparaison compréhensive requiert l'utilisation des mêmes données de base et d'une route de calcul unique et bien qualifiée, la cohérence des calculs et des approximations et l'harmonisation de tous les paramètres importants du cycle nucléaire. La contribution de ce travail de thèse à cette deuxième phase du projet AEN/NDC a été fondamentale: l'établissement d'une route de calcul fiable et testée au cours du benchmark sur les ADS et les adaptations du code pour modéliser efficacement tout le cycle du combustible ont permis d'effectuer les calculs détaillés de systèmes nucléaires à l'équilibre qui constituent la base de ce travail de l'AEN.

En dernier lieu, il faut souligner que cette thèse a été développée aussi dans le cadre d'une collaboration bilatérale entre le PSI et le CEA de Cadarache. Cette collaboration a déjà permis la réalisation de plusieurs études importantes sur les systèmes avancés. En particulier les travaux de thèse précédents sur les ADS de Y. Kadi [Kad-95] et de G. Youinou [You-97] ont été dédiés à l'amélioration et à la validation des outils de calcul pour les phénomènes occurrents à haute énergie, à l'analyse détaillée des états d'équilibre de différentes propositions de réacteurs hybrides et à l'évaluation de leurs performances en terme de réduction de toxicité. Dans ce contexte, le travail de thèse actuel représente une amélioration considérable des méthodes d'analyse des systèmes ADS: le couplage des outils de calcul développés au PSI au cours des thèses précédentes (calcul de la source externe de neutrons, de l'activité et de la toxicité du combustible irradié) avec le "formulaire" de calcul européen pour les réacteurs à spectre rapide développé à Cadarache, ainsi que l'utilisation de nouvelles routines, permettent d'étudier fidèlement l'évolution du combustible jusqu'à l'état d'équilibre.

1.3 Aperçu de la thèse

Ce travail de thèse a été étroitement lié aux deux projets de l'AEN qu'on vient de décrire: l'analyse des résultats du benchmark a permis de mieux comprendre la physique des systèmes avancés pour l'incinération des actinides mineurs, de vérifier l'état de l'art des outils de calcul et, aussi, de mettre à point une méthode de calcul plus efficace et fiable pour l'étude des systèmes avancés et du cycle du combustible. Les outils de calcul et la méthodologie de calcul ainsi testés ont permis de conduire une étude approfondie de comparaison des cycles nucléaires avancés incluant des RNR et/ou des ADS. Cette recherche a permis de quantifier les avantages de l'introduction d'une stratégie de séparation et de transmutation en terme de réduction de la masse et de la toxicité des déchets radioactifs et d'évaluer son impact sur les aspects fondamentaux du cycle du combustible, l'utilisation des ressources en uranium naturel, la gestion du combustible irradié et les inventaires massiques de noyaux lourds présents dans le parc nucléaire à l'équilibre. Dans la dernière partie de la thèse on a enfin abordé le sujet de la sortie de l'option nucléaire; on a ainsi comparé les avantages respectifs des ADS et des RNR en terme de réduction de l'inventaire massique à l'équilibre et du temps nécessaire au "phase-out".

Mis à part ce premier chapitre d'introduction, ce travail de thèse est structuré en six parties principales. Le chapitre 2, "Background de l'étude", présente de façon concise les aspects essentiels traités au cours de cette thèse: on introduit ainsi les mesures pour mesurer la toxicité des déchets radioactifs et les concepts de base liés à la transmutation. On donne enfin un aperçu des principales caractéristiques des réacteurs dédiés à la transmutation et du cycle du combustible.

Dans le troisième chapitre on décrit les méthodes de calcul utilisées au cours de cette thèse pour l'étude des systèmes critiques ou hybrides et la modélisation du cycle du combustible pour l'analyse des scénarios à l'équilibre. Au cours de ce chapitre on quantifie aussi l'effet des approximations lors des calculs d'évolution sur la perte de réactivité et sur la composition isotopique du combustible à la fin de l'irradiation.

Le chapitre 4, "Analyse du benchmark", est dédié à la définition du benchmark sur les ADS et à la discussion des résultats soumis par les organisations participantes. On présente ainsi les objectifs à la base de cet exercice et on décrit la méthode suivie pour la préparation des spécifications finales; cette partie introductive est suivie par l'analyse des résultats et par l'explication des écarts observés parmi les solutions.

Le cinquième chapitre, "Comparaison de scénarios de transmutation", est dédié à l'analyse de scénarios de transmutation incluant des RNR et des ADS. Au cours de ce chapitre on étudie les caractéristiques principales des cycles nucléaires avancés dans une situation d'équilibre avec une

Le chapitre 6, "Analyse de "phase-out" de l'option nucléaire", aborde l'analyse du transitoire de "phase-out" hypothétique de l'option nucléaire à partir de la situation d'équilibre établie en précédence. On a restreint cette étude aux scénarios Double Composante avec RNR ou ADS afin de déterminer les avantages et les limitations respectives dans une situation de sortie de l'option nucléaire. Cette étude permet enfin de quantifier les avantages effectifs des stratégies de transmutation analysés en tenant correctement compte de l'inventaire massique résiduel au moment de l'arrêt supposé de toute installation nucléaire.

Le dernier chapitre récapitule enfin les résultats plus importants de cette recherche et contient les recommandations et les conclusions finales de ce travail de thèse.

2 Background de la thèse

2.1 Gestion du combustible irradié⁴

L'énergie nucléaire contribue à présent au 7% de la production mondiale d'énergie primaire et représente le 17% du total de la production d'énergie électrique. En 2000 les 444 tranches nucléaires en service dans 31 pays du monde ont produit environ 2400 TWh d'électricité avec une puissance installée d'environ 356 GW_e [ASP-01].

La majorité des réacteurs actuellement en fonction est du type REP, refroidis avec de l'eau ordinaire sous pression et utilise comme combustible de l'uranium enrichi en ²³⁵U. Le combustible est irradié jusqu'à atteindre un taux de combustion moyen ("average burn-up") qui varie de 33 à 50 GW_j/t_{NL} selon le réacteur utilisé: pour le réacteur français REP-N4 (1450 MW) l'objectif est un un taux de combustion de l'ordre de 55 GW_j/t_{NL}. Pour les REP 1300 à la technologie plus éprouvée, l'objectif est un taux de combustion de combustion de 62 GW_j/t_{NL} en moyenne avec un taux de combustion maximum de 70 GW_j/t_{NL}. Le combustible est ensuite déchargé du réacteur et entreposé dans une piscine de refroidissement afin d'en réduire l'activité et la puissance résiduelle. Les Tableaux 2.1 et 2.2⁵ [NEA-99] montrent l'influence du taux de combustion sur la production de noyaux lourds, sur le cycle de l'uranium et sur des paramètres d'efficacité d'utilisation des ressources.

Isotope	Taux de combustion (GW _j /t _{NL})		
	33	41.2	50
U	3526	2794	2276
Pu	35.9	32.1	29.2
AM	3.07	3.38	3.63
PF	124.6	124.9	124.9
²³⁸ Pu	0.6	0.8	1.0
²³⁹ Pu	21.1	17.4	15.2
²⁴⁰ Pu	8.2	7.6	6.9
²⁴¹ Pu	4.2	4.0	3.8
²⁴² Pu	1.8	2.2	2.3
²³⁷ Np	1.60	1.63	1.75
²⁴¹ Am	1.00	1.00	0.93
²⁴³ Am	0.40	0.56	0.67
²⁴⁴ Cm	0.07	0.16	0.24
²⁴⁵ Cm	0.00	0.01	0.02

⁴ Références générales pour cette section: [AEN-00] [IEA-99] [IAEA-00].

⁵ Source CEA/DRN/SPRC.

Isotope	Taux de combustion (GW _j /t _{NL})		
	33	41.2	50
Enrichissement	3.5%	3.7%	4.2%
U naturel	26083.6	22174.6	20513.4
U enrichi	3691.4	2956.6	2394.1
U appauvri	22392.2	19218.0	18119.3
Combustible fissionné	3.37%	4.22%	5.15%
Utilisation de l'uranium	0.48%	0.56%	0.60%

Tableau 2.2: Besoins en terme d'uranium pour un REP-UOX standard (kg/ TWhe)

L'augmentation du taux de combustion permet de réduire la masse de plutonium allant aux déchets au prix d'une augmentation de la quantité d'actinides mineurs. Du point de vue du cycle de l'uranium, l'augmentation du "burn-up" permet de réduire faiblement les besoins d'uranium naturel et de limiter l'accumulation d'uranium appauvri. On observe aussi une augmentation du facteur d'utilisation de l'uranium naturel, qui reste tout de même largement inférieur à 1%. Le taux de combustion moyen ne peut pas être prolongé indéfiniment dans les réacteurs thermiques et la valeur de 50-60 GW_j/t_{NL} est actuellement considérée comme une limite supérieure.

A présent l'industrie nucléaire a implémenté deux options différentes pour la gestion du combustible irradié: (a) le stockage direct en couche géologique profonde et (b) le retraitement, où on sépare l'uranium et le plutonium du reste des déchets et on recycle ensuite le plutonium une ou deux fois dans des REP. Cette stratégie laisse ouverte la possibilité de recycler ultérieurement le plutonium dans des RNR.

La première stratégie, adoptée entre autres par les Etats-Unis, le Canada et la Suède, prévoit le stockage direct des éléments de combustible dans un dépôt de stockage définitif après une adéquate période de décroissance dans un entrepôt provisoire. Tous les NL (Noyaux Lourds), uranium, plutonium et actinides mineurs, sont dans ce cas considérés comme des déchets. Du point de vue énergétique, cette stratégie est inefficace car elle permet d'utiliser seulement le 0.6% de l'uranium naturel et elle conduit à rejeter une grande quantité de noyaux fissiles, surtout du Pu eu de l'²³⁵U (dans le cas d'un REP-UOX avec un taux de combustion de 50 GW_j/t_{NL}, le potentiel énergétique des isotopes fissiles mis aux déchets représente environ le 29% de l'énergie produite).

La deuxième stratégie, choisie par le Japon et la France, prévoit la séparation du combustible irradié après une période de décroissance plus courte, de l'ordre de 4-7 ans, et la réutilisation du plutonium qui est mélangé à de l'uranium appauvri pour fabriquer du combustible MOX (Mixed OXide). Ce combustible peut être utilisé soit dans des réacteurs à spectre rapide soit dans certains REP. Un recyclage ultérieur du plutonium issu du combustible MOX irradié est envisagé dans des REP mais n'a pas encore été réalisé dans la pratique. Le multirecyclage du plutonium dans des réacteurs à spectre thermique est tout de même limité au deuxième ou, peut être, au troisième cycle à cause de la détérioration progressive du vecteur isotopique du plutonium. Dans le cadre de cette stratégie, l'uranium irradié, qui est toujours légèrement enrichi en ²³⁵U, est stocké en réserve et n'est actuellement pas encore recyclé en pile.

Les avantages du recyclage du plutonium restreint au premier cycle dans les REP-MOX sont assez limités par rapport au stockage direct: le besoin d'uranium naturel est réduit de 13%, la quantité du plutonium aux déchets est réduite du 40% (17 kg/TWh_e) au prix d'une augmentation de la masse des actinides mineurs (5.4 kg/TWh_e)⁶. Le recyclage du plutonium dans les REP permet seulement d'en limiter l'accumulation⁷: pour atteindre la stabilisation, ou éventuellement la diminution, du stock de plutonium, le multirecyclage dans des systèmes à spectre rapide s'avère indispensable.

2.2 Quantification de la toxicité des déchets radioactifs

L'estimation de la nocivité des déchets radioactifs est cruciale pour évaluer le risque radiologique associé à la production d'énergie nucléaire et pour comparer l'efficacité des différentes stratégies de gestions des déchets. L'évaluation d'une telle grandeur peut être faite selon deux approches différentes. La première approche constitue simplement à évaluer le danger associé à l'assimilation directe d'isotopes radioactifs, par ingestion ou inhalation, sans tenir compte des barrières successives qui isolent les déchets de la biosphère. La deuxième approche mène à calculer plus précisément le risque radiologique à long terme des déchets nucléaires; un tel calcul peut se décomposer en deux étapes successives:

- Il faut estimer la probabilité que chaque isotope puisse s'échapper de son conteneur, migrer dans la biosphère et être assimilé par l'homme, généralement par ingestion ou par inhalation.
- Il faut calculer les dommages que chaque isotope radioactif et ses descendants peuvent statistiquement causer aux êtres humains en cas d'assimilation.

Si l'évaluation du danger associé à l'assimilation directe d'isotopes radioactifs peut être calculé avec une bonne approximation par l'introduction du concept de radiotoxicité, le calcul de la migration des isotopes radioactifs dans la biosphère dépend considérablement de la qualité du confinement des déchets et des caractéristiques individuelles des sites de stockage; par conséquent une telle analyse nécessite d'une étude pour chacun des cas, ce qui va au-delà des objectifs de cette thèse.

Tout au long de cette thèse, on évaluera donc l'inventaire de radiotoxicité des déchets, c'est à dire le danger intrinsèque associé à ces isotopes radioactifs, et non pas leur risque radiologique potentiel. En d'autres termes on ne considère pas la protection des barrières successives qui isolent les déchets de la

 $^{^{6}}$ Ce calcul a été effectué en considérant un combustible MOX avec une teneur initiale de plutonium de 8.2%. On a assumé aussi un taux de combustion moyen de 50 GW_j/t_{NL} pour les combustibles MOX et UOX et un taux de pertes au retraitement de 0.1% pour le plutonium.

⁷ L'utilisation, dans les réacteurs à spectre thermique, d'un combustible "uranium-free" à matrice inerte permettrait de limiter l'accumulation du plutonium fissile et d'améliorer ainsi la gestion du plutonium du point de vue de la

biosphère; la radiotoxicité est donc la grandeur adaptée pour analyser un accident ou une intrusion humaine dans le site de stockage.

Le choix d'utiliser la radiotoxicité comme mesure de la nocivité des déchets nucléaires a de nombreux avantages pour une étude internationale qui a pour but de comparer les performances de différentes stratégies de transmutation: la radiotoxicité est conceptuellement simple, bien connue et acceptée par la communauté scientifique et surtout permet d'obtenir des résultats toujours valables, indépendamment de la méthode de stockage des déchets.

2.2.1 Radiotoxicité⁸

Le danger des isotopes radioactifs dérive essentiellement de l'absorption par les tissus des radiations émises lors d'une désintégration radioactive; le danger lié à la toxicité chimique des isotopes est généralement négligeable par rapport à l'effet des radiations et, par conséquent, n'est pas pris en compte dans un calcul de radiotoxicité. La quantité d'énergie absorbée par le corps humain lors de l'exposition à des radiations, définie comme dose D est, en principe, facilement mesurable et dépend de la particule émise, de son énergie et de l'organe où a eu lieu l'absorption; l'unité de mesure de la dose est le Gray (1Gy = 1 J/kg).

En cas d'exposition aiguë limitée à une courte période de temps, les effets sur l'homme sont de nature déterministe et apparaissent uniquement au-dessus d'une valeur de seuil. Au contraire, l'exposition à de faibles doses ou à une exposition très étendue dans le temps a des effets statistiques sur l'homme, en induisant des cancers ou des modifications génétiques qui peuvent apparaître très longtemps après l'irradiation. Les effets probabilistes de l'exposition à des doses inférieures à la valeur de seuil, définis comme dose effective à l'organisme (E), sont mesurés en Sievert (Sv) et dépendent de la dose absorbée D, du type de radiation R et de l'organe irradié T.

 $E_{R}(Sv) = \sum_{T} w_{T} \cdot \sum_{R} w_{R} \cdot D_{RT}(Gy)$

 w_R est un facteur de qualité qui tient compte de la nocivité du rayonnement R (1 pour les rayons β et γ , 20 pour les rayons α et de 5 à 20 pour les neutrons, selon leur énergie).

w_T représente la vulnérabilité des tissus irradiés.

D_{RT} est la dose moyenne de la radiation R absorbée par le tissu T.

Pour évaluer les conséquences radiologiques de l'ingestion ou de l'inhalation à $t = t_0$ de l'unité de masse de l'isotope radioactif N, on doit calculer la dose effective absorbée (Sv/g) intégrée sur la vie de la personne exposée.

prolifération [Köb-98]. Il s'agit cependant d'une stratégie à cycle ouvert qui ne donne pas de résultats efficaces du point de vue de la transmutation.

⁸ Références générales pour ce paragraphe: [AEN-99] [IAEA-94].

$$E_N(\tau) = \int_{t_0}^{t_0+\tau} \dot{E}_N(t) \, dt$$

 $\dot{E}_N(t)$ est calculé sur la base de modèles bio-cinétiques complexes qui tiennent compte de la mobilité de l'isotope radioactif et de ses descendants à l'intérieur du corps humain. La dose effective absorbée dépend du temps τ après l'introduction de l'isotope radioactif; pour le calcul de la radiotoxicité, on considère une valeur de 50 ans pour les adultes.

On peut donc définir la radiotoxicité d'un mélange M d'isotopes radioactifs comme

$$RTOX_{M}(t) = \sum_{N=1}^{Isotopes} A_{N}(t) \cdot E_{N}$$

A_N est la masse de l'isotope N dans le mélange M considéré.

La radiotoxicité est fonction du temps: à cause des décroissances la composition du mélange se modifie et, par conséquent, sa toxicité varie. Normalement elle décroît avec le temps car les isotopes radioactifs se transforment en isotopes stables; il est tout de même possible que la radiotoxicité d'un mélange augmente si les noyaux fils sont plus toxiques que leurs progéniteurs. La radiotoxicité est donc l'expression de la dose collective qui serait reçue par de nombreux individus s'ils absorbaient l'activité du mélange d'isotopes considérés sans que des effets déterministes puissent se révéler. La radiotoxicité est normalement exprimée par unité de masse (Sv/t), par unité d'énergie (Sv/TWh_e) ou par unité de temps (Sv/année).

2.2.2 Radiotoxicité du combustible irradié: cas de l'UOX

La Figure 2.1 montre l'évolution de la radiotoxicité pour un combustible UOX standard irradié jusqu'à un taux de combustion moyen de 50 GW_j/t_{NL} ; la radiotoxicité, exprimée en Sv/TWh_e, est calculée après un refroidissement de 4 ans en piscine de stockage. A titre de comparaison on a inclus dans le graphique la radiotoxicité de l'uranium naturel nécessaire pour la production de la même énergie (1 TWh_e).

La toxicité des Produits de Fission (PF), comparable à celle des NL pour les premières 2 décades, diminue brusquement pour devenir négligeable (moins de 0.01% du total) 1000 ans après l'entreposage. Dans les premières 500 ans, la radiotoxicité des PF est dominée par le ⁹⁰Sr et le ¹³⁷Cs, qui ont un temps de demi-vie de l'ordre de 30 ans; ensuite la contribution des PF à vie longue, comme le ⁹⁹Tc, ¹²⁹I, ⁹³Zr, ¹³⁵Cs, ¹²⁷Pd et ¹²⁶Sn devient dominante. Après environ 500 ans la radiotoxicité des PF est 2 ou 3 ordres de grandeurs inférieurs à celle de l'uranium naturel de référence.

Si on analyse les noyaux lourds, la contribution du ²³⁸Pu et de l'²⁴¹Am, qui s'accumule à cause de la décroissance β du ²⁴¹Pu, est dominante dans les premières 3 décades et ensuite, pour la période qui va de 2000 à 100000 ans, la toxicité est due principalement au ²³⁹Pu et au ²⁴⁰Pu. A très long terme, la

radiotoxicité est dominée par les isotopes à vie longue, crées lors de la décroissance des noyaux lourds (comme le ²²⁹Th, le ²²⁶Rn et leurs descendants) ou déjà présents dans le combustible en fin d'irradiation (comme le ²³⁷Np).





D'après ces résultats et compte tenu qu'on peut démontrer l'étanchéité des conteneurs de stockage des déchets radioactifs pendant environ 1000 ans, on pourrait conclure que la transmutation en réacteur des produits de fission n'est pas nécessaire car, après une telle période, leur radiotoxicité est négligeable. Cette conclusion est tout de même critiquable si on considère le risque radiologique et non pas la radiotoxicité comme mesure de la nocivité des déchets nucléaires. La plupart des produits de fission à vie longue est très soluble dans l'eau et leur migration dans la biosphère est donc beaucoup plus rapide que celle des actinides, peu solubles dans l'eau et par conséquent très peu mobiles. De nombreuses études ont été effectuées [NEA-99] pour estimer le risque radiologique pour plusieurs sites de stockage en tenant compte de la dynamique de migration des isotopes et des multiples barrières des conteneurs: si on ne fait pas l'hypothèse d'accidents ou d'intrusion humaine dans le site de stockage, la dose reçue par la population est négligeable pour les premières 10000 années et ensuite est dominée par les produits de fission; c'est seulement après 1 million d'années que la contribution des noyaux lourds devient importante.

2.3 Transmutation: concepts de base

La transmutation peut être définie comme la transformation des noyaux toxiques à vie longue en noyaux stables ou en noyaux moins toxiques ou à vie plus courte. Le but essentiel de la transmutation est donc de réduire le niveau de toxicité que les actinides et les produits de fission auront à partir de 1000 ans après leur entreposage.

Au cours de l'irradiation en réacteur, les noyaux lourds sont soumis à un flux de neutrons qui provoque deux types de réactions:

- la réaction de fission qui transforme le noyau lourd en produits de fission, moins radiotoxiques et généralement à vie plus courte.
- la réaction de capture (n,γ) ou la réaction n,2n qui conduisent à la formation d'un autre actinide sans garantir, à priori, une réduction de la radiotoxicité ou du temps de demi-vie. Ces réactions ne modifient pas directement la toxicité du mélange d'une façon significative, mais transforment des isotopes fertiles en isotopes fissiles, en augmentant considérablement la probabilité de fission.

Sur le plan de la réduction de la nocivité à long terme des déchets, la destruction des actinides par fission, dite plus proprement incinération, est la seule façon de diminuer l'inventaire des noyaux lourds et est donc préférable à la transformation en d'autres actinides par réactions de capture ou n,2n.

Dans le cas des produits de fission à vie longue, au contraire, la seule voie de transmutation possible est la capture neutronique qui transforme l'isotope initial en un noyau stable ou avec un temps de demivie beaucoup plus court.

2.3.1 Motivations de la transmutation

Le bénéfice principal de la transmutation des transuraniens est donné par la réduction de la masse et de la toxicité des déchets nucléaires à haute activité. Dans la Figure 2.2 on montre les courbes de radiotoxicité des produits de fission et des noyaux lourds pour du combustible REP-UOX standard irradié jusqu'à un "burn-up" de 50 GWd/t_{NL}; les courbes 1 et 2 sont obtenues sous l'hypothèse optimiste d'élimination⁹ du 99.5% de l'uranium et du plutonium (1) ou du 99.5% de tous les actinides (2). On peut observer une réduction de l'inventaire radiotoxique d'un facteur 10 environ en cas de transmutation du plutonium et d'un facteur 200 environ en cas de transmutation des transuraniens. En plus, le temps nécessaire pour que la radiotoxicité des déchets arrive à un niveau inférieur à celui de l'uranium naturel

⁹ L'hypothèse de "disparition" du 99.5% des noyaux lourds est bien sûr irréaliste car le processus de transmutation des transuraniens requiert de nombreux passages en réacteur et, par conséquent, génère des pertes au retraitement plus importantes. Tout de même les courbes de radiotoxicité présentées ci-dessous sont comparables à celle obtenues avec une modélisation plus rigoureuse du processus de transmutation en systèmes dédiés avec une efficacité de séparation des actinides de 99.9%.

utilisé est considérablement réduit: environ 20000 ans en cas de séparation du Pu et 500 ans en cas de séparation de tous les actinides, par rapport aux 500000 ans nécessaires si aucune mesure n'est prise.

Il faut tout de même souligner que la transmutation des actinides et des produits de fission à vie longue n'élimine pas le besoin de dépôts géologiques où d'entreposer les déchets à haute activité. Par contre, la transmutation peut permettre de relâcher les contraintes sur le nombre et la capacité des sites de stockage exigés.





2.3.2 Transmutation des transuraniens¹⁰

Le processus d'incinération d'un noyau lourd, qui conduit à une fission après une série de réactions de capture neutroniques ou de décroissances, peut être décrit par un paramètre, le "neutron balance" D_J qui quantifie le nombre de neutrons statistiquement produits (ou consommés si négatif) lors de l'incinération de l'isotope J et de ses descendants éventuels. Les valeurs de D_J dépendent des sections efficaces microscopiques et des constantes de décroissance de l'isotope J et de ses descendants, et des caractéristiques, spectre et niveau de flux, du système dans lequel il est incinéré. Une valeur positive de D_J indique que la transmutation de cet isotope est théoriquement possible dans un système idéal, c'est à dire sans fuites ni absorptions parasites de neutrons. A partir des valeurs D_J des isotopes, on peut calculer le potentiel de transmutation pour n'importe quel mélange d'isotopes:

$$D_{Comb} = \sum_{J} \alpha_{J} \cdot D_{J}$$

où α_J est le fraction de l'isotope J dans le mélange "Comb".

On rappelle que, compte tenu des fuites de neutrons et des captures parasites dans le cœur (estimées à environ 0.3 neutrons par fission pour des réacteurs "classiques" [Tch-98]), le potentiel de transmutation du combustible doit être supérieur à 0.3 pour avoir un réacteur critique.

Dans le Tableau 2.3 on montre les valeurs du potentiel de transmutation pour des systèmes à spectre thermique ou rapide pour le plutonium, les actinides mineurs ou pour les transuraniens issus d'un REP-UOX standard, ainsi que pour les isotopes les plus importants. Les valeurs de D obtenues [Ber-00], montrent que du point de vue du bilan neutronique les systèmes à spectre rapide ont un avantage évident par rapport à ceux à spectre thermique; dans ces derniers, le recyclage des transuraniens ou, à plus forte raison, des actinides mineurs, n'est pas possible sans un apport externe de neutrons, soit par une source externe, soit par un enrichissement additionnel en ²³⁵U. Au contraire, dans le cas des systèmes à spectre rapide le bilan neutronique est nettement plus favorable et permettrait l'incinération complète des transuraniens en maintenant un surplus de neutrons qui pourrait être utilisé, par exemple, pour la transmutation des produits de fission à vie longue.

¹⁰ Références générales pour ce paragraphe: [Ber-00] [Tch-98]

Spectre	Rapide RNR	REP N4 UOX	CANDU
Niveau de nux (n/cm s)	10	10	10
²³² Th	0.36	0.17	-0.60
²³⁵ U	0.86	0.61	0.87
²³⁸ U	0.62	-0.09	0.02
²³⁸ Pu	1.33	-0.14	0.02
²³⁹ Pu	1.46	0.70	0.94
²⁴⁰ Pu	0.91	-0.39	0.01
²⁴¹ Pu	1.21	0.59	1.00
²⁴² Pu	0.49	-1.25	-0.61
²³⁷ Np	0.55	-1.09	-0.00
²⁴¹ Am	0.54	-1.06	0.03
^{242m} Am	1.87	1.54	1.81
²⁴³ Am	0.67	-0.31	0.33
²⁴³ Cm	2.19	1.89	2.26
²⁴⁴ Cm	1.47	0.67	1.31
²⁴⁵ Cm	2.68	2.28	2.21
Plutonium	1.24	0.32	0.58
Actinides Mineurs	0.64	-0.90	0.41
Transuraniens (Pu+AM)	1.18	0.20	0.56

Tableau 2.3: Valeurs de D pour des noyaux isolés et pour des compositions types à la décharge d'un REP-UOX dans différents spectres et niveaux de flux [Ber-00]

2.3.3 Transmutation des produits de fission

Les produits de fission sont essentiellement des consommateurs de neutrons et leur transmutation en réacteur peut se faire seulement au prix d'une détérioration du bilan neutronique. La transmutation des produits de fission a donc un sens seulement pour les isotopes qui contribuent au risque radiologique, c'est à dire pour les isotopes qui ont une demi-vie supérieure à 50-100 ans¹¹. Pour que la transmutation ait une quelque utilité pratique, il est aussi nécessaire que la disparition des PF en réacteur soit beaucoup plus rapide par rapport à la décroissance radioactive. Pour évaluer la rentabilité de ce processus, on introduit le concept de demi-vie de transmutation, la période nécessaire à transmuter la moitié du produit de fission J chargé dans un réacteur.

$$T_J^{Trans}(\text{sec}) = \frac{\ln 2}{\sigma_{n,\gamma}^J \cdot \Phi}$$

 T^{Trans} dépend de la section de capture de l'isotope J et des caractéristiques, spectre neutronique et niveau de flux, du réacteur.

Dans le Tableau 2.4 [Tch-98], on montre les valeurs de $T_{\frac{1}{2}}$ et de T^{Trans} pour les produits de fission à vie longue en spectre thermique et en spectre rapide. Quoique pour tous ces isotopes à vie longue la demi-vie

de transmutation soit inférieure à celle de décroissance spontanée, la transmutation en réacteur semble être potentiellement prometteuse seulement pour le ⁹³Zr, ⁹⁹Tc, ¹²⁹I et ¹³⁵Cs.

	T _½ (années)	T ^{Trans} (années)	
		Spectre rapide	Spectre thermique
⁷⁹ Se	$6.5 \cdot 10^4$	730	$2.2 \cdot 10^{3}$
⁹³ Zr	$1.5 \cdot 10^{6}$	730	790
⁹⁴ Nb	$2.0 \cdot 10^4$	550	100
⁹⁹ Tc	$2.1 \cdot 10^5$	110	51
¹⁰⁷ Pd	$6.5 \cdot 10^{6}$	44	730
¹²⁶ Sn	$1.0 \cdot 10^5$	$4.4 \cdot 10^3$	$4.4 \cdot 10^{3}$
¹²⁹ I	$1.6 \cdot 10^{7}$	160	51
¹³⁵ Cs	$2.3 \cdot 10^{6}$	310	170

Tableau 2.4: Demi-vie des produits de fission à vie longue

A côté des difficultés neutroniques qu'on vient de résumer, la transmutation des produits de fission à vie longue entraîne de remarquables difficultés technologiques qui en réduisent encore plus l'attractivité. Chaque produit de fission doit être séparé individuellement avec un degré d'efficacité très élevé et, ensuite, les isotopes à vie longue doivent être isolés des isotopes stables ou à vie plus courte. La séparation des déchets du Zr et du Cs est à présent exclue [NEA-99] à cause de la faible fraction isotopique du ⁹³Zr et du ¹³⁵Cs et de la haute activité du ¹³⁷Cs. La transmutation du ¹³⁵Cs en pile sans une séparation isotopique préalable est compromise à cause de la production de¹³⁵Cs par captures neutroniques du ¹³³Cs et du ¹³⁴Cs. La transmutation de l'¹²⁹I présente aussi de grandes difficultés d'ordre chimique et métallurgique car la cible est chimiquement instable et que le gaz ¹³⁰Xe, produit par capture neutronique, doit être évacué de la cible pendant l'irradiation. Jusqu'à présent, la faisabilité pratique du processus de séparation et de fabrication des cibles a été prouvée seulement pour le ⁹⁹Tc; pour les autres isotopes un procédé de séparation et d'insolubilisation est probablement la seule solution réaliste pour réduire leur impact radiologique à long terme.

Compte tenu des difficultés technologiques qu'on vient de résumer et de sa faible attractivité économique, la transmutation des PF à vie longue peut être envisagée seulement après la réalisation d'un programme de transmutation des transuraniens.

2.3.4 Objectif et conséquences du programme de transmutation

La transmutation des transuraniens requiert un effort remarquable de la part de toute l'industrie nucléaire en terme de ressources économiques, de recherche et de développement de nouvelles technologies; un tel programme peut être justifié seulement par des objectifs ambitieux en terme de réduction de l'inventaire toxique des déchets nucléaires. Dans ce contexte on a fixé comme objectif

¹¹ Après 1000 ans, la masse d'un isotope ayant une demi-vie de 50 (100) ans s'est réduite d'un facteur 2²⁰ (2¹⁰).

minimal du programme de transmutation la réduction d'un facteur 100 de la masse et de la toxicité à moyen - long terme des transuraniens.

L'identification d'un tel objectif a des conséquences fondamentales sur les stratégies qui peuvent être appliquées à la transmutation. En premier lieu, comme souligné dans le paragraphe 2.3.2, la transmutation du plutonium seul réduit la toxicité des déchets d'un facteur inférieur à 10 et, par conséquent, la transmutation des actinides mineurs s'avère indispensable. Il est aussi nécessaire de séparer les transuraniens du combustible irradié en minimisant les pertes¹² et d'irradier les noyaux lourds dans des systèmes à cycle entièrement fermé [WB-00]. En effet, vu que la transmutation des noyaux lourds s'identifie avec un phénomène de fission et que le "burn-up" des réacteurs à combustible solide est actuellement limité à moins de 25%, il n'est pas possible d'obtenir une réduction significative de la masse des transuraniens sans un recyclage multiple du combustible.

Des considérations précédentes il découle aussi que des systèmes à spectre rapide, critiques et/ou sous critiques, sont indispensables dans tout programme de transmutation. Le bilan neutronique des réacteurs à spectre thermique est beaucoup plus défavorable à la transmutation par rapport à celui des systèmes à spectre rapide: en effet, à cause des conséquences sur la réactivité initiale et sur les paramètres de sûreté du réacteur, la fraction de Np ou de Am qui peut être chargé dans un REP est très limitée [NEA-99]. Le multirecyclage du plutonium est, au contraire, faisable dans les systèmes thermiques (assemblages MOX) mais la dégradation de la qualité du plutonium au cours de l'irradiation ne permet pas de poursuivre facilement un tel recyclage au-delà du deuxième cycle¹³.

Une dernière considération préliminaire touche le temps nécessaire à mettre en oeuvre une stratégie viable pour la transmutation des actinides: les nombreuses difficultés techniques encore à résoudre et la nécessité de programmes expérimentaux préalables à la construction d'un système dédié à l'incinération des transuraniens, montrent que le départ concret d'un tel projet se situe dans le moyen terme (30-50 ans). En plus on peut estimer à 100 ans la période de temps minimale pour qu'un programme de transmutation puisse porter des bénéfices réels du point de vue de la réduction de la toxicité des déchets. Pour être efficace, une stratégie de transmutation requiert donc un temps minimal d'utilisation de l'énergie nucléaire d'au moins 150 ans, ce qui est très long à l'échelle humaine. En plus il faut considérer le temps

¹² Une étude paramétrique [You-97] a déterminé le taux de pertes minimal nécessaire à obtenir une réduction de la toxicité d'un facteur 100 pour différents systèmes par rapport au cycle ouvert du combustible. Au cours de cette thèse on évaluera de façon détaillée (section 5.7) l'influence du taux de pertes sur la radiotoxicité des déchets.

¹³ A la rigueur, une incinération complète du plutonium avec multi recyclage en REP est théoriquement possible au prix de la dilution du plutonium dans tout le parc et de l'utilisation d'un support fissile enrichi en ²³⁵U. Cette stratégie a cependant de nombreux désavantages, tels que une mauvaise utilisation de l'uranium, une forte augmentation de la production d'actinides mineurs et des exigences techniques pour la fabrication du combustible MOX et, par conséquent, a été abandonnée.

nécessaire au "phase-out" de l'option nucléaire qui peut être quantifié en environ 80-100 ans, selon la taille du parc nucléaire considéré¹⁴.

2.4 Description des systèmes pour la transmutation

Au cours de cette section on se propose de présenter brièvement les principales options étudiées actuellement pour les systèmes innovants et de décrire les principaux aspects des cycles avancés du combustible. On décrira ainsi les principales implications de la transmutation des AM et des TRU (Transuraniens) sur les paramètres de sûreté des cœurs et on présentera ensuite les caractéristiques essentielles des systèmes hybrides. On discutera ensuite les différentes options pour le caloporteur et pour le support du combustible et on donnera enfin un aperçu des différentes méthodes de séparation du combustible irradié et leur application aux scénarios de transmutation.

Cette présentation n'a pas un objectif d'exhaustivité ni se propose de traiter tous les multiples aspects et défis associés à la réalisation d'une stratégie de séparation et de transmutation mais veut plus simplement donner un aperçu des principales caractéristiques technologiques des réacteurs et du cycle du combustible à la base de la séparation et de la transmutation. Cette analyse se limitera uniquement aux méthodes directement corrélées avec les travaux de cette thèse et comprendra ainsi uniquement les systèmes et les technologies qui peuvent s'appliquer aux réacteurs avancés chargés avec du combustible solide sous forme d'assemblages "classiques".

2.4.1 Conséquences de la transmutation sur les paramètres de sûreté

Le multirecyclage des TRU ou des AM seuls dans les réacteurs avancés et avec un cycle fermé du combustible génère un combustible très différent par rapport à celui typique des RNR traditionnels. La composition du combustible à l'équilibre, fonction du vecteur isotopique du "top-up", des caractéristiques neutroniques du cœur et du cycle du combustible, est caractérisée par des fortes teneurs en TRU, quelle que soit la stratégie de transmutation adoptée.

La présence des transuraniens dans le combustible a des conséquences négatives sur les paramètres de sûreté du réacteur. D'une part la fraction de neutrons retardés des TRU et surtout des AM est considérablement plus faible que celle des isotopes de l'uranium (²³⁵U et ²³⁸U en particulier); la présence de fort taux de TRU dans le combustible diminue ainsi le β_{eff} , essentiel pour le pilotage d'un réacteur critique. D'autre part la présence de TRU dans le combustible affecte aussi les coefficients de réactivité du cœur, tels que le coefficient Doppler et le coefficient de vidange¹⁵. Le coefficient Doppler devient en

¹⁴ L'étude du "phase-out" de l'option nucléaire est l'objet du chapitre 6 de cette thèse.

¹⁵ L'effet de vidange, positif pour les réacteurs refroidis au sodium, pourrait être limité ou éliminé avec l'utilisation, comme caloporteur, du plomb (plomb-bismuth) ou de gaz.

particulier très faible, en limitant ainsi les contre-réactions sur la réactivité liées à l'augmentation de température du combustible.

La détérioration des coefficients de sûreté du cœur limite, en particulier, la teneur maximale d'AM qui peut être chargée dans un réacteur critique à spectre rapide. Une étude du CEA [Tom-95] a évalué à 2.5% la teneur maximale d'AM qui peut être diluée dans le combustible MOX d'un réacteur de type EFR (European Fast Reactor). D'autres études [YSI-96] sont arrivées à des conclusions similaires pour des RNR chargés avec du combustible métallique: la teneur maximale d'AM dans le combustible est limitée à quelques pour cent. Des études ultérieures réalisées à JAERI [Muk-90] ont confirmé que les réacteurs critiques ne peuvent pas être chargés uniquement avec des AM et sont donc inadaptés à l'incinération des AM seuls en cycle fermé.

L'utilisation des RNR critiques apparaît par contre envisageable pour l'incinération des TRU ou du plutonium seul, à condition d'optimiser le design du cœur et de mélanger les TRU avec un support fertile constitué par de l'uranium appauvri ou du thorium. Ceci permet de limiter la fraction de TRU dans le combustible à l'équilibre et d'avoir ainsi des paramètres de sûreté acceptables.

Les systèmes hybrides sont, au contraire, intrinsèquement moins sensibles à toute insertion de réactivité car la marge de réactivité vis-à-vis de la criticité prompte passe de β_{eff} pour un réacteur critique à $\left(\beta_{eff} + \left|\Delta k_{eff}\right|\right)$ pour un système hybride. Les ADS apparaissent aussi particulièrement adaptés à accueillir du combustible très dégradé, tel que celui issu du multirecyclage des AM ou des TRU. Dans le cadre d'une stratégie de transmutation des TRU, les ADS offrent ainsi l'avantage de pouvoir incinérer des TRU purs, sans devoir les diluer dans du support fertile; cela permet ainsi de minimiser la fraction de systèmes avancés dans le parc. Par contre, comme on le verra dans le paragraphe suivant, les réacteurs hybrides sont technologiquement plus complexes et ont des désavantages opérationnels et économiques par rapport aux réacteurs critiques standard.

2.4.2 Systèmes hybrides

Un système hybride est constitué par trois composantes principales: un accélérateur de particules, une cible de spallation et un massif sous critique. Dans un réacteur sous critique, en absence d'une source externe de neutrons, une réaction en chaîne auto-entretenue ne peut pas s'établir comme dans un réacteur classique; pour qu'il existe un état stationnaire dans un réacteur sous critique il est nécessaire de fournir une source de neutrons "externes" en addition aux neutrons "internes" produits par les réactions nucléaires dans le massif sous critique. Dans les cas pratiques cette source externe est produite par des réactions de spallation dans la cible où collisionnent les protons accélérés jusqu'à des énergies de l'ordre de 1 GeV.

On décrira dans la suite du paragraphe les principales caractéristiques techniques des accélérateurs de particules et de la cible de spallation, ainsi que les paramètres neutroniques plus importants pour un système hybride. Dans les paragraphes suivants on analysera les principales caractéristiques du massif sous-critique, et en particulier les différentes options pour le caloporteur et pour le support du combustible.

Accélérateur de particules

Dans la plupart des applications industrielles il est prévu un accélérateur qui délivre un courant de 10-50 mA pour une énergie des protons de l'ordre de 1 GeV. Actuellement deux types de machines, opérant en mode continu, sont envisageables: les accélérateurs linéaires (LINAC) ou les cyclotrons.

Les cyclotrons sont moins coûteux et plus compacts mais ont des limites en terme d'intensité du courant et d'énergie des particules: en particulier on estime à 20 MW la puissance maximale de cette machine (1GeV, 20mA) [You-97] et la valeur de 1 GeV semble être la limite supérieure en énergie pour ce genre de machines [NEA-02]. Les accélérateurs linéaires n'ont pas de limitations à l'énergie maximale des protons (dans le domaine d'intérêt des ADS) et peuvent produire un courant maximal de 100mA [NEA-02]. Par contre, leur dimension, en particulier la longueur, est fonction de l'énergie des particules à accélérer¹⁶; cet aspect a des conséquences importantes sur le coût total de l'installation.

Le couplage d'un accélérateur de particules à un réacteur demande en premier une fiabilité très améliorée par rapport aux technologies actuelles: il est en particulier nécessaire de limiter le nombre d'interruptions du faisceau et les pertes du faisceau¹⁷. Une interruption du faisceau supérieure à 0.3 secondes cause la chute de la puissance du cœur et induit ainsi un stress thermique aux structures du cœur; on doit ainsi limiter ces phénomènes à quelques dizaines par an, comparée à une fréquence actuelle d'environ 5000-10000 cas/an. Les pertes de faisceau posent des problèmes de protection pour les particules à haute énergie et d'activation des matériaux constituant l'accélérateur; elles doivent ainsi être limitées à une valeur de 0.1-1 nA/m en fonction des protections installées pour le personnel.

Cible de spallation

La cible de spallation a l'objectif de maximiser le nombre de neutrons allant dans le massif souscritique par proton incident, tout en assurant l'évacuation de la puissance déposée par le faisceau de protons qui peut atteindre des valeurs de quelques centaines de kW par litre. Pour le design des cibles de spallation on a proposé deux alternatives, les cibles solides, étudiées en premier et technologiquement plus matures, et les cibles liquides, sur lesquelles converge maintenant l'avis des experts de ce secteur.

¹⁶ L'utilisation de matériaux super-conducteurs permettrait de réduire considérablement les dimensions du LINAC.

¹⁷ Le problème des interruptions du faisceau de protons peut être atténué en utilisant plusieurs accélérateurs en parallèle pour un même réacteur hybride.

Les cibles de spallation solides ont été étudiées essentiellement pour des applications à puissance limitée et avec une source pulsée; pour l'application industrielle aux réacteurs hybrides, caractérisée par une densité de puissance très importante, cette option a été éliminée à cause du fort stress thermique dans la fenêtre et des difficultés pour l'évacuation de la chaleur.

Les cibles de spallation liquides permettent, au contraire, une bonne évacuation de l'énergie déposée grâce à la convection du liquide, présentent de faibles dommages dans la cible et dans les matériaux de structure et assurent une forte densité dans la zone d'interaction. Par contre les métaux liquides envisagés (plomb ou eutectique plomb-bismuth) posent des problèmes de corrosion des matériaux de structure à direct contact avec le métal liquide à haute température. Parmi les nombreux problèmes à résoudre dans la technologie des cibles liquides, on peut signaler la formation de produits de spallation gazeux qui pourraient aller dans le canal vide du faisceau de particules, les chocs thermiques des matériaux de la cible en cas d'interruption du faisceau et la nécessité de maintenir la cible liquide en toute situation opérationnelle ou accidentelle.

2.4.2.1 Paramètres neutroniques propres aux systèmes hybrides

Au cours de ce sous-paragraphe on veut rappeler de façon concise les principales grandeurs neutroniques couramment utilisées dans la description des réacteurs hybrides: pour une analyse plus complète de la physique des systèmes hybrides on renvoie à la référence [Ali-01].

Dans le cas stationnaire, l'équation de Boltzmann prend la forme $A\Phi = M\Phi + S$ où

A est l'opérateur de consommation des neutrons (absorption plus fuites)

M est l'opérateur de production des neutrons

S est le terme de source externe de neutrons (égal à zéro dans le cas homogène)

 Φ est le flux neutronique, solution de cette équation

Dans le cas homogène (S=0), cette équation est vérifiée uniquement pour certaines configurations dites critiques. Dans ce cas le problème homogène a ∞ solutions non triviales, autrement, dans le cas non critique, le problème admet la seule solution nulle. Pour obtenir des informations sur la façon d'atteindre la criticité, on résout l'équation aux valeurs propres $A\Phi_i = \frac{1}{\lambda_i}M\Phi_i$. La valeur propre de module maximal est appelée coefficient de multiplication effectif (k_{eff}); elle représente donc le nombre pour lequel on doit diviser les sources de fission de façon à égaler les deux membres de l'équation de Boltzmann. Dans la suite de la thèse on utilisera indifféremment la notation de k_{eff} ou de k_{hom}.

On peut donc conclure que $k_{eff} = \frac{\langle M \Phi_0 \rangle}{\langle A \Phi_0 \rangle}$ où Φ_0 est la solution du problème homogène stationnaire

 $A\Phi = \frac{1}{k_{eff}}M\Phi$ et avec $\langle \rangle$ on indique l'intégration sur l'espace des phases.
On introduit aussi la réactivité, définie comme $\rho_{eff} = \frac{k_{eff} - 1}{k_{eff}}$.

Le problème inhomogène (avec source non nulle) a, par contre, une solution unique non triviale, quelconque soit S; on appellera par la suite Φ_S cette solution. Par cohérence avec le cas homogène on peut définir un coefficient de multiplication inhomogène et une réactivité inhomogène, qu'on indiquera par la suite comme k_S ou k_{inh} et ρ_S ou ρ_{inh} . Le coefficient de multiplication inhomogène représente le facteur de multiplication d'un neutron provenant de la source externe.

$$k_{s} = k_{inh} = \frac{\langle M\Phi_{s} \rangle}{\langle A\Phi_{s} \rangle}$$
 et $\rho_{s} = \rho_{inh} = \frac{k_{s} - 1}{k_{s}} = -\frac{\langle S \rangle}{\langle M\Phi_{s} \rangle}$.

Un autre paramètre important à introduire est la grandeur φ^* , importance des neutrons de la source externe, qui permet de comparer la multiplication de la source réelle à la multiplication d'une source externe distribuée selon le mode fondamental. Cette grandeur peut aussi être exprimée comme le rapport entre l'importance moyenne en mode fondamental des neutrons de la source externe et l'importance moyenne en mode fondamental des neutrons de fission. L'importance peut être considérée aussi comme le nombre de neutrons de fission équivalents à un neutron de spallation.

$$\varphi^* = \frac{\rho_{eff}}{\rho_s} = \frac{\left(\frac{1}{k_{eff}} - 1\right)}{\left(\frac{1}{k_s} - 1\right)} = \frac{\frac{\left\langle \Phi_0^*, S \right\rangle}{\left\langle S \right\rangle}}{\frac{\left\langle \Phi_0^*, M \Phi_s \right\rangle}{\left\langle M \Phi_s \right\rangle}} \text{ où } \Phi_0^* \text{ est la solution du problème adjoint homogène.}$$

Un autre aspect fondamental à rappeler est le calcul de la puissance thermique dans un système hybride. Lors du calcul de la puissance thermique dégagée dans un réacteur hybride on doit prendre en compte la contribution des réactions à haute énergie et celle des réactions à basse énergie: $P_{th}=P_{h.e.}+P_{b.e.}$. La contribution des réactions à haute énergie est tout de même faible par rapport à celle des réactions à basse énergie (de l'ordre de 1% pour un $k_{eff} > 0.95$) et se dépose essentiellement dans la cible de spallation, refroidie par un circuit indépendant. Compte tenu de ces considérations, dans la suite de la thèse on négligera la contribution de $P_{h.e.}$ à la puissance thermique du cœur. La puissance thermique du cœur est donc donnée par la relation suivante [TR-92]:

$$P_{th} = \frac{k_{\text{hom}}}{1 - k_{\text{hom}}} \cdot \frac{E_f}{v_k} \cdot \varphi^* \cdot N \text{ où}$$

 $\begin{array}{l} P_{th} \mbox{ est la puissance thermique du cœur} \\ N \mbox{ est la source de neutrons externes, exprimée en neutrons/s} \\ v_k \mbox{ est le nombre de neutrons moyen émis par fission} \\ E_f \mbox{ est l'énergie moyenne dégagée par fission} \\ k_{hom} \mbox{ est le coefficient de multiplication homogène du système sans source externe} \end{array}$

 ϕ^* est l'importance des neutrons de spallation par rapport aux neutrons de fission

On rappelle enfin que l'intensité du courant de l'accélérateur de protons est proportionnelle au nombre de neutrons externes demandés:

$$I = \frac{C \cdot N}{z}$$
 où

I est le courant de protons (A) C est la charge du proton (1.6·10⁻¹⁹ A·s) z est le nombre moyen des neutrons de spallation produits par proton incident N est la source de neutrons externes, exprimée en neutrons/s

2.4.3 Caloporteurs

Le type de caloporteur a une influence importante sur les caractéristiques neutroniques du cœur car il détermine la distribution énergétique des neutrons dans le système. A présent le choix du caloporteur pour les réacteurs dédiés à la transmutation est restreint aux métaux liquides (Na, Pb et Pb-Bi) et aux gaz (He et CO₂). Comme on a déjà vu dans le paragraphe 2.3.2, l'option d'utiliser l'eau comme caloporteur n'est pas considérée car le spectre neutronique serait trop thermalisé et donc inadapté à la transmutation.

Le caloporteur utilisé dans un système à spectre rapide doit satisfaire les exigences suivantes:

- Avoir un modique pouvoir de ralentissement et un faible taux de capture des neutrons
- Avoir une bonne capacité d'extraction de la chaleur
- Avoir une faible activation
- Avoir une bonne compatibilité chimique avec les matériaux présents dans le cœur

Sodium

Le sodium a une excellente conductivité thermique ($\lambda = 71$ W/m-°K) et des caractéristiques neutroniques très favorables; en plus il bénéficie d'un considérable retour d'expérience et son comportement neutronique et thermohydraulique est très bien connu. En plus, comme tout métal liquide, le sodium garantit un bon refroidissement du combustible et rend possible l'évacuation de la chaleur résiduelle même en cas d'accidents graves au système de refroidissement.

Par contre le sodium réagit chimiquement avec l'eau et l'air de façon très violente, ce qui affecte la sûreté de l'installation nucléaire, et il pose aussi des problèmes d'activation du circuit primaire. Tout comme les autres métaux liquides, il est opaque, ce qui rend l'inspection et la maintenance du réacteur plus difficile. Finalement, compte tenu du fait que le coefficient vidange est souvent posif, l'ébullition du sodium peut causer un accident de réactivité et donc avoir de graves conséquences.

Plomb et Plomb-Bismuth

La plupart des projets pour un réacteur hybride envisagent l'utilisation du plomb ou d'un alliage plomb-bismuth comme constituants de la cible de spallation, compte tenu de leurs excellentes propriétés comme matériaux de spallation. L'utilisation de ces métaux liquides aussi comme caloporteur permettrait de limiter la recherche et les expériences à un seul liquide et d'avoir ainsi une base de données commune pour le caloporteur et la cible. Un autre avantage de ce type de caloporteur est lié à la faible valeur (positive) du coefficient de vidange; cela permettrait de limiter le besoin de mesures de sûreté additionnelles pour un RNR ou une réduction du niveau de sous criticité d'un ADS.

Par contre, le plomb et l'eutectique plomb-bismuth sont très corrosifs et leur compatibilité avec les matériaux de structure et avec la gaine des éléments de combustible doit être vérifiée avec attention. Cette caractéristique, unie à la difficulté d'inspection propre des systèmes refroidis par des métaux liquides, pose des gros problèmes potentiels pour la sécurité de ces réacteurs. La forte densité de ces métaux liquides comporte aussi de nouvelles complications dans la conception et dans la construction d'un réacteur nucléaire, en particulier vis-à-vis du risque sismique. Une autre source potentielle de dangers est liée au fait que les éléments de combustible tendent à flotter dans le caloporteur, ce qui requiert d'additionnelles mesures de sûreté en fonctionnement normal et en conditions d'accident. En plus, l'utilisation du Pb ou du Pb-Bi augmente considérablement la puissance de pompage nécessaire à la circulation du caloporteur et fait ainsi baisser le rendement global de l'installation nucléaire. A cause de sa haute température de fusion ($T_{fus} = 328^{\circ}C$), l'utilisation du plomb comme caloporteur rend nécessaire son réchauffement à l'extérieur des canalisations et rend le système plus vulnérable à un accident de blocage d'une des canalisations à l'intérieur du cœur. L'utilisation de l'eutectique plomb-bismuth limite ce problème ($T_{fus} = 128^{\circ}C$) mais en pose d'autres, comme l'activation du circuit primaire par la production de ²¹⁰Po, fortement radiotoxique. Il faut enfin souligner que l'expérience avec le plomb ou avec le plomb-bismuth est très limitée par rapport à celle que l'on a acquise avec le sodium ou le dioxyde de carbone.

Hélium et CO₂

Par rapport aux métaux liquides, l'hélium est transparent aux neutrons, ce qui élimine tout problème d'activation, et, privé d'impuretés, est chimiquement inerte. Par contre le CO_2 corrode les oxydes et les aciers et est sujet à une légère activation du circuit primaire. La transparence des gaz facilite considérablement les opérations d'inspection du réacteur en service, ce qui améliore le facteur d'utilisation du réacteur et a aussi des retombées précieuses du point de vue de la réactivité. Du point de vue neutronique, les réacteurs refroidis à gaz ont un spectre neutronique plus dur, ce qui favorise quelque peu le bilan neutronique et les performances de transmutation.

Par contre la conductivité thermique des gaz est très faible ($\lambda_{He} = 0.4 \text{ W/m-}^{\circ}\text{K}$, $\lambda_{CO2} = 0.07 \text{ W/m-}^{\circ}\text{K}$), ce qui impose leur circulation à haute pression dans le cœur; on s'expose alors à l'accident de dépressurisation. En plus les gaz ont une inertie thermique très faible, ce qui rend les systèmes correspondants plus vulnérables aux accidents de refroidissement.

2.4.4 Combustibles

On peut regrouper les différents types de combustibles nucléaires en deux catégories: combustibles solides, sous forme d'assemblages classiques ou de particules sphériques, et combustibles liquides, à sel fondus. Actuellement la majorité des projets de réacteurs incinérateurs de TRU envisagent l'utilisation de combustible solide sous forme d'assemblages, compte tenu de l'expérience considérable avec cette technologie; il faut tout de même rappeler que les réacteurs à combustible liquide ou à particules solides ont des particularités très intéressantes pour la transmutation et que de nombreuses études sont en cours dans ces domaines [Val-00] [Kob-00]. On limitera tout de même le bref rappel suivant aux combustibles solides sous forme d'assemblages, les seuls qui ont été analysés au cours de cette thèse.

En général, tout type de combustible nucléaire doit répondre aux exigences suivantes:

- Posséder une bonne conductivité thermique et une température de fusion élevée, afin d'aplatir le plus possible la distribution de température à l'intérieur de l'aiguille et de permettre ainsi une puissance linéique élevée
- Avoir un bon comportement mécanique au cours de l'irradiation afin d'atteindre de fort taux de combustion
- Ne pas réagir chimiquement avec le caloporteur afin de limiter les risques en cas de fissuration ou de rupture de la gaine
- Etre compatible avec le procédé de retraitement choisi

En plus, le combustible avancé utilisé pour le multirecyclage des TRU ou des AM doit pouvoir atteindre des taux de combustion très élevés, de l'ordre de 150-200 GWj/t_{NL}, et doit aussi faire face à une production d'hélium considérable, due principalement aux décroissances α du ²³⁸Pu et du ²⁴²Cm, présents en fortes quantités dans le combustible à l'équilibre.

Actuellement on analyse les performances de 4 types de supports différents en vue d'une utilisation dans les réacteurs dédiés chargés avec du combustible solide sous forme d'assemblages classiques: combustible oxyde, combustible métallique, combustible nitrure et combustible carbure.

Combustible oxyde

Le combustible de type oxyde présente de nombreux avantages, tels qu'une fabrication aisée, une température de fusion élevée, une conductivité thermique satisfaisante ($\lambda = 2.9 \text{ W/m-}^{\circ}\text{K}$ à 1000 °K), une

bonne stabilité thermique et chimique, un excellant comportement sous irradiation, une bonne compatibilité avec les procédés de séparation et surtout un long retour d'expérience. En particulier la fabrication du combustible MOX et son irradiation dans des REP ou des RNR jusqu'à de fort taux de combustion est une pratique bien connue dans l'industrie nucléaire. A l'heure actuelle on a fabriqué du combustible oxyde avec une teneur maximale de plutonium de l'ordre de 30%; tout de même, en vue d'une utilisation de ce combustible dans les cycles avancés, on devrait atteindre des teneurs en TRU plus élevées.

Par contre le multirecyclage du combustible dans des cycles nucléaires avancés conduit à avoir dans le combustible des fractions importantes de forts émetteurs de rayonnements α (²³⁸Pu et isotopes du Cm), β (²⁴¹Pu) et de neutrons (isotopes du Cm et du Cf), ce qui requiert la mise en place d'un procès de fabrication du combustible complètement automatisé. En outre, l'expérience de fabrication du combustible MOX contenant du plutonium très dégradé ou des actinides mineurs est très modeste et donc l'utilisation de ce combustible dans des cycles nucléaires innovants requerrait un considérable travail expérimental.

Combustible nitrure

Le combustible nitrure a d'excellentes propriétés thermiques ($\lambda = 19.8 \text{ W/m-}^{\circ}\text{K}$) associées avec une température de fusion élevée (2170 °C), ce qui permet d'aplatir la nappe de puissance à l'intérieur des aiguilles de combustible et d'envisager ainsi un fonctionnement du cœur à très haute puissance linéique tout en maintenant une marge importante à la fusion. Le combustible nitrure a aussi une bonne stabilité aux rayonnements, ce qui permet d'obtenir de forts taux de combustion, d'excellentes propriétés de solubilité avec les actinides et des caractéristiques neutroniques très favorables (section efficace de capture très faible). Les combustibles nitrure sont donc des candidats importants pour une utilisation dans les cycles nucléaires avancés.

Par contre l'utilisation de l'azote en tant que support du combustible requiert un enrichissement très poussé en ¹⁵N de façon à réduire au minimum la présence dans le cœur de ¹⁴N (qui constitue le 99.4% de l'azote naturel). Cela a pour objectif d'éviter la réaction (n,p) d'absorption parasite du ¹⁴N, qui d'une part pénalise le bilan neutronique et d'autre part produit du ¹⁴C radioactif ($T_{1/2} = 5730$ ans) qui pourrait être relâché en cas d'accident nucléaire. Le ¹⁵N peut être ensuite récupéré au moment du retraitement du combustible de façon à limiter le besoin de cet isotope et de réduire ainsi le surcoût de fabrication du nouveau combustible. Un autre inconvénient provient de la décomposition de certains composés (U, Pu)N aux hautes températures (T > 1600 °C), ce qui réduit la marge de sécurité en fonctionnement nominal et peut favoriser des dégâts importants du cœur en cas d'accident. Cependant ce problème peut être limité en utilisant soit une matrice inerte (ZrN ou Zr) soit d'autres composés nitrures plus stables.

L'expérience avec ce genre de combustibles est très faible, et est limitée exclusivement à de taux de combustion modiques, de l'ordre de 6-8%. Un travail expérimental important est donc nécessaire avant de pouvoir exploiter industriellement ce type de combustible.

Combustible métallique

Les combustibles métalliques ont de très bonnes caractéristiques qui en favorisent l'utilisation dans les réacteurs avancés: ils permettent d'atteindre des forts taux de combustion, ont d'excellentes propriétés de conductivité thermique, une bonne compatibilité avec le plutonium et sont bien adaptés à un procédé de séparation de type pyrochimique. En plus, dans le cadre des études sur l'EBR-II on a acquis une considérable expérience dans la fabrication et l'irradiation de ce type de combustible.

Par contre la marge à la fusion est assez faible (1160 °C) et il y a risque de formation d'eutectiques avec l'acier de la gaine, ce qui augmente les risques de disruption du cœur en cas d'accident. En plus on peut prévoir d'importantes difficultés dans l'incorporation des AM dans le combustible lors de sa fabrication; en effet, au cours de la seule expérience d'incorporation d'américium dans le combustible effectuée, on a observé une perte considérable de cet actinide par vaporisation. L'utilisation de supports métalliques pour du combustible fortement chargé en TRU est donc conditionnée par la réalisation de procédés de fabrication innovants et plus efficaces.

Combustible carbure

Quoiqu'il ait d'excellentes propriétés thermiques, haute température de fusion (2360 °C) et bonne conductivité thermique ($\lambda = 19.6$ W/m-°K), son emploi n'est envisageable que pour du combustible à particules. L'utilisation de ce support comme combustible dans des assemblages "classiques" est déconseillée car elle n'a aucun avantage significatif par rapport aux supports qu'on vient de présenter tout en ayant de limites considérables: il peut avoir des interactions chimiques et/ou mécaniques avec les matériaux de la gaine et pose des difficultés lors du retraitement à cause de sa structure chimiquement très stable.

2.4.5 Séparation du combustible irradié

Actuellement la séparation du combustible irradié provenant des réacteurs à eau est faite à l'échelle industrielle dans de nombreux pays, parmi lesquels la France, le Royaume Uni, l'Inde et la Russie, en utilisant le procédé de type chimique PUREX (Plutonium and Uranium recovery by Extraction). Le combustible UOX ou MOX irradié est dissout dans une solution d'acide nitrique standard et l'uranium et le plutonium sont séparés des autres résidus de l'irradiation avec une efficacité qui avoisine le 99.9%.

Même si ce procédé est développé à niveau industriel, il n'est pas directement applicable à une stratégie de transmutation à cycle fermé à cause de la forte activité du combustible avancé et de sa teneur

élevée en TRU; dans le cadre d'un programme de transmutation des TRU à cycle fermé, on est donc en train de développer des méthodes de séparation appropriées. Actuellement le développement de ces nouvelles méthodes de séparation est limité aux études du laboratoire alors qu'un développement de niveau industriel serait indispensable pour la réalisation de toute stratégie de transmutation.

Bien que cette thèse ne soit pas dédiée à l'analyse des différentes méthodes de séparation, on a jugé opportun de donner une brève récapitulation des méthodes de séparation des NL plus prometteuses qui ont été adoptées dans l'analyse des scénarios de transmutation. Dans les deux sous-paragraphes suivants on donne donc, sans prétention d'exhaustivité, un rappel des procédés de séparation aqueux et pyrochimique; pour une description plus complète des différents aspects concernant la séparation on renvoie aux deux rapports de l'AEN [NEA-99] [NEA-02].

2.4.5.1 Procédés aqueux

Le procédé de séparation PUREX consiste à dissoudre le combustible dans une solution acide de HNO_3 et à en extraire les noyaux lourds en profitant de leurs différentes valences chimiques. L'uranium et le plutonium, avec valence chimique VI et IV respectivement, sont extraits séparément avec l'aide du solvant TBP (Phosphate de tributyle). L'Am et le Cm, avec valence III, le Np, avec valence chimique en majorité V^{18} , ainsi que les PF, ne sont pas extraits et restent ainsi dans la phase aqueuse; le procédé PUREX classique prévoit donc uniquement la séparation de l'uranium et du plutonium du reste des déchets.

La séparation complète de tous les actinides mineurs présents dans le combustible irradié requiert une modification du procédé PUREX classique. Si l'on veut extraire complètement le neptunium des déchets, il est préférable d'oxyder le Np (V) en Np (VI) ou de le réduire en Np (IV) de façon à l'extraire contextuellement à l'uranium ou au plutonium. Le neptunium est ensuite réduit (ou oxydé) à sa valence V afin de pouvoir le séparer du plutonium ou de l'uranium. Ce procédé avancé, nommé PUREX modifié, permet d'obtenir un taux de séparation du neptunium du même ordre de grandeur de celui de l'uranium et du plutonium. La séparation des autres actinides du reste des PF est plus complexe car les actinides ont la même valence chimique (III) d'une partie des lanthanides et ont ainsi des propriétés chimiques très proches. Le procédé qui permet un taux de séparation de l' **m**éricium et du curium plus élevé consiste dans une séparation préalable des An et des Ln des autres PF par un procédé approprié (DIAMEX, TRUEX, TRPO ou DIDPA). Les An seront ensuite séparés des Ln par une extraction sélective effectuée par l'intermédiaire d'extracteurs appropriés. En cas de nécessité des procédés pour la séparation ultérieure du Cm et de l'Am ont aussi été mis au point à l'échelle du laboratoire (procédé SESAME).

¹⁸ Au cours du premier cycle du procédé PUREX, une faible fraction du Np est oxydé et vient ainsi extraite avec l'uranium.

La plupart des méthodes de séparation qu'on vient de mentionner ont déjà été réalisées à l'échelle du laboratoire et leur faisabilité technique, ainsi que les taux de séparation obtenus, ont été prouvés expérimentalement. Il faut tout de même encore démontrer que ces méthodes sont applicables aussi à une échelle industrielle en maintenant les mêmes performances obtenues à l'échelle expérimentale.

L'application du procédé PUREX pour les réacteurs avancés est tout de même problématique à cause de la forte teneur en plutonium du combustible et de sa forte activité. Le plutonium est en effet difficilement soluble dans l'acide HNO₃ s'il est présent en hautes concentrations et, surtout, le solvant TBP peut être endommagé par les radiations, en particulier par les rayons α . Pour contourner ces difficultés, de différentes solutions ont été proposées et seront analysées dans la suite de la thèse (cf. paragraphe 5.6.3). Parmi d'autres on peut rappeler:

- La dilution du combustible des RNR et des REP-MOX avec du combustible REP-UOX afin de réduire l'activité et la chaleur de décroissance par unité de masse
- La prolongation du temps de refroidissement du combustible

Une approche alternative à la séparation PUREX a été proposée aux Etats-Unis avec l'introduction de la méthode UREX: les stratégies à Double Composante étudiées aux USA ne requièrent pas la séparation du plutonium des différents actinides mineurs, mais uniquement celle de l'uranium des TRU. La méthode UREX consiste à séparer uniquement l'uranium du combustible UOX irradié en laissant ainsi les TRU dans la même solution que les PF non volatiles; la séparation des TRU des PF est faite dans un deuxième temps par un procédé pyrochimique.

2.4.5.2 Procédés pyrochimiques

De nombreux procédés pyrochimiques ont été développés pour la séparation du combustible nitrure ou métallique ou même pour du combustible oxyde. Dans la suite on donnera un bref aperçu des méthodes plus intéressantes, basées sur un procédé de type électrolytique, alors qu'on renvoie à des publications plus spécifiques pour des informations plus approfondies sur ces méthodes ou sur les autres procédés pyrochimiques (par volatilisation ou par réduction chimique).

Le procédé d'affinage électrochimique a été développé aux Etats-Unis dans le cadre du programme de recherche sur l'IFR (Integrated Fast Reactor). Le combustible irradié est préalablement réduit en morceaux et est ensuite immergé dans un bain de sels fondus porté à haute température. Le combustible constitue l'anode solide de la cellule électrolytique. L'application d'un potentiel électrique entre l'anode et la cathode provoque la déposition des actinides à la cathode et une dissolution d'un autre atome du combustible. La déposition des produits de fission à la cathode est minime car les chlorites formés par les PF sont beaucoup plus stables que ceux formés par les actinides. Certains PF (métaux de transition) ne sont pas oxydés et restent dans l'anode en tant qu'éléments métalliques. Pour maintenir une vitesse

convenable de déposition et une faible accumulation de lanthanides dans la cathode, il est nécessaire de maintenir une concentration minimale de chlorites d'actinides dans la solution.

Il faut enfin souligner que parmi les actinides, le chlorite d'uranium est beaucoup moins stable que celui formé avec des TRU et, par conséquent, si le combustible irradié contient de l'uranium, seulement cet élément se dépose sur la cathode. Des mesures appropriées, avec l'utilisation d'une deuxième cathode en cadmium liquide, permettent d'obtenir la déposition d'uranium quasiment pur à la cathode solide et des TRU (avec 10-30% d'uranium et traces de lanthanides) à la cathode liquide. Cette méthode peut être directement appliquée au combustible métal et nitrure, tandis que le combustible oxyde doit être préalablement traité et reconduit à l'état de métal.

Un deuxième procédé électrochimique, dit "electrorefining", consiste à dissoudre le combustible dans un sel opportun et de le placer dans une cellule électrolytique. L'application d'un potentiel électrique approprié, fonction de l'élément à décomposer et de la température de la cellule électrolytique, entre l'anode et la cathode permet la déposition des actinides à la cathode et la libération de gaz halogènes à l'anode.

Le principal intérêt des méthodes de retraitement pyrochimiques tient au fait qu'elles ne sont pas sensibles aux dommages des radiations et qu'elles sont moins contraignantes vis-à-vis des risques de criticité étant donné l'absence d'un modérateur comme l'eau et leur méthode de séparation par "batch". En plus elles peuvent s'appliquer sans difficultés même à des combustibles fortement chargés en TRU, à la limite même à des combustibles qui ne contiennent pas d'uranium. Un autre avantage des méthodes pyrochimiques est du au fait que les sels ou les métaux utilisés comme réactifs peuvent être récupérés en réduisant ainsi le volume total des déchets à haute activité. Ces méthodes s'avèrent ainsi particulièrement adaptées pour le retraitement du combustible avancé, caractérisé par un temps de refroidissement très court, une forte teneur en TRU et des valeurs importantes d'activité et de chaleur de décroissance.

Le désavantage principal des procédés pyrochimique est le manque d'expérience industrielle et la faible expérience à niveau du laboratoire, limitée principalement au procédé de "electrorefining" effectué sur du combustible métallique. Il faut aussi résoudre de nombreux problèmes, parmi lesquels on peut signaler la forte corrosion, le degré de séparation des TRU et la présence dans les TRU recyclés d'une quantité non négligeable de lanthanides qui "empoisonnent" le combustible frais.

3 Méthodes de calcul¹⁹

Le but de ce chapitre est de décrire les méthodes de calcul utilisées au cours de cette thèse pour la résolution de l'équation de Boltzmann dans le cas de systèmes critiques et sous critiques et d'expliquer les modèles adoptés pour l'étude de comparaison des scénarios de transmutation, en conditions d'équilibre et en situation transitoire. On veut en particulier mettre en relief les difficultés de calcul pour des systèmes fortement chargés en TRU et présenter les améliorations qui ont été apportées aux options standard du système de codes de calcul ERANOS (European Reactor ANalysis Optimized System).

La première section de ce chapitre est dédiée aux méthodes de calcul du flux neutronique pour les réacteurs critiques et hybrides en conditions stationnaires. Au cours des deux sections suivantes on décrit la modélisation des calculs d'évolution du combustible et les méthodes de calcul pour des grandeurs, telles que l'activité, la chaleur de décroissance, la production de neutrons et la radiotoxicité, importantes au moment de la séparation et de la fabrication du combustible. La dernière section décrit les méthodes utilisées pour le calcul des scénarios de transmutation à l'équilibre. Quant aux méthodes utilisées pour la modélisation du cycle de combustible lors de l'étude de "phase-out", on a préféré les intégrer dans le paragraphe 6.1 de cette étude.

3.1 Calculs en situation stationnair e^{20}

Dans un système critique tous les neutrons du cœur sont issus des fissions des NL et, par conséquent, leur énergie maximale est limitée à une quinzaine de MeV. La gamme d'énergie des neutrons dans un réacteur critique s'étend donc de quelques meV à environ une quinzaine de MeV. Dans un réacteur hybride, au contraire, la gamme d'énergie des particules, neutrons et protons, est beaucoup plus étendue, allant de quelques meV à 1 GeV ou plus, selon l'énergie des protons issus du faisceau.

Les codes de calcul neutronique ont été initialement conçus pour l'étude des systèmes critiques, caractérisés par un domaine énergétique limité et par l'absence d'une source de neutrons "externes". La plupart d'entre eux ont tout de même la possibilité de résoudre les problèmes inhomogènes; par contre ils ne sont pas à même d'étudier les interactions des neutrons au-dessus des 15-20 MeV. Cette limite en énergie est suffisante pour décrire et traiter les phénomènes qui se produisent dans un système critique mais est insuffisante pour l'analyse des réacteurs hybrides. Le calcul d'un système hybride est donc généralement divisé en deux étapes séparées: dans la première étape on étudie les interactions aux énergies intermédiaires entre les protons issus de l'accélérateur et le massif sous critique et on calcule la source de neutrons au-dessous de l'énergie de seuil. On suppose aussi que la distribution spatiale et

¹⁹ Référence générale pour ce chapitre: [RB-78].

énergétique des neutrons ainsi obtenus ne varie pas au cours de l'irradiation. Dans la deuxième étape on effectue un calcul de cœur inhomogène en modélisant la source neutronique externe calculée au cours de l'étape précédente.

Cette section est divisée en 2 paragraphes: dans le premier on analyse les méthodes de calcul utilisées pour les réacteurs critiques standard et dans le deuxième on décrit les interactions des protons avec les NL de la cible, la création de neutrons de spallation aux énergies intermédiaires et leur ralentissement jusqu'à une énergie au-dessous de la valeur de seuil. On précise enfin comment cette source externe est introduite dans le code ERANOS pour la résolution de l'équation inhomogène du transport.

3.1.1 Réacteurs critiques

L'équation du transport des neutrons en conditions stationnaires a été résolue avec le code de calcul déterministe ERANOS 1.2 qui a été conçu et validé pour le calcul des systèmes à spectre rapide standard et avancés. Comme tout code déterministe, le calcul du cœur est divisé en deux étapes:

- Calcul de cellule: on décrit la géométrie et la composition des assemblages du cœur et on obtient les sections efficaces multi-groupes autoprotégées et les matrices de transfert à partir des bibliothèques de sections efficaces à groupes fins.
- Calcul de cœur: on décrit la géométrie de tout le cœur en le subdivisant en plusieurs régions homogènes qui correspondent aux cellules calculées au pas précédent. On obtient donc toutes les grandeurs d'intérêt nécessaires à l'analyse du cœur en utilisant un découpage énergétique à groupes plus larges et les sections efficaces issues du calcul de cellule.

3.1.1.1 Calcul de cellule

Le système intégré de calculs neutroniques ECCO-ERANOS utilise des données de base JEF 2.2 (Joint Evaluated File). Les données nucléaires issues des évaluations JEF 2.2 ont été compactées dans des bibliothèques d'application à 1968 groupes énergétiques (découpage fin) directement exploitables par le code de calcul ECCO. Pour des informations plus détaillées sur ce sujet on renvoie à la référence [RRR-92]. Les bibliothèques à groupes énergétiques fins contiennent seulement les 37 isotopes les plus importants pour un calcul de cœur. D'autres bibliothèques à groupes plus larges (33, 172 et 175 groupes) ont été créées pour des calculs de projet et contiennent toutes les données nucléaires d'environ 280 isotopes et corps différents; la consistance entre ces bibliothèques à groupes larges et la bibliothèque à 1968 groupes est assurée par l'utilisation d'une méthode de condensation spéciale lors de leur création.

En addition aux bibliothèques basées sur les données JEF 2.2 "pures", une nouvelle base de données (ERALIB 1) a été dérivée des évaluations JEF 2.2 avec un ajustement fait à partir de plus de 350 valeurs

²⁰ Références générales pour cette section: [RSJ-96] [Cze-98].

et données expérimentales. L'ajustement des sections a concerné principalement les isotopes du plutonium, le ²³⁵U, l'²³⁸U, le sodium et les matériaux de structure. Au cours de cette thèse on a utilisé

comme référence ces dernières données de base, ajustées.

Le code de calcul ECCO permet de représenter différentes géométries et donc permet de traiter en détail tout type d'assemblage, même très hétérogène. Tout de même lors de ce travail de thèse on s'est limité à décrire des cellules très simples, homogènes ou mono-dimensionnelles cylindriques, avec description explicite du combustible, de la gaine et du caloporteur.

Chaque calcul de cellule ECCO est divisé en plusieurs pas de calcul qui se différencient par la représentation géométrique de la cellule, hétérogène ou homogénéisée, et par le nombre de groupes énergétiques utilisés. Dans le schéma utilisé comme référence, le premier pas consiste à rechercher le laplacien critique (B_{cr}^2) pour la cellule homogénéisée en utilisant une bibliothèque à groupes larges (172 groupes). Le deuxième pas consiste à calculer le flux neutronique en utilisant un découpage énergétique plus fin, à 1968 groupes, et en laissant inchangé le laplacien calculé précédemment et la géométrie homogénéisée. Pour les noyaux qui ne sont pas présents dans la bibliothèque plus fine, des matrices de sections efficaces équivalentes sont crées à partir des valeurs obtenues au pas précédent en utilisant une méthode de déconvolution. Le troisième pas de calcul est effectué avec le découpage énergétique choisi pour le calcul de réacteur (33 groupes pour les calculs de cette thèse) et prévoit une description hétérogène de la cellule. Les sections efficaces utilisées pour le calcul de cœur sont calculées à la fin de cette étape de calcul par homogénéisation spatiale de la cellule. Le quatrième et dernier pas de calcul consiste en une homogénéisation de la cellule et en une condensation des sections efficaces à 1 groupe énergétique. Les bornes énergétiques des 33 groupes utilisées au cours des calculs de cœur sont données en Annexe A.1.

Les algorithmes de ECCO, associés à l'utilisation d'un découpage énergétique très fin et à la possibilité de représenter exactement la géométrie de la cellule, permettent de traiter avec précision les effets d'autoprotection, de ralentissement des neutrons et les fuites préférentielles des neutrons. A chaque étape du calcul l'équation de Boltzmann est résolue par la méthode des probabilités de collision et le flux neutronique est développé selon les polynômes de Legendre de premier ordre de façon à tenir compte de l'anisotropie du choc.

3.1.1.2 Calcul de cœur

Les calculs spatiaux ont été réalisés par le module BISTRO de ERANOS, qui permet une représentation du cœur en 2D (X-Y, Hex-Z ou R-Z) ou en 1D (cylindrique, sphérique ou plate). Au cours de cette thèse on a toujours utilisé une représentation cylindrique R-Z du cœur. Le code de calcul approche l'équation de bilan neutronique de Boltzmann par la théorie de diffusion et la théorie du

transport S_n avec anisotropie du choc P_N et par le biais de la méthode des différences finies pour sa résolution. La vitesse de convergence des calculs est accélérée par la méthode DSA (Diffusion Synthetic Acceleration) qui utilise des itérations en diffusion pour accélérer la convergence des itérations de transport. Au cours de cette thèse on a résolu l'équation du transport avec la méthode des ordonnées discrètes en utilisant une approximation S_4P_1 .

3.1.2 Réacteurs hybrides

La première étape d'un calcul pour un système hybride consiste à étudier les interactions aux énergies intermédiaires entre le faisceau de protons et les constituants de la cible, placée au centre du réacteur; on obtient ainsi la distribution, en espace et énergie, des neutrons de spallation et de nombreuses autres informations, comme le nombre de fissions, la chaleur déposée dans la cible et dans tout le réacteur, qui permettent de dimensionner correctement le module de spallation. Ces calculs aux énergies intermédiaires ont été effectués avec le code HETC (High Energy Transport Code) disponible au PSI [AP-84]; ce code a été développé de manière extensive et validé pour l'application aux systèmes hybrides au cours des thèses précédentes effectuées au PSI [Kad-95] [You-97].

HETC est un code de type Monte-Carlo qui simule donc de manière stochastique les interactions des hadrons chargés avec la matière. Chaque fois le code crée une particule (un proton pour les calculs des réacteurs hybrides) avec l'énergie et la direction voulues et en suit les interactions avec la matière; le code calcule donc la production de particules secondaires et poursuit le transport de toutes ces particules à travers une série de collisions jusqu'à qu'elles aient fui du système ou aient été absorbées. Dans le cas des neutrons, au contraire, le transport est poursuivi normalement tant que leur énergie reste supérieure à la valeur de seuil (choisie par l'utilisateur); au-dessous de cette valeur le transport du neutron n'est plus effectué et sa position et son énergie sont stockés dans un fichier de sortie annexe. Les cascades de particules générées par HETC sont ensuite analysées par des programmes séparées qui permettent d'obtenir toutes les informations recherchées, telles que l'énergie déposée dans le système, le nombre de neutrons produits par proton incident, le nombre et le spectre des neutrons qui ont fuit d'une surface quelconque du système, le nombre de fissions induites dans le système par les particules à haute énergie, etc.

Pour passer à l'étape suivante du calcul d'un système hybride, il est nécessaire de mettre en forme la distribution des neutrons de spallation calculée par HETC afin de pouvoir l'intégrer dans le code de calcul de cœur. Pour cela on a donc adapté les outils précédemment développés au PSI (lien HETC-TWODANT) et ceux disponibles au CEA (système SPARTE). La distribution continue (en X, Y, Z et E) des neutrons obtenue en sortie de HETC est ainsi discrétisée selon le découpage spatial (en R, Z) et énergétique (en 33 groupes) utilisé lors des calculs de cœur faits avec ERANOS.

39

On rappelle que, lors de la normalisation du flux à la puissance thermique du réacteur, on ne considère que les réactions induites par les neutrons à basse énergie (au-dessous de la valeur de coupure). Dans les calculs standard on ne prend donc pas en compte l'énergie dégagée par les réactions de fission et de spallation et par le ralentissement des particules à haute énergie. L'erreur induite par cette approximation sur l'évolution du combustible est cependant faible car la puissance associée aux phénomènes à haute énergie compte seulement pour 1% environ de la puissance totale du cœur, pour un système avec un $k_{eff} \leq 0.95$.²¹ [You-97].

3.2 Calculs d'évolution²²

L'évolution des NL a un rôle fondamental pour la détermination des caractéristiques d'un réacteur car elle influence la durée de vie du combustible, l'optimisation du cycle et les paramètres de sécurité du réacteur à la fin du cycle. La prédiction correcte de la perte de réactivité au cours du cycle, de la fraction de NL incinérés et de la composition du combustible à la fin de l'irradiation est essentielle pour toute étude sur la transmutation et, à plus forte raison, dans le cadre d'une analyse d'équilibre où les erreurs/imprécisions peuvent s'accumuler au cours des itérations de calcul.

Compte tenu de ces nécessités, le formulaire ERANOS a été développé et qualifié sur la base de nombreuses expériences intégrales, parmi lesquelles on peut rappeler les expériences réalisées au démarrage de SUPER-PHENIX mais aussi au cours de son fonctionnement ainsi que celles réalisées dans PHENIX. Parmi les expériences les plus importantes pour la validation de l'évolution sont les expériences de perte de réactivité de PHENIX et SUPER-PHENIX au cours de leur fonctionnement. Les améliorations de la procédure d'évolution se sont axées principalement sur l'ajustement des données de base, avec le développement de la bibliothèque ERALIB 1 qui comporte un ajustement significatif des sections efficaces des isotopes du plutonium par rapport aux valeurs de JEF 2.2, et sur les énergies dégagées par fission et par capture, qui ont un impact direct sur la valeur de normalisation du flux neutronique à la puissance. On donnera par la suite un aperçu de l'équation générale qui décrit l'évolution du combustible dans un réacteur et de la méthode de calcul standard utilisée par ERANOS; dans les paragraphes successifs on analysera en détail les aspects plus significatifs de chaque étape du calcul.

L'évolution des noyaux présents dans un réacteur et soumis à un flux de neutrons est décrite par l'équation de Bateman qui peut être mise en forme matricielle comme

²¹ En plus la distribution de puissance associée aux phénomènes à haute énergie se localise principalement dans la cible, qui est refroidie par un circuit indépendant, et ne contribue ainsi pas à la puissance totale du cœur.

²² Références générales pour cette section: [DRR-96] [SR-97].

$$\frac{d\bar{N}(\vec{r},t)}{dt} = \left(\hat{M}(E) \cdot \Phi(\vec{r},t,E) - \hat{\Lambda}\right) \cdot \vec{N}(\vec{r},t) \text{ avec les conditions initiales suivantes } \vec{N}(\vec{r},t=0) = \vec{N}_0(\vec{r})$$

où

 $\tilde{N}(\vec{r},t)$ est le vecteur isotopique des concentrations

 $\Phi(\vec{r},t,E)$ est le flux neutronique

 $\hat{M}(E)$ est la matrice des sections efficaces de transfert d'un isotope à l'autre

 $\hat{\Lambda}$ est la matrice de transfert par désintégration et est composée uniquement de constantes de décroissance

La méthode standard utilisée par ERANOS pour les calculs d'évolution prévoit de découper le cœur en plusieurs régions distinctes et de subdiviser le cycle d'irradiation en plusieurs passes d'évolution. L'équation de Bateman est résolue dans chaque région séparément en prenant un flux moyen constant tout au long du passe considéré; sous ces hypothèses le terme $(\hat{M} \cdot \Phi - \hat{\Lambda})$ est constant et donc on peut obtenir une solution du type $\vec{N}(t = T) = \vec{N}_0 \cdot e^{(\hat{M}\Phi - \hat{\Lambda})T}$. Une fois définies toutes les constantes de décroissance et les sections microscopiques multi-groupes, le calcul d'évolution est répété à chaque passe d'évolution et pour chaque région évoluante selon le schéma suivant:

- Calcul du flux neutronique dans le cœur en conditions stationnaires
- Normalisation du niveau de flux à la puissance thermique du réacteur
- Condensation des sections efficaces de transfert à 1 groupe énergétique et calcul de la matrice $\hat{M} \cdot \Phi$
- Intégration de l'équation de Bateman sur le passe d'évolution, à l'aide d'un développement limité de l'exponentielle de matrice

Pour simplifier les calculs on découple l'évolution des NL de celle des PF: on résout en premier l'équation qui régit l'évolution des NL et on insère ensuite dans l'équation d'évolution des PF le terme de production dû à la fission des NL.

Il est opportun de rappeler qu'une telle modélisation de l'équation de Bateman requiert que les passes d'évolution soient courts et que les régions dans lesquelles le cœur est subdivisé soient suffisamment petites pour que le flux moyen soit représentatif des valeurs ponctuelles. Un point critique de la méthode qu'on vient de décrire est qu'elle comporte de nombreux calculs de flux pour obtenir un calcul d'évolution précis et, par conséquent, requiert des temps de calcul assez prolongés. Dans le cas d'une étude de projet il est donc indispensable de trouver un compromis entre la précision des résultats et le temps de calcul. Cette exigence est particulièrement importante dans les calculs des réacteurs à l'équilibre car une telle étude requiert une description précise de l'évolution du combustible et se base sur de nombreux calculs de cycle effectués de manière itérative.

Au cours de cette présentation des méthodes d'évolution il faut en dernier rappeler que le code ERANOS permet de modéliser aisément les périodes d'arrêt inter-cycle et de stockage et de refroidissement du combustible en effectuant une évolution à flux nul; cette option rend donc possible une description soignée de tout le cycle du combustible par un seul calcul ERANOS.

Dans les paragraphes suivants on analysera les aspects plus importants de chaque étape d'un calcul d'évolution et on décrira les méthodes utilisées au cours de cette thèse.

3.2.1 Créations des chaînes d'évolution des noyaux lourds

Dans le cadre d'une étude de systèmes dédiés à la transmutation des TRU, le combustible est généralement fortement chargé en AM et, par conséquent, une description très complète de la chaîne d'évolution des NL est nécessaire. Une telle exigence est encore plus importante pour une étude de scénarios à l'équilibre car les NL sont recyclés indéfiniment jusqu'à rejoindre une composition d'équilibre et certains isotopes, négligeables dans le cas d'un seul passage en réacteur, peuvent donc s'accumuler dans le combustible au cours des cycles.

Pour l'étude du benchmark, qui ne prévoit pas de multirecyclage du combustible, on a utilisé une chaîne de décroissance qui contient explicitement 27 isotopes et inclut tous les isotopes du curium. Dans la modélisation de la chaîne d'évolution, un paramètre important est le facteur de branchement entre l'²⁴²Am et l'^{242m}Am en cas de capture neutronique de l'²⁴¹Am; le facteur de branchement dépend de l'énergie du neutron incident et est donc fonction du spectre neutronique. La valeur utilisée au cours de cette thèse (85% ²⁴²Am-15% ^{242m}Am) est issue d'une réévaluation indépendante du CEA en considérant un spectre neutronique caractéristique d'un RNR.

Pour les études des scénarios à l'équilibre on a complété la chaîne d'évolution qu'on vient de décrire avec l'addition de quatre isotopes, ²³⁷U, ²³⁸Np, ²⁴³Pu et ²⁴⁴Pu; ce nouveau schéma de décroissance a servi aux calculs des réacteurs à l'équilibre et s'est montré adéquat pour tout calcul neutronique standard. Par contre cette chaîne d'évolution n'est pas appropriée pour l'évaluation du terme de fission spontanée. L'évaluation correcte de ce terme est nécessaire pour déterminer les caractéristiques du combustible lors de son retraitement et de sa fabrication: en effet le terme de fission spontanée est négligeable vis-à-vis des fissions induites par le flux de neutrons lorsque le combustible est irradié en pile mais devient important, en tant que source "interne" de neutrons, quand le flux neutronique est proche de zéro. Afin de mieux évaluer le terme de fission spontanée dans le combustible hors pile, on a ainsi utilisé une nouvelle chaîne d'évolution encore plus complète, incluant le ²⁴⁹Bk, le ²⁴⁹Cf, le ²⁵⁰Cf, le ²⁵¹Cf et le ²⁵²Cf. Une représentation détaillée de cette chaîne est présentée dans l'Annexe A.2. On a donc réévalué, par l'intermédiaire d'une nouvelle série de calculs itératifs à partir des bilans massiques à l'équilibre déjà

calculés, la composition d'équilibre de ces nouveaux isotopes et du ²⁴⁶Cm, ²⁴⁷Cm et ²⁴⁸Cm, qui peuvent être affectés par le changement de la chaîne d'évolution.

La prise en compte de ces isotopes additionnels dans un calcul d'équilibre a un impact très limité sur le coefficient de multiplication et sur le bilan massique à l'équilibre et, par conséquent, ne compromet pas la validité des calculs déjà effectués: l'impact le plus important est observé dans le cas du réacteur hybride dédié à la transmutation des AM où le k_{eff} augmente d'environ 25-30 pcm. Même le bilan massique n'est pas altéré de façon significative, vu la faible concentration des actinides à masse élevée dans le combustible. Au contraire, l'estimation du terme de source interne de neutrons dans le combustible hors pile peut être influencée par le choix de la chaîne d'évolution: en effet seulement un nombre limité d'isotopes, et principalement les isotopes pairs du curium, se désintègrent par fission spontanée et donc la contribution du californium ne peut pas être négligée. Le Tableau 3.1 montre les résultats de l'extension de la chaîne d'évolution au californium sur les grandeurs plus significatives pour le retraitement et la fabrication du combustible: on donne ici l'augmentation de la valeur de chaque paramètre par rapport à celle calculée avec une chaîne d'évolution limitée au ²⁴⁸Cm.

	Activité	Chaleur de décroissance			Source de neutrons			
	Total	α	β	γ	Total	Fission spontanée	(α, n)	Total
REP-MOX	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%	0.23%	0.00%	0.22%
CAPRA HBU	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%	0.00%
IFR Sousgénérateur	0.01%	0.00%	0.02%	0.06%	0.00%	6.76%	0.00%	6.67%
IFR Isogénérateur	0.00%	0.00%	0.01%	0.03%	0.00%	7.99%	0.00%	7.82%
ATW (ADS)	0.03%	0.02%	0.10%	0.25%	0.02%	34.37%	0.01%	33.99%
MAB (ADS)	0.03%	0.00%	0.10%	0.28%	0.00%	27.18%	0.00%	26.89%

 Tableau 3.1: Correction liée à l'extension de la chaîne d'évolution des NL sur les paramètres qui caractérisent le combustible hors pile

L'impact de l'inclusion du berkélium et du californium dans la chaîne d'évolution est mineur dans le cas du CAPRA-HBU, qui est chargé avec du combustible frais contenant uniquement uranium et plutonium; la production des AM à haut nombre de masse est en effet très limitée au cours de l'irradiation dans un spectre rapide²³. Par contre, dans le cas où les TRU soient intégralement recyclés, la correction du terme de source de neutrons par fission spontanée est importante. Cette correction est maximale (de l'ordre de 20-30%) dans le cas des réacteurs hybrides où le combustible a une proportion de TRU et

²³ Il est intéressant de remarquer que le spectre thermique favorise le procès de formation du californium et, en général, des actinides à haut nombre de masse: la production de californium est beaucoup plus importante dans le combustible du REP-MOX que dans celui du CAPRA HBU. En termes absolus, tout de même, la correction associée à l'inclusion du californium dans la chaîne d'évolution est largement négligeable dans ces 2 cas.

d'AM est supérieure à celle des RNR. La correction apportée aux autres paramètres d'intérêt pour la fabrication et le retraitement du combustible, tels que l'activité et la chaleur de décroissance, est largement inférieure à 0.5% dans tous les cas analysés et ne justifierait donc pas l'inclusion du berkélium et du californium dans la chaîne d'évolution.

3.2.2 Traitement des PF

La modélisation correcte des PF qui se forment dans le combustible au cours de l'irradiation est très complexe à cause du nombre de PF et de la quantité de phénomènes qui y interviennent. La formation de chaque PF (rendement de fission) dépend du NL qui fissionne et de l'énergie du neutron incident. Au total plus de 300 PF peuvent apparaître mais seulement une partie d'entre eux est stable: la majorité des PF décroît par réaction β^- avec des périodes de demi-vie qui peuvent être très différentes entre elles. La description de nombreuses chaînes de décroissances différentes est alors nécessaire. En plus, pour une prévision exacte de la perte de réactivité, il faut tenir compte que les PF sont plus mobiles que les NL et, en particulier, les PF gazeux peuvent migrer dans le combustible et s'accumuler dans le plénum du réacteur, où le flux et l'importance des neutrons sont minimales.

Le code de calcul ERANOS permet de représenter les PF soit avec une description explicite d'un nombre limité de PF et avec une description simplifiée de leurs chaînes d'évolution soit par l'intermédiaire des pseudo produits de fission qui simulent le comportement des PF explicites.

Les pseudo produits de fission ont été crées uniquement pour les 6 NL les plus importants (²³⁵U, ²³⁸U, ²³⁹Pu, ²⁴⁰Pu, ²⁴¹Pu et ²⁴²Pu) et tiennent compte de tous les phénomènes qui interviennent au cours de l'accumulation des PF dans le combustible (décroissance, capture neutronique). Les pseudo produits de fission sont séparés en pseudo produits gazeux, qui tiennent compte uniquement de la contribution des PF gazeux, et des pseudo produits solides qui intègrent les caractéristiques de tous les PF solides. Une telle subdivision permet de simuler la migration des PF gazeux dans le plénum par l'intermédiaire d'un temps de demi-vie apparent des pseudo produits de fission gazeux. L'avantage principal de leur utilisation lors d'un calcul de projet est de réduire le nombre de corps à décrire et de limiter, par conséquent, les temps de calcul tout en assurant une bonne prédiction de la perte de réactivité des cœurs. Par contre leur utilisation dans le cadre de l'étude des scénarios de transmutation est déconseillée pour 2 raisons:

• Les pseudo produits de fission sont représentatifs des différents isotopes du plutonium et de l'uranium et ont été optimisés pour un cœur de type SUPER-PHENIX chargé avec du combustible PuO₂-UO₂. Leur utilisation est donc problématique dans un système avec un spectre différent et chargé avec du combustible fortement enrichi en AM et dans lequel une fraction importante des fissions est due aux AM.

• L'utilisation des pseudo produits de fission ne permet pas d'évaluer la contribution des PF à l'activité et à la chaleur de décroissance du combustible à la fin de l'irradiation

Pour les raisons qu'on vient d'indiquer on a représenté explicitement les PF au cours de l'étude des scénarios de transmutation: pour les calculs de mise à l'équilibre des cœurs on a utilisé une chaîne d'évolution simplifiée contenant 80 PF explicites, choisis parmi ceux qui contribuent le plus à la capture, soit par leur section efficace soit pour leur rendement de fission. Pour le calcul précis de la perte de réactivité et surtout pour le calcul de l'activité et de la chaleur de décroissance du combustible au retraitement on a utilisé une chaîne d'évolution plus complète (160 PF explicites) qui assure une prédiction plus soignée soit de la perte de réactivité soit, surtout, des paramètres du combustible au retraitement. L'indication des PF explicitement représentés dans ces 2 chaînes est donnée dans l'Annexe A.3. Au cours d'une telle représentation des PF le rendement des PF explicites correspond à la somme du rendement indépendant, qui donne la probabilité que le nuclide particulier apparaisse lors d'une fission, et de la contribution cumulée des rendements indépendants des PF à vie courte qui le précèdent dans la chaîne radioactive isobarique et qui ne sont pas inclus dans la chaîne.

Afin d'assurer que la chaîne des PF utilisée au cours de cette thèse évalue correctement l'activité et la chaleur de décroissance de la totalité des PF, on a pris comme référence les résultats d'un calcul d'évolution pour du combustible MOX irradié jusqu'à un taux de combustion moyen de 50 GW_j/t_{NL} . Ce calcul, effectué avec le code neutronique APOLLO I - Cesar du CEA [Sam-98], modélise de façon très détaillée la chaîne d'évolution des PF et permet ainsi d'avoir une composition isotopique des PF de référence. On a ensuite comparé l'activité et la chaleur de décroissance qu'on aurait en utilisant les chaînes à 80 et à 160 PF avec les résultats de ce calcul de référence; les résultats pour différents périodes de refroidissement après irradiation, sont donnés dans le Tableau 3.2. Cette étude met en évidence qu'une description avec 80 PF est insuffisante pour une prédiction correcte des grandeurs qui caractérisent le combustible au retraitement, tandis que l'utilisation de la chaîne plus complète²⁴ permet de représenter plus de 90% de l'activité et de la chaleur de décroissance du combustible après une période de refroidissement d'un an.

	Acti	ivité	Chaleur de décroissance		
	80 PF	160 PF	80 PF	160 PF	
3 mois	62.75%	97.29%	37.07%	86.85%	
3 ans	59.81%	98.87%	30.81%	93.66%	
5 ans	60.77%	99.70%	39.81%	98.20%	
7 ans	58.90%	99.91%	40.09%	99.61%	

Tubledu 5.2. Effet du chora des 11 sur restinution de ractivité et de la charear de decroisse

²⁴ Pour les méthodes de calcul de l'activité et de la chaleur de décroissance on renvoie à la section 3.3.

Pour compléter l'analyse sur le traitement des PF on a enfin effectué une étude paramétrique afin de vérifier l'impact des différentes représentations des PF sur la perte de réactivité du cœur au cours de l'irradiation. Le calcul a été fait pour le cœur à l'équilibre du benchmark en considérant une région d'évolution unique et en recalculant le flux 4 fois chaque an d'irradiation. La perte de réactivité en fin d'irradiation, calculée comme $k_{eff}(DDI) - k_{eff}(FDI)$, est de 1311.4 pcm si on utilise les pseudo produits de fission, de 1222.6 pcm si on utilise la chaîne avec 160 PF explicites et de 1538.2 pcm si on utilise 80 PF explicites. Cette étude paramétrique montre donc que la représentation des PF joue un rôle très important pour l'estimation de l'évolution du coefficient de multiplication au cours du cycle; l'écart maximal observé est de plus de 300 pcm, ce qui représente plus de 20% de la perte de réactivité totale.

Il est tout de même intéressant de noter que la perte de réactivité finale et la courbe d'évolution du k_{eff} (voir Figure 3.1) sont très proches si on utilise les 160 PF explicites et les pseudo produits de fission. On peut ainsi indiquer que l'utilisation des pseudo produits de fission avec ERANOS ne donne pas des écarts très significatifs sur la prédiction de la perte de réactivité par rapport à l'utilisation de la chaîne d'évolution complète avec 160 PF. Il est aussi intéressant de remarquer que l'utilisation uniquement des pseudo produits de fission solides conduit à une diminution de la perte de réactivité de 440 pcm environ par rapport au calcul avec les pseudo produits de fission complets.



Figure 3.1: Evolution du coefficient de multiplication homogène en fonction du choix des PF

3.2.3 Normalisation du flux à la puissance

Pour la normalisation du flux neutronique à la puissance nominale du réacteur, le code ERANOS utilise une base de données pour les énergies moyennes dégagées par fission et par capture prenant en compte les recommandations des évaluations les plus récentes. Il faut remarquer que cette base de données est très complète et que le code ERANOS tient explicitement compte du dégagement d'énergie qui suit la capture neutronique dans les NL, dans les matériaux de structure et dans le caloporteur. Les valeurs des énergies dégagées par fission et par capture sont données en Annexe A.4; on peut noter que les valeurs réévaluées sont en légère augmentation par rapport aux valeurs standard de JEF 2.2.

Le fait de tenir correctement compte de toutes les contributions possibles à l'énergie dégagée dans le cœur a un impact significatif sur l'évaluation de la courbe de réactivité et sur les bilans massiques à la fin de l'irradiation. L'étude du benchmark, dont on parlera plus en détail dans le chapitre 4, a en effet montré que les différences parmi les participants sur les "Q values" peuvent être de l'ordre de 10%. Pour estimer l'impact des différentes "Q values" sur un calcul d'évolution, on a effectué 2 calculs supplémentaires pour le cœur à l'équilibre du benchmark: par rapport au cas de référence (160 PF explicites et une zone d'évolution unique), on a réduit les "Q values" de 5% et de 10% respectivement. Cela correspond donc à une augmentation de la valeur de normalisation du flux neutronique de 5% ou de 10% lors de chaque calcul d'évolution.



Figure 3.2: Evolution du coefficient de multiplication homogène pour différentes "Q values"

Comme le montre la Figure 3.2, par rapport au cas standard le k_{eff} augmente plus rapidement au cours des 2 premières années d'irradiation pour diminuer ensuite plus brusquement au cours des 3 ans suivants. Les valeurs du k_{eff} en FDI (Fin D'Irradiation) sont respectivement 360 et 170 pcm inférieures par rapport à la valeur de référence. La prédiction de la perte de réactivité au cours de l'irradiation est donc affectée par les "Q values" utilisées: dans le cas pris comme exemple une diminution de 10% des "Q values" conduit à surestimer la perte de réactivité de 30% par rapport au cas de référence.

Les répercussions sur le bilan massique des NL en FDI sont en ligne avec les prévisions: la quantité de NL fissionnés augmente respectivement de 9.8% et de 4.9% par rapport au cas de référence. Du point de vue de la composition isotopique des NL en FDI, on peut observer une diminution des NL fertiles qui tendent à se consommer au cours de l'irradiation, tels que ²³⁷Np, ²⁴⁰Pu, ²⁴¹Am et ²⁴³Am, et une augmentation des NL qui se forment au cours de l'irradiation, tels que le ²⁴¹Pu, le ²⁴³Cm et le ²⁴⁴Cm. Les résultats de cette analyse sont montrés dans la Figure 3.3 qui suit: pour une réduction des "Q values" de 5% et de 10% on montre la variation (en %) de la masse en FDI des isotopes plus abondants par rapport au cas de référence.





Le changement des "Q values" (ou l'utilisation de valeurs différentes) modifie donc la fluence perçue par le combustible et, par conséquent, a un impact considérable non seulement sur l'évolution de la réactivité au cours de l'irradiation mais aussi sur la composition du combustible (NL et PF) en FDI et sur la fraction de NL qui ont fissionné à la fin de l'irradiation.

3.2.4 Méthodes d'évolution

Comme on a déjà souligné dans la partie introductive aux calculs d'évolution, la matrice \hat{M} et le flux Φ sont supposés constants dans la modélisation de chaque passe d'évolution. Cette approximation est justifiée si les passes d'évolution sont très courts mais conduit autrement à des inexactitudes dans l'estimation de la perte de réactivité et de la composition du combustible à la fin de l'irradiation. On peut distinguer deux effets: d'une part le spectre neutronique, fonction de la concentration des différents noyaux dans le cœur, varie au cours de l'irradiation et d'autre part le niveau du flux et sa distribution spatiale se modifient pendant l'évolution; en particulier le niveau du flux doit varier au cours de l'irradiation pour assurer la constance de la puissance générée dans le réacteur. La variation du spectre entraîne la modification du spectre est significative au cours du passe d'évolution, la précision du calcul peut être affectée de façon considérable. Le fait de maintenir le niveau du flux constant tout au long de la passe d'évolution peut conduire à des fluctuations significatives de la puissance thermique du réacteur, en particulier pour des systèmes fortement sous-générateurs ou surgénérateurs. Une telle erreur peut affecter la précision des bilans massiques en fin d'irradiation et du taux de combustion effectif du combustible.

Afin de contourner les limitations de la méthode d'évolution standard d'ERANOS et d'améliorer la précision des calculs sans entraîner un surcoût important en terme de calculs de flux supplémentaires, une procédure d'évolution modifiée a été récemment introduite au CEA de Cadarache [RTV-99]. Chaque passe d'évolution, au cours duquel on effectue un calcul complet de flux, est réparti en plusieurs pas d'évolution élémentaires; au début de chacun de ces micro-pas d'évolution le flux est re-normalisé à la puissance nominale du réacteur sans effectuer aucun calcul supplémentaire de flux. Cette méthode permet donc de réduire considérablement les fluctuations de la puissance durant chaque passe d'évolution.

Une méthode différente pour prendre en compte la variation de la puissance au cours de chaque passe d'évolution a été développée indépendamment par l'auteur au cours de cette thèse et est schématisée plus en détail dans l'Annexe A.5. Cette méthode divise le calcul d'évolution en deux étapes: on effectue un premier calcul d'évolution afin de calculer uniquement la puissance moyenne au cours du passe d'évolution. Dans un deuxième temps on normalise le flux neutronique au début de chaque passe d'évolution à une valeur telle que la puissance moyenne entre le début et la fin de l'évolution soit égale à la puissance nominale; on effectue ainsi le "vrai" calcul d'évolution. Cette méthode assure ainsi une estimation correcte de l'énergie dégagée au cours de chaque passe d'évolution.

Pour comparer les différentes méthodes d'évolution on a appliqué la méthode standard et la méthode ajustée au réacteur du benchmark décrit dans le chapitre 4 (cœur à l'équilibre²⁵) en considérant une seule

²⁵ La même étude appliquée au cœur de "start-up" donnerait lieu à des écarts plus élevés.

région d'évolution. Pour chacune des deux méthodes de calcul on a analysé 2 cas: dans le premier cas la période d'irradiation de 5 ans est découpée en 5 pas d'évolution d'un an chacun et dans le deuxième cas elle est découpée en 20 pas d'évolution d'environ 90 jours. Les principaux résultats de cette analyse sont résumés dans le Tableau 3.3.

L'utilisation de la méthode d'évolution standard conduit à une sous-estimation de la puissance moyenne par rapport à la valeur nominale: un découpage très serré du passe d'évolution permet de réduire cette différence à environ 0.2%, tandis que le découpage plus grossier conduit à une différence d'un peu moins de 1%. La méthode ajustée permet d'obtenir, à moins d'approximations numériques, la puissance moyenne souhaitée. La comparaison des bilans massiques des NL en fin d'irradiation confirme ces résultats: la méthode ajustée permet de réévaluer la masse de NL qui ont fissionné dans le système de 0.2%-1% selon la longueur du passe d'évolution.



Figure 3.4: Evolution du keff homogène pour différentes méthodes de calcul de la puissance

Tableau 3.3: Etude de sensibilité à la méthode d'évolution - Grandeurs macroscopiques en FDI

	4 passes d'é	volution / an	1 passe d'évolution / an		
Méthode de calcul	Standard	Ajustée	Standard	Ajustée	
Puissance moyenne (MW)	319.32	320.00	317.25	320.00	
NL incinérés (kg)	584.06	585.31	580.61	585.57	
Perte de réactivité (pcm)	1222.6	1229.6	1301.7	1330.7	

L'étude de l'évolution du coefficient de multiplication au cours de l'irradiation montre que l'ajustement de la puissance a un impact très limité sur ce paramètre tandis que l'effet principal est associé à la longueur du passe d'évolution, comme on peut observer dans la Figure 3.4. L'ordre de grandeur de l'écart sur le k_{eff} en FDI reconductible à la longueur du passe d'évolution est d'environ 100 pcm. Comme attendu, l'effet lié à l'ajustement de la puissance est plus évident quand on utilise des passes d'évolution plus longs (1 an dans cet exemple): dans ce cas l'écart est de l'ordre de 30 pcm. Par contre, si on discrétise plus finement le temps d'irradiation, la correction sur le k_{eff} est inférieure à 10 pcm.

Le spectre neutronique, moyenné dans toute la région du combustible, varie au cours de l'évolution, comme on le montre dans l'Annexe A.6. Cela justifie donc les différences observées sur le coefficient de multiplication en FDI qu'on a présenté dans le Tableau 3.3.

Il est nécessaire de rappeler que la fluctuation de la puissance associée à la méthode d'évolution standard, ainsi que ses effets sur la perte de réactivité, dépendent aussi de la composition du combustible et du nombre de régions d'évolution utilisées. Les effets sur l'estimation de la puissance moyenne sont plus significatifs en augmentant le nombre de régions d'évolution du cœur. Si on applique la méthode d'évolution standard au réacteur qu'on a décrit aussitôt en subdivisant le cœur en 20 régions évoluantes, on obtient une puissance moyenne de 318.94 MW, donc plus faible par rapport à celle du cas de référence. Si, par ailleurs, on considère un cœur plus fortement enrichi en isotopes fissiles du plutonium (cœur de type "start-up" du chapitre 4) on obtient une puissance moyenne au cours de l'irradiation encore plus faible, de l'ordre de 318.32 MW tout en utilisant un découpage très serré des passes d'évolution.

L'utilisation de la nouvelle procédure d'évolution à puissance ajustée permet donc de résoudre tous ces problèmes et garantit 2 avantages importants lors de l'étude de comparaison des scénarios à l'équilibre: elle garantit soit une meilleure précision de calcul soit, surtout, une plus grande cohérence dans l'analyse des divers systèmes qui caractérisent l'étude des scénarios à l'équilibre.

3.2.5 Découpage du cœur en sous-régions d'évolution

Au cours de ce paragraphe on se propose de quantifier l'impact du nombre de régions d'évolution du combustible sur la perte de réactivité au cours de l'irradiation. On a ainsi effectué 2 calculs paramétriques en utilisant 1 seule région évoluante ou en subdivisant le combustible en 20 régions séparées (4 zones radiales et 5 zones axiales). On a aussi inclus un troisième cas dans lequel le combustible est divisé en 5 régions d'évolution uniquement selon l'axe Z. Cela permet de simuler l'irradiation du combustible dans le cas d'un repositionnement des éléments de combustible afin qu'ils soient soumis à la même fluence lors de leur irradiation.

En général le coefficient de multiplication du réacteur diminue au cours de l'irradiation à cause de la dégradation de la qualité des noyaux lourds et de l'accumulation des PF dans le combustible. La

subdivision du cœur en plusieurs régions d'évolution séparées permet d'estimer plus correctement la perte de réactivité car on tient ainsi compte du fait que les PF s'accumulent et le combustible se dégrade plus rapidement dans les régions du cœur à haut flux et à haute importance neutronique. Au contraire, si on utilise une unique région évoluante, la distribution des PF et la composition du combustible sont uniformes dans tout le cœur. Un tel effet est encore plus accentué dans le cas d'un réacteur hybride où la présence d'une source externe au milieu du cœur induit une distribution du flux neutronique encore moins uniforme que celle que l'on aurait dans un réacteur critique. Cet effet est amplifié par le fort taux de combustion (environ 200 GWj/t_{NL}) du combustible utilisé dans ce réacteur: on peut le remarquer en observant les courbes d'évolution du k_{eff} tracées dans la Figure 3.5 où les écarts augmentent considérablement au cours de l'irradiation.

Les résultats de cette étude paramétrique confirment les hypothèses précédentes: en divisant le cœur en 20 régions d'évolution on a une perte de réactivité de 3985.8 pcm, environ double par rapport au cas où on utiliserait une seule région évoluante (1538.2 pcm). Si on subdivise le cœur uniquement axialement, on obtient une perte de réactivité de 2087.8 pcm; cela d'une part témoigne de l'avantage du repositionnement du combustible au cours de l'irradiation et d'autre part témoigne de la forte asymétrie radiale du flux neutronique dans la région du combustible.



Figure 3.5: Evolution du coefficient de multiplication homogène en fonction du nombre de régions évoluantes

3.3 Calculs d'activité, chaleur de décroissance, radiotoxicité

Les études de caractérisation du combustible (NL et PF) requièrent l'évaluation de l'activité, de la chaleur de décroissance et de la source "interne" de neutrons au moment de son retraitement et de sa fabrication. Afin d'estimer le temps de refroidissement optimal du combustible il est aussi nécessaire de calculer la variation de ces grandeurs au cours du temps. Les calculs de radiotoxicité requièrent aussi l'estimation de la radiotoxicité à un moment donné (t = 0) et de son évolution pour un intervalle de temps très étendu, allant de 10 à 10^7 ans. On peut décomposer ces calculs en deux étapes fondamentales:

- Calcul de la composition massique en fonction du temps pour un vecteur isotopique quelconque (NL et PF) donné à t = 0.
- Calculer les grandeurs d'intérêt (activité, chaleur de décroissance, radiotoxicité, etc.) à partir du vecteur isotopique obtenu précédemment.

La première étape de calcul a été effectuée avec le code ORIHET-3 [AS-01], adapté au PSI à partir du code américain ORIGEN et qui utilise des données tirées de la banque de données NUBASE. ORIHET-3 permet donc d'étudier la génération et l'évolution de n'importe quelle combinaison d'isotopes et permet aussi d'évaluer l'activité, la chaleur de décroissance, la source de neutrons et la radiotoxicité. Tout de même, pour le calcul de l'activité, de la chaleur de décroissance et de la source de neutrons on a préféré utiliser des données tirées de calculs MECCYCO [GRO-90] [CCG-97], un code de calcul développé au CEA de Cadarache et conçu pour étudier le cycle du combustible des RNR. Certaines des données de base utilisées par MECCYCO sont tirées d'évaluations JEF. On a ainsi créé des feuilles de calcul indépendantes avec les résultats des calculs de décroissance de ORIHET-3 et les données de base de MECCYCO.

Les résultats des calculs d'activité, de chaleur de décroissance et de radiotoxicité tiennent compte la contribution des 36 NL et des 160 PF explicites utilisés dans les chaînes d'évolution plus détaillées décrites dans les paragraphes précédents. En plus on a inclus la contribution à l'activité et à la chaleur de décroissance de 3 PF à vie courte qui n'apparaissent pas dans les chaînes d'évolution et qui sont en équilibre avec leurs progéniteurs à vie plus longue décrits explicitement. Il s'agit du ¹⁰⁶Rh, du ^{137m}Ba et du ¹⁴⁴Pr en équilibre avec leurs progéniteurs, respectivement le ¹⁰⁶Ru, le ¹³⁷Cs et le ¹⁴⁴Ce. Cela permet donc d'affiner la précision des résultats. Comme on a déjà rappelé lors du paragraphe 3.2.1, au cours des calculs de source de neutrons on a inclus la contribution du ²⁴⁹Bk et de 4 isotopes du californium (²⁴⁹Cf, ²⁵⁰Cf, ²⁵¹Cf et ²⁵²Cf) de façon à estimer ce terme avec une meilleure précision.

Pour les calculs de radiotoxicité on a utilisé les facteurs de conversion dose/activité relatifs à l'ingestion basés sur les recommandations plus récentes (ICRP - 1990). Les facteurs de conversion

utilisés dans les calculs sont donnés en Annexe A.7. La radiotoxicité peut être exprimée soit en fonction des noyaux mis initialement aux déchets soit en fonction des noyaux présents dans les déchets à chaque instant. La première façon de présenter les résultats permet, à tout instant, d'identifier la contribution à la toxicité totale de chaque isotope mis initialement aux déchets et donc donne une indication des isotopes dont l'incinération est plus importante. La deuxième façon de présenter les résultats permet, au contraire, de caractériser plus fidèlement la toxicité du combustible en suivant l'évolution de la composition des déchets et donc d'identifier les isotopes qui contribuent le plus, à chaque instant, à la radiotoxicité globale.

Quant aux calculs pour quantifier l'effet de la prolongation du temps de refroidissement sur l'activité et sur la chaleur de décroissance du combustible irradié, on a tenu compte de la contribution des 31 NL et des 160 PF explicites de la chaîne d'évolution sur laquelle se sont basés les calculs de cette thèse. Comme souligné précédemment, la contribution du ¹⁰⁶Rh, du ^{137m}Ba et du ¹⁴⁴Pr a été aussi prise en compte en corrigeant opportunément les valeurs de leurs progéniteurs présents parmi les PF explicites.

3.4 Calculs des scénarios de transmutation à l'équilibre

Au cours de cette section on décrit les méthodes utilisées pour représenter l'irradiation du combustible en réacteur, pour déterminer sa composition d'équilibre et pour évaluer les principales caractéristiques neutroniques des réacteurs dédiés au début et à la fin de chaque cycle d'irradiation. On mentionnera ensuite les méthodes utilisées pour reconstruire et modéliser un parc nucléaire à l'équilibre. Les définitions complètes de l'état d'équilibre d'un réacteur et du parc nucléaire seront données au cours du chapitre qui analyse les scénarios de transmutation à l'équilibre (section 5.2).

3.4.1 Modélisation du cycle du combustible

Avant de décrire en détail les méthodes utilisées au cours de cette thèse pour la modélisation du cycle du combustible, il est opportun d'introduire brièvement les problématiques liées au cycle du combustible et à la gestion du cœur.

En général le combustible frais, issu de l'usine de fabrication, n'est pas mis immédiatement en pile mais il est stocké en réserves pendant un certain temps; une fois introduit dans le cœur il est irradié jusqu'à rejoindre le taux de combustion moyen de projet et est alors sorti du réacteur. Le combustible irradié est ensuite entreposé dans une piscine de refroidissement pour en réduire l'activité et la chaleur de décroissance; à la suite de cette période de refroidissement, le combustible est prêt pour être retraité. Les NL issus du retraitement sont mélangés avec d'autres NL externes (le combustible de "top-up") pour la fabrication du nouveau combustible.

Au cours de l'introduction du combustible en pile, la gestion du cœur peut être faite selon 2 philosophies différentes:

- déchargement-rechargement en bloc où tout le cœur est chargé avec du combustible frais et est ensuite entièrement déchargé après l'irradiation
- déchargement fractionné où la durée de l'irradiation est divisée en un certain nombre de cycles et, à chaque cycle, seulement les assemblages plus irradiés sont déchargés et remplacés par du combustible neuf

Dans le cas du déchargement fractionné du combustible, à chaque arrêt du réacteur on déplace les éléments de combustible en rassemblant dans les régions centrales du cœur les éléments les plus dégradés; cela permet de réduire la perte de réactivité par cycle, d'améliorer la distribution de puissance et de rendre plus uniforme le taux de combustion moyen.

Dans le premier cas le réacteur ne doit pas être arrêté pour les opérations de déchargement, redistribution et chargement des éléments de combustible; tout de même des arrêts périodiques sont nécessaires pour l'inspection et la maintenance du réacteur. Par contre cette option ne permet pas de brûler de manière homogène tous les éléments de combustible car ceux qui sont placés dans les zones à faible flux ne sont brûlés que partiellement par rapport aux autres placés dans les zones centrales du cœur et plus riches en neutrons. L'option de fractionner le combustible permet, au contraire, d'obtenir un taux de combustion moyen plus homogène pour tous les assemblages au prix d'une légère diminution du facteur d'utilisation.

Au cours de cette thèse, le cycle du combustible a été modélisé de façon soignée grâce à l'utilisation d'une chaîne de décroissance très détaillée et à la possibilité de représenter explicitement les périodes d'irradiation à puissance nominale et les périodes d'évolution à puissance nulle. La Figure 3.6 décrit la modélisation du cycle du combustible effectuée avec ERANOS pour un réacteur avec une gestion du cœur par quarts.

Pour la recherche de la composition à l'équilibre du combustible, le cœur est chargé/déchargé en bloc, sans tenir compte d'un éventuel déchargement fractionné du réacteur. On charge initialement le cœur avec une composition du combustible d'essai et on laisse évoluer le cœur selon le schéma décrit ci-dessus dans la Figure 3.6. Après le temps de refroidissement, le combustible irradié est immédiatement retraité: tous les PF et la partie de NL correspondante au taux de pertes vont aux déchets, tandis que la majorité des NL est mélangée avec le "top-up" provenant des autres réacteurs du parc pour la fabrication du combustible frais. Pour des raisons de simplicité on suppose que la séparation et la fabrication du combustible se produisent instantanément. A la suite de cette procédure on obtient une nouvelle composition du combustible frais qui est réintroduite dans un nouveau calcul ERANOS pour une nouvelle itération de calcul. Cette procédure itérative est arrêtée quand la composition du combustible ne change plus de façon

significative après 2 itérations successives (la différence entre 2 calculs successifs est inférieure à 0.05% pour les isotopes les plus importants).



Figure 3.6: Modélisation du cycle du combustible (gestion du cœur par quarts)

Tout au long de cette procédure de calcul d'équilibre, la concentration du diluant dans le "top-up" (pour les réacteurs critiques) ou la fraction des NL dans le combustible (pour les réacteurs hybrides) ont été constamment optimisés de façon à atteindre le coefficient de multiplication envisagé²⁶, c'est-à-dire un $k_{eff} = 1$ en FDC (Fin De Cycle) pour les réacteurs critiques et le k_{eff} de projet en DDC (Début De Cycle) pour les systèmes hybrides. Pour ces analyses on a utilisé les formules approchées suivantes pour la détermination du coefficient de multiplication au début et à la fin du cycle:

$$k_{eff}(BOEC) = \frac{\sum_{i=1}^{N} k_{eff}(T_{i,d})}{N} \text{ et } k_{eff}(EOEC) = \frac{\sum_{i=1}^{N} k_{eff}(T_{i,f})}{N}, \text{ où } T_{i,d} \text{ et } T_{i,f} \text{ ont été définis dans la}$$

Figure 3.5.

Un autre aspect important de la modélisation du réacteur est lié au découpage du cœur en différentes régions d'évolution, vu l'impact important que cela a sur la perte de réactivité dans le système. Dans le cas de réacteurs chargés en bloc, où on ne repositionne pas les éléments de combustible, on a subdivisé le cœur en différentes régions évoluantes soit axialement soit radialement de façon à tenir compte de

l'inhomogénéité du niveau du flux et du spectre neutronique dans chaque région. Dans le cas de systèmes où le combustible est repositionné à chaque cycle de façon à avoir une irradiation plus homogène de tous les éléments, on a effectué uniquement un découpage axial du cœur sans aucune subdivision radiale. Un tel traitement permet ainsi de modéliser plus correctement le niveau de flux et le spectre neutronique propres de chaque assemblage de combustible.

Les calculs de recherche de la composition à l'équilibre du combustible ont été effectués en utilisant une chaîne d'évolution contenant 31 NL jusqu'au ²⁴⁸Cm et 80 PF explicites. Une fois obtenue la composition à l'équilibre en NL on a réalisé un calcul d'évolution complet en utilisant les 160 PF de façon à obtenir les concentrations des PF les plus détaillées pour la caractérisation du combustible au retraitement.

Une fois obtenue la composition du combustible en conditions d'équilibre, il est nécessaire de déterminer les caractéristiques du cœur pour les systèmes qui utilisent le déchargement fractionné du combustible. Dans ces systèmes, en conditions d'équilibre, la composition du cœur et les caractéristiques du réacteur se répètent à chaque cycle. Pour obtenir les caractéristiques du cœur à l'équilibre en début et en fin de cycle on a donc suivi la démarche suivante: pour chaque région d'évolution on a calculé la composition moyenne des NL et des PF en début de cycle (obtenue comme moyenne des concentrations aux différents $T_{j,d}$) et on a ensuite fait évoluer le réacteur pour 1 cycle afin d'obtenir les caractéristiques du cœur en FDC. Cette méthode de calcul a été suivie aussi pour le calcul des coefficients de sécurité du réacteur en DDC et en FDC et pour déterminer la source externe de neutrons dans le cas des systèmes hybrides. En particulier la source externe de neutrons et la puissance moyenne requise par l'accélérateur de particules ont été obtenues comme moyenne entre les valeurs en DDC et en FDC²⁷.

3.4.2 Remontage du parc

Une fois établies les caractéristiques de chaque réacteur avancé, il est nécessaire de reconstruire la composition du parc nucléaire correspondant à chaque stratégie étudiée; il s'agit donc de déterminer la fraction de chaque réacteur dans le parc de façon à satisfaire les bilans massiques entre les différents réacteurs du parc. Dans un parc nucléaire en équilibre, en effet, la masse de TRU produite par les réacteurs à eau légère doit être exactement égale à celle introduite dans les réacteurs dédiés à la transmutation. Une fois satisfaites ces conditions, on obtient la composition du parc et la contribution de chaque système à la puissance thermique totale. En dernier, pour une comparaison cohérente des différents schémas de transmutation, toutes les grandeurs d'intérêt ont été normalisées à la même énergie

²⁶ Il est intéressant de souligner que cet ajustement continuel des caractéristiques du combustible ou du "top-up" rend le processus de convergence vers la situation d'équilibre beaucoup plus lent.

²⁷ Pour le dimensionnement de l'accélérateur de protons, il est nécessaire d'évaluer la puissance maximale au cours de l'irradiation; dans les deux cas traités elle correspond à la valeur en FDC.

produite dans le parc (1 TWh_e); cette normalisation tient correctement compte de toutes les caractéristiques propres de chaque réacteur, telles que le facteur d'utilisation, l'efficacité de la conversion de l'énergie thermique en énergie électrique et l'énergie requise par l'accélérateur de particules dans le cas des systèmes hybrides.

4 Définition et analyse du benchmark

En constatant la nécessité d'une validation des données nucléaires de base et des codes de calcul dans le domaine de la transmutation, le NSC de l'AEN a proposé en 1994 un premier benchmark pour comparer différentes options de transmutation basées sur le couplage des REP avec des RNR ou des ADS [NEA-00a]; la description schématique des différents cycles de combustible proposés dans ce benchmark est donnée dans la Figure 4.1. Le concept couplant les ADS aux REP a été analysé seulement par trois participants et de considérables différences ont été observées pour d'importants paramètres neutroniques. En 1999 un deuxième benchmark a été ainsi mis en place avec l'objectif de clarifier et de résoudre les différences apparues lors de l'exercice précédent et, surtout, pour vérifier la fiabilité et la précision des différents codes de calcul utilisés pour un système hybride dédié à la transmutation des AM.

Un système hybride incinérateur d'actinides mineurs se distingue en plusieurs aspects par rapport à un RNR "standard", refroidi au sodium, pour lesquels les outils de calcul ont été validés. Avant tout le combustible est composé principalement par des actinides mineurs et par du plutonium très dégradé et ne contient qu'une faible fraction d'uranium. En plus, on envisage d'utiliser des caloporteurs alternatifs au sodium, comme l'eutectique plomb-bismuth ou l'hélium. La présence dans le cœur d'isotopes dont les données nucléaires de base sont moins bien connues augmente l'incertitude sur les calculs. D'autres difficultés sont aussi liées à la présence, au milieu du cœur, d'une source de neutrons à haute énergie et d'une région vide correspondant au canal de passage du faisceau de protons.

Le travail effectué au cours de cette thèse a contribué de façon significative à la définition du nouveau benchmark et à l'analyse et la publication des résultats qui en a suivi. La modélisation de la source externe de neutrons et du réacteur sous critique, son optimisation en tant que brûleur d'actinides mineurs ainsi que le calcul de toutes les données nécessaires aux spécifications du benchmark ont été effectuées au PSI. L'auteur de cette thèse a aussi participé au benchmark avec une solution jointe CEA/PSI, s'est chargé de l'analyse des résultats soumis par les participants et a contribué à la rédaction du rapport final de l'AEN.

Ce chapitre est structuré en quatre sections: la première donne un aperçu des résultats du benchmark précédent et la section 4.2 présente la méthodologie qui a conduit à la réalisation du modèle de l'ADS incinérateur d'actinides mineurs utilisé dans le dernier benchmark. Dans la section 4.3 on compare les solutions soumises et on cherche à clarifier les différences observées à l'aide d'études paramétriques effectuées avec ERANOS, tandis que la dernière section résume les conclusions principales de l'étude.

4.1 Rappel des résultats du benchmark précédent

Le modèle de l'ADS choisi pour le benchmark de 1994 a été développé par JAERI dans le cadre du programme OMEGA et a été optimisé pour l'incinération des AM provenant du recyclage du combustible REP. Il s'agit d'un réacteur sous critique refroidi au sodium, chargé avec du combustible de type nitrure et piloté par un faisceau de protons de 1 GeV d'énergie. La région d'impact des protons est constituée par une cible solide en tungstène. Le modèle géométrique du réacteur est très simple et prévoit un découpage du cœur en 5 régions homogènes: 1 pour le combustible, 1 pour le réflecteur, 2 pour la cible et 1 pour le canal vide d'où provient le faisceau de protons.

Figure 4.1: Description schématique des concepts de transmutation analysés dans le premier benchmark



Les participants ont analysé deux compositions différentes du combustible, obtenues en mélangeant de façon appropriée le plutonium et les actinides mineurs issus d'un REP-UOX (cas 1) et d'un REP-MOX (cas 2). La composition du plutonium et des actinides mineurs déchargés des REP a été préalablement calculée dans une étape précédente de ce benchmark et leur proportion dans le combustible a été ajustée de façon à obtenir le niveau de sous criticité souhaité. Les spécifications fixent donc la composition du combustible en début d'irradiation qui correspond à une situation de "start-up", c' esà-dire au premier cycle du multirecyclage des TRU dans les ADS.
L'objectif de ce benchmark représentatif des ADS est d'évaluer les performances des données de base et des codes de calcul utilisés pour déterminer (a) les caractéristiques de la source neutronique externe, (b) les caractéristiques neutroniques du cœur en DDV (Début De Vie) et (c) l'évolution du coefficient de multiplication et de la composition du combustible au cours de l'irradiation. Bien que la participation à cet exercice ait été satisfaisante, avec un total de 15 solutions, seulement trois organisations, IPPE (Russie), JAERI (Japon) et PSI (Suisse), ont participé à la partie concernant les ADS, chacune utilisant des données de base différentes; les possibilités d'analyse des résultats ont été ainsi quelque peu limitées.

Les résultats des calculs de l'interaction entre les protons et la cible sont en bon accord, en particulier pour les grandeurs les plus importantes: le nombre moyen de neutrons de spallation obtenus par proton incident et la distribution axiale des neutrons à l'interface entre la cible et la région du combustible.

Si on analyse les principales caractéristiques du cœur en DDI (Début D'Irradiation), le spectre neutronique et l'énergie moyenne des neutrons montrent un très bon accord entre les deux solutions de JAERI et PSI. Par contre on peut observer de différences notables sur la valeur du coefficient de multiplication et sur les taux de réaction de certains actinides mineurs, en particulier sur le taux de capture du ²³⁷Np, de l'²⁴¹Am et du ²⁴⁴Cm. Pour ce qui concerne le k_{eff}, PSI et JAERI obtiennent des valeurs très proches, tandis que la solution de IPPE se différencie de plus de 3%. Les résultats de PSI et de JAERI montrent aussi une différence de plus de 30% sur le flux neutronique induit par un courant de protons donné, ce qui affecte considérablement l'estimation de la puissance requise par l'accélérateur.

Comme attendu, les plus grandes discordances ressortent des calculs d'évolution: en particulier l'évolution du coefficient de multiplication est très différente entre les solutions de PSI et de JAERI, soit pour la perte de réactivité à la fin de l'irradiation soit pour l'allure de la courbe du k_{eff} . L'estimation de la composition isotopique du combustible en FDI, donne lieu aussi à des écarts considérables, de l'ordre de 10%, pour des actinides "importants", tels que le ²³⁷Np, l'²⁴¹Am et l'²⁴³Am.

Ce benchmark sur les ADS a mis en relief l'insuffisance des données nucléaires de base et/ou des outils de calcul actuels pour l'analyse de systèmes avancés fortement chargés en actinides mineurs mais le manque de résultats détaillés et la participation numériquement modeste n'ont pas permis de trouver des explications convaincantes aux écarts observés entre les solutions. Les auteurs de cet exercice soulignent ainsi la nécessité d'analyses ultérieures et plus détaillées et souhaitent la réalisation d'un nouveau benchmark. Cela permettrait de résoudre les différences observées dans cet exercice et, plus en général, d'améliorer la fiabilité des codes de calculs, des données de base et la compréhension des phénomènes physiques liés à la transmutation.

4.2 Préparation du modèle du benchmark²⁸

Le deuxième benchmark a été spécifiquement étudié et optimisé pour incinérer les actinides mineurs dans un scénario de type Double Strata, qu'on représente schématiquement dans la Figure 4.2. Cette stratégie prévoit de séparer la gestion du plutonium, effectuée dans le premier stratum, de celle des actinides mineurs, multirecyclés dans le deuxième stratum. Le premier stratum est ainsi composé par deux types de réacteurs, REP classiques de type N4 et RNR de type CAPRA HBU. Le plutonium issu de la séparation du combustible UOX (Uranium OXide) irradié est recyclé deux fois dans les REP-MOX avant d'être multirecyclé en cycle fermé dans le réacteur CAPRA. Lors de la séparation du combustible irradié, les actinides mineurs sont transférés dans le deuxième stratum pour être incinérés dans le réacteur hybride défini au cours de ce benchmark. Dans le cadre d'une stratégie de Double Strata, le deuxième stratum du parc nucléaire a essentiellement la fonction d'incinérer les AM et non pas de produire de l'énergie électrique: en effet l'ADS dédié à l'incinération des AM représente seulement 5% de la puissance thermique du parc. Le réacteur hybride incinérateur d'actinides mineurs a été ainsi optimisé en considérant uniquement ses caractéristiques neutroniques et ses performances d'incinération, sans donner beaucoup d'importance à son économie comme producteur d'énergie.



Figure 4.2: Description schématique du scénario Double Strata

²⁸ Références générales pour cette section: [ALM-93] [BTS-88] [IAE-96].

Pour le modèle de l'ADS, que l'on nommera par la suite MAB (Minor Actinide Burner), on s'est basé sur le réacteur modulaire PRISM (Power Reactor Inherently Safe Module), proposé par GE (General Electric) et étudié en grand détail dans les années 80. Il s'agit d'un concept de RNR très innovateur, avec des caractéristiques intrinsèques de sûreté qui permettent de minimiser le besoin de systèmes de sécurité et dont la petite taille simplifie le transport de l'usine de fabrication centrale au site nucléaire et contribue ainsi à réduire les coûts de construction et le temps de mise en œuvre. Il utilise aussi un combustible innovant de type métallique et une nouvelle méthode pour la séparation du combustible irradié, avec l'utilisation de procédés de type pyrochimiques. Le réacteur, de petite taille, est refroidi au sodium et est légèrement surgénérateur.

L'optimisation d'un ADS à partir d'un modèle de cœur critique qui a déjà été analysé en grand détail dans le passé a deux avantages importants. D'une part cela permet de connaître déjà les performances du cœur chargé avec du combustible standard soit en cas de fonctionnement nominal soit en cas d'accident. D'autre part cela permet d'avoir aussi un projet très détaillé de toute l'installation nucléaire et de profiter du travail déjà effectué en terme de dimensionnement des différents assemblages et éléments du cœur. On renvoie à l'Annexe B.1 pour une description plus détaillée du cœur PRISM.

Le choix des matériaux constituant le cœur intègre les options technologiquement les plus prometteuses pour le projet d'un réacteur hybride et a été l'objet d'une concertation parmi les experts du NSC. On a retenu l'option d'utiliser l'eutectique plomb-bismuth comme matériel pour la cible de spallation et on a choisi d'employer ce même matériel comme caloporteur. Les tendances actuelles pour le projet d'un ADS convergent en effet vers une cible liquide en Pb ou Pb-Bi et sur des caloporteurs alternatifs au sodium (gaz, Pb ou Pb-Bi). Compte tenu de ses excellentes propriétés de solubilité avec les actinides mineurs, on a choisi un combustible de type nitrure²⁹, dilué dans une matrice inerte de ZrN. Pour ce qui concerne le niveau de sous criticité du réacteur hybride, on a choisi un k_{eff} proche à 0.95 de façon à avoir une marge d'anti-réactivité suffisante en DDI et à tout instant du cycle d'irradiation. En effet, à cause de la large fraction d'AM dans le combustible, le cœur à l'équilibre a des coefficients de sûreté et un β_{eff} très dégradés et nécessite ainsi une marge d'anti-réactivité élevée. En plus le coefficient de multiplication augmente au cours des premières 2 années d'irradiation, ce qui réduit encore plus la marge d'anti-réactivité par rapport à la situation en DDI. La description du modèle géométrique du MAB sera donnée au cours du paragraphe 4.2.1.

Comme on vient de rappeler, le benchmark précédent prévoyait uniquement l'analyse de combustibles de type de "start-up", qui constituent le premier cycle d'une stratégie de multirecyclage des actinides mineurs. Au contraire, au cours de cet exercice, on analysera aussi un combustible d'équilibre, c' esà-dire obtenu après un nombre de cycles d'irradiation en théorie infini. On renvoie au paragraphe 4.2.2 pour une

description plus détaillée de ces combustibles et de la méthode utilisée pour le calcul de la composition d'équilibre.

Au cours des deux paragraphes suivants on décrira enfin les dernières étapes nécessaires à la définition des spécifications du benchmark: le calcul de la distribution spatiale et énergétique des neutrons de spallation et l'optimisation de la hauteur de la cible de spallation.

4.2.1 Modèle géométrique du réacteur

La définition de la géométrie du cœur du MAB, qu'on présente dans la Figure 4.3, a été faite en deux étapes: en premier on a adapté le cœur PRISM aux contraintes associées à l'utilisation d'un nouveau caloporteur (Pb-Bi au lieu du Na), de nouveaux supports fissiles (nitrure au lieu du métal) et à l'introduction de la cible de spallation au milieu du cœur. Cette optimisation a été faite à partir du modèle hétérogène du cœur et des assemblages du réacteur PRISM, dans la configuration de brûleur de plutonium qui a une hauteur active du combustible de 1 mètre. On a ensuite simplifié le plus possible la géométrie du cœur en obtenant un modèle contenant un nombre minimal de régions homogènes. Cela permet une description plus aisée du cœur et de focaliser l'attention sur les difficultés de cet exercice, la composition inusuelle du combustible et du caloporteur et la présence d'une source de neutrons de spallation au milieu du cœur.

En premier on a adapté la géométrie des assemblages du combustible afin de tenir compte de la grande puissance de pompage nécessaire à la circulation du Pb-Bi. Dans le but d'augmenter la surface de passage du caloporteur on a réduit de 271 à 217 le nombre d'aiguilles par assemblage tout en laissant inchangées les dimensions de l'aiguille par rapport au modèle PRISM original. Cela a permis d'adapter le paramètre géométrique "pas d'assemblage/diamètre de l'aiguille" aux nécessités du caloporteur plomb-bismuth; la valeur de ce paramètre est passée de 1.45 pour l'assemblage PRISM à 1.62 pour l'assemblage du MAB. Pour compenser la diminution du nombre d'aiguilles de combustible qui en résulte, on a proportionnellement réduit la puissance thermique dégagée dans le cœur de 471 MW aux 377 MW du benchmark.

On a dû ensuite modifier la géométrie du cœur PRISM pour permettre l'introduction de la cible de spallation au centre du cœur. Le dimensionnement du module de spallation doit tenir compte soit des contraintes "géométriques" du cœur soit des contraintes physiques des matériaux. En effet la cible doit être insérée au centre du cœur, dans un réseau d'assemblages hexagonaux; elle peut ainsi occuper seulement un certain nombre d'assemblages, 1 (assemblage central), 7 (première couronne d'assemblages) ou 19 (premières 2 couronnes d'assemblages). D'autre part la surface d'impact du

²⁹ Pour simplicité de calcul et pour éviter la formation de ¹⁴C au cours de l'irradiation, on suppose d'utiliser du ¹⁵N pur.

faisceau doit être déterminée en tenant compte de l'intensité maximale du faisceau de protons au cours de

l'irradiation. En rappelant que I est donné par la relation $I = \frac{P \cdot q \cdot v}{E_f \cdot Z \cdot \phi^*} \cdot \frac{1 - k_{eff}}{k_{eff}}$ et en utilisant les

valeurs suivantes comme référence (Z = 35 n/p, $\phi^* = 0.9$, v = 3 n/fission, $E_f = 3.2$ E-11 J, k_{eff} (FDC) = 0.92) on obtient un courant de protons maximal sur la cible de 15.6 mA. Si on considère une valeur limite pour la cible en plomb-bismuth de 20 μ A/cm², on obtient une surface minimale pour la cible d'environ 781 cm², qui correspond à la surface d'environ 4.4 assemblages. Pour le modèle du MAB on a donc choisi d'insérer la cible liquide en Pb/Bi dans les 7 assemblages centraux du cœur, ce qui correspond à une surface totale d'environ 1257 cm².

La réalisation du modèle géométrique du MAB a tenu compte de l'exigence de simplifier le plus possible ce réacteur; le modèle définitif en R-Z est présenté dans la Figure 4.3, et la composition isotopique de chaque région du cœur est donnée dans l'Annexe B.2.



Figure 4.3: Modèle géométrique du cœur MAB (dimensions en cm)

Le réacteur MAB comprend quatre régions différentes, une cible centrale en plomb-bismuth, une région vide correspondant au canal de passage des protons, une région de multiplication des neutrons et un réflecteur qui entoure le combustible. La région du combustible est constituée par une pâte homogène qui inclut le combustible en forme de mono-nitrures, la matrice inerte en ZrN, la gaine en acier HT9, le caloporteur et les autres matériaux de structure et tient aussi compte du vide à l'interface entre la pastille de combustible et la gaine. Les assemblages de sûreté et de contrôle n'ont donc pas été inclus dans cette modélisation. La région externe du réflecteur est constituée par un mélange homogène d'acier (70% en

volume) et caloporteur (le restant 30%); cette composition est une moyenne parmi les valeurs du réflecteur axial, du réflecteur radial et des protections neutroniques latérales (respectivement 62%, 81% et 71% en volume pour l'acier). On a enfin défini une température de fonctionnement de 980 °K pour le combustible et de 650 °K pour les autres régions du cœur, réflecteur et cible.

4.2.2 Composition du combustible

Au cours de ce benchmark on a proposé l'étude de deux compositions différentes de combustible, qui correspondent respectivement à la situation de "start-up" et à celle d'équilibre pour le parc nucléaire de type Double Strata montré en Figure 4.2. Au cours de cette analyse on a fait l'hypothèse que le premier stratum a déjà atteint une condition d'équilibre et donc que la quantité et la composition des actinides mineurs allant au deuxième stratum sont constantes.

Afin de déterminer la composition du combustible du MAB, il est indispensable de connaître le vecteur isotopique des actinides mineurs qui vont au deuxième stratum. Le premier stratum du parc nucléaire considéré dans cette étude est composé pour 71% de réacteurs REP-UOX, pour 11% de réacteurs REP-MOX (premier et deuxième recyclage du Pu en REP) et pour le restant de 18% de réacteurs RNR de type CAPRA standard (multirecyclage indéfini du plutonium). Pour le calcul on a assumé un taux de combustion moyen de 33 GWj/t_{NL} pour le combustible des REP et de 185 GWj/t_{NL} pour le combustible du réacteur CAPRA et un temps de refroidissement de 5 ans pour tout type de combustible. Le calcul du bilan massique des réacteurs du premier stratum a été effectué au Centre d'Etudes de Cadarache du CEA [Tom-98]; on donne dans l'Annexe B.3 la composition du combustible irradié au moment du retraitement.

Une fois connue la composition des AM provenant du premier stratum et utilisés comme "top-up" pour le réacteur MAB, on a calculé la composition du combustible à l'équilibre. On a avant tout estimé une composition à l'équilibre approchée avec la méthode directe décrite dans la référence [WK-94]. Cette méthode modélise un cycle de combustible fermé et permet d'estimer la composition à l'équilibre moyenne du cycle à partir des taux de réactions microscopiques et du flux moyen des neutrons. A partir de ces valeurs approchées, on a déterminé la quantité de matrice inerte dans le combustible qui permet d'obtenir, en DDI, un k_{eff} de 0.95; la dilution du combustible à l'équilibre avec une matrice inerte est nécessaire car le cœur serait autrement trop réactif. Le combustible à l'équilibre est ainsi composé par 71% (en nombre d'atomes) de ZrN et par le restant de 29% de AcN.

Une fois définies toutes les caractéristiques du combustible, on a enfin affiné la composition à l'équilibre obtenue précédemment par une série de calculs itératifs effectués avec ERANOS; cela a permis de modéliser correctement les périodes de refroidissement hors pile et de calculer l'évolution du combustible lors de l'irradiation en pile.

La définition du combustible de "start-up", constitué par un mélange approprié des actinides mineurs du "top-up" et du plutonium issu du combustible REP-UOX, a été moins laborieuse: étant donné que la proportion entre combustible et matrice inerte a déjà été fixée lors de l'optimisation du combustible à l'équilibre, on a simplement ajusté les fractions respectives de Pu et d'AM dans le combustible afin d'obtenir un k_{eff} en DDI d'environ 0.95.

Les vecteurs isotopiques du "top-up", du combustible de "start-up" et de celui d'équilibre sont présentés dans la Figure 4.4. Un tableau plus détaillé contenant toutes les valeurs numériques est donné en Annexe B.3.

Figure 4.4: Comparaison des vecteurs isotopiques du "top-up" ainsi que du combustible de "start-up" et à l'équilibre du benchmark (%)



La composition isotopique du combustible de "start-up" et à l'équilibre est très différente par rapport à celle normalement étudiée pour des RNR standard et pour laquelle les outils de calcul ont été validés. En particulier les cœurs du benchmark contiennent une fraction importante d'actinides mineurs et n'utilisent pas d'uranium: le cœur de start-up est exclusivement chargé avec des TRU tandis que le cœur à l'équilibre contient environ 5% d'uranium, en majorité ²³⁴U. L'uranium s'accumule dans le combustible au cours des cycles d'irradiation à cause des décroissances α des isotopes du plutonium, en particulier du ²³⁸Pu. Il faut enfin souligner que les deux combustibles proposés pour ce benchmark sont aussi remarquablement différents: la qualité du plutonium, très bonne dans la configuration de "start-up", se dégrade nettement au cours du multirecyclage du combustible, avec une accumulation des isotopes pairs

dans le combustible à l'équilibre. Le combustible à l'équilibre est donc caractérisé par un vecteur isotopique du plutonium très dégradé et par une forte teneur en isotopes à haut nombre de masse comme le curium. La grande différence de composition isotopique entre les deux cœurs analysés est néanmoins un autre atout important de ce benchmark car cela permet de tester et de valider l'application des codes de calcul à un large éventail de cœurs.

4.2.3 Calcul de la distribution des neutrons de spallation

L'objectif principal de ce benchmark est de tester les méthodes de calcul pour des systèmes hybrides fortement chargés en actinides mineurs et refroidis par du plomb-bismuth. De plus, on a voulu focaliser l'attention sur les phénomènes physiques au-dessous du seuil de 20 MeV, car les résultats du benchmark précédent ont montré un bon accord parmi les différentes solutions dans le domaine des hautes énergies. On a donc découplé le calcul à haute énergie (analyse des phénomènes de spallation et calcul de la distribution spatiale et énergétique des neutrons) du calcul dans le domaine énergétique des réacteurs critiques, en-dessous de 20 MeV. En pratique, la distribution des neutrons de spallation en espace et en énergie a été préalablement calculée au PSI avec le code de calcul HETC et fournie aux participants avec un programme en Fortran qui permet d'adapter la distribution énergétique aux différentes structures énergétiques utilisées par les participants. La standardisation de la source externe de neutrons a ainsi le double objectif de limiter les possibles causes d'incertitude dans les résultats aux seuls phénomènes endessous des 20 MeV et de permettre aussi la participation à ce benchmark aussi aux organisations qui n'ont pas la possibilité d'effectuer des calculs aux énergies intermédiaires.

Le MAB est piloté par un accélérateur qui produit un faisceau de protons monochromatiques de 1 GeV d'énergie. Pour le calcul HETC on suppose que le faisceau de protons, de 10 cm de rayon, atteint le centre de la cible de spallation avec une distribution parabolique. Le modèle géométrique du cœur utilisé dans le calcul HETC est le même que celui montré dans la Figure 4.3 et permet d'obtenir la distribution spatiale et énergétique des neutrons issus des spallations dans tout le cœur.

Dans la Figure 4.5 on donne la distribution des neutrons obtenue avec HETC en fonction du rayon; pour cette représentation on a utilisé un maillage radial de 2.5 cm. 63% des neutrons sont produits dans une région de 10 cm de rayon et 95% des neutrons "externes" sont produits dans la cible. Le reste des neutrons (5%) se trouve dans la région du combustible et du réflecteur axial, avec rayon compris entre 20 et 92 cm et seulement 0.02% des neutrons sont produits dans le réflecteur radial. Afin de simplifier les spécifications du benchmark, on a fixé une distribution radiale des neutrons de spallation plate pour R \leq 10 cm et nulle ailleurs.

La distribution axiale des neutrons de spallation a aussi été simplifiée pour les spécifications du benchmark. Dans la Figure 4.6 on donne la distribution axiale des neutrons de spallation telle qu'elle a été

définie dans le benchmark. Il est intéressant de remarquer qu'environ le 60% des neutrons "externes" se forment dans les premiers 20 cm de la cible.

Figure 4.5: Distribution radiale des neutrons (E < 20 MeV) issus de la source externe (%)



Figure 4.6: Distribution axiale simplifiée des neutrons (E < 20 MeV) issus de la source externe (%)



Pour compléter l'analyse de caractérisation de la source de neutrons "externe", on compare dans la Figure 4.7 la distribution énergétique des neutrons issus de spallation et ralentis au-dessous de 20 MeV avec celle des neutrons de fission, obtenue avec un calcul de cellule ECCO (European Cell Code). Cette représentation montre clairement que le spectre des neutrons de spallation est plus dur que celui des neutrons de fission.

Figure 4.7: Distribution énergétique des neutrons issus de la source externe (énergie de coupure à 20 MeV) avec le spectre de fission du combustible à l'équilibre (fraction de neutrons par unité de léthargie)



4.2.4 Etude paramétrique sur la hauteur de la cible

Afin d'établir le modèle complet du réacteur hybride pour le benchmark, il est nécessaire de déterminer la hauteur optimale de la cible, que l'on nommera Z_T . Lors de la définition de la géométrie du benchmark on a choisi la configuration avec $Z_T = 150$ cm (Figure 4.3), dans laquelle la hauteur de la cible coïncide avec l'interface supérieure entre le combustible et le réflecteur. Ce choix n'est pas optimal du point de vue de l'optimisation neutronique du cœur, mais permet d'éviter la présence d'une région vide dans le centre du cœur, à contact direct avec le combustible: ce qui aurait augmenté les difficultés et les incertitudes du calcul.

Il est néanmoins intéressant d'évaluer l'impact du changement du point d'impact du faisceau de protons, et donc de la distribution spatiale de la source externe, sur les principaux paramètres intégraux

du cœur: on a ainsi fait une étude paramétrique en variant Z_T de 100 cm (moitié axiale du cœur) à 150 cm (sommet de la région combustible).

Le Tableau 4.1 résume les résultats plus importants de cette étude paramétrique, tels que les coefficients de multiplication homogène et inhomogène, l'importance des neutrons de spallation, l'intensité de la source externe de neutrons et le facteur de forme³⁰. Les Figures 4.8 et 4.9 montrent enfin les distributions axiales du flux neutronique axial au centre du cœur ($\mathbf{R} = 0$ cm) et du milieu du combustible ($\mathbf{R} = 56$ cm).

	100	110	120	130	140	150
k _{hom}	0.9382	0.9384	0.9388	0.9402	0.9420	0.9436
k _{inh}	0.9396	0.9418	0.9424	0.9413	0.9384	0.9327
$oldsymbol{arphi}^*$	1.024	1.062	1.065	1.020	0.938	0.829
Source externe (10 ¹⁵ n/s)	2243.49	2157.22	2135.95	2176.82	2291.85	2516.91
Facteur de forme	3.087	3.085	3.088	3.095	3.113	3.155

Tableau 4.1: Caractéristiques principales du cœur à l'équilibre en fonction de la hauteur de la cible

D'après les calculs effectués, la hauteur optimale de la cible est de 120 cm; dans cette situation les neutrons de la source externe sont utilisés le plus efficacement ($\varphi^* = 1.065$) et l'intensité requise à l'accélérateur est minimale. Cette position de la cible permet aussi de repartir le plus uniformément les neutrons externes de la source parmi les 2 moitiés axiales du cœur: on rappelle qu'environ 60% des neutrons externes sont produits dans les premiers 20 cm de la cible. La présence de neutrons de spallation dans les régions de la cible à plus faible importance neutronique, ainsi que la forte asymétrie axiale de leur distribution, permet d'expliquer la moins bonne utilisation des neutrons de spallation lorsque la hauteur de la cible est de 140 et 150 cm. Dans ces deux cas on observe une diminution du coefficient de multiplication inhomogène, liée à une nette diminution de l'importance des neutrons de spallation; le système requiert ainsi un plus grand nombre de neutrons externes afin de maintenir la réaction en chaîne.

La variation du point d'impact du faisceau de protons n'a qu'une faible influence sur le facteur de forme et donc sur le pic de puissance dans le cœur. Le positionnement de la surface d'impact des protons à proximité du centre du cœur (Z_T compris entre 100 et 120 cm) permet d'obtenir une distribution du flux neutronique plus symétrique et donc d'avoir un facteur de forme plus favorable.

³⁰ On définit comme facteur de forme le rapport entre la puissance maximale et la puissance moyenne dans la région du combustible.



Figure 4.8: Traverse axiale du flux neutronique au centre du cœur (R=0 cm) pour différentes hauteurs de la cible

Figure 4.9: Traverse axiale du flux neutronique au milieu du combustible (R=56 cm) pour différentes hauteurs de la cible



La distribution du flux neutronique au centre de la cible (R = 0 cm) est corrélée avec la position de l'interface cible-canal vide: les pics du flux se situent en effet 17-18 cm au-dessous du point d'impact du faisceau de protons. Les pics du flux sont constamment espacés de 10 cm (i.e. variation minimale du paramètre Z_T) et leur valeur absolue est fonction de l'intensité de la source externe de neutrons.

L'observation de la traverse axiale au milieu du combustible met en relief un phénomène inattendu: la distribution du flux se déplace en sens axial en fonction de la surface d'impact des protons. Le pic du flux varie donc de 108 cm ($Z_T = 150$ cm) à 94 cm ($Z_T = 100$ cm); par contre on n'observe pas de variations significatives du niveau maximal du flux. La distribution du flux de neutrons plus symétrique par rapport au centre du réacteur (Z = 100 cm) correspond à la hauteur optimale de la cible ($Z_T = 120$ cm). Le déplacement axial du flux au milieu de la région du combustible peut être expliqué par 2 effets qui se superposent. D'une part en diminuant la hauteur de la cible on modifie le point d'impact entre les protons et la cible et on change ainsi la distribution spatiale des neutrons de spallation en augmentant leur concentration dans la moitié inférieure du cœur. D'autre part en diminuant la hauteur de la cible on augmente la taille du canal vide au centre du cœur et, par conséquent, on favorise les fuites des neutrons à l'interface entre le combustible et le canal vide; on a donc, dans la moitié supérieure du cœur, une diminution du flux.

4.3 Analyse des résultats

Au cours de cette section on analysera les principaux résultats de ce benchmark et on cherchera à expliquer les différences observées parmi les participants. Les premiers deux paragraphes sont dédiés à la description des résultats demandés dans les spécifications du benchmark et à une présentation concise des différentes données de base et méthodes de solution utilisées par les participants à cet exercice. Enfin, les trois derniers paragraphes sont dédiés à l'analyse des solutions et à l'explication des écarts à l'aide de calculs supplémentaires effectués avec ERANOS. Le premier paragraphe regroupe les résultats des calculs en DDI, le deuxième traite les calculs d'évolution et le troisième analyse les autres résultats du benchmark.

4.3.1 Description des résultats requis

L'interprétation des résultats du premier benchmark sur les ADS a été quelque peu limitée par la quantité insuffisante des paramètres requis aux participants. Compte tenu de cet aspect, au moment de l'établissement de ce benchmark on a demandé un nombre maximal d'informations afin de pouvoir mieux interpréter les résultats et mieux expliquer les écarts parmi les solutions. On a ainsi structuré la solution du benchmark en 5 parties principales.

La première étape consiste dans un calcul de cellule classique, finalisé à l'établissement des sections efficaces multi-groupes qui seront utilisées par la suite pour le calcul de cœur. Au cours de cette phase on évalue les principaux paramètres intégraux du calcul de cellule, tels que le coefficient de multiplication en milieu infini (k_{inf}), le laplacien critique (B_{cr}^2) et l'aire de migration (M^2), ainsi que les sections efficaces de capture et de fission condensées à un seul groupe énergétique pour tous les noyaux lourds.

La deuxième étape de la solution du benchmark comporte un calcul de cœur à t = 0 avec normalisation du flux à la puissance thermique de 377 MW_{th}. Les participants doivent fournir les principaux paramètres intégraux qui caractérisent le cœur en DDI: le coefficient de multiplication effectif du cœur³¹ et les taux de réaction de capture et de fission pour tous les NL présents dans la région du combustible. On a aussi requis le calcul de la distribution énergétique des neutrons et celui d'indices de spectre appropriés au milieu de la région du combustible (R = 56 cm et Z = 100 cm). On a enfin évalué la distribution spatiale du flux neutronique, en particulier une traverse radiale du flux à la moitié du cœur (Z = 100 cm) et deux traverses axiales du flux au milieu de la cible de spallation (R = 0 cm) et du milieu de la région du combustible (R = 56 cm).

La troisième étape de cet exercice comporte un calcul d'évolution du combustible: on a simulé une irradiation de 5 ans à une puissance moyenne constante (320 MW)³². Les participants ont donné la valeur du coefficient de multiplication homogène et l'intensité de la source externe de neutrons après chaque année de fonctionnement du cœur. On a aussi calculé la valeur du coefficient de multiplication qu'on aurait en éliminant tout les PF accumulés au cours de l'irradiation; cela permet d'évaluer la contribution des PF à la perte de réactivité globale du cœur. Les participants ont enfin donné la composition isotopique du combustible à la fin de l'irradiation.

La quatrième partie de cet exercice se propose d'évaluer les principaux paramètres de sûreté des deux cœurs en début et en fin d'irradiation. On a ainsi calculé le coefficient de vidange du cœur, le coefficient Doppler pour le combustible et la valeur du bêta effectif (uniquement en DDI).

La dernière étape du benchmark se propose d'évaluer les caractéristiques les plus importantes du combustible pour le retraitement. On a ainsi calculé l'activité, la chaleur de décroissance et la source "interne" de neutrons du combustible irradié, en FDI et après des intervalles de temps de refroidissement fixés.

³¹ Pour éviter des ambiguïtés lors de la définition du coefficient de multiplication inhomogène (k_{inh}), on a demandé aux participants uniquement la valeur du coefficient de multiplication "classique" (k_{eff}) pour le système sans source externe de neutrons. La résolution du benchmark a donc comporté deux calculs de flux séparé à chaque intervalle d'irradiation: la résolution du problème homogène pour évaluer le k_{eff} du système et la résolution du problème inhomogène pour évaluer les principales caractéristiques neutroniques du cœur sous critique et pour calculer l'évolution du combustible.

³² Afin de simplifier les calculs d'évolution, on a fait l'hypothèse d'une irradiation à puissance constante tout au long de la période d'évolution; on a ainsi fixé une puissance moyenne de 320 MW afin de tenir compte d'un facteur d'utilisation du réacteur de 0.85.

L'ensemble des résultats requis aux participants à ce benchmark permet de tester de façon très complète les données de base et les outils de calcul pour les systèmes avancés pour la transmutation. A côté des paramètres "classiques" du calcul de cœur (sections efficaces microscopiques, taux de réactions, coefficient de multiplication et perte de réactivité au cours de l'irradiation) et de l'analyse des paramètres de sécurité, on a aussi évalué d'autres aspects qui touchent plus spécifiquement le cycle du combustible des systèmes avancés et qui sont donc de grande importance pour l'application d'une stratégie de multirecyclage du combustible.

4.3.2 Participants et méthodes de calcul

Au cours de ce paragraphe on donnera un aperçu des méthodes de calcul (données de base et outils de calcul) utilisées par chaque participant, ainsi que les différentes approximations introduites lors de la résolution du benchmark. Cela a comme objectif principal d'interpréter plus correctement les solutions fournies par les participants et de mieux expliquer les écarts parmi les résultats. Il faut souligner que l'analyse critique des différentes méthodes et approximations utilisées par des organisations très qualifiées a été un facteur très important dans le développement (chapitre 3) d'une procédure plus fiable et performante pour le calcul et l'analyse des systèmes avancés dédiés à la transmutation.

Sept groupes, représentant huit nations actives dans la recherche nucléaire, ont participé à cet exercice en utilisant les trois principales bases de données nucléaires (ENDF, JEF et JENDL) et les deux principales méthodes de solution de l'équation de Boltzmann (méthode déterministe et Monte Carlo). Le Tableau 4.2 met en relief les caractéristiques essentielles des méthodes utilisées par chaque participant; pour plus de détails sur les méthodes et les approximations de calcul on renvoie à la référence [NEA-00a].

Organisation	Données de base	Principaux codes de calcul	Méthode de solution	Produits de fission	
ANL (USA)	ENDF/B-VI ENDF/B-V (pseudo PF)	MC ² -2, TWODANT, REBUS3	Déterministe	Pseudo PF	
CIEMAT (Espagne)	JENDL 3.2 ENDF/B-VI (rendements de fission)	MCNP-4B, ORIGEN2.1	Monte Carlo	PF explicites	
KAERI (Corée)	JEF 2.2 JENDL 3.2 (Pb et ^{242m} Am)	TRANSX-2.15, TWODANT, REBUS3	Déterministe (diffusion)	Pseudo PF	
JAERI (Japon)	JENDL 3.2	SCALE, TWODANT, BURNER	Déterministe	Pseudo PF	
PSI/CEA (Suisse/France)	ERALIB 1 (ajustée de JEF 2.2)	ECCO, ERANOS	Déterministe	Pseudo PF	
RIT (Suède)	JEF 2.2 ENDF/B-VI (Pb, ⁵⁶ Fe, ⁵⁸ Fe)	MCNP-4B, MCB	Monte Carlo	PF explicites	
SCK-CEN (Belgique)	JEF 2.2 ENDF/B-VI (Pb et ²³³ U)	MCNP-4B, ORIGEN2	Monte Carlo	PF explicites	

Tableau 4.2: Informations essentielles sur les participants au benchmark

Pour ce qui concerne les données de base, ANL a utilisé la bibliothèque ENDF/B-VI, CIEMAT et JAERI la bibliothèque JENDL 3.2 et les quatre autres participants (KAERI, PSI/CEA, RIT et SCK-CEN) des données nucléaires basées sur la bibliothèque JEF 2.2. Parmi ces derniers, aucun institut de recherche n'a utilisé une bibliothèque JEF 2.2 "pure". En effet, KAERI a substitué les données du Pb et de l'^{242m}Am avec celles de la bibliothèque JENDL 3.2, alors que SCK-CEN et RIT ont utilisé les évaluations ENDF/B-VI pour le Pb et l'²³³U et, respectivement, pour le Pb, le ⁵⁶Fe et le ⁵⁸Fe. PSI/CEA a enfin basé les calculs sur la bibliothèque ERALIB 1, issue de l'ajustement de données JEF 2.2 (on renvoie le lecteur au sous-paragraphe 3.1.1.1 pour plus de détails sur cette bibliothèque ajustée).

Les participants au benchmark ont aussi employé les deux méthodes, déterministe et Monte Carlo, pour le calcul de cœur. En particulier, ANL, KAERI, JAERI et PSI/CEA ont utilisé une méthode déterministe classique, composée d'un calcul de cellule préalable, qui a le but de préparer les sections efficaces microscopiques, et d'un calcul de cœur avec la résolution de l'équation de Boltzmann multi-groupe. CIEMAT, RIT et SCK-CEN ont, au contraire, utilisé une méthode Monte Carlo qui ne nécessite pas de calculs de cellule et prévoit une représentation continue de la variable énergétique.

Parmi les principales différences lors des calculs de cellule et de cœur effectués par une méthode déterministe, on peut noter que ANL et PSI/CEA ont utilisé un découpage énergétique ultra fin (2082 et 1968 groupes respectivement) dans les premières étapes du calcul de cellule, alors que KAERI et JAERI ont utilisé un découpage énergétique plus large (80 et 73 groupes, respectivement). La structure énergétique employée lors des calculs de cœur est aussi très différente selon les participants. ANL a utilisé un découpage énergétique très fin, en 230 groupes, alors que JAERI et PSI/CEA ont utilisé un découpage en 73 et 33 groupes; KAERI a subdivisé l'intervalle énergétique en 9 groupes seulement. Il faut aussi remarquer que KAERI est la seule organisation à avoir utilisé l'approximation de diffusion pour le calcul de cœur, alors que tous les autres participants ont effectué ce calcul en utilisant la théorie du transport. En principe, l'approximation de la diffusion n'est pas adaptée au calcul de systèmes très compacts et avec des régions vides, tels que le MAB analysé dans ce benchmark.

Lors de la comparaison des méthodes de calcul, on a observé d'importantes différences en particulier pour les calculs d'évolution: on peut synthétiquement énumérer le traitement des produits de fission, le nombre de régions d'évolution séparées dans la région du combustible et la longueur de chaque période d'évolution entre deux calculs de flux.

Pour ce qui concerne le traitement des PF, CIEMAT³³, RIT et SCK-CEN ont utilisé des PF explicites (195, 76 et 64 PF respectivement) alors que tous les autres participants ont utilisé des pseudo produits de fission. ANL a utilisé 5 pseudo PF générés à partir des données de base ENDF/B-VI, JAERI a utilisé 6 pseudo PF générés à partir de la bibliothèque JENDL 3.2 et KAERI a employé uniquement 3 pseudo PF,

générés en utilisant les rendements de fission de ENDF/B-VI. Au contraire, PSI/CEA a utilisé 6 pseudo PF générés à partir de données de base JEF 2.2 et représentant uniquement les isotopes solides; cela permet de simuler la migration des produits de fission gazeux vers le plénum supérieur de l'élément de combustible.

Parmi toutes les approximations adoptées par les participants à ce benchmark, celle qui a l'impact le plus significatif sur les calculs de "burn-up" est le découpage du combustible en régions d'évolution séparées. La plupart des participants (JAERI, PSI/CEA, RIT et SCK-CEN) a utilisé une région d'évolution unique, alors que ANL, CIEMAT et KAERI ont subdivisé la région combustible en plusieurs régions distinctes (20, 90 et 20, respectivement).

Un deuxième aspect qui peut affecter la précision des résultats d'évolution est la fréquence du calcul du flux neutronique: un re-calcul rapproché du flux neutronique permet de re-normaliser correctement le flux neutronique à la puissance et, surtout, de tenir compte du changement du spectre lors de l'irradiation. CIEMAT, KAERI, JAERI et SCK-CEN ont effectué un seul calcul de flux pour chaque année d'irradiation, alors que ANL et PSI/CEA en ont effectués 4 et RIT 5. Il est intéressant de noter que, parmi les participants qui ont utilisé la méthode déterministe, seul JAERI a réévalué les sections efficaces multi-groupes à chaque intervalle d'évolution: cela comporte un nouveau calcul de cellule, avec la nouvelle composition du combustible. Les trois autres participants ont utilisé, tout au long de l'irradiation, les mêmes sections efficaces multi-groupes calculés à t = 0.

La modélisation de l'évolution de la puissance dans le réacteur est un autre aspect important lors des calculs de "burn-up"; la plupart des codes de calcul neutronique permettent de calculer uniquement l'évolution des NL soumis à un flux neutronique constant. Cette approximation conduit à avoir une variation de la puissance thermique du cœur au long de chaque passe d'évolution. Pour contourner ce problème, certains codes de calcul utilisent une méthode d'évolution de type predictor-corrector qui permet d'estimer correctement l'énergie dégagée au cours de chaque passe d'évolution. Parmi les participants au benchmark, uniquement ANL³⁴ a adopté une méthode de type predictor-corrector lors des calculs d'évolution. CIEMAT, KAERI, PSI/CEA et SCK-CEN ont effectué des calculs d'évolution à flux constant.

En dernier, afin de compléter cette analyse critique des méthodes de calcul, il faut considérer comment les participants ont évalué la puissance dégagée dans le système. Une fois calculée la distribution du flux neutronique dans tout le système, le calcul de la puissance dégagée dans le réacteur est immédiat. Il s'agit simplement de calculer les taux de réactions de capture et de fission pour tous les isotopes présents dans

³³ Il est important de noter que CIEMAT, dont les calculs sont basés sur les données JENDL 3.2, a utilisé les rendements de fission tirés d'évaluations ENDF/B-VI.

³⁴ La description de la méthode de calcul de "burn-up" donnée par JAERI et RIT ne permet pas de déterminer avec certitude si l'évolution a été faite à flux ou à puissance constante.

le cœur et de les multiplier par l'énergie moyenne dégagée par capture et par fission. La puissance totale du système est ainsi obtenue en intégrant la contribution de tous les isotopes et de toutes les régions du cœur. Lors du calcul du benchmark, le niveau du flux et l'intensité de la source de spallation sont normalisés à la valeur de référence (377 MW pour les calculs statiques à t = 0 et 320 MW pour les calculs de "burn-up"); des incohérences lors de l'évaluation de la puissance du système peuvent conduire à des imprécisions dans l'évaluation du flux en DDI et à des erreurs lors des calculs d'évolution.

Les principales incohérences lors de l'évaluation de la puissance peuvent dériver des différentes valeurs pour le dégagement d'énergie suite à une capture ou à une fission ("Q values") et du fait que certaines contributions (isotopes ou réactions) n'ont pas été correctement considérées. La totalité des participants au benchmark a utilisé les "Q values" spécifiques à chaque isotope. Mais uniquement ANL, KAERI et PSI/CEA ont tenu compte séparément de l'énergie dégagée par les captures et par les fissions. Les quatre autres participants ont intégré uniquement les taux de réactions de fission lors du calcul de la puissance; cette approximation ne permet donc pas d'inclure la contribution des matériaux de structure et du caloporteur. En plus, uniquement CIEMAT a ajusté les "Q values" utilisées par JAERI et SCK-CEN considèrent seulement le dégagement d'énergie associé à la fission et celles utilisées par RIT contiennent uniquement la contribution énergétique des fragments de fission et des neutrons émis immédiatement, sans donc considérer la contribution associée aux phénomènes retardés.

Afin de mieux interpréter l'impact de ces approximations, on a évalué la distribution de puissance dans chaque région du système pour la configuration à l'équilibre en DDI; les principaux résultats sont résumés dans le Tableau 4.3 qui suit.

	Cœur		Cible	Réflecteur radial		Réflecteur axial		
	NL	Calop.	Structure		Calop.	Structure	Calop.	Structure
Capture	3.97%	0.08%	0.57%	0.02%	0.02%	0.63%	0.02%	0.54%
Fission (total)	94.16%	-	-	-	-	-	-	-
Fission $(\gamma)^{35}$	5.75%	-	-	-	-	-	-	-

Tableau 4.3: Décomposition de la puissance par région, matériau et réaction

La contribution du caloporteur et des matériaux de structure à la puissance totale du cœur est d'environ 2%, alors que les réactions de capture dans les NL produisent environ le 4% de la puissance totale du système. Selon cette évaluation, les approximations faites par CIEMAT, JAERI, SCK-CEN et RIT³⁶ induisent une sous-estimation de la puissance d'environ 2%, 6%, 6% et 11% respectivement.

 $^{^{35}}$ Ce terme tient compte uniquement de la contribution des γ (prompt et retardés) au dégagement d'énergie de fission. 36 RIT a aussi évalué indépendamment en 9% la sous-estimation de la puissance due à la contribution des NL

uniquement.

Les approximations faites lors du calcul de la puissance thermique du cœur se répercutent sur le niveau du flux neutronique dans le réacteur. Cela affecte soit les calculs statiques (taux de réactions, traverses de flux et niveau de la source externe de neutrons), soit les calculs d'évolution (perte de réactivité au cours du cycle et composition isotopique en FDI). Lors de l'interprétation des résultats du benchmark, il est possible de corriger les valeurs du flux neutronique à t = 0 afin de tenir compte des différences dans la normalisation du flux à la puissance. Il est par contre plus difficile d'évaluer de façon quantitative l'impact de ces approximations sur les calculs d'évolution.

4.3.3 Présentation et discussion des résultats en début d'irradiation

Les principales caractéristiques neutroniques des deux cœurs en DDI sont présentées dans le Tableau 4.4. La discussion des résultats les plus significatifs est donnée au cours des sous-paragraphes qui suivent. On renvoie aussi à la référence [NEA-00a] pour plus de détails et pour les résultats, moins importants, qui ne seront pas présentés dans cette thèse.

	ANL	CIEMAT	JAERI	KAERI	PSI/CEA	RIT	SCK-CEN	
Bibliothèque	ENDF	JEN	IDL	JEF				
	Cœur de "start-up"							
k _{inf}	1.15894	1.13732	1.15920	1.13256	1.13141	1.149	1.14729	
k _{eff}	0.98554	0.9570	0.9650	0.94546	0.94795	0.959*	0.959	
Energie médiane des neutrons (keV)	210	212	162	222	214	220	220	
Intensité de la source externe (n/s)	6.10 ⁻ E17	1.65 ⁻ E18	1.25 ⁻ E18	4.11 ⁻ E18	2.26 E18	2.54 E18	2.29 ⁻ E18	
	Cœur à l'équilibre							
k _{inf}	1.14420	1.11629	1.14192	1.13366	1.13165	1.150	1.14884	
k _{eff}	0.96895	0.9370	0.9494	0.94174	0.94374	0.957	0.95509	
Energie médiane des neutrons (keV)	185	181	152	181	179	188	183	
Intensité de la source externe (n/s)	1.39 ⁻ E18	2.54 E18	1.94 ⁻ E18	4.49 ⁻ E18	2.55 ⁻ E18	2.70 [°] E18	2.47 E18	

Tableau 4.4: Principales caractéristiques neutroniques des deux cœurs du benchmark en DDI

Résultats supplémentaires fournis par RIT pour le cœur de "start-up": $k_{eff} = 0.962$ en utilisant les données JENDL -3.2 et $k_{eff} = 0.998$ en utilisant la bibliothèque ENDF-B/VI.

4.3.3.1 Sections efficaces microscopiques condensées à 1 groupe énergétique

Selon les spécifications du benchmark, les sections microscopiques à 1 groupe énergétique (qu'on indiquera par la suite simplement comme sections efficaces) devaient être obtenues à partir d'un calcul de cellule; il s'agissait ainsi de calculer le spectre neutronique de la cellule homogène en mode fondamental et de moyenner les sections efficaces avec le spectre ainsi obtenu. Parmi les sept participants au benchmark, uniquement ANL, KAERI et PSI/CEA ont suivi cette méthode pour le calcul des sections efficaces: les autres participants ont dérivé la valeur des sections efficaces à partir du calcul de cœur, en divisant les taux de réactions par le flux neutronique intégré dans toute la région du combustible. Ces deux méthodes de calcul utilisent un spectre neutronique différent pour la condensation des sections efficaces et conduisent ainsi a des résultats discordants.

Afin de quantifier la différence dans les valeurs des sections efficaces associée à l'utilisation de spectres de condensations différents et de permettre ainsi une analyse plus complète des résultats, PSI/CEA a estimé les sections efficaces microscopiques aussi à partir d'un calcul de cœur. De sa part, SCK-CEN a aussi fourni un deuxième ensemble de valeurs pour les sections efficaces, obtenues à partir du calcul d'une sphère critique homogène. Les résultats de cette analyse préalable sont donnés, sous forme de graphiques, dans l'Annexe B.4.

Les résultats obtenus par PSI/CEA et par SCK-CEN montrent que les sections efficaces de capture de tous les isotopes et les sections efficaces de fission des isotopes fissiles sont plus élevées quand elles sont condensées à partir du spectre neutronique du cœur. Les sections efficaces de fission des isotopes fertiles montrent, au contraire, une tendance opposée. Cela indique que le spectre neutronique de la cellule en mode fondamental est plus dur que le spectre moyen du cœur. Les différences observées sur les sections efficaces de fission de l'ordre de $4.5\% \div 13\%$ et celles observées sur les sections efficaces de fission sont de l'ordre de $-6\% \div 5\%$. La valeur des sections efficaces condensées à 1 groupe énergétique dépend ainsi de la méthode d'évaluation utilisée et leur comparaison directe requiert beaucoup de précaution.

Au cours de la discussion des résultats, on comparera d'abord les sections efficaces obtenues en utilisant les mêmes données de base et on analysera seulement dans une étape suivante les tendances associées à l'utilisation de différentes bibliothèques nucléaires. Dans les Figures 4.10 et 4.11 on représente les sections efficaces de capture pour le cœur à l'équilibre; on a séparé les valeurs obtenues à partir d'un calcul de cellule de celles obtenues à partir du calcul de cœur. Les mêmes graphiques, pour les sections efficaces de fission du cœur à l'équilibre, se trouvent dans l'Annexe B.4, ainsi que des tableaux récapitulatifs qui contiennent toutes les valeurs des sections efficaces pour le cœur de "start-up" et pour celui à l'équilibre.



Figure 4.10: Sections efficaces de capture pour le cœur à l'équilibre (a) Calcul de cellule

(b) Calcul de cœur





Figure 4.11: Sections efficaces de capture pour le cœur à l'équilibre (a) Calcul de cellule

(b) Calcul de cœur



Les résultats de JAERI et de CIEMAT, basés sur la bibliothèque JENDL 3.2, peuvent être comparés directement car ils ont été obtenus après un calcul de cœur. Les valeurs des sections efficaces de capture et de fission sont en excellent accord pour tous les isotopes.

La comparaison des résultats basés sur les donnés JEF 2.2 est plus difficile car les participants ont utilisé des méthodes de condensations différentes et car aucune organisation n'a utilisé une bibliothèque JEF 2.2 pure. Les valeurs soumises par RIT et par SCK-CEN, obtenues à partir d'un calcul de cœur, sont très proches pour tous les isotopes; les sections efficaces calculées par PSI/CEA, au contraire, s'écartent d'environ 5% pour la plupart des isotopes. On peut rappeler que RIT et SCK-CEN ont utilisé les données de base du plomb issues d'évaluations ENDF, ce qui peut avoir influencé le spectre de condensation des sections efficaces.

Les résultats obtenus par un calcul de cellule classique ne montrent pas une tendance si nette: pour la majorité des isotopes (U, Cm, captures du ²³⁷Np, ²³⁸Pu, ²³⁹Pu, ²⁴¹Am et ²⁴³Am), les résultats soumis par KAERI et PSI/CEA sont en bon accord, alors que les valeurs de SCK-CEN sont considérablement différentes. Dans d'autres cas (²⁴⁰Pu, ²⁴²Pu et pour les sections de fission de l'²⁴¹Am, ²⁴³Am, ²³⁷Np et ²³⁸Pu), les résultats fournis par KAERI s'écartent de ceux des deux autres contributeurs. Dans ce cas aussi, l'analyse des résultats est compliquée par le fait que les trois organisations ont utilisé des données de base différentes pour le plomb.

La comparaison des résultats obtenus en utilisant des données de base différentes, tout en tenant compte des deux méthodes utilisées pour leur évaluation, permet de mettre en relief des différences significatives, en particulier pour les sections efficaces des actinides mineurs.

Les sections efficaces de l'uranium sont en bon accord pour toutes les bibliothèques, à l'exception des sections de capture des isotopes 234 et 236 où les valeurs obtenues avec JEF sont systématiquement plus élevées que les autres.

Si on compare les résultats pour le plutonium, les différences les plus significatives apparaissent pour les sections efficaces de capture, en particulier pour le ²³⁸Pu; ENDF surestime cette dernière valeur de 48% par rapport à JEF et de 25% par rapport à JENDL. Pour les autres isotopes du plutonium, au contraire, ENDF sous-estime systématiquement les valeurs des sections efficaces de capture par rapport aux deux autres données de base. Les valeurs obtenues avec JENDL et JEF sont plus proches, avec l'exception du ²³⁸Pu, déjà mentionné, et du ²⁴¹Pu où la valeur de JEF dépasse d'environ 14% celle obtenue avec JENDL.

Comme prévu, les écarts des sections efficaces sont plus importants pour les actinides mineurs pour lesquels les études de base ont été moins nombreuses.

Lors de l'analyse des isotopes du neptunium, ont peut observer des différences très importantes, de plus de 200%, sur les sections efficaces de capture et de fission du ²³⁸Np; l'impact de ces écarts sur les taux de réactions est tout de même marginal, compte tenu du temps de demi-vie de cet isotope et de sa faible concentration dans le combustible. La comparaison des résultats obtenus pour le ²³⁷Np, le seul isotope à vie longue du neptunium, montre un bon accord parmi tous les participants au benchmark sur la valeur de la section efficace de fission. Par contre on observe un écart maximal de 13% sur la valeur de la section efficace de capture; dans ce cas, on n'observe aucune corrélation nette avec les données de base utilisées.

Les valeurs des sections efficaces de l'américium montrent des écarts importants, reconductibles aux bibliothèques nucléaires utilisées. Les discordances parmi les participants sont considérables pour les sections de capture de l'²⁴¹Am et de l'²⁴³Am, deux isotopes qui contribuent largement aux taux de réaction des réacteurs dédiés à la transmutation: ENDF sous-estime ces deux valeurs de 12% et de 16% par rapport à JENDL et de 22% par rapport aux résultats de JEF. Les écarts sont encore plus significatifs pour l'isotope fissile ^{242m}Am: ENDF sous-estime d'environ 40% la valeur de la section de capture par rapport aux deux autres données de base. Cet écart s'amplifie encore plus si on calcule le rapport entre fission et capture: la valeur estimée par ENDF est double par rapport à celle calculée avec les deux autres bibliothèques.

D'importantes déviations de ENDF par rapport aux autres bibliothèques nucléaires apparaissent pour le ²⁴²Cm et pour les sections de capture du ²⁴⁴Cm; en particulier ENDF sous-estime les sections efficaces du ²⁴²Cm d'un facteur 2 (capture) et d'un facteur 3 (fission). Comme observé pour les autres actinides, les écarts plus significatifs apparaissent lors de l'évaluation des sections efficaces de capture: pour les autres isotopes du curium, JENDL surestime systématiquement la section efficace de capture par rapport aux autres bibliothèques (+45% pour le ²⁴³Cm et +33% pour le ²⁴⁶Cm).

L'analyse des sections efficaces microscopiques à 1 groupe énergétique a mis en relief des écarts significatifs pour la plupart des actinides, en particulier pour les valeurs des sections de capture. Les discordances observées sont importantes non seulement pour les actinides mineurs mais aussi pour certains isotopes du plutonium qui sont sensés être mieux connus, vu leur utilisation dans des cœurs à spectre rapide plus traditionnels.

Comme attendu, les écarts les plus importants apparaissent lors de la comparaison des sections efficaces obtenues avec des données de base différentes. De gros écarts ont été observés même pour les résultats basés sur les mêmes données nucléaires, ce qui peut être attribué à différentes méthodes pour le traitement des données nucléaires de base. Dans le cadre d'études ultérieures de systèmes refroidis au plomb, il serait sans doute important de comparer l'impact des différentes évaluations de cet isotope (ENDF, JEF ou JENDL) sur le spectre neutronique du cœur et sur les sections efficaces du Pb et des NL.

Pour conclure on veut focaliser l'attention sur quatre isotopes, le ²³⁸Pu, l'²⁴¹Am, l'²⁴³Am et le ²⁴⁴Cm, dont les sections efficaces de capture et de fission ont montré des écarts significatifs. En effet ces isotopes ont un impact considérable sur les taux de réactions des cœurs dédiés à la transmutation des TRU, comme on peut observer dans les figures montrées en Annexe B.4. La résolution des discordances pour ces isotopes est donc prioritaire en vue d'études de projet plus spécifiques et détaillées pour des réacteurs dédiés à la transmutation.

4.3.3.2 Coefficients de multiplication en DDV

La valeur du coefficient de multiplication en milieu infini (k_{inf}) a été obtenue à partir d'un calcul de cellule à B = 0 par les quatre organisations qui ont utilisé une méthode de calcul de type déterministe. Les trois autres participants ont évalué ce paramètre à partir d'un nouveau calcul Monte Carlo pour la région du combustible avec des conditions au bord de réflexion. Les valeurs du k_{inf} des deux cœurs, ainsi que celles du k_{eff} , ont été présentées dans le Tableau 4.4.

Les résultats obtenus montrent un écart considérable soit pour le cœur de "start-up" soit pour celui à l'équilibre. La différence entre les valeurs extrêmes est d'environ 2.5% dans le premier cas et de l'ordre de 3% dans le deuxième cas. Il est intéressant de noter que le k_{inf} obtenu avec les données de base JEF est très proche pour les deux cœurs. Au contraire, lors du calcul avec les bibliothèques ENDF ou JENDL, le k_{inf} du cœur de "start-up" dépasse d'environ 1.5% celui du cœur à l'équilibre.

Curieusement on n'observe aucune corrélation du k_{inf} avec les données de base utilisées: les deux solutions basées sur JENDL ont un écart d'environ 2% pour les deux configurations de cœur étudiées. D'autre part les quatre solutions basées sur JEF 2.2 peuvent se classer en deux groupes: les résultats de RIT et de SCK-CEN dépassent ceux de KAERI et PSI/CEA d'environ 1.5%. De tels écarts sont encore plus surprenants si on considère que le calcul du k_{inf} est peu sensible aux approximations de transport utilisées; les valeurs du k_{inf} devraient dépendre uniquement des différences dans les données de base et des méthodes utilisées pour leur remise en forme.

Dans le cadre de l'étude du coefficient de multiplication homogène, RIT a fourni deux solutions supplémentaires pour le cœur de "start-up", obtenues en utilisant des données de base ENDF/B-VI et JENDL 3.2 "pures". On a ainsi un total de 9 valeurs pour le k_{eff} du cœur de "start-up" et de 7 pour celui du cœur à l'équilibre. Les résultats du calcul du coefficient de multiplication homogène des deux cœurs en DDI ont mis en évidence d'importants écarts. En particulier, l'écart maximal entre les valeurs extrêmes est de 4% environ pour le cœur de "start-up" et de 3.3% environ pour le cœur à l'équilibre.

Les valeurs du k_{eff} ne montrent qu'une faible corrélation avec les données de base utilisées; on peut néanmoins observer que ENDF surestime systématiquement le coefficient de multiplication par rapport aux autres deux bibliothèques. Si on compare les valeurs du k_{eff} obtenues avec les mêmes données de base, on observe un écart de plus de 1% parmi les deux valeurs obtenues avec ENDF pour le cœur de "start-up" et un écart de 0.8% parmi les trois solutions basées sur JENDL. Ce dernier écart augmente pour le cœur à l'équilibre: les valeurs soumises par CIEMAT et JAERI diffèrent d'environ 1.4%.

La comparaison directe des résultats JEF est plus difficile, car aucune organisation n'a utilisé une bibliothèque JEF 2.2 "pure". Les valeurs calculées par RIT et SCK-CEN sont en bon accord, tandis que celles soumises par KAERI et PSI/CEA sont considérablement plus faibles (entre 1100 et 1400 pcm pour les 2 cœurs). Une partie des écarts observés pour les solutions JEF peut être attribuée à des différences dans les données de base utilisées et à l'utilisation de l'approximation de diffusion lors des calculs de cœur. Des calculs supplémentaires avec ERANOS ont montré que l'utilisation de la bibliothèque JEF 2.2 pure. PSI/CEA a aussi quantifié l'impact de l'approximation de la diffusion sur le coefficient de multiplication effectif du cœur: les calculs en diffusion sous estiment de 260 pcm le k_{eff} par rapport aux calculs en transport.

Lors de l'évaluation des résultats JEF, il faut enfin considérer que seulement PSI/CEA a utilisé des estimations JEF pour le plomb, alors que KAERI a utilisé des données JENDL et les deux autres participants des évaluations ENDF. Une évaluation faite par KAERI, qu'on discutera plus en détail par la suite, a montré que l'utilisation de sections efficaces différentes pour le plomb a un impact considérable sur le keff du cœur de "start-up": l'utilisation d'estimations JEF par rapport à la référence ENDF augmente le k_{eff} de 680 pcm, alors que l'utilisation de données de base JENDL réduit le coefficient de multiplication de 1100 pcm par rapport à la valeur de référence. Ces résultats sont cohérents avec une analyse précédente [YKS-99] qui avait quantifié l'impact de la substitution des données de base du plomb et du bismuth sur le coefficient de multiplication de l'ATW. L'utilisation des évaluations JENDL diminue la valeur du keff de 1% par rapport un calcul fait avec les évaluations ENDF. Si on applique donc ces corrections aux coefficients de multiplication du cœur de "start-up", on arrive à expliquer presque la totalité de l'écart de KAERI (1350 pcm) par rapport aux solutions de RIT et SCK-CEN: l'utilisation d'évaluations JENDL pour le plomb est responsable d'environ 1100 pcm alors que l'approximation de la diffusion justifie les restants 260 pcm d'écart. Si on applique les mêmes corrections aux résultats de PSI/CEA, les écarts s'amplifient: l'utilisation de la bibliothèque ERALIB contribue à baisser le k_{eff} de 300 pcm par rapport à JEF 2.2, mais l'effet de l'utilisation des données JEF pour le plomb devrait augmenter le k_{eff} de 680 pcm par rapport à ENDF. En tenant compte de ces corrections, donc, l'écart de PSI/CEA augmente jusqu'à 1400 pcm par rapport aux autres contributions JEF.

La comparaison des valeurs du coefficient de multiplication obtenues avec les mêmes données de base (en tenant compte des corrections effectuées pour les solutions JEF) met en relief des différences considérables, de l'ordre de 1% ou plus. Ces écarts peuvent être attribués aux différentes méthodes de mise en forme des données nucléaires et/ou à différentes approximations lors du calcul de transport. Pour l'interprétation des résultats obtenus en utilisant différentes données de base, il est opportun de se référer à une analyse de sensibilité faite par KAERI dans le cadre de ce benchmark [GKC-01] et dont on a schématisé les résultats principaux en Annexe B.5. Au cours de cette étude, KAERI a décrit le cœur de "start-up" par un modèle monodimensionnel sphérique qui préserve les volumes du réacteur originel et en a calculé le coefficient de multiplication en utilisant, comme référence, une bibliothèque ENDF/B-VI pure. A partir de cette configuration de référence, KAERI a effectué une série de calculs de cœur en remplaçant systématiquement, isotope par isotope, les données de base ENDF par des valeurs JEF ou JENDL. Cette étude paramétrique a concerné tous les NL, le plomb, le bismuth et l'azote.

L'impact total de la substitution des isotopes plus importants du cœur, calculé en sommant la contribution de chaque isotope, est d'environ -2100 pcm pour JEF et de -2800 pcm pour JENDL. Cet effet est tout de même inférieur à celui observé par RIT lors du calcul direct du cœur avec les trois bibliothèques (-3900 pcm pour JEF et -3600 pcm pour JENDL). Les écarts observés entre la solution de ANL (ENDF) et celles de CIEMAT, KAERI, RIT et SCK-CEN confirment les résultats de l'étude de sensibilité de KAERI: la différence entre le k_{eff} de CIEMAT et celui de ANL est de -2850 pcm, très proche des -2800 pcm prévus par l'étude de sensibilité. L'écart entre les résultats de RIT et SCK-CEN, qui ont utilisé les sections efficaces du plomb de ENDF, et celui de ANL est de -2650 pcm, est très proche de la valeur résultant de l'étude de sensibilité (-2750 pcm). Par contre, les écarts observés sur les résultats de JAERI (-2050 pcm) et de PSI/CEA (-3750 pcm) sont différents des prévisions de l'analyse KAERI (-2800 pcm et -2100 pcm respectivement).

L'étude de KAERI a aussi le mérite de déterminer les isotopes qui donnent lieu aux écarts plus significatifs sur le coefficient de multiplication du cœur de "start-up": parmi les NL on peut signaler le ²³⁹Pu, le ²⁴⁰Pu, les trois isotopes de l'américium et le ²⁴⁵Cm. La contribution totale des NL, obtenue en sommant la valeur absolue de l'écart sur le k_{eff}, dépasse les 4000 pcm pour JEF et les 2000 pcm pour JENDL. A cause de compensations, l'effet total des NL se réduit à -2250 pour JEF et à -1160 pour JENDL. Parmi les autres isotopes présents dans le cœur, le Pb et le ¹⁵N ont aussi un impact significatif: comme déjà vu précédemment, les écarts sur le plomb sont très significatifs alors que pour le ¹⁵N on a environ 400 pcm d'écart entre les valeurs de ENDF et celles, très similaires, obtenues avec JEF ou JENDL.

Pour conclure cette analyse sur le coefficient de multiplication, on peut comparer la valeur du k_{eff} pour les deux cœurs. Comme déjà observé pour le k_{inf} , JEF estime des valeurs très proches pour les deux cœurs. Au contraire, le k_{eff} du cœur de "start-up" dépasse considérablement celui du cœur à l'équilibre pour les solutions basées sur ENDF ou JENDL. Ce phénomène est lié à la différente composition isotopique des deux cœurs et au fait que les taux de réaction de capture et de fission sont dominés par différents isotopes. Le taux de production du cœur de "start-up" est dominé par le ²³⁹Pu (40%), le ²⁴¹Pu (13%) et par l'²⁴¹Am (13%), alors que celui du cœur à l'équilibre est dominé par le ²³⁸Pu, le ²⁴⁵Cm et le ²⁴⁰Pu (24%, 12% et

10%, respectivement). L'²⁴¹Am domine le taux d'absorption des deux cœurs: il est suivi par le ²³⁹Pu et par l'²⁴³Am dans le cœur de "start-up" et par l'²⁴³Am et le ²³⁸Pu dans le cœur à l'équilibre. On peut enfin souligner que les taux de réaction des deux cœurs (du cœur à l'équilibre, en particulier) diffèrent considérablement de ceux des cœurs à spectre rapide plus conventionnels.

La comparaison des solutions de ce benchmark, associée à l'étude de sensibilité de KAERI, a montré de considérables différences (de l'ordre de 2-3%) lors de l'estimation du k_{eff} avec les trois bibliothèques principales de données nucléaires. On a tout de même observé des différences non négligeables lors des calculs effectués avec les mêmes données de base, qui peuvent dépendre de différentes approximations lors du calcul de transport ou lors de la mise en forme des données de base. On a enfin remarqué que la plupart des organisations utilisent des bibliothèques ajustées ou des bibliothèques "mixtes", obtenues à partir du mélange de bibliothèques différentes.

4.3.3.3 Spectre des neutrons

Les spectres neutroniques soumis par les participants ont été calculés au milieu de la région du combustible (R = 56 cm, Z = 100 cm) où le spectre des neutrons est donné par les fissions et l'influence des neutrons de spallation est négligeable.

Les spectres neutroniques du cœur à l'équilibre, normalisés à l'unité, sont représentés dans les Figures 4.12 et 4.13 en fonction de la léthargie. Afin de quantifier la dureté du spectre, on a aussi calculé, à partir des distributions énergétiques soumises par les participants, les valeurs de l'énergie médiane pour les deux cœurs; ces résultats ont été inclus dans le Tableau 4.4.

On peut avant tout observer que le cœur de "start-up", fortement chargé en ²³⁹Pu, a un spectre neutronique plus dur par rapport au cœur à l'équilibre; cette tendance est commune à toutes les solutions. Si on considère le cœur de "start-up", les énergies médianes de KAERI, RIT et SCK-CEN sont très similaires et dépassent d'environ 4% les valeurs obtenues à partir des solutions de ANL, CIEMAT et PSI/CEA. Pour le cœur à l'équilibre, les valeurs plus élevées ont été obtenues par ANL, CIEMAT et RIT; les énergies médianes de KAERI, PSI/CEA et SCK-CEN sont plus faibles d'environ 3%. Les énergies médianes obtenues par ces six participants montrent donc un bon accord pour les deux cœurs analysés. Au contraire, les valeurs calculées à partir des spectres neutroniques de JAERI sont considérablement plus faibles: pour les deux cœurs l'écart est d'environ 20% par rapport aux autres solutions.

La comparaison directe des spectres neutroniques est rendue difficile par le fait que chaque participant a utilisé une structure énergétique différente. Mis à part la solution de JAERI, les résultats obtenus sont en bon accord pour le domaine énergétique au-delà de 5-10 keV, qui représente environ le 95% des neutrons. C'est uniquement dans le domaine énergétique compris entre 100 eV et 1 keV que les écarts parmi les participants sont plus prononcés: CIEMAT, JAERI et PSI/CEA prévoient une fraction de neutrons plus élevée par rapport à celle obtenue par ANL, RIT et SCK-CEN³⁷.



Figure 4.12: Spectre énergétique pour le cœur à l'équilibre (solutions JEF)

Figure 4.13: Spectre énergétique pour le cœur à l'équilibre (solutions ENDF et JENDL)



³⁷ Le découpage énergétique utilisé par KAERI n'est pas suffisamment fin pour permettre une analyse précise du spectre aux basses énergies.

4.3.3.4 Traverses du flux neutronique

Un paramètre important pour l'analyse neutronique du cœur est la distribution du flux de neutrons dans le système. Dans le cadre de ce benchmark, on a requis deux distributions axiales du flux de neutrons, au centre du cœur (R = 0) et au milieu de la région du combustible (R = 56 cm), et une distribution radiale, à la mi-hauteur du cœur (Z = 100 cm). Ces traverses de flux ont été calculées en début d'irradiation pour les deux cœurs en normalisant le niveau du flux à une puissance thermique de 377 MW. On a un total de 7 solutions pour le cœur de "start-up" et de 8 solutions pour le cœur à l'équilibre car RIT a fourni une solution additionnelle obtenue en utilisant les données ENDF. Les résultats pour le cœur à l'équilibre sont présentés dans les Figures de 4.14 à 4.16, alors que ceux pour le cœur de start-up sont donnés en Annexe B.4.

La comparaison directe des résultats fournis par les participants met en relief des différences considérables, en particulier pour la traverse radiale du flux et pour la traverse axiale au centre de la cible. En général, les distributions neutroniques basées sur les données ENDF prévoient un niveau du flux particulièrement faible dans la région de la cible de spallation et dans les régions du combustible à proximité de la cible. Mis à part cet aspect, aucune corrélation évidente avec les données de base n'a été observée. On peut aussi remarquer des écarts importants dans la valeur absolue du flux neutronique et dans l'allure des courbes de distribution des neutrons.

Comme attendu, la distribution axiale du flux au long de la cible de spallation présente les écarts les plus significatifs: la valeur du pic du flux estimé par KAERI est environ 3 fois plus élevée que celle calculée par ANL pour le cœur de "start-up" et, dans le cœur à l'équilibre, on observe un facteur 2 sur les valeurs de pic obtenues par CIEMAT et ANL. L'allure du flux est aussi différente, moins piquée à l'interface cible-milieu vide pour les solutions basées sur ENDF par rapport à celles obtenues à partir des autres bibliothèques de base. En comparant l'allure des courbes fournies, on remarque que CIEMAT prévoit une distribution unique du flux dans la partie inférieure de la cible et que la distribution obtenue par KAERI montre un flux neutronique nul dans le canal vide. Ces résultats singuliers viennent des approximations choisies par les participants. CIEMAT a utilisé un modèle géométrique du cœur symétrique selon l'axe Z: la région inférieure de la cible en plomb - bismuth a ainsi été remplacée par un canal vide. La présence de ce canal vide favorise ainsi la fuite des neutrons de la partie inférieure du cœur et justifie le fait que le gradient du flux soit plus élevé dans la partie inférieure du système. Les différences qui apparaissent dans la distribution neutronique de KAERI dans la région vide sont probablement liées à l'utilisation de l'approximation de la diffusion lors du calcul de cœur et à un choix inapproprié des conditions au bord. On peut enfin signaler aussi la présence d'oscillations inusuelles dans la distribution calculée par RIT avec les données de base ENDF; on peut probablement attribuer cet effet à une instabilité numérique lors du calcul Monte Carlo.

Si on analyse maintenant la distribution axiale au centre de la région du combustible, on peut observer de fortes discordances soit sur le niveau du flux neutronique soit sur la position du pic du flux: pour ce dernier aspect, ANL et KAERI estiment une distribution du flux symétrique par rapport au milieu du cœur (Z = 100 cm) alors que la position du pic calculée par les autres participants est déplacée vers la moitié supérieure du cœur (Z = 110 cm).







Figure 4.15: Traverse axiale du cœur à R = 0 cm (cœur à l'équilibre)

Figure 4.16: Traverse axiale du cœur à R = 56 cm (cœur à l'équilibre)



Les écarts observés lors de l'analyse des distributions spatiales des neutrons peuvent être partiellement expliqués par le niveau différent de sous criticité estimé par chaque participant et par les différences lors de la normalisation du flux neutronique à la puissance. En particulier la distribution du flux neutronique dans un réacteur hybride est particulièrement sensible au niveau de sous criticité du cœur. En effet, pour maintenir la réaction en chaîne, un cœur avec un k_{eff} plus faible requiert un plus grand nombre de neutrons externes. On observe ainsi deux effets concomitants dans le cœur: a) le flux radial est plus prononcé dans le centre du cœur (région de la cible et zones plus internes du combustible) et b) la distribution du flux de neutrons se déplace vers la moitié supérieure du système.

Dans le but de mieux interpréter ces résultats, PSI/CEA a effectué une analyse supplémentaire avec ERANOS; cela a permis de quantifier l'impact du niveau de sous criticité sur les traverses de flux neutronique calculées au cours de ce benchmark. En premier on a calculé la distribution du flux de neutrons dans le cœur en fonction du niveau de sous criticité estimé par chaque participant en modifiant de façon appropriée le nombre moyen de neutrons émis par fission (v) lors de plusieurs calculs de flux effectués avec ERANOS. A partir de ces distributions neutroniques, on a évalué des facteurs de correction spatiaux appropriés relatifs à une valeur du k_{eff} de référence, égale à 0.95. On a enfin appliqué aux résultats soumis par les participants ces facteurs correctifs de façon à reconduire le calcul au même k_{eff} .







Figure 4.18: Traverse axiale à R = 0 cm corrigée pour un k_{eff} de 0.95 (cœur à l'équilibre)

Figure 4.19: Traverse axiale à R = 56 cm corrigée pour un k_{eff} de 0.95 (cœur à l'équilibre)



Cet ajustement permet de résoudre une partie des discordances observées dans les solutions originelles: en particulier l'allure de la distribution spatiale des neutrons est beaucoup plus uniforme. Tout de même on observe encore des écarts significatifs, de l'ordre de grandeur de 20%, dans la valeur absolue du flux neutronique (RIT et PSI/CEA ayant les valeurs limites). On peut remarquer que, après l'ajustement, les distributions spatiales de ANL et de PSI/CEA sont quasiment identiques.

Après correction, l'allure de la distribution axiale du flux au centre du combustible est en bon accord pour la majorité des participants: la correction liée au k_{eff} a reconduit la distribution de ANL en ligne avec les autres et la seule solution fournie par KAERI se différencie des autres. Comme déjà mentionné, la discordance des résultats de KAERI peut être attribuée à l'utilisation de l'approximation de la diffusion lors des calculs de cœur. Après correction, la distribution des neutrons au centre de la cible est aussi en meilleur accord: les écarts ont diminué et l'allure de la courbe est plus uniforme. Si on compare enfin l'allure de la distribution radiale du flux corrigé, on observe un très bon accord entre les différentes solutions, en particulier dans les régions du combustible et du réflecteur externe. On observe tout de même encore quelques inconsistances dans la zone de la cible de spallation et à l'interface entre la cible et le combustible. En particulier, la distribution radiale de CIEMAT présente un minimum local à R = 0 cm et la solution de KAERI montre une dépression du flux à l'interface entre la cible et le combustible.

Les écarts d'amplitude observés dans les distributions spatiales du flux après la normalisation au k_{eff} peuvent être encore plus réduits si on tenait compte des différentes "Q values" utilisés pour le calcul de la puissance du réacteur.

Compte tenu de l'effet associé au niveau de sous criticité du cœur, on peut conclure que les six solutions principales en utilisant la théorie du transport ont montré une bonne cohérence dans l'évaluation de la distribution spatiale du flux de neutrons, abstraction faite des problèmes de normalisation du flux et des inexactitudes dans la représentation géométrique du cœur (CIEMAT). Cette analyse a par contre montré l'insuffisance de la théorie de la diffusion pour une prévision correcte de la distribution spatiale du flux de neutrons dans le cœur.

4.3.4 Présentation et discussion des résultats d'évolution

La discussion des résultats des calculs d'évolution porte essentiellement sur trois aspects fondamentaux dans l'étude des systèmes dédiés à la transmutation des TRU en cycle fermé: la perte de réactivité au long de l'irradiation, le besoin de neutrons externes et la composition du combustible en FDI. Chacun de ces trois points sera abordé dans les sous-paragraphes qui suivent.

Avant d'entamer l'analyse de ces aspects, il est important de comparer le taux de fission du combustible irradié. Les résultats les plus importants de cette analyse sont montrés dans le Tableau 4.5; à partir des résultats soumis par chaque participant on a calculé le nombre total de NL qui a fissionné et le

taux de fission du combustible (exprimé en %) à la fin de l'irradiation. On a enfin calculé l'énergie moyenne dégagée par fission à partir de l'énergie produite dans le réacteur au cours de l'irradiation, calculée directement à partir des spécifications du benchmark; cette valeur intègre tout dégagement d'énergie, y compris les captures dans les NL et dans les autres matériaux présents dans le cœur.

	ANL	CIEMAT	KAERI	PSI/CEA	JAERI	RIT	SCK-CEN			
	Cœur de "start-up"									
Fissions (10 ²⁴)	1477.7	1461.6	1716.7	1455.6	1470.8	1673.4	1730.2			
Taux de fission	18.78%	18.57%	21.82%	18.50%	18.69%	21.27%	21.99%			
Energie (MeV)	213.1	215.5	183.5	216.4	214.1	188.2	182.0			
	Cœur à l'équilibre									
Fissions (10 ²⁴)	1483.6	1482.5	1692.6	1461.7	1488.1	1690.1	1772.4			
Taux de fission	18.85%	18.84%	21.50%	18.57%	18.91%	21.47%	22.52%			
Energie (MeV)	212.3	212.4	186.1	215.5	211.6	186.4	177.7			

Tableau 4.5: Grandeurs caractéristiques des calculs d'évolution

Les écarts sur le taux de fission du combustible sont très importants, alors qu'on s'attendait à des incertitudes très limitées lors du calcul de ce paramètre intégral. On peut classer les participants en deux groupes, caractérisés par un fort taux de fission (entre 21.3% et 22.5% dans les deux cœurs) et un faible taux de fission (entre 18.5% et 18.9%). Le premier groupe comprend trois organisations, KAERI, RIT et SCK-CEN, qui ont utilisé les données de base JEF, alors que le deuxième groupe est composé par ANL, CIEMAT, JAERI et PSI/CEA³⁸. L'écart observé parmi les solutions de ces deux groupes est donc de l'ordre de 15% et apparaît trop élevé pour dépendre uniquement de différences dans les données de base.

Dans les considérations qui suivent, on cherchera de reconduire les écarts sur le taux de fission du combustible aux approximations faites lors des calculs d'évolution et lors de la normalisation du flux à la puissance. En particulier on peut prévoir que JAERI, SCK-CEN et RIT surestiment le taux de fission des NL de 6%, 6% et 11% par rapport à la solution de PSI/CEA à cause des contributions qui ont été négligées lors du calcul de la puissance (cf. paragraphe 4.3.2).

Comme prévu, les participants qui ont intégré toutes les réactions lors de l'évaluation de la puissance (ANL, CIEMAT et PSI/CEA) obtiennent un taux de fission des NL inférieur à ceux qui ont utilisé des "Q values" plus faibles (RIT et SCK-CEN). Ce lien n'est tout de même pas valable pour KAERI et JAERI: en effet, même si JAERI néglige la contribution de toute réaction de capture, il obtient de faibles taux de combustion, en ligne avec les participants qui ont utilisé des "Q values complètes". Par contre KAERI obtient de forts taux de fission des NL même s'il intègre toutes les réactions lors du calcul de la

³⁸ On rappelle que PSI/CEA a utilisé la bibliothèque ajustée ERALIB 1 où les "Q values" ont été réévaluées par rapport aux valeurs JEF 2.2 (voir paragraphe 3.2.3).
puissance. En plus le taux de fission de SCK-CEN est légèrement supérieur à celui de RIT pour les deux cœurs, alors qu'on s'attendrait à une tendance opposée en considérant les différentes réactions considérées lors de la normalisation du flux à la puissance.

Une autre explication possible pour les discordances dans le calcul du taux de fission du combustible est l'utilisation de différentes méthodes pour les calculs d'évolution. En général un calcul à flux constant conduit à une sous estimation de l'énergie dégagée au cours du cycle d'irradiation³⁹; une telle erreur augmente environ avec le carré de la longueur du passe d'évolution. Tout de même, une analyse supplémentaire de PSI/CEA (voir le paragraphe 3.2.4) a évalué à 1% l'écart maximal sur le taux de fission des NL qui peut être attribué aux différentes méthodes d'évolution. Cet effet n'apporte donc qu'une faible correction à la valeur du taux de fission et ne permet ainsi pas d'expliquer les forts écarts observés.

L'analyse du taux de fission du combustible en FDI a mis en évidence des différences considérables parmi les participants. En particulier, le dégagement moyen d'énergie par fission calculé à partir des solutions de KAERI, RIT et SCK-CEN apparaît particulièrement faible (seulement 185 MeV environ) si on le compare aux valeurs des autres participants et à celles des systèmes à spectre rapide traditionnels. L'existence de telles discordances sur la valeur de ce paramètre intégral met en question la fiabilité des calculs d'évolution et indique la nécessité d'améliorations ultérieures dans les codes qui simulent le "burn-up" du combustible.

Les résultats complets des calculs d'évolution, coefficient de multiplication homogène standard, coefficient de multiplication homogène pour le cœur privé des PF et niveau de la source externe de neutrons, sont donnés en Annexe B.6.

4.3.4.1 Evolution du coefficient de multiplication homogène

Les spécifications du benchmark demandaient la valeur du coefficient de multiplication homogène du réacteur (k_{eff}) en DDV et après chaque année d'évolution. On a aussi requis le calcul du coefficient de multiplication homogène pour un cœur artificiellement privé de tous les PF; dans la suite on indiquera ce coefficient comme $k_{eff}^{Sans_PF}$. Pour effectuer ce calcul, les participants ont simplement mis à zéro les concentrations des produits de fission à chaque étape du calcul du cœur.

En plus de la solution de référence basée sur la bibliothèque JEF 2.2, RIT a aussi effectué un calcul d'évolution supplémentaire pour le cœur de "start-up" en utilisant une bibliothèque JENDL 3.2. On a

³⁹ Dans les deux cœurs du benchmark on a observé que la puissance thermique diminue toujours à la fin de chaque passe d'évolution. On observe cet effet soit dans le cœur de start-up où le k_{eff} diminue au cours de l'irradiation, soit dans le cœur d'équilibre, où le coefficient de multiplication augmente au cours des deux premières années d'irradiation.

donc un total de 8 solutions pour le cœur de "start-up" et de 7 pour le cœur à l'équilibre. Les Figures 4.20 et 4.21 montrent l'évolution du coefficient de multiplication homogène pour les deux cœurs.



Figure 4.20: Evolution du coefficient de multiplication pour le cœur de "start-up"

Figure 4.21: Evolution du coefficient de multiplication pour le cœur à l'équilibre



A partir des valeurs du keff en DDV et en FDV (Fin De Vie), on a calculé la perte de réactivité totale du cœur (Δk_{eff}) et on a estimé la contribution relative des NL et des PF au Δk_{eff} . Le premier paramètre a été obtenu les valeurs deux coefficients de en soustrayant des multiplication: $\Delta k_{eff} = k_{eff} (DDV) - k_{eff} (FDV)$. La contribution des NL à la perte de réactivité totale a calculée comme $\Delta k_{eff} (NL) = k_{eff} (DDV) - k_{eff}^{Sans_{-}PF} (FDV)$ et celle des PF comme été $\Delta k_{eff} (PF) = k_{eff}^{Sans_{-}PF} (FDV) - k_{eff} (FDV).$ Les résultats complets de cette étude sur la perte de réactivité sont donnés dans le Tableau 4.6; ce tableau montre aussi la perte de réactivité totale corrigée pour tenir compte du nombre de régions d'évolution et des taux de fission du combustible. Les facteurs correctifs ont été obtenus à partir de calculs de sensibilité effectuée avec ERANOS.

	ENDF	JENDL			JEF			
	ANL	CIEMAT	JAERI	RIT	KAERI	PSI/CEA	RIT	SCK-CEN
	(20)	(90)	(1)	(1)	(20)	(1)	(1)	(1)
	Cœur de "start-up"							
Actinides	2794	2766	1388	2135	305	755	400	1582
PF	4128	1353	2676	3446	3646	2893	3500	2543
Total	6922	4119	4064	5581	3951	3648	3900	4125
	Cœur à l'équilibre							
Actinides	-1067	-1775	-2737	-	-2704	-2569	-2700	-1680
PF	4650	1373	3054	-	4316	3517	4400	2212
Total	3583	-402	317	-	1612	948	1700	532
	Cœur à l'équilibre: perte totale avec prise en compte des facteurs de correction évalués avec ERANOS							
Régions	3583	-402	2777	-	1612	3408	4160	2992
Q Values	3583	-402	2777	-	~1100	3408	~3600	~2450

Tableau 4.6: Perte de réactivité en fin d'irradiation en pcm (nombre de régions d'évolution entre parenthèses)

L'évolution de la réactivité est très différente pour les deux cœurs analysés: dans la configuration de "start-up" la perte de réactivité est assez uniforme au cours de l'irradiation, tandis que, pour le cœur à l'équilibre, le k_{eff} augmente dans une première période d'irradiation et diminue en fin d'irradiation. La perte de réactivité globale est comprise entre 3600 et 6900 pcm pour le cœur de "start-up" et entre -400 et 3600 pcm pour le cœur à l'équilibre. L'écart maximal entre les valeurs extrêmes est donc plus significatif pour le cœur à l'équilibre que pour le cœur de "start-up". Dans le cœur à l'équilibre la contribution des NL à la perte de réactivité est négative: si privé des PF, le combustible en FDI est donc plus réactif par rapport à celui non encore irradié.

Si on compare toutes les solutions soumises, ANL (ENDF) estime, pour les deux cœurs, une perte de réactivité considérablement supérieure à celle des autres participants. La perte de réactivité totale calculée par CIEMAT, KAERI, JAERI, SCK-CEN et RIT (JEF) pour le cœur de "start-up" est en très bon accord, entre 3900 et 4100 pcm. Cet effet apparaît cependant lié à une compensation entre la contribution des NL et des PF et doit être donc considéré accidentel.

Si on compare les solutions obtenues en utilisant les mêmes données de base, on n'observe aucune corrélation évidente, avec l'exception des 3 solutions de KAERI, PSI/CEA et RIT basées sur JEF. Ces trois organisations ont obtenu une perte de réactivité due aux NL très proche, soit pour le cœur à l'équilibre soit pour le cœur de "start-up". En plus on observe des valeurs très similaires pour RIT et KAERI quant à la perte de réactivité des PF. Par contre, par rapport aux autres solutions basées sur JEF, SCK-CEN surestime systématiquement la perte de réactivité attribuable aux NL et sous estime celle due aux PF. Quant aux solutions basées sur JENDL, on observe de fortes discordances sur la contribution des NL et des PF à la perte de réactivité totale: en particulier les écarts parmi les solutions de JAERI et CIEMAT sont de l'ordre de 1000-1500 pcm. Ce n'est que par des effets de compensation entre la contribution des NL et des PF que les pertes de réactivité totale de CIEMAT et de JAERI sont très proches.

La variation du coefficient de multiplication au cours de l'irradiation et la perte de réactivité en fin d'irradiation dépendent considérablement non seulement des données de base et des chaînes d'évolution des NL, mais aussi de la méthode choisie pour le calcul d'évolution. En particulier les facteurs suivants ont un impact sur l'évolution du k_{eff} : (a) le nombre de régions d'évolution séparées (b) le traitement des produits de fission (c) la normalisation du flux à la puissance (d) la longueur de l'intervalle entre deux calculs de flux successifs et (e) la variation de la puissance au cours du "burn-up".

Comme montré dans le paragraphe 3.2.5, le choix du nombre de régions d'évolution séparées a un impact très important sur les calculs de "burn-up" et sur la perte de réactivité en FDI; les calculs faits pour le cœur à l'équilibre ont quantifié en 2460 pcm la perte de réactivité additionnelle attribuable au découpage du cœur en 20 régions d'évolution par rapport au calcul avec une région d'évolution unique. On peut raisonnablement s'attendre à que cet écart s'amplifie pour le cœur de "start-up". On rappelle que, parmi les 7 organisations qui ont participé au benchmark, seulement ANL, CIEMAT et KAERI ont utilisé des régions d'évolution distinctes lors du calcul du "burn-up". Si on applique donc ce facteur de correction aux autres organisations (JAERI, PSI/CEA, RIT et SCK-CEN), la perte de réactivité en FDI avoisine celle calculée par ANL. En particulier, avec cette correction, ANL et PSI/CEA (qui ont utilisé par ailleurs les mêmes approximations pour les calculs d'évolution) estiment une perte de réactivité très proche en FDI, à 200 pcm près; après correction, l'allure de la courbe d'évolution du k_{eff} est aussi quasiment identique. Par contre les résultats de CIEMAT et de KAERI ne confirment pas le biais qu'on vient d'observer: bien qu'utilisant 90 et 20 régions d'évolution distinctes, l'allure des courbes de

réactivité et la perte de réactivité en FDI sont en ligne avec les valeurs obtenues par les participants qui ont utilisé une seule région d'évolution. Le Δk_{eff} calculé par CIEMAT pour le cœur à l'équilibre apparaît, en particulier, trop faible.

L'effet de l'utilisation de "Q values" différentes sur le taux de fission des NL et sur la perte de réactivité en fin d'irradiation a été évaluée au cours du paragraphe 3.2.3. Pour le cœur à l'équilibre on observe une diminution du k_{eff} de 360 et de 170 pcm pour une réduction des "Q values" de 10% et de 5% respectivement. Compte tenu que KAERI, RIT et SCK-CEN ont surestimé le taux de fission d'environ 15% par rapport aux autres participants, on peut estimer une perte de réactivité additionnelle de 500 - 600 pcm attribuable à cet effet. Pour tenir compte de cet effet il faudrait donc augmenter d'environ 500-600 pcm le coefficient de multiplication en fin de vie obtenu par ces organisations. Tout de même, la prise en compte de cette correction ne permet pas d'améliorer la compréhension des discordances parmi les participants: d'une part cela réduirait l'écart entre les solutions de RIT et de PSI/CEA mais, d'autre part, elle augmenterait la différence entre les solutions de SCK-CEN et de PSI/CEA.

Parmi les autres facteurs étudiés, la fréquence des calculs de flux et la variation de la puissance au cours du "burn-up" donnent lieu à des écarts beaucoup plus faibles, respectivement de 80-100 pcm et d'environ 30 pcm pour le cœur à l'équilibre. L'impact de ces approximations est ainsi négligeable comparé aux écarts entre les solutions soumises.

Le traitement des produits de fission est aussi un aspect très important à considérer pour expliquer la perte de réactivité au cours du cycle. En effet le nombre des PF explicites utilisés lors du calcul, les rendements de fission pour chaque noyau lourd, la valeur des sections efficaces de chaque PF et les chaînes d'évolution pour les PF peuvent donner lieu à des incertitudes significatives sur la perte de réactivité. En particulier l'utilisation des pseudo produits de fission apparaît douteuse dans l'étude des systèmes dédiés à la transmutation où une fraction importante des fissions est due aux AM (environ 40% du total dans le cœur à l'équilibre et 30% dans le cœur de "start-up"). En effet les pseudo PF ont été crées pour un nombre limité d'isotopes de l'uranium et du plutonium en tenant compte d'un temps d'irradiation donné ainsi que d'un spectre neutronique particulier; ces conditions ne correspondent donc pas à celles des cœurs, très innovants, analysés au cours de cebenchmark.

Comme déjà souligné, l'analyse des résultats met en évidence des écarts importants lors de l'évaluation de la contribution des PF à la perte de réactivité totale du cœur. On n'a par contre observé aucun biais lié à l'utilisation des pseudo produits de fission ni à celle de données de base différentes.

Pour compléter l'analyse de la contribution des PF à la perte de réactivité du cœur, on peut se référer à l'étude paramétrique présentée dans le paragraphe 3.2.2. Les résultats obtenus en utilisant les pseudo PF et un ensemble très complet de 160 PF explicites sont en excellent accord; on a par contre vérifié que les écarts augmentent lors de l'utilisation d'un nombre plus réduit de PF. Ces résultats témoignent de la

fiabilité du code de calcul ERANOS mais ne permettent pas d'étendre ces conclusions aux pseudo produits de fission utilisés par les autres participants.

4.3.4.2 Intensité de la source de neutrons externes

Les spécifications du benchmark requéraient le calcul de l'intensité de la source externe de neutrons, c' està-dire du nombre de neutrons externes nécessaires, à chaque seconde, pour maintenir la réaction en chaîne dans l'ADS. Ce paramètre est très important pour le design d'un système hybride car il est directement proportionnel à la puissance de l'accélérateur de protons. L'estimation correcte de la puissance requise à l'accélérateur est indispensable pour une analyse complète d'un système hybride car elle affecte la taille de l'accélérateur, la fraction de la puissance produite nécessaire à alimenter la source externe et donc le rendement global de l'installation.

Comme on l'a vu dans le paragraphe 2.4.2, l'intensité de la source externe de neutrons dépend du coefficient de multiplication homogène du cœur; compte tenu des incertitudes dans le calcul de ce paramètre, on s'attend de forts écarts lors de l'estimation de l'intensité de la source de neutrons. Les résultats des participants, normalisés à la puissance nominale de 377 MW_{th}, sont présentés dans les Figures 4.22 et 4.23.



Figure 4.22: Intensité de la source de neutrons externes pendant l'irradiation (cœur de "start-up")



Figure 4.23: Intensité de la source de neutrons externes pendant l'irradiation (cœur à l'équilibre)

Les résultats obtenus en DDV sont très dispersés: le rapport entre les valeurs extrêmes, obtenues par ANL et KAERI, est de 7 pour le cœur de "start-up" et de 3 pour le cœur à l'équilibre. Les résultats semblent corrélés avec les données de base utilisées: pour les deux cœurs du benchmark, ENDF requiert un nombre de neutrons externes minimal et JEF celui maximal. Si on exclut la solution de KAERI, considérablement plus élevée par rapport aux autres, les valeurs des solutions basées sur JEF sont très proches, avec un écart maximum de 10%. On observe aussi une bonne cohérence entre les deux solutions JENDL, avec un écart de l'ordre de 30%.

L'intensité de la source externe de neutrons change au cours de l'irradiation, principalement à cause de l'évolution du coefficient de multiplication du cœur: dans le cœur de "start-up", le nombre de neutrons externes et donc la puissance requise à l'accélérateur augmentent tout au long du cycle. Pour le cœur à l'équilibre, au contraire, l'intensité de la source diminue lors des premières périodes d'irradiation, quand le k_{eff} augmente, et augmente vers la fin de l'irradiation, avec la diminution du coefficient de multiplication. On peut enfin noter que la courbe obtenue à partir des valeurs de RIT montre de fortes oscillations, en particulier pour le cœur de "start-up".

Afin d'éliminer, au moins partiellement, la dépendance du k_{eff} sur l'intensité de la source de neutrons externes, on a divisé les valeurs obtenues par le facteur $\left(\frac{1}{k_{eff}}-1\right)$. On obtient ainsi une valeur de

l'intensité de la source externe "corrigée", qui dépend uniquement de P_{th} , E_f , v_k et de ϕ^* . Les résultats de cet ajustement sont donnés dans l'Annexe B.6.

Même après cette correction on observe un facteur 2 entre les valeurs extrêmes, obtenues par KAERI et JAERI. L'accord observé entre les 3 solutions JEF de PSI/CEA, RIT et SCK-CEN se révèle fortuit: la valeur obtenue par PSI/CEA est, en particulier, plus faible par rapport aux autres. Par contre, après correction, les valeurs de ANL et de PSI/CEA sont très proches. La cohérence parmi les deux solutions JENDL s'avère aussi très bonne après correction. Une explication partielle aux écarts observés peut venir de l'observation de l'énergie moyenne émise par fission utilisée par chaque participant (voir le Tableau 4.5): on pourrait ainsi corriger les valeurs de KAERI, RIT et SCK-CEN en les diminuant d'environ 15%. Tout de même cette considération ne permet d'expliquer que partiellement les écarts observés, qui pourraient dépendre aussi d'imprécisions dans les calculs. En particulier il parait difficile d'expliquer autrement les fortes oscillations dans la solution de RIT.

4.3.4.3 Composition du combustible en fin d'irradiation

L'estimation correcte de la composition du combustible en fin d'irradiation est très importante lors de l'analyse des réacteurs opérant avec un cycle fermé du combustible car elle affecte la composition à l'équilibre du combustible et les caractéristiques du combustible au retraitement. Dans les Figures 4.24 et 4.25 on donne la composition du combustible en fin d'irradiation pour les deux cœurs analysés au cours du benchmark. A coté des solutions des sept participants on montre aussi la composition du combustible en début d'irradiation. Les résultats complets sont donnés dans l'Annexe B.6 sous forme de tableaux.

La composition du combustible en FDI dépend en premier lieu des valeurs des sections efficaces à 1 groupe énergétique, puis de la fluence à laquelle le combustible est soumis et enfin de la chaîne d'évolution des NL. Compte tenu des considérables discordances observées sur la valeur des sections efficaces et sur le taux de combustion, on peut donc s'attendre à de forts écarts dans la composition isotopique du combustible. On constate en effet la présence de différences de l'ordre de 10-20% pour les isotopes plus abondants, avec des variations de plus de 30% pour le ²⁴²Pu et le ²⁴⁵Cm. Les variations des densités en FDI montrent une faible corrélation avec les données de base utilisées. On renvoie l'analyse détaillée des solutions après l'évaluation de l'impact sur les résultats du taux de combustion et des approximations dans les chaînes d'évolution.

Comme montré dans le paragraphe 3.2.3, la composition isotopique du combustible en FDI dépend de façon considérable de la fluence perçue au cours de l'irradiation. Une diminution des "Q values" cause une augmentation de la fluence perçue par le combustible et du taux de fission des NL en FDI; par conséquent la masse en FDI diminue considérablement pour les isotopes qui sont brûlés (²³⁷Np, ²⁴¹Am et ²⁴³Am) et augmente pour les isotopes qui tendent à s'accumuler au cours de l'irradiation (²⁴²Cm, ²⁴³Cm et ²⁴⁴Cm). Les résultats de KAERI, RIT et SCK-CEN, qui ont obtenu des taux de fission plus élevés par

rapport aux autres participants (+15%), confirment cette tendance: la masse en FDI des isotopes brûlés est inférieure de 8-15% par rapport à celle des autres organisations.

La composition du combustible, fortement chargé en AM, requiert l'utilisation de chaînes de décroissance des NL très détaillées lors des calculs d'évolution: on a observé que l'utilisation de rapports de branchement différents ou le fait de négliger des réactions lors de la description de la chaîne d'évolution peuvent causer des écarts significatifs dans la composition isotopique en FDI. En particulier les participants ont utilisé rapport de branchement différents pour la capture neutronique de l'²⁴¹Am: la plupart des organisations ont utilisé la valeur de 0.2/0.8 pour le rapport entre ^{242m}Am et ^{242f}Am, tandis que RIT a utilisé les valeurs 0.225/0.775, PSI/CEA 0.15/0.85 et SCK-CEN 0.09/0.91. Par conséquent PSI/CEA et SCK-CEN obtiennent les concentrations plus faibles de ^{242m}Am en FDI, alors que RIT surestime cette valeur par rapport aux autres participants. Comme attendu, on vérifie une tendance opposée pour le ²⁴²Cm, qui se forme suite à la décroissance de l'^{242f}Am.

Des imprécisions dans la création de la chaîne d'évolution peuvent aussi expliquer une partie des écarts dans la densité de certains autres isotopes. En particulier on peut noter le fait que KAERI et SCK-CEN obtiennent des concentrations d'²³⁵U et d'²³⁶U dans le cœur de "start-up" de 80-90% plus faibles que celles des autres participants; alors que les résultats pour le cœur à l'équilibre sont en ligne avec les autres. On peut expliquer cet effet par le fait que SCK-CEN n'a pas inclus la réaction (n, 2n) du ²³⁷Np dans la chaîne d'évolution et que KAERI et SCK-CEN n'ont pas modélisé dans leur chaîne d'évolution la décroissance α du ²³⁹Pu et du ²⁴⁰Pu. En effet dans le cœur de "start-up", qui ne contient pas d'uranium en début d'irradiation, l'²³⁵U et l'²³⁶U se forment principalement par décroissance α des deux isotopes du plutonium 239 et 240 et par des réactions (n, 2n) du ²³⁷Np. Cette voie de formation est par contre moins importante dans le cœur à l'équilibre où ces deux isotopes sont générés principalement par des réactions de capture sur les isotopes de l'uranium à plus faible nombre de masse.

Dans la suite on compare directement les résultats pour les principaux NL en tenant aussi compte de la correction liée aux différents taux de combustion. Pour la représentation des résultats, se référer aux Figures de 4.24 et 4.25 et aux tableaux présentés dans l'Annexe B.6.



Figure 4.24: Composition isotopique du cœur de "start-up" (atomes/barn·cm)

a) Isotopes de l'uranium et du plutonium

b) Actinides mineurs







a) Isotopes de l'uranium et du plutonium

b) Actinides mineurs



En fin d'irradiation, la composition massique de l'uranium dans le cœur à l'équilibre montre un bon accord parmi les participants, en particulier pour l'isotope le plus abondant, l'²³⁴U: dans ce cas, l'écart maximal de la moyenne est de 3.4%. KAERI, RIT et SCK-CEN sous estiment la masse de cet isotope par rapport aux autres participants, ce qui est justifié par le fort taux de combustion calculé. Si on tient compte de cet effet, la cohérence parmi les solutions s'avère encore meilleure. Les résultats pour les deux autres isotopes principaux, ²³⁵U et ²³⁶U, sont plus dispersés: pour ce dernier, en particulier, la solution de SCK-CEN s'éloigne considérablement des autres.

Pour le ²³⁷Np, on observe des écarts assez limités dans les deux cœurs, de l'ordre de 5-6% de la valeur moyenne. La prise en compte du facteur de correction pour les différents taux de combustion (environ 9% pour cet isotope), permettrait de réduire l'écart maximal.

Les différences entre les solutions sont très prononcées quand on compare le bilan massique des isotopes du plutonium en FDI: pour la plupart des isotopes on observe des écarts de l'ordre de 10% - 20% par rapport à la moyenne. En particulier, les résultats de ANL et de SCK-CEN divergent des autres. Dans les deux cœurs la concentration des isotopes fertiles du plutonium calculée par SCK-CEN diffère considérablement des autres: l'écart par rapport à la moyenne des solutions est compris entre 10% et 26%. De tels écarts sont difficiles à justifier, compte tenu du fait que les sections efficaces à 1 groupe calculées par SCK-CEN montrent une bonne cohérence avec celles des participants qui ont utilisé les données de base JEF. Par contre les résultats de ANL se différencient des autres surtout pour les isotopes 238 et 239: ANL sous estime systématiquement la masse du ²³⁸Pu et surestime celle du ²³⁹Pu. Cet effet peut être reconduit aux différentes valeurs des sections efficaces de capture du ²³⁸Pu: ENDF obtient une valeur plus élevée par rapport à celle de JEF et de JENDL. De manière plus générale, il est intéressant de noter que, pour le cœur à l'équilibre, l'influence du taux de fission des NL sur la masse des isotopes du plutonium en FDI est plus faible que celle observée pour les AM: une augmentation de 10% du taux de fission ne modifie quasiment pas l'inventaire massique du ²³⁹Pu et du ²⁴²Pu et induit une faible variation pour les autres isotopes (2% au maximum).

Quant aux isotopes de l'américium, on observe des discordances, par rapport à la valeur moyenne, de 8% - 10% pour les isotopes fertiles et de 30% pour l'^{242m}Am. Pour l'²⁴¹Am et l'²⁴³Am, les résultats montrent une corrélation avec les données de base utilisées; ENDF et JEF donnent les valeurs extrêmes. Comme on a déjà observé, les différentes valeurs utilisées pour le facteur de branchement de la capture de l'²⁴¹Am justifient les écarts sur l'^{242m}Am et les différents taux de fission peuvent expliquer les faibles concentrations d'²⁴¹Am et d'²⁴³Am calculées par KAERI, RIT et SCK-CEN. En effet, les isotopes fertiles de l'américium sont très sensibles au taux de combustion: si on extrapole les résultats de l'étude paramétrique de PSI/CEA, une augmentation de 15% du taux de fission du combustible diminue la masse d'²⁴¹Am et d'²⁴³Am présente en FDI dans le cœur à l'équilibre d'environ 10% et 7.5%, respectivement.

Si on compare les valeurs pour les isotopes du curium, on observe un bon accord pour le ²⁴⁶Cm, surtout pour le cœur à l'équilibre. Quant aux deux isotopes plus abondants, le ²⁴⁴Cm et le ²⁴⁵Cm, les écarts sont plus importants, jusqu'à 20% de la moyenne, et sont liés aux données de base utilisées. JEF obtient la concentration la plus élevée pour le ²⁴⁴Cm et celle la plus faible pour le ²⁴⁵Cm, alors que les résultats de ENDF montrent une tendance opposée. Cet effet est attribuable aux différences dans la section microscopique de capture du ²⁴⁵Cm, ENDF et JEF donnant, respectivement, la valeur la plus haute et la plus faible. Dans le cœur à l'équilibre, la concentration finale des 3 isotopes les plus abondants du curium n'est que marginalement influencée par le taux de fission du combustible: l'écart observé lors de l'étude paramétrique de PSI/CEA n'est que de 0.5%, au maximum. Cette observation justifie donc le fait que les concentrations massiques estimées avec JEF (KAERI, PSI-CEA, RIT et SCK-CEN) soient en excellent accord, même si le taux de fission du combustible est différent.

4.3.5 Paramètres de sûreté

Les spécifications du benchmark prévoyaient le calcul de trois importants paramètres de sûreté: le bêta effectif, le coefficient de vidange du combustible et le coefficient Doppler pour une augmentation de 600°C de la température du combustible (de 980°C à 1580°C). Les deux derniers paramètres ont été calculés en début d'irradiation et en fin d'irradiation, tandis que les valeurs du bêta effectif sont disponibles uniquement en début d'irradiation. Le coefficient de vidange a été défini comme $\frac{k_{eff}^{ref} - k_{eff}^{ref}}{k_{eff}^{ref}}$,

où k_{eff}^{vid} correspond à une vidange de 100% du caloporteur dans la région du combustible, et le coefficient

Doppler comme $\frac{k_{eff}^{980} - k_{eff}^{1580}}{k_{eff}^{980} \cdot k_{eff}^{1580}}$. Tous les participants ont obtenu les coefficients de multiplication à partir

de calculs directs, sans donc utiliser des méthodes perturbatives. Les valeurs des coefficients de sécurité du cœur en DDV et en FDV sont données dans le Tableau 4.7.

En général, le MAB a des paramètres de sûreté très dégradés par rapport aux réacteurs rapides à combustible MOX en raison de la composition du combustible, qui ne contient pas d'uranium et est fortement chargé en actinides mineurs, et de la dureté du spectre neutronique. Le coefficient de vidange du caloporteur est très positif et le coefficient Doppler, quoique légèrement positif, est proche de zéro. D'autre part, la fraction de neutrons retardés est d'environ 150-200 pcm, environ la moitié par rapport aux réacteurs à neutrons rapides traditionnels.

	ANL	CIEMAT	KAERI	PSI/CEA	JAERI	RIT	SCK-CEN
	Cœur de "start-up"						
Coefficient de vidange (DDV)	3205	4078	3899	3127	3952	3025	3020
Coefficient de vidange (FDV)	2655	3389	2866	1868	3297	2020	1832
Coefficient Doppler (DDV)	0	38	17	6	20	48	11
Coefficient Doppler (FDV)	13	324	27	12	32	53	48
β_{eff} (DDV)	156	246	-	184	174	195	-
	Cœur à l'équilibre						
Coefficient de vidange (DDV)	3424	4816	4144	2955	4359	3183	3292
Coefficient de vidange (FDV)	2308	2744	2197	2276	2982	1700	1831
Coefficient Doppler (DDV)	20	17	23	4	30	45	98
Coefficient Doppler (FDV)	12	278	44	6	46	49	103
β_{eff} (DDV)	116	221	-	156	145	171	-

Fableau 4-7∙	Paramètres	de sûreté	(ncm)	۱
1 abicau 4.7.	1 arametres	ue sureie	(pem)	,

Pour les deux cœurs étudiés, le coefficient de vidange du caloporteur dans la région du combustible est très positif, en particulier en début de vie si bien que, d'après les calculs de ANL et de JAERI, le cœur vidangé devient carrément surcritique en début de vie. La valeur du coefficient de vidange est corrélée aux données de base: les résultats obtenus en utilisant JENDL sont considérablement plus élevés que ceux obtenus avec les bibliothèques JEF ou ENDF; cet écart est quantifiable entre 800 et 1000 pcm. L'étude de sensibilité de KAERI pour le cœur de "start-up" (voir Annexe B.5) permet de mieux comprendre ces écarts. En effet, l'utilisation des données JENDL pour le plomb et le bismuth porte à sous-estimer le k_{eff} du cas de référence de 1200 pcm par rapport à ENDF et de 1800 pcm par rapport à JEF; au contraire, dans le cas vidangé, où le plomb et le bismuth ne sont présents que dans la cible et dans le réflecteur, l'utilisation de différentes données de base pour ces isotopes a vraisemblablement un impact beaucoup plus limité. Cette observation peut aussi s'appliquer aux résultats de KAERI, obtenus à partir d'une bibliothèque JEF mais en utilisant des données JENDL pour le plomb: en effet le coefficient de vidange de KAERI est plus proche des solutions JENDL que celles basées sur JEF. On peut enfin souligner que les valeurs de RIT et de SCK-CEN (solutions basées sur JEF mais utilisant le plomb de ENDF) sont en excellent accord, avec un écart maximal de 3%. Les deux solutions JENDL pures montrent aussi un accord acceptable, de l'ordre de 10%.

La variation de la réactivité liée à l'augmentation de la température du combustible est proche de zéro pour les deux cœurs étudiés. Le coefficient Doppler est très faible par rapport aux réacteurs rapides à combustible MOX, à cause d'un spectre neutronique plus dur et surtout à cause de l'absence $d^{238}U$ dans le combustible. Les écarts observés parmi les participants, de l'ordre de quelques dizaines de pcm, sont compatibles avec l'incertitude sur le coefficient Doppler des réacteurs à spectre rapide plus conventionnels, estimée à ±100 pcm.

Seulement cinq participants ont calculé le β_{eff} des deux cœurs: ANL, JAERI et RIT ont utilisé des données de base tirées d'évaluations ENDF, alors que CIEMAT et PSI/CEA ont utilisé des évaluations JENDL et JEF, respectivement. ANL, CIEMAT, JERI et PSI/CEA ont fourni aussi la contribution de chaque isotope au β_{eff} total; on présente l'ensemble de ces valeurs dans l'Annexe B.7. Les résultats du calcul du β_{eff} dépendent considérablement de la bibliothèque nucléaire utilisée: les valeurs obtenues avec ENDF et JEF sont très proches pour tous les isotopes considérés, alors que les valeurs obtenues avec JENDL sont en général plus élevées. Les écarts sur la valeur intégrale du β_{eff} observés entre ANL, JAERI et PSI/CEA sont essentiellement dus à la prise en compte de différents isotopes pour le calcul. En particulier, la bibliothèque ENDF contient les données des neutrons retardés uniquement pour l'uranium, le plutonium, le ²³⁷Np et l'²⁴¹Am; le β_{eff} de ANL, qui ne tient pas compte de tous les autres actinides mineurs, est ainsi considérablement plus faible par rapport à celui de JAERI, qui a utilisé les données JENDL pour l'^{242m}Am, l'²⁴³Am et le ²⁴⁵Cm, et de PSI/CEA, qui a utilisé une bibliothèque très complète. Le β_{eff} de RIT est environ 5% plus élevé par rapport à la valeur de PSI/CEA. Le résultat de CIEMAT, le seul participant à avoir utilisé les données JENDL, est 30% supérieur par rapport aux autres solutions.

4.4 Conclusions

Le benchmark organisé par l'AEN/NSC a permis une analyse très détaillée des principales caractéristiques neutroniques d'un ADS refroidi au plomb-bismuth et dédié à l'incinération des actinides mineurs en cycle fermé. Cet exercice a profité de la collaboration de sept groupes, représentant de huit nations à la pointe dans l'exploitation de l'énergie nucléaire à usage civil. Les différentes solutions ont été obtenues en utilisant les trois principales bibliothèques nucléaires, ENDF, JEF et JENDL, ainsi que les deux méthodes, déterministe et Monte Carlo, actuellement utilisées pour la résolution numérique de l'équation de Boltzmann. Cet exercice a permis d'une part d'estimer les incertitudes associées aux différentes données de base, méthodes et approximations de calcul et, d'autre part, de tester de façon rigoureuse les routes de calcul utilisées par les différents centres de recherche.

L'analyse des solutions du benchmark a mis en évidence des écarts considérables dans les paramètres neutroniques fondamentaux soit pour les calculs en début d'irradiation soit pour les calculs d'évolution. On a observé d'importantes discordances non seulement pour des grandeurs caractéristiques des systèmes hybrides, telles que le niveau de la source externe de neutrons et la distribution du flux neutronique (dépendante de la sous-criticité du système), mais aussi pour des grandeurs communes aux réacteurs critiques, telles que la valeur des sections efficaces microscopiques condensées à un seul groupe énergétique, le coefficient de multiplication en milieu infini, le coefficient de multiplication homogène du cœur et son évolution au long de l'irradiation.

Les écarts observés, en particulier lors des calculs de cellule, peuvent être attribués aux différences dans les sections efficaces, en particulier pour les actinides mineurs et certains isotopes du plutonium. Cela a été confirmé par une étude paramétrique séparée, qui a quantifié à 2100 et 2800 pcm la diminution du k_{eff} associée à l'utilisation des données JEF ou JENDL en substitution de la bibliothèque de référence ENDF; cette étude a aussi mis en évidence une forte sensibilité du k_{eff} aux données de base du plomb. Tout de même, l'utilisation de données de base issues d'évaluations différentes ne peut expliquer que partiellement les écarts observés lors du calcul des principaux paramètres neutroniques. Il serait aussi important d'étudier l'effet des différentes méthodes de mise en forme des données nucléaires et des approximations dans le calcul de cœur et d'en quantifier l'impact sur les paramètres neutroniques plus importants.

L'analyse des résultats en début d'irradiation a indiqué clairement le besoin d'une réévaluation des données de base des transuraniens (actinides mineurs et plutonium) ainsi que du plomb. Pour cela il serait important d'organiser un benchmark expérimental avec une cellule très simple fortement chargée en actinides mineurs de façon à pouvoir tester la capacité des différentes bibliothèques nucléaires de base de prévoir des paramètres fondamentaux tels que les taux de réactions de chaque isotope et la réactivité du milieu. La réalisation pratique d'un tel exercice est tout de même mise en question par la difficulté d'obtenir matériellement un combustible si fortement chargé en actinides mineurs.

La comparaison des résultats d'évolution a montré d'importants écarts lors de l'évaluation de la perte de réactivité au cours du cycle et de la composition isotopique du combustible en fin d'irradiation; ces résultats apparaissent faiblement corrélés aux bibliothèques nucléaires utilisées. Des études paramétriques séparées ont montré que des approximations/imprécisions dans la modélisation de l'évolution du combustible peuvent affecter considérablement la fiabilité des calculs de "burn-up", en particulier pour des systèmes à fort taux d'irradiation du combustible tels que les deux réacteurs étudiés au cours de ce benchmark. Parmi les effets les plus importants, on peut mentionner la précision insuffisante dans l'évolution distinctes, l'utilisation de chaînes de décroissance incomplètes pour les noyaux lourds et un traitement différent des produits de fission. D'autres aspects, tels que la fréquence de re-calcul du spectre neutronique et une intégration correcte de la puissance thermique lors de chaque passe d'évolution peuvent aussi avoir un impact sur la précision de calcul.

L'analyse des résultats de "burn-up" a mis en évidence plusieurs imprécisions dans la simulation numérique de l'évolution du combustible pour la plupart des organisations qui ont participé à ce benchmark. Il est opportun de remarquer ici que la plupart de ces problèmes sont de nature plus générale et ont un impact important non seulement sur les phénomènes associés à l'incinération des transuraniens mais aussi sur la fiabilité des calculs pour des réacteurs critiques utilisant un combustible et un caloporteur plus traditionnels.

En synthèse, cette étude a montré que l'état global des données nucléaires et des outils de calcul pour les ADS est satisfaisant pour des calculs préliminaires ou pour des études de scénario plus générales mais est encore insuffisant pour une analyse de projet plus détaillée. L'amélioration des outils de calcul doit ainsi passer par une réévaluation des données de base des transuraniens, par une amélioration des procédures d'évolution du combustible et des méthodes de calcul des paramètres caractéristiques des ADS tels que le niveau de la source externe de neutrons. La réalisation d'un benchmark expérimental avec du combustible fortement chargé en plutonium et actinides mineurs semble être nécessaire pour fournir des informations additionnelles sur ces isotopes et pour réduire ainsi les incertitudes sur les données nucléaires de base.

5 Comparaison de scénarios de transmutation

5.1 Objectifs de l'étude

L'étude de comparaison systématique de schémas innovants pour la transmutation des transuraniens a été réalisée dans le cadre d'un projet international organisé par le NDC de l'AEN et constitue le cœur de ce projet. Le travail a donc pu jouir de la collaboration constante du groupe international d'experts nommés par l'AEN, ce qui a permis d'obtenir les informations les plus détaillées et fiables dans tous les domaines touchés par cette étude. En particulier, le choix des scénarios à traiter, les modèles des réacteurs et toutes les données du cycle du combustible représentent un consensus entre les principaux experts internationaux.

Cette étude se propose d'établir les avantages et les désavantages des systèmes à spectre rapide, critiques ou sous critiques, dans le cadre d'une stratégie d'incinération des TRU et de comparer de façon appropriée les schémas qui sont actuellement étudiés par les nations "leader" dans l'exploitation de l'énergie nucléaire à usage civil. Le travail permet aussi d'évaluer les conséquences de l'implémentation d'une stratégie de transmutation sur tout le cycle nucléaire et notamment sur la fabrication et sur le retraitement du combustible, sur le cycle de l'uranium et sur l'accumulation des TRU, en pile et hors pile, au cours de leur incinération.

Le but de ce travail n'est pas d'analyser tous les schémas de transmutation possibles mais de limiter l'étude à un nombre restreint de "schémas principaux" qui constituent une "enveloppe" des solutions actuellement proposées. Le NDC a donc défini un schéma de référence, un schéma de recyclage du plutonium seul⁴⁰ et 4 schémas de transmutation auxquels peut se rapporter toute autre stratégie de transmutation par des systèmes à spectre rapide utilisant du combustible solide. La description détaillée du schéma de référence et des 5 autres schémas, ainsi que la description des réacteurs analysés, est renvoyée à la section 5.2.

Il est utile de remarquer que les principaux schémas étudiés ne prévoient pas de réacteurs à spectre thermique et ne considèrent ni la transmutation des PFVL (Produits de Fission à Vie Longue) ni le recyclage hétérogène des TRU, c' està dire l'insertion dans le cœur de cibles spécifiques exclusivement chargées en TRU⁴¹ et gérées indépendamment du combustible standard. En effet, la première phase de

⁴⁰ Il est opportun de rappeler ici qu'une stratégie de recyclage à cycle partiellement fermé des TRU, qui prévoit le recyclage uniquement du Pu et la mise aux déchets des AM, ne peut pas être qualifiée en tant que stratégie de transmutation.

⁴¹ Une stratégie de recyclage hétérogène de l'Am et du Cm, analysée séparément par le CEA [AEN-02], a été tout de même introduite dans une section à part de l'étude de l'AEN. Le Np et le Pu sont ici multi-recyclés de façon

l'étude du NDC sur la transmutation [NEA-99] a mis en évidence les limites des systèmes à spectre thermique par rapport à ceux à spectre rapide et a montré aussi les difficultés techniques et économiques qui sont des obstacles à la transmutation des PFVL. Leur transmutation est tout de même concevable dans une deuxième phase, quand une stratégie d'incinération des NL aura été implémentée avec succès. Le recyclage hétérogène des TRU, bien que technologiquement plus simple à réaliser dans un futur proche par rapport au recyclage homogène, a de moins bonnes performances en terme de réduction de la masse et de la radiotoxicité des NL; une stratégie de recyclage homogène des TRU s'avère ainsi préférable dans le long terme.

Il faut aussi souligner que cette étude se propose de résoudre le problème des déchets radioactifs sans modifier abruptement la composition du parc nucléaire: les REP constituent toujours la fraction principale du parc dans la plupart des scénarios considérés. Ce choix répond essentiellement à des considérations économiques: les réacteurs à eau légère ont été exploités depuis des décennies à une échelle industrielle et sont désormais bien connus, fiables et économiquement rentables. Les exploitants des centrales nucléaires ont donc un fort intérêt à limiter la quantité des systèmes à spectre rapide qui exigent des investissements importants en terme de recherche, démonstration et développement et pour lesquels la rentabilité économique doit être encore prouvée. Le choix des schémas et leur optimisation reposent donc sur les critères de base suivants qui répondent à deux exigences fondamentales du développement durable, la limitation de la production de polluants et du coût de production de l'énergie électrique:

- Réduction de la masse et de la radiotoxicité à long terme des déchets
- Maximisation de la fraction de réacteurs à eau légère dans le parc

Par contre, les schémas considérés dans l'étude n'ont pas été conçus pour optimiser l'utilisation de l'uranium naturel⁴², même si ce paramètre est analysé en détail au cours de l'étude. L'optimisation de la consomption de l'uranium naturel n'est pas, dans le court et le moyen terme, une priorité à niveau industriel car les ressources connues et exploitables sont encore abondantes [NEA-00b] et car le coût du combustible est marginal par rapport au coût total de production de l'énergie nucléaire.

5.1.1 Définition d'équilibre

Un réacteur dédié à l'incinération des TRU et qui opère avec un cycle de combustible partiellement ou totalement fermé tend à rejoindre, après une période d'opération suffisamment longue, une situation d'équilibre dans laquelle la composition du combustible en début et en fin d'irradiation ne se modifie plus au cours des cycles. On peut donc définir l'état d'équilibre pour un réacteur comme la situation limite

homogène et l'Am et le Cm sont incinérés dans des cibles dédiées jusqu'à atteindre un taux de combustion très élevé et sont ensuite mises directement aux déchets.

obtenue après un nombre de cycles très grand, en théorie infini. La composition asymptotique du combustible à l'équilibre est fonction de la composition du "top-up"⁴³, des caractéristiques neutroniques et opérationnelles du réacteur et du cycle du combustible, temps de refroidissement, temps de stockage avant irradiation et taux de pertes au retraitement. Une fois déterminés tous ces paramètres la composition à l'équilibre est univoquement déterminée.

On peut aussi définir un état d'équilibre pour un parc nucléaire: un parc se dit à l'équilibre quand tous les réacteurs qui en font partie sont à l'équilibre et le flux massique entre réacteurs producteurs de TRU et réacteurs incinérateurs de TRU est en équilibre. On rappelle que les informations détaillées sur les méthodes utilisées pour établir une situation d'équilibre et pour la mise à l'équilibre du parc nucléaire ont été présentées dans la section 3.4.

La composition du combustible à l'équilibre est, en général, très différente de celle du projet pour lequel le réacteur a été conçu et optimisé; les caractéristiques neutroniques du réacteur à l'équilibre, réactivité en DDC et en FDC, coefficients de réactivité, peuvent donc ne plus être compatibles avec le fonctionnement du système. Il s'avère alors indispensable de modifier quelques caractéristiques du réacteur de façon à avoir un système fonctionnant même en situation d'équilibre. Au cours de la présente étude, cette optimisation a été faite de façon à maintenir la réactivité au cours du cycle: les réacteurs critiques ont un k_{eff} proche de l'unité en FDC et les réacteurs hybrides ont une réactivité proche de celle de projet en DDC et en FDC. Les autres paramètres essentiels pour le fonctionnement d'un réacteur, coefficients de réactivité et β_{eff} , ont été évalués au cours de cette étude mais les réacteurs dédiés n'ont pas été modifiés de façon à optimiser ces paramètres. Dans les paragraphes suivants on donne une description détaillée des réacteurs analysés et des modifications apportées aux modèles originaux.

L'évolution du parc nucléaire actuel vers un parc avancé à l'équilibre nécessite une période de transition qui varie selon les scénarios considérés et dépend de façon considérable de la structure de référence du parc nucléaire et de décisions politiques. Pour cet ensemble de raisons la phase de transition n'a pas été traitée au cours de cette thèse; on suppose néanmoins que cette transition est techniquement faisable. Il est par contre plus intéressant d'étudier le transitoire qui se vérifie en cas de sortie de l'option nucléaire. L'analyse du transitoire de sortie de l'option nucléaire est indispensable pour déterminer les performances effectives de réduction de la masse et de la radiotoxicité des noyaux lourds. En effet, afin d'assurer un bénéfice réel par rapport à la stratégie à cycle ouvert, les réacteurs dédiés à la transmutation doivent être à même d'incinérer une fraction considérable des TRU présents en pile et hors pile dans le

⁴² L'utilisation de l'uranium est en fait en compétition avec la maximisation de la fraction de réacteurs à spectre thermique dans le parc; tout de même un scénario composé seulement de RNR a été inclus dans l'étude en tant qu'objectif à long terme pour l'industrie nucléaire.

⁴³ Au cours de cette thèse on définit comme "top-up" la quantité de NL qui doit être ajoutée au combustible récupéré après l'irradiation afin de maintenir l'inventaire massique en NL constant. Le "top-up" compense donc exactement la masse de NL perdue par fission ou au retraitement.

parc à l'équilibre. L'étude de "phase-out" permet ainsi d'évaluer l'inventaire massique résiduel en fonction de la durée du transitoire de sortie de l'option nucléaire.

L'étude de l'AEN et cette thèse ont limité l'analyse complète de tous les scénarios à la seule situation d'équilibre. Néanmoins, dans le cadre de cette thèse, un transitoire de sortie de l'option nucléaire à été analysé en détail pour les Schémas 3a et 3b afin de comparer les performances des réacteurs critiques et des systèmes hybrides. Cette analyse est le sujet du prochain chapitre, "Analyse du phase-out de l'option nucléaire".

5.2 Description des stratégies et des modèles utilisés

5.2.1 Stratégies de transmutation

Cette étude inclut les 3 stratégies principales qui peuvent être envisagées pour la gestion des déchets radioactifs:

- Cycle ouvert du combustible (cas de référence)
- Recyclage et incinération en cycle fermé du plutonium seul (cycle partiellement fermé)
- Recyclage et incinération en cycle fermé de tous les transuraniens

La représentation graphique détaillée de tous les schémas étudiés, y inclus les flux massiques à l'équilibre, est renvoyée à la section 5.5.

La première stratégie, dans laquelle le combustible usé est entreposé dans des ouvrages de façon à qu'il refroidisse et ensuite est mis aux déchets sans aucun retraitement, représente la situation actuelle dans de nombreux pays producteurs d'énergie électronucléaire (entre autres Etats-Unis, Canada, Espagne et Suède) et est considérée dans cette étude comme cas de référence. Par la suite on définira le premier schéma "Cycle ouvert" ou "Schéma 1".

La deuxième stratégie prévoit la séparation de l'uranium et du plutonium du reste des déchets, contenant les AM et les PF. Le plutonium issu des REP-UOX est irradié une fois dans un réacteur REP-MOX et ensuite recyclé indéfiniment dans un réacteur RNR de type CAPRA utilisant du combustible oxyde. L'uranium provenant des réacteurs à eau légère est stocké en réserve, tandis que celui issu des RNR est réintroduit dans le cœur à spectre rapide. La séparation du combustible irradié est faite avec un procédé de type PUREX pour tous les réacteurs du parc. Cette stratégie sera indiquée par la suite comme "Multirecyclage du plutonium" ou "Schéma 2". Une telle stratégie ne peut pas être considérée comme une stratégie de transmutation complète, car les actinides mineurs ne sont pas retraités, mais elle permet de réduire considérablement l'inventaire des NL aux déchets, de limiter l'accumulation du plutonium et d'améliorer le facteur d'utilisation de l'uranium naturel avec un effort technologique limité par rapport

aux stratégies de transmutation décrites par la suite. On peut aussi penser à cette stratégie comme premier pas vers la réalisation d'un programme complet de transmutation avec l'introduction successive d'un deuxième stratum, dédié à l'incinération des AM.

La troisième stratégie prévoit la séparation de tous les NL des PF et le recyclage en cycle fermé des TRU dans des réacteurs dédiés à spectre rapide. Dans le cadre d'une telle stratégie, on a retenu 4 propositions différentes, le "Double strate", conçu en premier au Japon et développé en collaboration avec la France, deux concepts de "Double composante", présentés par les Etats-Unis et, en dernier, une approche innovante basée exclusivement sur des RNR de type IFR qui constitue une option très prometteuse pour le futur à long terme de l'énergie nucléaire.

Le schéma "Double strate" représente l'évolution du "Schéma 2" décrit précédemment: le premier stratum maîtrise le Pu, tandis que les AM sont gérés séparément dans un deuxième stratum, composé exclusivement de réacteurs sous critiques. Dans le deuxième stratum tous les NL sont donc séparés des PF par un procédé de type pyrochimique et recyclés indéfiniment. Ce schéma sera appelé par la suite "Double strate" ou "Schéma 4". Les avantages principaux de cette stratégie sont de réduire considérablement la fraction des réacteurs sous critiques dans le parc et de minimiser le flux massique contenant les AM à la fabrication et au retraitement du combustible. Par contre, le parc nucléaire devient très fragmenté et complexe.

Les deux scénarios à Double Composante prévoient seulement deux types de systèmes dans le parc: des REP standard et des réacteurs à spectre rapide, critiques ou sous critiques, dédiés au recyclage des TRU. Cette stratégie permet de simplifier considérablement le parc et le cycle du combustible car les TRU ne sont pas séparés de l'uranium. En outre cette option permet de limiter le potentiel de prolifération car le Pu et les AM sont toujours réunis pendant tout le cycle du combustible. La séparation du combustible UOX irradié est obtenue avec un procédé de type UREX qui permet d'isoler l'uranium des TRU et des PF. L'uranium ainsi obtenu est stocké en réserve, tandis que les TRU sont utilisés pour la fabrication du combustible métallique introduit dans le réacteur incinérateur de TRU. Après irradiation et refroidissement, le combustible métallique est récupéré par un procédé pyrochimique et tous les NL sont réutilisés pour la fabrication du nouveau combustible. Par la suite on indiquera comme "Schéma 3a" et "Schéma 3b" les scénarios à Double Composante avec des réacteurs critiques de type IFR ou, respectivement, avec des réacteurs sous critiques de type ATW ("Accelerator driven Transmutation of Waste").

Le dernier schéma, qui sera indiqué comme "Schéma 5" ou "Stratégie de RNR" simplifie de façon extrême le parc et le cycle du combustible car il prévoit l'utilisation d'une seule machine, un réacteur critique à spectre rapide de type IFR isogénérateur et alimenté avec de l'uranium naturel. A l'équilibre ce réacteur a donc un rapport de conversion de 1, c' esà-dire qu'il produit dans les couvertures autant de

TRU qu'il en consomme dans le cœur. Au niveau du cycle du combustible, les assemblages fertiles et fissiles sont extraits du cœur au même instant et, après une adéquate période de refroidissement, sont retraités ensemble et l'uranium, les TRU et les PF sont séparés avec un procédé pyrochimique. L'uranium est utilisé pour la fabrication des assemblages fertiles et des couvertures axiales inférieures, alors que les TRU et le reste de l'uranium retraité sont ajoutés à l'uranium naturel pour la fabrication du combustible interne. Le fait de mélanger les couvertures axiales et les assemblages fertiles avec le combustible interne lors du retraitement répond à l'exigence de réduire les risques de prolifération; la séparation de l'uranium des TRU dans les assemblages fertiles permettrait d'obtenir du Pu quasiment pur et très fortement enrichi en ²³⁹Pu.

5.2.2 Modèles des réacteurs et leur modification dans le calcul d'équilibre

Les schémas de calcul décrits dans le paragraphe précédent incluent sept différents types de réacteurs: 3 RNR et 2 ADS à spectre rapide qui opèrent à cycle fermé et 2 REP qui opèrent à cycle ouvert. Pour ces derniers, un simple calcul d'évolution a été suffisant pour obtenir la composition du combustible à la fin de l'irradiation, tandis que pour les autres réacteurs une mise à l'équilibre a été nécessaire.

Le but de ce paragraphe est de décrire les réacteurs qui ont été modélisés au cours de cette étude et d'indiquer les modifications nécessaires pour obtenir un cœur fonctionnant en conditions d'équilibre. Une description détaillée des 5 cœurs à spectre rapide est donnée dans l'Annexe C.1, tandis que leurs caractéristiques principales, ainsi que celles des REP, sont résumées dans le Tableau 5.1.

	REP-UOX	REP-MOX	CAPRA	IFR	ATW (ADS)	MAB (ADS)
Schémas	1, 2, 3a, 3b, 4	2, 4	2, 4	3a / 5	3b	4
Combustible	UOX	MOX	MOX	Ac – Zr	Ac – Zr	AcN - ZrN
Caloporteur	H ₂ O	H_2O	Na	Na	Pb / Bi	Pb / Bi
P _{th} (MW)	4240	4240	3600	1575	840	377
P _e (MW)	1450	1450	1450	600	275	119
Fu ¹	0.85	0.85	0.85	0.85	0.8	0.85
Burn – up (GW _j /t _{NL})	50	50	185	139 / 127	250	149
Temps de séjour (j)	1550	1550	1553	1825	1093	1460
N ^o de cycles	5	5	6	5	6	1

Tableau 5.1: Caractéristiques principales des réacteurs étudiés

¹ facteur d'utilisation

Le réacteur à spectre thermique utilisé comme référence dans cette étude est le REP-N4 français, caractérisé par une puissance thermique de 4240 MW_{th} et par une puissance nominale électrique de 1450

 MW_e . Le combustible UOX, initialement enrichi au 4.2% en ²³⁵U, est irradié jusqu'à atteindre un taux de combustion moyen de 50.05 GW_j/t_{NL} avec une gestion du cœur par 1/5; un cinquième du cœur est déchargé chaque 10 mois environ et remplacé par du combustible frais. Le combustible MOX, qui contient initialement le 8.2% de plutonium et le 91.8% d'uranium appauvri, est irradié jusqu'à atteindre un taux de combustion moyen de 50.05 GW_j/t_{NL} dans les mêmes réacteurs REP-N4. Dans la pratique actuelle les réacteurs N4 qui utilisent du combustible MOX sont chargés pour le 30% avec des assemblages MOX et pour le restant 70% avec des assemblages de combustible UOX standard. Par simplicité dans la suite de l'étude on considérera les réacteurs REP-MOX chargés à 100% avec des assemblages MOX⁴⁴. Les calculs pour les systèmes à spectre thermique ont été réalisés au CEA à Cadarache [Guy-99] en utilisant le code de calcul neutronique APOLLO I - Cesar [Sam-98].

Le réacteur à neutrons rapides utilisé dans les Schémas 2 et 4 pour multirecycler le Pu est un réacteur de type EFR CAPRA HBU ("High Burn-Up"), refroidi au sodium et chargé avec du combustible MOX [BAT-97] [PTD-98] [Pil-98]. Le cœur CAPRA HBU permet de prolonger du 54% le temps d'irradiation du combustible par rapport à la version de référence CAPRA/94, d'améliorer le taux de combustion moyen jusqu'à obtenir une valeur proche de 185 GW_j/t_{NL} et de réduire la perte de réactivité au cours du cycle. Cela impose tout de même l'augmentation du nombre de cycles de 3 à 6 et la diminution du temps d'irradiation de chaque cycle, qui a été réduit à 220 jours. Le cœur CAPRA est de grande taille: il contient environ 25.7 tonnes de NL et dégage, en fonctionnement nominal, une puissance thermique de 3600 MW_{th} et une puissance électrique de 1450 MW_e. Le cœur est divisé en deux régions concentriques avec un différent enrichissement en Pu de façon à aplatir la nappe de puissance dans le réacteur; le combustible interne est enrichi à 38.1% en Pu, contre le 41.0% du combustible externe, le restant étant de l'uranium appauvri. Dans sa configuration de référence le cœur HBU respecte donc la limite du 45% sur l'enrichissement en Pu et est donc compatible avec le procédé de retraitement PUREX. Le modèle détaillé du cœur CAPRA HBU est donné dans la Figure C.1.1 des Annexes.

La mise à l'équilibre de ce réacteur, ainsi que celle du réacteur critique incinérateur de TRU du Schéma 3a, n'a requis aucune modification à ce design de base mais a été effectuée en ajustant la fraction de TRU dans le "top-up" de façon à obtenir, pour la situation d'équilibre, un système légèrement sur critique à la fin du cycle.

Les modèles pour le RNR critique incinérateur de TRU (Schéma 3a) et pour le réacteur isogénérateur utilisé dans le Schéma 5 ont été tirés du benchmark organisé par l'AEN/NSC dans le cadre des études sur le recyclage du plutonium [NEA-96a] [NEA-96b]. Ces modèles sont basés sur un réacteur de type ALMR (Advanced Liquid Metal Reactor), développé aux Etats-Unis par General Electric, refroidi au sodium et utilisant un combustible de type métal. Ce type de combustible est particulièrement adapté pour un

⁴⁴ Pour obtenir la fraction de réacteurs REP-MOX chargés à 30% avec des assemblages MOX il suffit de multiplier

processus de retraitement de type pyrochimique. Les deux réacteurs, de taille moyenne, avec une puissance électrique de 600 MW_e et une puissance thermique de 1575 MW_{th}, sont caractérisés par une forme particulière, très aplatie, du cœur. La hauteur de la région fissile est seulement de 45 cm, environ la moitié par rapport à un cœur rapide standard de dimensions similaires. Par rapport au modèle décrit dans le benchmark, dans lequel le combustible est irradié pendant 3 ans avec une gestion du cœur par tiers, on a augmenté le temps de résidence du combustible jusqu'à 5 ans de façon à obtenir un taux de combustion moyen plus important: des 85 GW_j/t_{NL} du projet on est passé à une valeur proche de 140 GW_j/t_{NL} qui est la référence pour cette étude. Le facteur d'utilisation et la longueur du cycle sont inchangés et, par conséquent, la gestion du cœur a été modifiée: à chaque cycle 1/5 du cœur est déchargé et substitué avec du combustible frais.

Le cœur incinérateur de TRU a été conçu pour brûler le plutonium et a donc un rapport de conversion très faible, proche de 0.5; il produit donc environ la moitié du plutonium qu'il consomme. Pour obtenir ce résultat, l'inventaire d'uranium dans le cœur a considérablement été réduit par rapport à un réacteur à spectre rapide "classique" en substituant les assemblages fertiles contenant de l'²³⁸U par des assemblages en acier. L'inventaire massique en NL est ainsi de 17.6 tonnes. La forme très aplatie du cœur a donc le but d'augmenter les fuites du réacteur de façon à compenser le manque d'absorption par l'²³⁸U et de permettre de maximiser l'enrichissement en Pu dans le combustible. Le modèle correspondant est présenté dans la Figure C.1.2 des Annexes.

Pour obtenir un cœur isogénérateur il est au contraire nécessaire d'augmenter l'inventaire d'uranium; dans le cœur rapide du Schéma 5 on a donc remplacé les assemblages du réflecteur radial interne par des couvertures fertiles et une couronne d'assemblages fertiles a été ajoutée avant le réflecteur radial externe. L'acier de la protection axiale inférieure a été aussi remplacé par des NL fertiles. Suite à ces modifications, le rayon externe du cœur est passé de 226 à 240 cm et l'inventaire de NL dans le réacteur a plus que doublé: 32.1 tonnes des couvertures fertiles s'ajoutent aux 17.7 du cœur interne. On renvoie aux Annexes (Figure C.1.3) pour le modèle correspondant. Au cours de cette étude ces 2 réacteurs seront identifiés par les sigles IFR sousgénérateur (réacteur du Schéma 3a) et IFR isogénérateur (réacteur du Schéma 5).

La mise à l'équilibre du réacteur IFR isogénérateur a requis une modification du design de base car la composition du "top-up" est fixe et par conséquent on ne peut pas ajuster les fractions d'isotopes fertiles et fissiles de façon à optimiser la réactivité à la fin du cycle. Pour cela on a donc augmenté de quelques pour cent la fraction de NL dans le combustible et dans les assemblages fertiles par rapport au modèle original en la compensant avec une réduction proportionnelle du Zr.

Le réacteur hybride utilisé comme brûleur de TRU dans le Schéma 3b correspond au design Pb-Bi d'un ATW développé à Argonne (Etats-Unis) [Yan-00] [YK-01] et sera par la suite indiqué avec tel acronyme. Ce système dégage une puissance thermique de 840 MW_{th} et produit une puissance électrique brute de 311 MW_e; si on considère les 36 MW_e nécessaires, en moyenne, pour le fonctionnement de l'accélérateur de protons, la puissance électrique nette disponible pour le réseau est de 276 MWe. La valeur de projet du coefficient de multiplication est, en DDC, de 0.97 et la perte de réactivité au long du cycle est d'environ 5800 pcm. Ce cœur sous critique refroidi au Pb-Bi et avec un taux de combustion moyen proche de 280 GW_i/t_{NL} a été spécifiquement développé pour incinérer les TRU provenant des REP-UOX; le "top-up" de ce réacteur est donc très réactif car il contient environ 58% d'isotopes fissiles. L'inventaire en NL du système est de 2300 kg, une valeur très faible par rapport aux autres systèmes inclus dans cette étude. A cause de ce faible inventaire et du fort taux de combustion du combustible, la réactivité du cœur diminue rapidement au cours de l'irradiation: pour avoir un k_{eff} suffisant en FDC, la longueur du cycle est très courte, 145 jours seulement, et la gestion du cœur est faite en 1/6. Le combustible utilisé dans l'ATW est de type métal (Zr-Ac) avec une matrice inerte de Zr et est caractérisé par deux différents enrichissements en NL pour le cœur interne (40.3%) et pour le cœur externe (46.1%)de façon à aplatir la distribution de puissance. Le retraitement du combustible est fait avec un procédé de type pyrochimique. Pour des détails additionnels sur le modèle du cœur et sur la composition des différentes régions on renvoie aux Annexes, Figure C.1.4 et suivantes.

La mise à l'équilibre de ce réacteur a requis d'augmenter la quantité de NL dans le cœur jusqu'à 2900 kg avec une réduction proportionnelle de la matrice inerte de Zr. Le taux de combustion moyen dans le cas à l'équilibre est d'environ 250 GW_j/t_{NL} . Le réacteur à l'équilibre respecte le k_{eff} du projet en DDC et a une perte de réactivité légèrement plus faible par rapport à celle du design de base.

Le réacteur hybride incinérateur de AM utilisé dans le Double Strata a été tiré du benchmark sur les ADS organisé par l'AEN/NSC qui a été discuté dans le chapitre 4. On renvoie donc a ce chapitre pour une description plus détaillée de ses caractéristiques. Dans la suite de ce chapitre, ce réacteur sera aussi indiqué avec l'acronyme MAB (Minor Actinide Burner – Brûleur d'Actinides Mineurs). Par rapport au modèle du benchmark on a réduit la durée d'irradiation pour obtenir un taux de combustion, de l'ordre de 140 GW_j/t_{NL}, cohérent avec la valeur de référence de cette étude. La composition du "top-up" diffère aussi quelque peu par rapport à celle utilisée dans le cadre du benchmark: dans ce dernier cas le premier stratum prévoit 2 passages successifs en REP-MOX avant du multirecyclage du plutonium dans un réacteur CAPRA/94 et le temps de refroidissement du combustible oxyde est de 5 ans.

5.2.3 Harmonisation des paramètres du cycle

Un des atouts les plus importants de ce travail est non seulement l'utilisation d'une route de calcul uniforme et fiable mais aussi l'harmonisation des principales caractéristiques des réacteurs et des paramètres les plus significatifs du cycle. Cette tâche est particulièrement difficile et controversée à cause du décalage temporel entre l'analyse technique des scénarios et leur éventuelle réalisation pratique. En effet, on peut réalistement indiquer une période de quelques dizaines d'années avant la réalisation effective de n'importe quel projet de transmutation en pile, compte tenu des difficultés techniques et politiques pour la mise en service de systèmes à spectre rapide. Les valeurs utilisées dans ce travail représentent donc une extrapolation, selon une base raisonnable, des valeurs actuellement obtenues à niveau expérimental ou de laboratoire à celles qu'on pourra obtenir à une échelle industrielle au moment de l'accomplissement d'un tel programme de transmutation.

Pour ce qui concerne le taux de combustion, pour l'estimation des bilans massiques en équilibre on a considéré les valeurs indiquées dans le Tableau 5.2 et qui sont caractéristiques de chaque réacteur. Pour la comparaison des inventaires massiques allant aux déchets et de leur radiotoxicité on a néanmoins normalisé les valeurs au même taux de combustion⁴⁵ de 140 GW_j/t_{NL} pour les réacteurs avec un cycle complètement fermé.

Réacteur	Combustible	"burn-up" ¹ (GW _j /t _{NL})	Temps de fabrication / refroidissement	Méthode de séparation
REP	UOX	50	2 / 4	Aqueuse
REP	MOX	50	2 / 7	Aqueuse
CAPRA	MOX	185	2 / 7	Aqueuse
IFR	78Ac - 22Zr	139 (140)	1 / 2	Pyro
IFR	79Ac – 21Zr	127 (140)	1 / 2	Pyro
ATW (ADS)	25Ac - 75Zr	250 (140)	1 / 2	Pyro
MAB (ADS)	29AcN - 71ZrN	149 (140)	1 / 2	Pyro

Tableau 5.2: Caractéristiques du cycle du combustible

¹ Les valeurs entre parenthèse indiquent le taux de combustion de référence qui a été utilisé pour la normalisation de l'inventaire massique allant aux déchets.

⁴⁵ Cette normalisation est obtenue en multipliant la masse des NL produits par le réacteur et allant aux déchets par le facteur correctif $\frac{B}{1-B} \cdot \frac{1-B_{ref}}{B_{ref}}$. B représente ici le taux de combustion (en %) spécifique à chaque réacteur et

 B_{ref} représente le taux de combustion de référence (140 GW_i/t_{NL}).

La valeur des taux de pertes des TRU au retraitement considérée ici est de 0.1% indépendamment de la méthode de séparation adoptée et de l'isotope considéré. Cette valeur a aussi été prise comme référence dans de nombreuses autres études de scénarios de transmutation. Ces résultats ont déjà été obtenus à échelle industrielle pour l'uranium et le plutonium avec la méthode PUREX.Les taux de pertes qu'on vient de mentionner ont été prouvés uniquement à l'échelle de laboratoire pour les AM avec la méthode PUREX et pour tous les NL en utilisant des procédés pyrochimiques. Un problème associé à l'utilisation d'un procédé de type pyrochimique est la contamination des TRU avec les lanthanides: actuellement une fraction non négligeable (5%) des lanthanides présents dans le combustible irradié suit les TRU lors de la séparation des PF et "empoisonne" le combustible frais en DDV. Un tel phénomène peut avoir des conséquences négatives sur la faisabilité et sur les caractéristiques d'un système à l'équilibre. Au cours de cette étude on a négligé ce phénomène en assumant une efficacité de 100% dans la séparation de tous les PF.

Néanmoins, vu l'importance de ces deux paramètres sur les résultats de cette étude, une analyse de sensibilité au taux de combustion et aux pertes au retraitement a été effectuée et est présentée dans la section 5.7.

Le facteur d'utilisation des réacteurs a aussi été l'objet d'une harmonisation: pour les trois réacteurs critiques et pour l'ADS incinérateur de AM on a choisi une valeur de 85% tandis que l'ADS incinérateur de TRU a un facteur de charge de 80% seulement. L'ADS du Schéma 4 a l'avantage d'opérer avec un seul long cycle et ne requiert donc pas de fréquents arrêts pour la charge, la décharge et le repositionnement des assemblages de combustible. D'autre part le couplage du cœur sous critique avec un accélérateur de protons rend le système hybride moins fiable et plus sujet à des arrêts par rapport à un réacteur critique. L'ADS du Schéma 3b a par contre un cycle très court avec de nombreux arrêts pour le repositionnement du combustible et peut être aussi sujet à des interruptions liées à l'accélérateur des particules: on prend en compte ces phénomènes en réduisant de 5% encore le facteur d'utilisation de ce réacteur.

Le temps de fabrication et celui de refroidissement sont aussi des paramètres important dans l'analyse des schémas de transmutation; ces valeurs influencent surtout l'inventaire de NL hors pile mais ont aussi un impact sur la composition du combustible à l'équilibre. Le temps de fabrication et de refroidissement pour le combustible UOX standard est respectivement de 2 et de 4 ans, qui représentent des valeurs courantes dans l'industrie nucléaire. Par contre, le combustible MOX issu des REP et, à plus forte raison, des RNR est beaucoup plus actif et, par conséquent, il est nécessaire de prolonger le temps de refroidissement de façon à réduire l'activité et la chaleur de décroissance des PF et des NL. Ces valeurs sont tout de même bien au-delà des limites actuelles pour le procédé PUREX et pourtant une amélioration considérable de ce procédé est nécessaire pour pouvoir justifier les hypothèses faites au cours de cette étude. Comme on en discutera plus en détail dans le paragraphe 5.6.3, la prolongation du temps de

refroidissement ne permet pas de diminuer considérablement l'activité et la chaleur de décroissance des NL et, par contre, augmente de façon considérable l'inventaire de NL hors pile; pour cela une telle solution n'a pas été prise en considération dans cette étude.

Les procédés de type pyrochimiques sont au contraire beaucoup moins sensibles à la chaleur de décroissance et à l'activité par rapport aux méthodes aqueuses et par conséquent le combustible peut être séparé après un intervalle de temps beaucoup plus court: au cours de cette étude on a considéré un temps de fabrication et de refroidissement respectivement de 1 et de 2 ans pour tous les combustibles séparés par un procédé de type pyrochimique.

5.3 Performances de transmutation des systèmes à cycle fermé

Le but de cette section est de déterminer et de décrire les aspects essentiels permettant une comparaison correcte des différents schémas de transmutation et des réacteurs avancés dédiés à clore le cycle du combustible.

En premier lieu on établira une relation entre la masse de NL allant aux déchets et les principales caractéristiques du cycle du combustible et des réacteurs opérant à cycle partiellement ou totalement fermé. Ensuite, au cours du paragraphe 5.3.1, on indiquera les aspects essentiels de la comparaison des parcs nucléaires étudiés au cours de cette thèse; ce paragraphe est donc dédié à une comparaison globale des différents parcs nucléaires, sans analyser les différents réacteurs qui en font partie. Enfin dans le paragraphe suivant on définira des paramètres d'efficacité aptes à comparer les performances de n'importe quel réacteur, critique ou hybride, qui opère à cycle fermé et est conçu pour clore le cycle du combustible.

Dans un système à cycle fermé en ce qui concerne les noyaux lourds, les PF sont séparés des NL lors du retraitement; ces derniers retournent dans le réacteur pour un nouveau cycle tandis que les PF sont mis aux déchets. Dans la pratique, une séparation compète des NL et des PF ne peut pas être obtenue et donc une fraction non négligeable de NL suit les PF aux déchets. On définit comme taux de perte au retraitement L_j la fraction de l'isotope j qui va aux déchets au cours de la séparation du combustible irradié⁴⁶. En principe, des pertes de NL peuvent se produire aussi au cours de la fabrication du combustible mais, comme elles sont considérablement inférieures aux pertes du retraitement, elles sont négligées dans cette étude.

La Figure 5.1 montre le bilan massique d'un système dédié à la transmutation des transuraniens (ou éventuellement des seuls actinides mineurs).

⁴⁶ Dans les considérations suivantes, pour simplicité de notation, on considère L_j indépendant de l'isotope, i.e. $L_j=L$ $\forall j$.



Figure 5.1: Bilan massique du combustible pour un système à cycle fermé

La masse de NL allant aux déchets à chaque cycle peut être exprimée en fonction du taux de pertes au retraitement, du taux de combustion et de la masse fissionnée: $M_W = L \cdot \frac{1-B}{B} \cdot M_F$

On peut regrouper l'expression $L \cdot \frac{1-B}{B}$ dans un seul terme, le facteur F, qui représente la fraction des NL allant aux déchets par rapport aux NL incinérés; cette méthodologie a été introduite pour la première fois dans la référence [WK-94]. Une réduction du taux de pertes et/ou une augmentation du taux de combustion permettent donc de réduire la fraction de NL allant aux déchets et d'améliorer, par conséquent, l'efficacité de la transmutation en cycle fermé.

5.3.1 Comparaison de parcs nucléaires

En toute généralité tout parc électronucléaire peut être représenté de façon très schématique par la Figure 5.2. Cette représentation met en évidence les aspects essentiels: l'énergie électrique disponible au réseau, l'uranium naturel employé et les résidus de l'enrichissement et de la séparation. Parmi les résidus de la production d'énergie électronucléaire on distingue l'uranium appauvri rejet de l'enrichissement de l'uranium naturel, l'uranium irradié dans les REP, séparé et entreposé dans l'attente d'une utilisation future, et les déchets à haute activité, PF et NL, résultant des pertes au retraitement. La représentation choisie met en évidence les informations essentielles pour l'analyse du parc et contient implicitement les

caractéristiques de tous les réacteurs qui composent le parc, taux de combustion, facteur d'utilisation du réacteur (fu), efficacité de conversion de l'énergie thermique en énergie électrique (η_e), efficacité de conversion de l'énergie électrique en faisceau de particules (η_p), ainsi que les caractéristiques du cycle du combustible (L_j et le temps de refroidissement et de fabrication du combustible).

Dans la suite de l'étude toutes les données des schémas (bilan massique, radiotoxicité, etc.) seront normalisées à la même énergie produite dans l'ensemble du parc (1 TWh_e).



Figure 5.2: Représentation schématique d'un parc électronucléaire

Pour évaluer correctement la radiotoxicité des déchets générés par le parc, il faut avant tout définir le rôle de l'uranium entreposé dans l'attente d'une utilisation future. En effet, tous les scénarios qui incluent des REP génèrent inévitablement une grande quantité d'uranium, appauvri et irradié, à faible activité; en général, la masse d'uranium est de quelque ordre de grandeur supérieure à celle des déchets à haute activité. Les principaux isotopes de l'uranium, 233 U, 234 U, 235 U, 236 U et 238 U, sont des émetteurs α avec une demi-vie très longue, variable entre 10^5 et 10^9 années; leur radiotoxicité par unité de masse, très faible dans le court-moyen terme, augmente au fur et à mesure qu'ils rejoignent l'équilibre avec leurs descendants. A très long terme (5·10⁵ ans environ), dans toutes les stratégies qui incluent des REP, la toxicité globale des résidus de l'irradiation est dominée par l'uranium appauvri et irradié.

Une première approche est de négliger la contribution de l'uranium appauvri et de l'uranium irradié et de limiter ainsi le calcul de radiotoxicité aux isotopes présents dans les déchets à haute activité. Cette philosophie se justifie par la considération que l'uranium, convenablement entreposé, ne constitue pas un danger à court ou moyen terme et que le problème de sa gestion sera résolu dans un futur lointain, par exemple en l'utilisant comme combustible dans des réacteurs appropriés. Ceci revient à considérer l'uranium comme une ressource à valoriser et non pas comme un déchet. Dans le cadre de cette étude une telle approche se justifie aussi par le fait que le but primaire pour lequel les scénarios ont été conçus est de transmuter les TRU et non pas de gérer la pile d'uranium.

Une deuxième approche est de considérer l'uranium comme un déchet qui ne peut pas être efficacement réutilisé et dont il faut se débarrasser; dans ce cas il faudra ajouter sa toxicité à celle des déchets à haute activité. Pour la comparaison des schémas de transmutation de cette thèse on a suivi la première approche, mais des considérations supplémentaires sur ce sujet et en particulier une comparaison des résultats obtenus avec les deux approches se trouvent dans le paragraphe 5.5.4.

Un autre aspect intéressant dans une analyse d'ensemble de tout parc nucléaire est d'en estimer les besoins en terme de ressources naturelles pour la production d'une quantité d'énergie donnée. Au cours de cette thèse on utilisera le paramètre Eff^U, "Efficacité d'utilisation de l'uranium", pour mesurer la fraction d'uranium naturel qui a effectivement fissionné. Si on se rapporte au bilan massique de la Figure

5.2, on définit Eff^U comme: $Eff^{U} = \frac{U_{nat} - U_{app} - U_{irr} - NL_{dechets}}{U_{nat}}$ où U_{nat} représente la masse d'uranium

naturel nécessaire à la production de l'énergie donnée.

L'amélioration de l'efficacité d'utilisation de l'uranium a deux avantages immédiats: d'une part la limitation des besoins de ressources naturelles et d'autre part la réduction de la masse des déchets (à faible activité) associée à la production d'énergie nucléaire. Dans le court terme cet aspect n'est pas prioritaire pour le développement de l'énergie nucléaire car les ressources naturelles sont abondantes et les déchets à faible activité ne constituent pas un problème immédiat en terme de radiotoxicité. Par contre, dans le long terme et dans une perspective de développement durable, l'optimisation de l'utilisation des ressources naturelles est fondamentale.

5.3.2 Paramètres d'efficacité pour des réacteurs opérant à cycle fermé

Les considérations qui suivent ont le but de mettre au point des paramètres adaptés à comparer les performances des réacteurs dédiés à la transmutation et opérant avec un cycle fermé; parmi tous les systèmes analysés au cours de cette thèse, ces paramètres peuvent être appliqués uniquement à l'IFR sousgénérateur et aux deux réacteurs sous critiques, l'ATW et le MAB. En particulier on mettra en relief les trois axes suivants, base de cette étude:

- Minimisation de la fraction de réacteurs dédiés dans le parc, avec l'introduction du paramètre d'efficacité C_{TRU} "Capacité d'incinération"
- Réduction de la masse de TRU aux déchets par l'intermédiaire du paramètre R_M^{TRU} , "Réduction de la masse des TRU"

Réduction de la toxicité des déchets avec l'introduction du facteur R_{TOX} (t), "Réduction de la radiotoxicité"

Le premier objectif d'un système optimisé pour clore le cycle du combustible est de gérer les transuraniens produits dans les autres réacteurs du parc en ayant un impact minimal en terme de puissance thermique installée; ceci revient à maximiser la masse de TRU chargés dans le réacteur par unité de temps et de puissance thermique. En utilisant la notation précédente, sous l'hypothèse que le réacteur est chargé

et déchargé en bloc, on peut définir comme "Capacité d'incinération" le rapport $C_{TRU} = \frac{M_B}{P_{th} \cdot T_s}$. Ce

rapport peut se simplifier⁴⁷ en
$$C_{TRU} = fu \cdot \tau \cdot \frac{M_F}{P_{th} \cdot jepn}$$
 où

Ts est le temps de séjour du combustible dans le réacteur

Pth est la puissance nominale du réacteur

fu est le facteur d'utilisation du réacteur

jepn sont les jours d'irradiation effective à puissance nominale

Le rapport $\frac{M_F}{P_{th} \cdot jepn}$ dépend de l'énergie moyenne dégagée par fission et de la contribution des

autres réactions nucléaires au bilan énergétique et en général varie très peu pour des réacteurs rapides. En première approximation la "Capacité d'incinération" ne dépend essentiellement que de deux paramètres, fu, facteur d'utilisation du système et τ , fraction de TRU dans le "top-up".

Le deuxième objectif des systèmes dédiés est de transmuter les transuraniens en minimisant la quantité des TRU rejetés; pour évaluer la "Réduction de la masse des TRU" on doit donc comparer la masse de TRU allant aux déchets avec la masse de TRU chargés dans le cœur. Cela revient à calculer R_M^{TRU} , le

rapport
$$\frac{M_B}{M_W(TRU)}$$
, qui peut s'écrire⁴⁷ comme $\frac{\tau}{\varepsilon} \cdot \frac{1}{L} \cdot \frac{B}{(1-B)} = \frac{\tau}{\varepsilon} \cdot \frac{1}{F}$ où on définit ε comme la fraction

des TRU dans le combustible irradié au moment du retraitement. R_M^{TRU} dépend donc non seulement du taux de combustion et des pertes au retraitement (facteur F) mais aussi des fractions respectives des TRU dans le "top-up" et dans le combustible au retraitement. Les deux premiers paramètres décrivent la réduction quantitative de la masse des déchets, les deux autres, ε et τ , représentent la "qualité" des déchets et du combustible de "top-up".

Le troisième paramètre d'efficacité permet de quantifier la réduction de la toxicité obtenue par le réacteur dédié à la transmutation; puisque la radiotoxicité d'un mélange d'isotopes évolue avec le temps,

⁴⁷ si l'on suppose que $B + L \cdot (1 - B) \cong B$, vu que le taux de pertes est négligeable par rapport au taux de combustion (15-25% contre 0.1-1%)

le facteur de "Réduction de toxicité" sera aussi fonction du temps. On définit donc comme $R_{TOX}(t)$ le rapport entre les toxicités des NL du "top-up" et celles des déchets; avec la notation précédente on peut

donc écrire $R_{TOX}(t) = \frac{M_T \cdot T_T(t)}{M_W \cdot T_W(t)}$ où

T_i(t) représente la toxicité par unité de masse (Sv/kg) du mélange i.

On peut ultérieurement développer cette formule en la séparant en deux facteurs, un terme constant de réduction massique des NL, $\frac{M_T}{M_W}$, et un terme de réduction neutronique, R^N(t), défini comme

$$R^{N}(t) = \frac{T_{T}(t)}{T_{W}(t)}. \text{ On a donc } R_{TOX}(t) = \frac{1}{F} \cdot R^{N}(t).$$

La réduction de la radiotoxicité dépend donc de deux facteurs:

- $\frac{1}{F}$, qui quantifie la réduction massique des actinides et est indépendante du temps
- R^N(t), un facteur de réduction "neutronique" de la radiotoxicité, fonction du temps

Le facteur de réduction neutronique de la radiotoxicité, $R^{N}(t)$, mesure la radiotoxicité spécifique des NL à transmuter par rapport à ceux allant aux déchets; ce facteur est fonction de la composition du "topup" et de la neutronique du réacteur considéré. Comme on verra plus en détail dans le paragraphe 5.4.2 qui traite la comparaison des trois réacteurs dédiés à la transmutation, la variation de $R^{N}(t)$ est assez limitée et donc la réduction de la radiotoxicité dépend principalement de la réduction massique des actinides (1/F).

5.4 Comparaison des réacteurs dédiés

Au cours de cette section on se propose d'analyser les principales caractéristiques des réacteurs avancés dans un état d'équilibre. Le premier paragraphe est donc dédié à la description des principales caractéristiques des cœurs avancés, telles que l'évolution du coefficient de multiplication au cours du cycle, l'énergie médiane du spectre neutronique, la source externe de neutrons nécessaire aux réacteurs hybrides ainsi que le β_{eff} et les principaux coefficients de sûreté du cœur. Le deuxième paragraphe est dédié à la comparaison des performances de transmutation des trois réacteurs dédiés à clore le cycle du combustible.

5.4.1 Caractéristiques des réacteurs à l'équilibre

Au cours de ce paragraphe on étudie les principales caractéristiques des cœurs à l'équilibre en DDC et en FDC; la méthodologie qui a permis d'obtenir la composition du combustible à l'équilibre en DDI et en FDI, ainsi que celle utilisée pour obtenir la composition moyenne du cœur au début et à la fin du cycle, ont été décrites dans la section 3.4.

Les caractéristiques principales des cœurs étudiés (coefficient de multiplication en début et en fin de cycle, source externe de neutrons à la fin du cycle, énergie moyenne des neutrons et coefficients de sûreté) sont données dans le Tableau 5.3; la Figure 5.3 montre l'évolution du coefficient de multiplication des 5 réacteurs avancés au cours du cycle.

	CAPRA HBU	IFR sousgénérateur	IFR isogénérateur	ATW (ADS)	MAB (ADS)
Schéma	2 - 4	3a	5	3b	4
k _{eff} DDCE	1.050	1.049	1.040	0.971	0.951
k _{eff} FDCE	1.005	1.005	0.999	0.920	0.932
Δk_{eff}	0.045	0.044	0.041	0.051	0.019
Durée du cycle (jepn)	220	310	310	145	1241
Source de neutrons (n/s) ¹	-	-	-	$6.36 \cdot 10^{18}$	$2.53 \cdot 10^{18}$
Importance des neutrons	-	-	-	0.959	0.843
Energie médiane des neutrons en DDCE (keV)	132	242	228	189	173
β _{eff} en DDCE (pcm)	318	323	346	260	161
Coefficient Doppler²	1908	555	806	308	75
Coefficient de Vidange (cœur) ³	2245	1775	1397	-3302	2861
Coefficient de Vidange (cœur et couvertures supérieures) ³	1904	-1758	-2025	-4933	2263

Tableau 5.3: Caractéristiques des réacteurs à l'équilibre

¹ Nombre de neutrons "externes" au-dessous du seuil de 20 MeV nécessaires à obtenir la puissance thermique de projet

² Calculé en DDCE comme 10⁶ · $\left[k_{eff}(T_{nom}) - k_{eff}(T_{nom} + 600K)\right] / \left[k_{eff}(T_{nom}) \cdot k_{eff}(T_{nom} + 600K)\right]$

³ Calculé en DDCE (Début De Cycle d'Equilibre) comme $\left[k_{eff}(Vid) - k_{eff}(Nom)\right]/k_{eff}(Nom)$


Figure 5.3: Evolution du keff

Pour un cœur à l'équilibre, la perte de réactivité au cours du cycle dépend de plusieurs variables, parmi lesquelles on peut mentionner la composition isotopique du combustible, les caractéristiques du cœur, le taux de combustion moyen du combustible et la fraction du cœur qui est déchargé à chaque cycle.

Pour l'optimisation de la longueur du cycle et de la perte de réactivité au cours du cycle, un paramètre essentiel est donne par la diminution du k_{eff} par jour d'irradiation, qui peut être visualisé sur la Figure 5.3 comme la pente des différentes courbes du k_{eff} . Ce paramètre dépend premièrement de la composition du combustible à l'équilibre en DDI et donc de la composition du "top-up". Par exemple, le k_{eff} du réacteur MAB a une allure très plate au cours de l'irradiation: le Δk_{eff} est de seulement 1900 pcm pour un cycle de bien 1241 jepn (jours équivalents à puissance nominale). Le "top-up" de ce réacteur, et par conséquent le combustible en DDI, sont très riches en noyaux fertiles; lors de l'irradiation donc la perte de réactivité causée par la disparition des noyaux fissiles et par l'accumulation des PF est compensée par la conversion des isotopes fertiles en isotopes fissiles. Au contraire, le réacteur hybride ATW, dont le "top-up" et le combustible en DDI sont très riches en isotopes fissiles du Pu, a un Δk_{eff} très important, de plus de 5000 pcm au cours d'un cycle de seulement 145 jepn. Parmi les 3 systèmes critiques, le réacteur CAPRA montre une perte de réactivité par jour d'irradiation plus importante par rapport aux 2 réacteurs IFR.

Le gradient du k_{eff} influence de façon significative la méthode de gestion du cœur, c'est-à-dire la fraction du cœur qui est chargée et déchargée à chaque cycle, et donc la durée même du cycle. A taux de combustion constant, un déchargement plus fréquent du cœur permet en effet de diminuer la longueur du cycle et donc de limiter la perte de réactivité entre DDC et FDC. Pour un réacteur critique cela permet de diminuer l'excès de réactivité qui doit être compensé avec l'utilisation de poisons consommables ou avec l'insertion de barres de contrôle; pour un système hybride, où le k_{eff} en DDC est fixé, cela permet de remonter le k_{eff} en FDC et de limiter ainsi le besoin de neutrons de spallation en FDC. D'autre part un rechargement plus fréquent du combustible comporte des arrêts plus fréquents du réacteur et diminue ainsi le facteur d'utilisation du réacteur.

A cause du gradient du k_{eff} très important, la longueur du cycle de l'ATW est très courte, avec 2 interruptions par an pour le remplacement du combustible usé, de façon à limiter ainsi à environ 5100 pcm la perte de réactivité au cours du cycle. A l'opposé l'allure très plate du k_{eff} du MAB permet de gérer ce réacteur en un seul "batch", avec un déchargement - rechargement en bloc de tout le cœur. Parmi les systèmes critiques, le réacteur CAPRA a le cycle plus court afin de compenser le gradient du k_{eff} plus élevé.

Comme discuté au cours du deuxième chapitre de cette thèse, le besoin de neutrons externes dans un système hybride augmente avec la diminution du k_{eff} et du ϕ^* ; en principe l'intensité de la source externe est maximale en FDC, où le k_{eff} est plus faible. Ce paramètre est fondamental pour le design de l'accélérateur de particules car il détermine l'intensité maximale requise à l'accélérateur, sa puissance maximale et donc le coût de construction de l'accélérateur. Une deuxième grandeur d'intérêt est la fraction de la puissance produite par le réacteur qui est employée pour le fonctionnement de l'accélérateur. Cette grandeur détermine le rendement global de l'ADS et a donc un impact sur le coût de production de l'énergie électrique.

Il est intéressant de remarquer que les deux ADS, à cause de leurs différentes courbes de réactivité, ont un comportement différent vis-à-vis de ces deux paramètres. D'une part l'ATW limite l'énergie moyenne destinée à l'accélérateur à 11.6% de l'énergie produite lors d'un cycle, alors que cette valeur est de 12.6% pour le MAB. D'autre part, vu la plus faible valeur du coefficient de multiplication en FDC, l'ATW requiert un accélérateur plus puissant (8% en plus par rapport au MAB, si on normalise les valeurs à la même puissance électrique produite).

Un autre paramètre d'intérêt dans la comparaison des 5 réacteurs avancés est l'énergie médiane du spectre neutronique, calculée en considérant toutes les régions du cœur qui contiennent des NL. Comme attendu, le spectre moins dur est celui du réacteur CAPRA, le seul à utiliser du combustible MOX qui ralentit mieux les neutrons par rapport au combustible métallique utilisé dans les quatre autres réacteurs. Parmi ces derniers réacteurs, les deux systèmes critiques ont un spectre considérablement plus dur que

celui des deux ADS. Ce résultat contraste avec l'hypothèse généralement acceptée que la présence d'une source de neutrons de spallation comporte un durcissement du spectre neutronique et donc que les ADS ont un spectre plus dur par rapport aux réacteurs critiques. Ce phénomène peut s'expliquer par le fait que la densité des NL dans le combustible des ADS est diluée avec une matrice inerte de Zr ou de ZrN à cause de la haute fraction de TRU (se référer au Tableau 5.2 ou à l'Annexe C.1 pour plus de détails). L'avantage souvent mentionné des ADS d'avoir un spectre neutronique plus dur et ainsi plus favorable à la transmutation par rapport aux réacteurs critiques ne trouve donc pas de confirmation dans les résultats, au moins avec les combustibles considérés dans cette étude.

L'analyse des paramètres de sûreté des cœurs confirme que la présence de larges fractions d'actinides mineurs dans le combustible a des conséquences très négatives sur la fraction de neutrons retardés et sur les coefficients de réactivité. En particulier le MAB a un β_{eff} d'environ la moitié par rapport aux réacteurs critiques standard, ce qui rend le contrôle de ce réacteur très délicat. Le β_{eff} de l'ATW, qui ne contient presque pas d'uranium, est environ 60 pcm plus faible par rapport à celui des réacteurs rapides.

Des considérations similaires peuvent se faire pour le coefficient Doppler qui, bien que toujours négatif, montre des différences considérables parmi les réacteurs analysés. L'effet Doppler est très faible pour les deux ADS, qui ne contiennent pratiquement pas d'²³⁸U, tandis qu'il est maximal pour le réacteur CAPRA, caractérisé par un spectre neutronique plus modéré, et pour l'IFR isogénérateur, fortement chargé en ²³⁸U. L'ATW est le seul réacteur qui garantit des valeurs négatives du coefficient de vide soit en cas de vidange des régions du combustible uniquement soit en cas de vidange de toute la partie supérieure du cœur.

D'après cette analyse des paramètres de sûreté des cœurs, il apparaît évident que seulement des systèmes sous critiques peuvent accepter du combustible avec un β_{eff} et un coefficient Doppler si faible, comme celui du MAB et de l'ATW. Dans le cas du MAB, en particulier, un niveau de sous criticité d'environ 5000 pcm a été retenu tout au long de l'irradiation, étant données les caractéristiques de ce combustible. Les caractéristiques du combustible de l'ATW permettent, au contraire, de faire fonctionner le réacteur avec un niveau de sous criticité plus réduit.

5.4.2 Performances de transmutation

Le Tableau 5.4 montre les principaux paramètres caractérisant l'efficacité de transmutation pour les trois réacteurs dédiés à la transmutation et opérant avec un cycle du combustible fermé.

	IFR (Schéma 3a)	ATW (Schéma 3b)	MAB (Schéma 4)
Capacité d'incinération ¹ C _{TRU}	0.158	0.290	0.314
Réduction de la masse des TRU ² R_M^{TRU}	273.7	165.0	174.4
$\mathbf{R}^{N}(t) t \in [10^{3} - 10^{5}]$	1.3 ÷ 1.9	$0.8 \div 1.6$	$0.7 \div 1.8$
fu	0.85	0.8	0.85
τ	0.5	1	1
3	0.302	0.984	0.946
τ/ε	1.656	1.016	1.057

Tableau 5.4: Paramètres caractérisant l'efficacité de transmutation des réacteurs dédiés.

¹ Valeurs exprimées en $kg / a \cdot MW_{th}$

² Valeurs normalisées au taux de combustion de référence

Comme on a vu dans la section précédente, le facteur C_{TRU} dépend principalement de la fraction de TRU présents dans le "top-up"; du point de vue de la minimisation des réacteurs dédiés dans le parc, les systèmes sous critiques ont un avantage indéniable par rapport aux réacteurs critiques car ils peuvent accepter un "top-up" composé entièrement par des transuraniens ($\tau = 1$) sans devoir les diluer dans de l'uranium comme support fertile. Parmi les systèmes étudiés, le paramètre d'efficacité "Capacité d'incinération" est environ double pour les réacteurs hybrides par rapport au réacteur critique ($\tau = 0.5$). L'écart entre les deux réacteurs hybrides peut s'expliquer par leur différent facteur d'utilisation: l'ATW est légèrement pénalisé par rapport au MAB.

Par contre, si on considère l'efficacité de réduction massique des TRU, le réacteur IFR critique a un avantage considérable par rapport aux systèmes hybrides: à parité de taux de combustion et de pertes au retraitement, il produit environ 40% de TRU en moins pour incinérer la même masse de TRU. Ce phénomène peut s'expliquer si on observe le facteur τ/ϵ pour les trois réacteurs analysés ici: pour les réacteurs hybrides, la fraction de TRU dans le combustible à retraiter est proche à celle de "top-up"; dans le cas du réacteur IFR critique, au contraire, la fraction des TRU dans le combustible lors du retraitement est beaucoup plus faible par rapport à celle en DDV et, à plus forte raison, à celle du "top-up".

On peut exprimer le même concept de façon quelque peu différente si on considère de façon séparée l'uranium et les TRU présents dans le combustible. En reprenant la notation utilisée dans le Tableau 5.3 on peut définir le taux d'incinération de l'uranium et des TRU, B_U et B_{TRU}, comme la fraction d'uranium

et de TRU incinérés au moment de la séparation du combustible. Cela permet de prendre correctement en compte des décroissances au cours de la période de refroidissement. On rappelle que le taux de transmutation des NL (U + TRU) est équivalent au taux de combustion du combustible et est fixé dans cette étude à 140 GW_j/t_{NL} (environ 14% en terme de NL fissionnés). Dans le cas des ADS, où le "top-up" ne contient que des TRU, le taux d'incinération des TRU est comparable au taux de combustion des NL car la fraction d'uranium dans le cœur à l'équilibre est très faible en DDV et en FDV. Dans le cas du réacteur IFR, au contraire, le taux d'incinération des TRU (21.4%) est beaucoup plus important par rapport à celui de l'uranium (10.5%) et au taux de combustion des NL (14%).

L'avantage principal de l'IFR par rapport aux ADS est donc constitué par la plus haute teneur d'uranium dans le combustible à l'équilibre (66.7% contre 2-5%) qui permet obtenir un taux d'incinération des TRU beaucoup plus élevé tout en conservant le même taux de combustion moyen. Cette augmentation du B_{TRU} se fait au prix d'une diminution du taux d'incinération de l'uranium et, par conséquent, au prix de la quantité d'uranium aux déchets. Ce phénomène est essentiellement lié à la composition du "top-up" et ne dépend donc pas du type de réacteur utilisé, critique ou sous critique. Il faut enfin souligner comme la "Réduction de la masse des TRU", maximale pour $\tau < 1$, est en compétition avec la "Capacité d'incinération", optimale pour $\tau = 1$; il est donc impossible d'avoir un système qui à la fois minimise la fraction des réacteurs avancés dans le parc et la masse de TRU aux déchets.

Si on considère maintenant la radiotoxicité des déchets et on compare la réduction de la radiotoxicité dans la période inférieure à 10^5 ans, on peut observer que la réduction massique des actinides joue un rôle fondamental, tandis que le potentiel de réduction neutronique de la toxicité est secondaire. La gamme de valeurs pour R^N(t) dépend du système considéré et surtout de la composition du "top-up"; parmi les réacteurs étudiés, les valeurs limites sont de 0.7 et de 1.9.

D'après les considérations qu'on vient d'exposer, on peut tirer des conclusions préliminaires sur la transmutation des TRU en réacteurs dédiés:

- Les ADS ont l'avantage de pouvoir opérer sans un support fertile et, par conséquent, peuvent soutenir un plus large nombre de réacteurs producteurs de déchets.
- Les réacteurs utilisant un "top-up" contenant de l'uranium, comme l'IFR, minimisent la quantité de TRU aux déchets.
- La réduction de la radiotoxicité est obtenue primairement par la réduction massique des NL allant aux déchets; la diminution des pertes au retraitement et l'augmentation du taux de combustion représentent donc les facteurs clés pour réduire la toxicité des déchets nucléaires.
- Le facteur de réduction neutronique de la radiotoxicité a un effet secondaire pour la réduction totale de la toxicité et aucun des réacteurs analysés ne montre un avantage considérable par rapport aux autres.

5.5 Analyse des scénarios de transmutation

Dans ce paragraphe on présente schématiquement, sous forme de figures, la représentation graphique détaillée, ainsi que les informations essentielles des six scénarios considérés au cours de cette thèse. Au cours des paragraphes suivants on discutera en détail les aspects principaux des scénarios à l'équilibre: le paragraphe 5.5.1 est dédié à l'analyse de la composition du parc nucléaire et le paragraphe 5.5.2 compare la production totale de déchets à haute activité dans tous les schémas analysés. Le paragraphe 5.5.3 décrit le cycle de l'uranium alors que le paragraphe 5.5.4 est dédié à l'analyse de la radiotoxicité.

Les Figures de 5.4 à 5.9 contiennent les flux massiques des NL^{48} normalisés à la même énergie fournie au réseau et donc exprimés en kg/TWh_e; en correspondance de chaque réacteur on donne la fraction du parc qu'il occupe, exprimée en terme de puissance thermique installée. Les valeurs fournies dans ces figures ne sont pas corrigées pour le taux de combustion de référence et correspondent donc au "burn-up" de projet de chaque réacteur. Les bilans massiques complets, y compris ceux des REP, sont donnés dans l'Annexe C.2.



Figure 5.4: Cycle ouvert - Schéma 1 (flux massiques en kg/TWhe)

⁴⁸ Les flux massiques des PF, dont la transmutation n'est pas considérée au cours de cette thèse, n'apparaissent pas explicitement dans ces figures.



Figure 5.5: Multirecyclage du plutonium - Schéma 2 (flux massiques en kg/TWhe)

Figure 5.6: Double Composante avec RNR - Schéma 3a (flux massiques en kg/TWhe)





Figure 5.7: Double Composante avec ADS - Schéma 3b (flux massiques en kg/TWhe)

Figure 5.8: Double Strata - Schéma 4 (flux massiques en kg/TWhe)





Figure 5.9: Stratégie de RNR - Schéma 5 (flux massiques en kg/TWhe)

5.5.1 Composition du parc nucléaire

La Figure 5.10 montre la composition du parc nucléaire exprimée en terme de puissance thermique nominale. A coté des 6 schémas étudiés au cours de cette thèse on a ajouté un schéma additionnel qui a été proposé par CIEMAT dans le cadre de la même étude de l'AEN [NEA-02]; il s'agit d'une stratégie à Double Composante modifiée, qui prévoit un recyclage du Pu en REP-MOX avant le multirecyclage définitif des TRU dans des ADS. Cette stratégie additionnelle a été analysée en respectant les mêmes hypothèses de base de cette thèse mais en utilisant des données de base, un code de calcul et une méthode différentes⁴⁹.

La comparaison des Schémas 3a, 3b et 3c permet de mettre en évidence l'avantage d'utiliser les ADS par rapport aux RNR et d'insérer un cycle MOX additionnel avant du multirecyclage des TRU dans les réacteurs avancés. En particulier le monorecyclage du plutonium dans le réacteur REP-MOX réduit de 27% la fraction de réacteurs hybrides dans le parc. L'utilisation d'un système hybride par rapport à un réacteur critique permet de réduire de 35% la fraction des systèmes avancés.

⁴⁹La composition du parc est très peu sensible aux outils de calcul surtout pour des systèmes avec $\tau = 1$ et donc l'inclusion du schéma 3c dans cette comparaison est tout à fait justifiée.



Figure 5.10: Composition du parc nucléaire

Parmi tous les scénarios de transmutation considérés, le Schéma 3a a les moins bonnes performances en terme de minimisation des systèmes avancés dans le parc. A l'opposé le Double Strata permet de maximiser la fraction de réacteurs conventionnels (REP et RNR-MOX) dans le parc. La stratégie à Double Composante avec ADS (schéma 3b), ainsi que ses évolutions telles que le schéma 3c, permettent de maximiser la fraction de réacteurs à spectre thermique dans le parc.

Si on considère uniquement les stratégies de transmutation qui utilisent des ADS, il faut remarquer que le Double Strata permet de limiter la fraction de réacteurs hybrides dans le parc à 6% et d'utiliser en majorité des réacteurs plus conventionnels (REP et RNR-MOX). Par contre, les stratégies à Double Composante avec ADS (schéma 3b), ainsi que ses évolutions telles que le schéma 3c, requièrent une fraction importante de réacteurs sous critiques dédiés: entre 16% et 22% de l'ensemble du parc est constitué par des ADS, ce qui peut avoir des retombées négatives sur le coût de production de l'énergie.

5.5.2 Production des déchets à haute activité

Le Tableau 5.5 montre le bilan massique des NL allant aux déchets à haute activité pour tous les schémas étudiés et inclut aussi la contribution respective de chaque réacteur du parc.

	C. – O.	Recycl	lage du P	'u seul	Double	Comp.	(RNR)	Double	e Comp.	(ADS)		Double	Strate		Strat	tégie de l	RNR
	Schéma 1		Schéma 2		S	chéma 3	a	S	chéma 3	b		Sché	ma 4			Schéma 5	5
	REP	REP	RNR	Total	REP	RNR	Total	REP	ADS	Total	REP	RNR	ADS	Total	Cœur	Couv.	Total
²³⁴ U	11.19	0.06	0.24	0.30	0.01	0.62	0.63	0.01	1.64	1.65	0.06	0.22	1.57	1.85	0.23	0.46	0.69
²³⁵ U	18355.57	13.07	0.07	13.15	11.63	0.18	11.81	14.64	0.39	15.03	12.39	0.07	0.37	12.84	0.48	0.67	1.15
²³⁶ U	13207.06	9.28	0.14	9.42	8.37	0.24	8.61	10.53	0.51	11.04	8.79	0.14	0.35	9.28	0.48	1.20	1.68
²³⁸ U	2206921.9	1757.9	51.5	1809.4	1398.5	171.5	1570.0	1759.8	0.0	1759.8	1666.4	48.8	0.0	1715.2	486.4	1245.8	1732.2
²³⁸ Pu	1005.52	1.39	0.88	2.27	0.64	3.56	4.19	0.80	10.65	11.46	1.32	0.83	6.84	9.00	2.06	0.02	2.07
²³⁹ Pu	14915.25	15.57	10.03	25.60	9.45	25.50	34.96	11.89	22.92	34.82	14.76	9.50	1.57	25.83	76.75	33.69	110.44
²⁴⁰ Pu	6847.13	8.91	15.76	24.67	4.34	24.87	29.21	5.46	57.21	62.67	8.44	14.94	7.84	31.22	41.89	1.11	43.00
²⁴¹ Pu	3710.86	4.39	2.23	6.61	2.35	3.31	5.66	2.96	9.98	12.93	4.16	2.11	0.89	7.16	4.19	0.02	4.21
²⁴² Pu	2274.40	3.43	7.06	10.49	1.44	8.56	10.00	1.81	26.25	28.07	3.25	6.70	2.96	12.90	3.47	0.00	3.47
²³⁷ Np	1723.75	1257.08	65.60	1322.68	1.09	1.60	2.70	1.37	3.63	5.01	1.19	0.06	2.57	3.83	1.00	0.19	1.19
²⁴¹ Am	909.76	1625.58	1399.98	3025.56	0.58	2.55	3.13	0.73	6.59	7.32	1.54	1.33	4.85	7.71	2.26	0.00	2.26
^{242m} Am	0.00	6.66	32.50	39.16	0.00	0.18	0.18	0.00	0.49	0.49	0.01	0.03	0.45	0.49	0.14	0.00	0.14
²⁴³ Am	670.35	965.66	1114.47	2080.13	0.42	2.22	2.65	0.53	7.50	8.04	0.92	1.06	4.48	6.45	0.69	0.00	0.69
²⁴² Cm	0.00	0.02	0.09	0.11	0.00	0.01	0.01	0.00	0.03	0.03	0.00	0.00	0.01	0.01	0.01	0.00	0.01
²⁴³ Cm	0.00	2.61	6.04	8.65	0.00	0.02	0.02	0.00	0.08	0.08	0.00	0.01	0.05	0.06	0.01	0.00	0.01
²⁴⁴ Cm	239.41	396.54	376.39	772.94	0.15	1.87	2.02	0.19	7.92	8.11	0.38	0.36	5.40	6.13	0.50	0.00	0.50
²⁴⁵ Cm	23.94	56.87	46.35	103.22	0.02	0.35	0.36	0.02	1.54	1.56	0.05	0.04	1.12	1.22	0.09	0.00	0.09
U	2238495.7	1780.3	51.9	1832.3	1418.5	172.6	1591.0	1785.0	2.6	1787.6	1687.6	49.2	2.3	1739.2	487.6	1248.2	1735.7
Pu	28753.15	33.68	35.95	69.64	18.22	65.80	84.02	22.93	127.01	149.94	31.93	34.08	20.09	86.10	128.36	34.84	163.20
Np	1723.75	1257.08	65.60	1322.68	1.09	1.60	2.70	1.37	3.63	5.01	1.19	0.06	2.57	3.83	1.00	0.19	1.19
Am	1580.11	2597.90	2546.94	5144.85	1.00	4.96	5.96	1.26	14.59	15.85	2.46	2.41	9.78	14.65	3.09	0.00	3.09
Cm	263.35	456.04	428.87	884.92	0.17	2.24	2.41	0.21	9.57	9.78	0.43	0.41	6.58	7.42	0.61	0.00	0.61
TRU	32320.36	4344.70	3077.37	7422.08	20.48	74.61	95.09	25.77	154.80	180.58	36.02	36.96	39.02	112.00	133.07	35.03	168.10
NL	2270816.0	6125.0	3129.3	9254.3	1438.9	247.2	1686.1	1810.8	157.4	1968.1	1723.6	86.2	41.3	1851.2	620.6	1283.2	1903.8

Tableau 5.5: Bilan massique pour les scénarios étudiés (g/TWh_e)

Pour le calcul des pertes au retraitement on a appliqué aux réacteurs avancés un facteur correctif de façon à normaliser le taux de combustion à la valeur de référence de 140 GW_j/t_{NL} . Les pertes correspondant au "burn-up" du projet de chaque réacteur avancé ont donc été multipliées par le facteur

correctif $\frac{B_{ref}}{1-B_{ref}} \cdot \frac{1-B_{nom}}{B_{nom}}$ de façon à obtenir des résultats caractéristiques des scénarios et indépendants

du taux de combustion spécifique à chaque réacteur.

Dans le Tableau 5.6 on présente les facteurs de réduction massique du Pu, des TRU et de tous les NL; ces valeurs sont calculées par rapport au cycle ouvert, référence de cette étude. Les Figures 5.11 et 5.12, donnent respectivement la quantité de TRU dans les déchets à haute activité pour les six scénarios étudiés et la composition isotopique des TRU aux déchets pour les quatre stratégies de transmutation.

 Tableau 5.6: Facteurs de réduction massique par rapport au cycle ouvert

	Schéma 2	Schéma 3a	Schéma 3b	Schéma 4	Schéma 5
Pu	412.91	342.20	191.76	333.94	176.18
TRU	4.35	339.90	178.98	288.56	192.27
NL	245.38	1346.77	1153.79	1226.69	1192.77

Figure 5.11: Quantité des TRU dans les déchets à haute activité (kg/TWhe)





Figure 5.12: Composition isotopique des TRU aux déchets

Par rapport au cycle ouvert, les 4 schémas de transmutation réduisent la masse du Pu et des TRU d'un facteur d'au moins 150, ce qui s'avère suffisant pour atteindre les objectifs fixés en terme de réduction de toxicité.

La stratégie de recyclage du Pu seul se démontre très efficace pour l'incinération du Pu car elle minimise la masse du Pu aux déchets par rapport aux autres stratégies de transmutation et permet de réduire de 400 fois la quantité de Pu dans les déchets par rapport au cycle ouvert. Par contre, l'irradiation du combustible MOX dans les REP et le multirecyclage du Pu dans les RNR produisent, par captures neutroniques successives sur les isotopes du Pu, une grande quantité d'actinides mineurs qui ne sont pas ultérieurement recyclés et vont directement aux déchets. Le Schéma 2 produit environ 3-4 fois plus de Am et de Cm par rapport au cycle ouvert, ce qui diminue considérablement les performances de réduction massique des TRU: cette stratégie réduit donc l'inventaire des TRU dans les déchets seulement d'un facteur 4.4 par rapport au cycle ouvert.

La comparaison des scénarios de transmutation met en évidence l'avantage de recycler le Pu dans des réacteurs contenant de l'uranium comme support fertile: les Schémas 3a et 4 produisent environ 40% de Pu et de TRU en moins par rapport au Schéma 3b. Ce résultat est la conséquence directe des différentes valeurs de l'efficacité d'incinération (R_M^{TRU}) pour les réacteurs critiques ($\tau \approx 0.5$) et pour les ADS ($\tau = 1$) qu'on a montré au paragraphe 5.4.2. La relation entre masse aux déchets et τ est vérifiée aussi si on

considère les AM: la masse de AM aux déchets est environ égale pour les Schémas 3b et 4, dans lesquels les AM sont recyclés indéfiniment dans un ADS ($\tau = 1$), et est approximativement la moitié pour le Schéma 3a ($\tau = 0.5$).

La stratégie de RNR qui, on rappelle, répond à une philosophie différente par rapport aux autres scénarios inclus dans cette étude, a des résultats, en terme de réduction massique des TRU et des NL, proches de ceux du Schéma 3b et en ligne avec les autres schémas de transmutation. Elle a par contre des caractéristiques uniques en terme de composition isotopique des TRU: les déchets sont constitués pour le 90% de ²³⁹Pu et de ²⁴⁰Pu et la production des AM et des isotopes du Pu à masse plus élevée est très limitée grâce à l'absence de systèmes à spectre thermique dans le parc. Cette stratégie est donc la plus performante pour minimiser l'inventaire des AM dans le parc nucléaire et aux déchets. Il faut souligner en particulier qu'elle permet de réduire considérablement l'inventaire massique de Cm par rapport aux autres schémas de transmutation et donc minimise les difficultés techniques associées au recyclage de cet élément.

Si on considère maintenant la totalité des NL aux déchets, les 4 stratégies de transmutation permettent d'obtenir une réduction de la masse des NL aux déchets d'un facteur 1150 minimum par rapport au cycle ouvert; les différences entre les stratégies sont de l'ordre de 15% et sont essentiellement liées à un "effet de burn-up" et donc à la différente composition du parc nucléaire. Comme les réacteurs à spectre thermique ont un taux de combustion beaucoup plus faible par rapport à ceux à spectre rapide, une concentration plus élevée de ces derniers dans le parc a pour conséquence une diminution de la masse totale des NL aux déchets. A ce propos il faut remarquer que le réacteur IFR isogénérateur du Schéma 5 a un taux de combustion de 140 GW_j/t_{NL} (après normalisation) dans le cœur interne, tandis que le taux de combustion moyen dans tout le réacteur (cœur interne et couvertures fertiles), on obtient une valeur de 54 GW_j/t_{NL} très proche à celle des REP et explique que le bilan de NL aux déchets

5.5.3 Conséquences sur le cycle de l'uranium

Les besoins en uranium naturel et la production d'uranium appauvri et irradié sont présentés dans la Figure 5.13 et dans le Tableau 5.7; dans ce dernier on donne aussi le paramètre d'efficacité d'utilisation de l'uranium défini au cours du paragraphe 5.3.1.

Les schémas de transmutation "classiques", basés sur les réacteurs à eau légère, donnent des résultats similaires en terme de besoins d'uranium naturel et de production d'uranium appauvri et irradié, vu que ces paramètres sont étroitement liés à la fraction des REP-UOX dans le parc; par rapport au cycle ouvert, la réduction des besoins d'uranium est comprise entre 20% (Schéma 3b) et 36% (Schéma 3a).

Par contre, la stratégie de RNR, qui ne prévoit pas de REP dans le parc et ne nécessite pas d'uranium enrichi, permet de réduire d'un facteur 180 environ les besoins d'uranium et ne produit pas de rejets d'uranium irradié. En d'autres termes cette stratégie permet de produire environ 180 fois plus d'énergie en utilisant la même quantité de ressources. L'avantage de cette stratégie innovante par rapport à celles plus traditionnelles apparaît clairement si on compare l'efficacité d'utilisation de l'uranium naturel; au cours des irradiations successives le 98.5% du combustible est fissionné et produit de l'énergie, tandis que ce paramètre ne dépasse pas 1% pour toutes les autres stratégies de transmutation.

Comme on l'a déjà souligné précédemment, l'optimisation de l'utilisation des ressources n'est pas une nécessité à court terme pour l'industrie nucléaire car l'uranium naturel est encore abondant et l'inventaire d'uranium, appauvri et irradié, ne constitue pas un problème majeur pour la radiotoxicité. Par contre, si on se pose dans un scénario d'augmentation de la production d'énergie électronucléaire ou dans une perspective de développement durable, ces deux aspects, optimisation de l'utilisation des ressources naturelles et gestion de la pile de l'uranium, deviendront importants.



Figure 5.13: Bilan massique de l'uranium (kg/TWh_e)

	Cycle ouvert	Schéma 2	Schéma 3a	Schéma 3b	Schéma 4	Schéma 5
U naturel	20513.4	14304.4	12998.8	16357.7	13559.6	112.8
U appauvri	18119.3	12397.5	11461.2	14448.6	11752.0	-
U irradié enrichi	_1	1559.4	1417.1	1783.2	1478.2	-
U irradié appauvri	-	219.2	-	-	207.8	-
Eff ^U	0.60%	0.83%	0.91%	0.76%	0.88%	98.46%

Tableau 5.7: Bilan massique de l'uranium (kg/TWhe)

¹ Les 2238.5 kg/TWhe de U ne sont pas séparés des TRU et vont directement aux déchets.

5.5.4 Radiotoxicité des déchets

Comme on a rappelé dans le paragraphe 5.3.1, le but de cette thèse est de comparer différents scénarios de transmutation visant à réduire la masse et la radiotoxicité des déchets nucléaires à haute activité; dans le premier sous-paragraphe on analysera donc l'évolution de la radiotoxicité des NL présents dans les déchets à haute activité. Dans le deuxième sous-paragraphe on considérera tous les résidus de la production d'énergie nucléaire, indépendamment de la méthode de stockage utilisée et donc on inclura aussi la contribution de l'uranium appauvri et irradié à la radiotoxicité totale.

Les résultats des calculs de radiotoxicité sont présentés sous forme de graphiques; on rappelle ici que les pertes au retraitement dans les réacteurs avancés ont été harmonisées au taux de combustion de référence et que la radiotoxicité correspond à la production de 1 TWh_e dans l'ensemble du parc.

5.5.4.1 Déchets à haute activité

Les résultats des calculs de radiotoxicité pour les 6 schémas analysés sont donnés dans les Figures 5.14 et 5.15; la première montre l'évolution de la radiotoxicité des NL présents dans les déchets à haute activité et la deuxième donne le facteur de réduction de la toxicité par rapport au cycle ouvert de référence.



Figure 5.14: Evolution de la radiotoxicité des NL présents dans les déchets à haute activité

Figure 5.15: Facteur de réduction de la radiotoxicité des déchets à haute activité (NL)



Comme on a vu dans le paragraphe précédent, la stratégie de recyclage du Pu seul permet de réduire la masse de NL aux déchets environ d'un facteur 4 et on ne peut pas donc s'attendre à une réduction de la toxicité beaucoup plus importante: le facteur de réduction de la radiotoxicité est entre 2.3 et 7.5 dans le période successive à 1000 ans après le retraitement du combustible. Cette stratégie ne permet donc pas de réduire significativement la radiotoxicité des déchets et, par conséquent, ne peut pas être considérée comme une stratégie de transmutation; il apparaît donc clair que la transmutation des AM est indispensable pour atteindre les objectifs souhaités en matière de réduction de la masse des TRU et de la toxicité des déchets à haute activité.

Au-delà de 10³ ans après le retraitement, tous les schémas de transmutation atteignent l'objectif du "facteur 100" sur la toxicité des déchets sous l'hypothèse d'un taux de pertes au retraitement de 0.1%. Dans la période entre 10³ et 10⁵ ans, la Double Composante avec RNR et le Double Strata obtiennent la réduction maximale de la toxicité, tandis que pour les périodes suivantes la stratégie de RNR a les meilleures performances. L'allure des courbes de radiotoxicité dépend de la composition des NL et est donc très similaire pour les 3 schémas de transmutation qui utilisent des REP, tandis que la stratégie de RNR se différencie plus nettement. En définitive, tout de même, les 4 stratégies de transmutation analysées ont des performances similaires en terme de réduction de la radiotoxicité et aucune d'entre elles ne montre un avantage significatif. Pour plus d'information, la décomposition de la radiotoxicité dans les contributions de chaque réacteur du parc est présentée dans l'Annexe C.3.

La Figure 5.16 donne la contribution des différents noyaux à la toxicité des déchets pour le Schéma 3a; pour assurer un aperçu plus complet les graphiques correspondants aux autres schémas étudiés sont donnés dans l'Annexe C.4. Dans les premières 1000 années après la séparation, la toxicité est dominée par le ²³⁸Pu et l'²⁴¹Am, généré par la décroissance β du ²⁴¹Pu, tandis que, entre 1000 et 10⁵ ans, la contribution du ²⁴⁰Pu et celle du ²³⁹Pu deviennent prépondérantes. A très long terme la toxicité est dominée par le ²²⁶Ra, progéniteur de la chaîne du radium (4N+2), par le ²²⁹Th, progéniteur de la chaîne du neptunium (4N+1), et par leurs descendants. Dans le graphique on a ajouté à la toxicité du ²²⁶Ra et du ²²⁹Th la contribution de tous leurs noyaux fils avec une demi-vie plus courte et à l'équilibre. La radiotoxicité du ²³⁷Np est, à très long terme, largement inférieure à celle du ²²⁶Ra et du ²²⁹Th.



Figure 5.16: Schéma 3a - Contribution des noyaux présents dans les déchets à la radiotoxicité totale

5.5.4.2 Contribution de l'uranium à la toxicité totale

Jusqu'à présent la plupart des études pour l'évaluation de la radiotoxicité n'ont pas tenu compte de la contribution de l'uranium appauvri et irradié; cette approche se justifie par le faible impact environnemental de l'uranium, par sa faible radiotoxicité spécifique et par le fait que l'uranium peut avoir de nombreuses applications dans l'industrie nucléaire et a ainsi été considéré comme une ressource importante. En plus, dans un cycle ouvert du combustible, la radiotoxicité de l'uranium appauvri est négligeable par rapport à celle des TRU et des PF pour une période très longue, de 100000 ans environ.⁵⁰ Le but de ce sous-paragraphe est d'estimer la radiotoxicité de tous les résidus de la production d'énergie nucléaire en ajoutant la contribution de l'uranium appauvri et irradié à celle des déchets à haute activité, NL et PF. Lors de cette analyse on considérera donc l'uranium comme un déchet qui n'a plus aucune utilité pratique et qui doit donc être convenablement traité et entreposé. On rappelle ici que l'uranium est relativement peu radiotoxique dans le court terme, mais que sa radiotoxicité spécifique augmente avec le temps quand il atteint l'équilibre avec ses progéniteurs.

Les résultats de cette analyse sont présentés dans la Figure 5.17, qui donne l'évolution de la radiotoxicité globale des NL pour tous les schémas analysés. Les quatre Figures de 5.18 à 5.21 montrent

⁵⁰ L'uranium appauvri et irradié, une fois à l'équilibre avec ses descendants, est caractérisé par une activité et une radiotoxicité proches de celles de l'uranium naturel. La nécessité, à long terme, de sa gestion est donc liée au fait que cet élément a été fortement concentré par rapport à la situation naturelle.

la décomposition de la radiotoxicité dans toutes ses composantes, uranium appauvri, uranium irradié (enrichi et appauvri), noyaux lourds et produits de fission présents dans les déchets à haute activité. Ces quatre dernières figures correspondent aux différentes stratégies de transmutation analysées: cycle ouvert, recyclage du plutonium seul, transmutation des TRU en cycle fermé dans un parc incluant des REP et dans un parc innovant composé exclusivement de RNR. Les résultats pour les scénarios à Double Composante sont très proches de ceux du Double Strata et ne sont donc pas présentés ici.

Dans n'importe quel parc nucléaire qui utilise des REP la contribution de l'uranium appauvri à la radiotoxicité des déchets est prépondérante à très long terme: même dans le cycle ouvert, où les NL sont directement mis aux déchets après l'irradiation, l'uranium appauvri devient le responsable principal de la toxicité globale après environ $5 \cdot 10^5$ ans. Cette transition arrive plus tôt pour les autres schémas: après environ 10^5 ans pour la stratégie de recyclage du Pu seul et après environ $2 \cdot 10^4$ ans pour les stratégies de transmutation classiques. Pour ces dernières, en particulier, la radiotoxicité après 10^5 ans est dominée par l'uranium appauvri et irradié et la contribution des déchets à haute activité est tout à fait négligeable.

Parmi les scénarios traités, le Schéma 5 est le seul qui permet d'obtenir une réduction substantielle de la radiotoxicité même à très long terme car il recycle indéfiniment tous les NL et ne nécessite pas un processus d'enrichissement de l'uranium naturel. Au contraire, tous les autres schémas de transmutation réduisent considérablement la masse des TRU aux déchets et sont ainsi très efficaces pour limiter la radiotoxicité des déchets nucléaires jusqu'à environ 10⁵ ans de la séparation. Dans la période suivante, la radiotoxicité est dominée par les rejets de l'enrichissement de l'uranium.

Si on considère la totalité des résidus de l'irradiation, il apparaît que la transmutation des TRU, très utile pour réduire la toxicité des déchets entre 1000 et $2 \cdot 10^4$ ans environ, ne permet pas de résoudre définitivement le problème de la radiotoxicité à très long terme, dominée par les isotopes de l'uranium. La transmutation des TRU peut être considérée comme une première étape de l'industrie nucléaire vers un développement durable. L'étape suivante est la gestion de la pile d'uranium appauvri et irradié avec son utilisation dans les réacteurs avancés à spectre rapide; cette stratégie permettrait non seulement de minimiser la toxicité à long terme des déchets mais aussi de maximiser l'efficacité d'utilisation des ressources.



Figure 5.17: Evolution de la toxicité de tous les NL produits dans le parc

Figure 5.18: Décomposition de la radiotoxicité totale (y compris les PF) pour le Schéma 1





Figure 5.19: Décomposition de la radiotoxicité totale (y compris les PF) pour le Schéma 2

Figure 5.20: Décomposition de la radiotoxicité totale (y compris les PF) pour le Schéma 4





Figure 5.21: Décomposition de la radiotoxicité totale (y compris les PF) pour le Schéma 5

5.6 Conséquences sur le cycle du combustible

Au cours des paragraphes suivants on évaluera l'impact de l'introduction d'une stratégie de transmutation à cycle entièrement fermé sur le cycle du combustible, en analysant les caractéristiques du combustible à la fabrication et au retraitement ainsi que son débit massique.

Le multirecyclage indéfini des TRU implique la présence de grandes quantités de Pu et d'AM dans le combustible à l'équilibre, ce qui en augmente considérablement l'activité, la chaleur de décroissance et l'émission de neutrons par rapport au combustible UOX ou MOX irradié dans les REP. Une évaluation de ces grandeurs est donc nécessaire afin d'évaluer si elles sont compatibles avec les méthodes de séparation utilisées et pour estimer les besoins en terme de protection des neutrons au moment du transport, de la fabrication et du retraitement du combustible. Les principales caractéristiques du combustible au retraitement et à la fabrication sont analysées au cours du paragraphe 5.6.1.

Un deuxième aspect important pour la comparaison des différents scénarios de transmutation est de déterminer les flux massiques de NL à la fabrication et au retraitement par unité d'énergie produite dans le parc. Cette quantité détermine le besoin en terme d'installations innovantes pour la fabrication et le retraitement du combustible et a, par conséquent, un rôle important dans l'estimation du surcoût associé à

la réalisation de chaque schéma de transmutation. Ces aspects du cycle du combustible sont présentés au cours du paragraphe 5.6.2.

Le troisième paragraphe de cette section est dédié à l'analyse des méthodes qui permettent de réduire la chaleur de décroissance et la source de neutrons du combustible irradié; on a considéré, en particulier, le prolongement du temps de refroidissement et le mélange de combustibles MOX provenant de différents réacteurs afin d'en diluer l'activité et la chaleur de décroissance lors du retraitement.

5.6.1 Analyse des caractéristiques du combustible

Les principales caractéristiques du combustible, activité, chaleur de décroissance et source de neutrons, sont données dans le Tableau 5.8 au moment du retraitement du combustible et dans le Tableau 5.9 au moment de sa fabrication⁵¹. Toutes les données sont ici normalisées par rapport à la masse de NL présents au moment de la fabrication du combustible; des informations plus détaillées, incluant la contribution de chaque isotope présent dans le combustible, sont données dans l'Annexe C.5. On rappelle enfin que la description des méthodes de calcul utilisées et des nuclides considérés au cours de cette analyse est présentée dans le chapitre 3.

Tableau 5.8: Activité, chaleur de décroissance et source de neutrons au moment du retraitement du

combu	stible
comot	001010

	REP UOX	REP MOX	CAPRA	IFR (Sch. 3a)	ATW	MAB	IFR (Sch. 5)		
Temps de refroidissement (a)	4	7	7	2	2	2	2		
Activité (10 ¹² Bq/kg _{NL})									
NL + PF	36.24	50.30	157.0	232.4	691.7	725.4	160.4		
PF	30.15	17.26	62.38	155.3	342.0	183.7	131.7		
Chaleur de décroissance (W/kg _{NL})									
NL + PF (total)	3.48	6.31	21.77	46.00	192.6	455.1	18.56		
α	0.52	4.86	16.76	30.51	156.4	435.4	5.63		
β	1.63	0.66	2.32	11.38	27.12	14.83	9.34		
γ	1.34	0.79	2.67	4.09	8.96	4.42	3.58		
PF	2.96	1.41	4.86	15.34	35.50	18.02	12.88		
β	1.62	0.63	2.21	11.28	26.64	13.83	9.31		
γ	1.34	0.79	2.65	4.07	8.88	4.19	3.58		
Source de neutrons (10 ⁶ n/s-kg _{NL})									
Total	0.97	10.93	39.28	86.08	649.1	1812	9.76		
Fission spontanée	0.95	10.77	38.72	85.02	643.6	1797	9.57		
(α,n)	0.02	0.16	0.56	1.06	5.46	15.22	0.19		

⁵¹ Comme rappelé au paragraphe 3.4.1, la modélisation du cycle du combustible ne prévoit aucun décalage temporaire entre la séparation du combustible irradié et la fabrication du combustible "neuf".

	REP UOX	REP MOX	CAPRA	IFR (Sch. 3a)	ATW	MAB	IFR (Sch. 5)			
Activité (10 ¹² Bq/kg _{NL})										
Total	1.5310-5	38.28	148.1	111.5	470.6	598.2	28.89			
Chaleur de décroissance (W/kg _{NL})										
Total	$1.1 \cdot 10^{-5}$	1.94	9.64	33.79	168.1	489.3	5.79			
α	$1.1 \cdot 10^{-5}$	1.91	9.49	33.60	167.2	487.4	5.74			
β	$4.4 \cdot 10^{-8}$	0.03	0.13	0.14	0.59	1.14	0.03			
γ	$9.0.10^{-8}$	$1.0 \cdot 10^{-3}$	$2.6 \cdot 10^{-3}$	0.02	0.09	0.30	$4.3 \cdot 10^{-3}$			
Source de neutrons (10 ⁶ n/s-kg _{NL})										
Total	$2.07 \cdot 10^{-5}$	0.10	0.66	92.05	669.9	1992	9.76			
Fission spontanée	$2.06 \cdot 10^{-5}$	0.04	0.37	90.89	664.0	1975	9.57			
(α, n)	$1.32 \cdot 10^{-7}$	0.06	0.29	1.16	5.82	17.04	0.19			

Tableau 5.9: Activité, chaleur de décroissance et source de neutrons au moment de la fabrication du combustible

Parmi les NL, le ²⁴⁴Cm, le ²³⁸Pu, le ²⁴²Cm et l'²⁴¹Am contribuent le plus à l'activité et à la chaleur de décroissance. Ces isotopes s'accumulent dans le combustible issu des réacteurs qui recyclent indéfiniment tous les TRU et, en particulier, dans le combustible des ADS, dont le "top-up" est exclusivement composé par des AM ou des TRU. Parmi les combustibles analysés, le combustible le plus "chaud" est celui du MAB, dont la valeur de 455 W/kg_{NL} est de quelque ordre de grandeur supérieure à celle caractéristique du combustible REP-MOX. La chaleur de décroissance pour tous les combustibles avancés est bien au-delà des limites pour lesquelles on peut garantir la stabilité de la molécule organique extractrice et, par conséquent, l'utilisation d'un procédé aqueux est à présent exclue. Il est enfin important de remarquer que, en particulier pour le combustible irradié dans les ADS, la chaleur de décroissance est dominée par les NL, tandis que la contribution des PF est en proportion faible; comme on le montrera au cours du paragraphe 5.6.3, cela limite l'efficacité de l'extension du temps de refroidissement afin de réduire la chaleur de décroissance du combustible au retraitement.

Il est intéressant de remarquer que ces considérations ne s'appliquent pas au combustible avancé de l'IFR isogénérateur (Schéma 5); ce combustible est composé principalement d'uranium et est faiblement chargé en AM. Dans ce cas la chaleur de décroissance est proche de celle du combustible irradié dans un réacteur CAPRA et est dominée principalement par les PF, qui comptent environ pour les 2/3 de la valeur totale.

Pour ce qui concerne le combustible de type oxyde, la compatibilité du combustible issu des réacteurs CAPRA HBU (Schémas 2 et 4) avec un procédé PUREX de type classique est aussi questionnable à cause de la forte teneur en Pu qui rend problématique sa solubilisation dans la solution aqueuse. Afin d'obtenir pour tous les NL le taux de séparation de l'ordre de 99.9% envisagé au cours de cette étude il est donc nécessaire de prendre des mesures particulières pour améliorer la solubilité du Pu et de modifier le procédé PUREX classique. Des expérimentes pilote en France et au Royaume Uni ont tout de même prouvé la faisabilité d'un tel procédé, du moins à l'échelle de laboratoire. Une autre solution possible pour contourner les difficultés est de mélanger les combustibles provenant des REP-MOX et des réacteurs CAPRA avant leur séparation de façon à moyenner la teneur en Pu et la chaleur de décroissance du combustible et de rendre ainsi le procédé de séparation plus facile; on analysera de manière plus approfondie cette méthode au cours du paragraphe 5.6.3.

Les NL qui contribuent le plus à la source externe de neutrons soit par fission spontanée soit par des réactions (α ,n) sont les isotopes pairs du Cm et du Cf. La production "interne" de neutrons est donc maximale dans le combustible des ADS et de l'IFR sousgénérateur où l'on recycle indéfiniment tous les AM et où les AM à haut nombre de masse ont le temps de s'accumuler au cours des cycles. Par rapport au combustible "standard" issu d'un REP-UOX ou d'un REP-MOX, la source de neutrons dans les combustibles avancés est considérablement plus importante soit au retraitement soit, surtout, à la fabrication du combustible. La manipulation du combustible avancé requiert donc des protections appropriées de façon à limiter au maximum l'exposition des travailleurs aux radiations, avec peut être l'utilisation de procédés complètement automatisés. En outre on devra mettre en œuvre des procédures de protection adaptées au transport de ce combustible de l'installation nucléaire aux usines de retraitement et de fabrication.

Les caractéristiques du combustible à l'équilibre des réacteurs avancés, fortement enrichi en TRU, sont incompatibles avec les caractéristiques d'un procédé de séparation de type aqueux soit à cause de la forte chaleur de décroissance soit à cause des teneurs trop élevées en Pu. Actuellement la réalisation d'une stratégie de transmutation à cycle entièrement fermé doit s'appuyer ainsi sur les procédés de séparation de type pyrochimique. L'utilisation de méthodes de séparation de type pyrochimique pour les systèmes dédiés à clore le cycle du combustible permet de contourner une limitation de ce procédé, c' est à-dire l'impossibilité de séparer efficacement les différents NL. En effet à ce stade il n'est pas nécessaire de séparer ultérieurement les différents NL. L'utilisation de cette méthode permettrait aussi de bâtir des usines de séparation et de fabrication de petite taille et proches des réacteurs dédiés, de façon à limiter le transport de matériaux fortement radioactifs de l'installation nucléaire aux usines de gestion du combustible.

5.6.2 Flux massiques

Les flux massiques à la fabrication et au retraitement du combustible, sont donnés dans les Tableaux 5.10 et 5.11 en terme de kg de NL par unité d'énergie produite dans le parc.

Tous les scénarios considérés, à l'exception de la stratégie de RNR qui est entièrement basée sur la séparation pyrochimique, nécessitent des méthodes de séparation de type aqueux, soit PUREX pour les

Schémas 2 et 4 soit UREX pour les scénarios à Double Composante où la séparation du Pu des AM n'est pas nécessaire.

	Schéma 2	Schéma 3a	Schéma 3b	Schéma 4	Schéma 5
REP - UOX	1669	1517	1909	1583	-
REP - MOX	247.4	-	-	234.5	-
RNR - MOX	111.5	-	-	105.7	-
Ac - Zr	-	288.0	103.2	-	2233
AcN - ZrN	-	-	-	46.2	-

Tableau 5.10: Flux massiques à la fabrication du combustible (kg_{NL}/TWh_e)

Tableau 5.11: Flux massiques au retraitement du combustible (kg_{NI}/TWh_e)

	Schéma 2	Schéma 3a	Schéma 3b	Schéma 4	Schéma 5
PUREX pour REP - UOX	1583	-	-	1501	-
PUREX pour REP - MOX	234.7	-	-	222.9	-
PUREX avancé pour RNR	90.9	-	-	86.4	-
UREX	-	1439	1810	39.3	-
Pyro	-	247.3	77.5	-	2122

L'utilisation des ADS pour clore le cycle du combustible permet de limiter la masse de combustible à retraiter par voie pyrochimique ainsi que la quantité de combustible avancé à fabriquer. En particulier le Double Strata minimise le recours à ces procédés innovants mais, comme souligné dans le paragraphe précédent, le combustible issu du MAB est considérablement plus "chaud" par rapport à tout autre combustible analysé au cours de cette thèse. En plus cette stratégie impose la fabrication du combustible MOX pour les REP et pour les réacteurs CAPRA et requiert l'application d'un procédé aqueux avancé pour la séparation du combustible CAPRA-MOX.

La comparaison des 2 stratégies à Double Composante permet de conclure que l'utilisation des ADS réduit d'un facteur 3 environ les flux massiques du combustible avancé aux usines de fabrication et de séparation par rapport au cas où on utiliserait des réacteurs critiques.

Il faut enfin souligner que la stratégie innovante basée exclusivement sur les RNR est pénalisée par la grande quantité de combustible avancé à fabriquer et à recycler par un procédé pyrochimique (on a un facteur 50 par rapport au Double Strata et un facteur 8÷25 par rapport aux 2 stratégies à Double Composante). Cette limitation dépend en partie du fait que, pour des raisons de non-prolifération, on ne recycle pas les assemblages fertiles par un procédé UREX séparé mais on les mélange avec les assemblages du cœur interne. La séparation des assemblages fertiles par une méthode aqueuse permettrait

de réduire d'un facteur 3 environ la quantité de combustible à séparer par un procédé pyrochimique. Si on voulait retraiter conjointement tous les NL, on pourrait prolonger la période d'irradiation des assemblages fertiles; cela permettrait de réduire quelque peu le débit massique au retraitement. De toute façon les différentes méthodes de gestion du combustible envisageables permettraient uniquement de limiter le problème du fort débit massique au retraitement pyrochimique; ce problème est en effet intrinsèque à cette stratégie innovante.

Les résultats que l'on vient de discuter dans ces 2 derniers paragraphes sont synthétisés dans la Figure 5.22 qui met en relation la masse de combustible allant au retraitement avec sa chaleur de décroissance. Pour les 3 stratégies de transmutation Double Strata et Double Composante on observe une relation de proportionnalité inverse entre la chaleur de décroissance du combustible et son débit massique au retraitement. Cette figure permet aussi de mettre en relief les grandes différences dans le cycle du combustible associées aux stratégies de transmutation choisies. Le Double Strata et la Double Composante avec ADS sont caractérisées par des faibles débits massiques au retraitement d'un combustible qui est très "chaud". Par contre les stratégies qui utilisent des réacteurs IFR ont des débits massiques plus importants d'un combustible qui est cependant beaucoup moins actif.

On peut donc conclure que les stratégies de transmutation analysées, qui ont des performances comparables en terme de réduction massique et de radiotoxicité des déchets nucléaires, se différencient considérablement si on considère les caractéristiques du combustible au retraitement et les besoins technologiques du cycle du combustible.



Figure 5.22: Caractéristiques principales du combustible avancé au retraitement

Pour clore cette analyse de caractérisation du combustible il est intéressant d'évaluer deux méthodes qui peuvent réduire l'activité et la chaleur de décroissance du combustible au moment de sa séparation. Cela permet de vérifier si l'établissement d'une stratégie de transmutation requiert impérativement l'utilisation de méthodes de type pyrochimique ou bien si la réduction de la chaleur de décroissance permettrait le recours à des procédés de type aqueux au cas où l'application industrielle des procédés pyrochimiques n'atteindrait pas les objectifs actuellement prévus. Une des méthodes étudiées permet de diminuer l'activité et la chaleur de décroissance du combustible des réacteurs CAPRA (Schémas 2 et 4) sans modifier de façon significative les cycles du combustible respectifs. Cette solution permettrait ainsi de réaliser les stratégies de transmutation correspondentes même si les améliorations du procédé PUREX étaient moins satisfaisantes que celles actuellement prévues⁵².

La première méthode consiste à prolonger le temps de refroidissement avant la séparation des NL afin de réduire l'activité et la chaleur de décroissance du combustible irradié. Au cours de cette analyse on a donc évalué les caractéristiques du combustible à l'équilibre en fonction du temps de décroissance précédent la séparation⁵³. La Figure 5.23 illustre les plus importants résultats de cette analyse: on représente avec une ligne continue l'évolution de la chaleur de décroissance totale du combustible irradié (NL + PF) et avec une ligne pointillée la contribution des PF seuls.

Le Tableau 5.12 donne enfin le gain, en terme de réduction de la chaleur de décroissance, qu'on obtiendrait en prolongeant d'un an la durée du temps de refroidissement. La colonne correspondante à t=3 ans donne ainsi la réduction de la chaleur de décroissance qu'on obtient en laissant refroidir le combustible 3 ans au lieu de 2 ans. Dans l'Annexe C.5 on donne d'autres informations complémentaires à cette analyse, et en particulier l'évolution de l'activité totale et de la composante due aux décroissances α en fonction du temps de refroidissement.

⁵² Cette méthode n'a aucun impact sur le deuxième stratum du schéma 4: elle n'apporte donc aucun bénéfice pour la faisabilité des procédés pyrochimiques.

⁵³ A la rigueur n'importe quelle modification de la période de stockage ou de refroidissement comporte une variation de la composition du combustible à l'équilibre. Pour cette étude paramétrique on a néanmoins négligé cet effet en utilisant la même composition du combustible irradié indépendamment du temps de refroidissement considéré.

Figure 5.23: Evolution de la chaleur de décroissance du combustible au retraitement en fonction du temps de décroissance (W/kg)



Tableau 5.12: Diminution de la chaleur de décroissance due à l'augmentation d'un an du temps de décroissance (%)

	1	2	3	4	5	7	10	15	20
CAPRA, NL	82.3%	34.3%	12.0%	4.4%	2.3%	1.8%	1.8%	1.5%	1.4%
CAPRA, PF	94.1%	44.9%	37.2%	30.7%	24.1%	13.5%	6.2%	3.3%	2.6%
CAPRA, Total	92.1%	40.9%	26.6%	17.4%	11.4%	5.4%	2.9%	1.9%	1.7%
IFR (Sch. 3a), NL	73.4%	28.7%	10.0%	4.4%	2.8%	2.3%	2.4%	2.1%	2.0%
IFR (Sch. 3a), PF	94.0%	45.6%	37.1%	29.8%	22.6%	11.5%	5.0%	3.0%	2.5%
IFR (Sch. 3a), Total	89.5%	36.2%	20.3%	12.0%	7.5%	3.9%	2.8%	2.2%	2.1%
ATW, NL	54.7%	27.2%	9.6%	4.6%	3.1%	2.6%	2.8%	2.4%	2.4%
ATW, PF	80.8%	47.3%	39.7%	33.1%	26.0%	13.9%	5.8%	3.1%	2.5%
ATW, Total	67.0%	32.7%	16.1%	9.0%	5.7%	3.4%	3.0%	2.5%	2.4%
MAB, NL	52.0%	23.9%	8.5%	4.5%	3.2%	2.8%	3.0%	2.7%	2.6%
MAB, PF	94.4%	47.7%	39.0%	31.8%	24.2%	12.1%	5.0%	2.9%	2.5%
MAB, Total	68.2%	25.5%	10.0%	5.4%	3.7%	2.9%	3.0%	2.7%	2.6%
IFR (Sch. 5), NL	90.1%	38.4%	13.8%	4.4%	1.8%	1.1%	1.2%	1.0%	1.0%
IFR (Sch. 5), PF	94.2%	44.9%	35.9%	28.5%	21.4%	10.9%	4.9%	3.0%	2.5%
IFR (Sch. 5), Total	93.5%	43.3%	30.1%	20.7%	13.7%	6.2%	2.9%	1.8%	1.6%

L'analyse de la contribution des NL à la chaleur de décroissance montre que, quoique la valeur absolue à la fin de l'irradiation soit très différente selon le combustible analysé, son évolution au cours du temps a une allure très similaire dans tous les cas traités; en particulier la chaleur de décroissance des NL diminue d'une façon importante au cours des 2-3 premières années de refroidissement, alors qu'au-delà de la troisième année la prolongation de 1 an du refroidissement apporte un bénéfice très marginal (< de 5%). Au contraire la réduction de la chaleur de décroissance due aux PF est significative même pour un temps de refroidissement plus long: l'extension du temps de refroidissement de 6 à 7 ans permet de réduire d'au moins 10% la contribution des PF à la chaleur de décroissance pour tous les combustibles analysés. Si on considère enfin la contribution conjointe des NL et des PF, la prolongation du temps de refroidissement est plus efficace pour les combustibles moins "chauds" pour lesquels la contribution des PF est dominante. En particulier il apparaît évident que l'extension du temps de refroidissement au-delà de 2-3 ans pour le combustible issu des ADS et de l'IFR sousgénérateur ne permet de réduire la chaleur de décroissance totale que marginalement et se montre donc inefficace. Au contraire, l'extension du temps de refroidissement de 2 à 7 ans pour le combustible issu du réacteur CAPRA et de l'IFR isogénérateur permet de réduire la chaleur de décroissance d'environ 55-60%; au-delà de cette limite la prolongation du temps de refroidissement n'apporte pratiquement aucun bénéfice.

Il faut tout de même souligner que la prolongation du temps de refroidissement causerait de sérieuses difficultés dans la gestion du combustible, en particulier l'augmentation de l'inventaire des NL hors pile et l'allongement du temps nécessaire à la sortie de l'option nucléaire. On reviendra sur ces aspects de façon plus détaillée au cours des deux sections suivantes.

L'extension du temps de refroidissement n'est donc pas une solution efficace pour résoudre les difficultés associées au fort dégagement d'énergie du combustible avancé lors de son retraitement. La réalisation d'une stratégie de transmutation viable nécessite la mise au point de méthodes de séparation efficaces et peu sensibles aux fortes doses de radiations nucléaires; le développement ultérieur des méthodes de type pyrochimique est donc une condition indispensable pour toute stratégie de transmutation à cycle entièrement fermé.

Une autre solution pour réduire l'activité et la chaleur de décroissance du combustible MOX irradié dans les réacteurs CAPRA est de le mélanger, avant la séparation, avec le combustible MOX irradié dans les REP. La proportion massique entre ces 2 combustibles est d'environ 2 kg de combustible irradié dans les REP par kg du combustible provenant du réacteur rapide CAPRA; cela permet donc de réduire efficacement l'activité et la chaleur de décroissance du combustible plus "chaud".

Du point de vue du cycle du combustible, cette modification n'a aucun impact sur la gestion du Pu et des AM car le premier est entièrement recyclé dans le réacteur CAPRA et les derniers sont multirecyclés dans le MAB (Schéma 4) ou mis directement aux déchets (Schéma 2). Par contre le combustible

"mélangé" a un vecteur isotopique de l'uranium différent par rapport à celui du combustible CAPRA standard, ce qui affecte quelque peu la composition du combustible à l'équilibre (U+TRU)⁵⁴.

Les résultats de cette étude sont donnés dans la Figure 5.24 qui montre l'évolution de la chaleur de décroissance pour le combustible MOX irradié dans les REP, dans les réacteurs CAPRA et pour le combustible obtenu avec leur mélange; on a aussi inclus les valeurs pour le combustible REP-UOX avec fonction de référence.



Figure 5.24: Effet du mélange du combustible sur la chaleur de décroissance (W/kg)

Cette analyse montre que la réunion du combustible MOX avant la séparation permet de réduire l'activité et la chaleur de décroissance d'un facteur 2 par rapport au combustible CAPRA standard sans aucune pénalisation du cycle du combustible. En plus cette méthode permet de réduire aussi la teneur moyenne du Pu dans le combustible et donc de résoudre les problèmes de sa solubilité dans la solution aqueuse. L'application de cette méthode permettrait donc de relâcher les contraintes sur les procédés de séparation et donc d'améliorer la faisabilité du scénario de transmutation de type Double Strata. Par contre cette méthode ne peut s'appliquer qu'aux 2 stratégies Double Strata et recyclage du Pu seul et n'a aucun impact sur le combustible avancé du deuxième stratum qui requiert un procédé de type pyrochimique.

⁵⁴ Des calculs de contrôle ont tout de même montré que les différences sur la composition d'équilibre sont négligeables surtout dans le contexte d'une étude de caractérisation du combustible; au cours de cette analyse on a

L'application de cette méthode pourrait avoir des retombées précieuses même dans le cas où le développement des méthodes aqueuses serait aussi satisfaisant que souhaité et donc permettrait la séparation du combustible CAPRA standard. Dans ce cas le mélange des 2 combustibles MOX pourrait permettre de réduire leur temps de refroidissement et de limiter ainsi l'inventaire massique des NL hors pile. En conclusion, l'application de cette méthode contribue à rendre plus attractive la stratégie de transmutation Double Strata et celle de gestion du Pu du Schéma 2.

5.7 Etudes paramétriques

Au cours de cette section on étudiera l'impact des deux paramètres principaux, le taux de combustion moyen dans les réacteurs dédiés et le taux de pertes au retraitement, sur la masse et la radiotoxicité des déchets à haute activité. Dans le premier sous-paragraphe on évaluera, pour le Schéma 3b, la masse et la radiotoxicité des déchets à haute activité en fonction de différents taux moyens de combustion dans les réacteurs avancés. Dans le deuxième sous-paragraphe on déterminera, cette fois en utilisant le schéma 4 comme exemple, la composition des déchets à haute activité en fonction de différents taux de pertes au retraitement pour la méthode PUREX et pour la méthode pyrochimique. On évaluera enfin les performances de tous les scénarios de transmutation étudiés sous l'hypothèse d'augmenter les pertes au retraitement des procédés pyrochimiques à 0.5% et de laisser inchangées celles des procédés aqueux.

5.7.1 Taux de combustion moyen

La masse des NL aux déchets pour le Schéma 3b est obtenue en sommant la contribution des REP-UOX à celle de l'ATW. Le premier terme ne dépend pas du taux de combustion moyen de l'ATW car le taux de combustion des REP et la fraction de réacteurs thermiques dans le parc se maintiennent inchangés. La contribution des réacteurs hybrides a été normalisée au taux de combustion B à l'aide du

facteur correctif $\frac{B}{1-B} \cdot \frac{1-B_{250}}{B_{250}}$. Au cours de cette étude paramétrique on a donc simplement repris la

composition du combustible à l'équilibre obtenue pour le taux de combustion moyen de projet (250 GW_j/t_{NL}) sans refaire une mise à l'équilibre du réacteur pour le nouveau taux de combustion; cette approximation se justifie dans le cas d'un réacteur hybride car la composition du "top-up" est fixe ($\tau = 1$) et car la composition à l'équilibre est relativement peu dépendante du taux de combustion⁵⁵.

donc repris la composition d'équilibre calculée précédemment pour le combustible CAPRA.

⁵⁵ Si au contraire on considère un système critique, la fraction de TRU dans le "top-up" dépend du taux de combustion moyen; τ est en fait ajusté de façon à avoir un réacteur critique à la fin du cycle et, en général, diminue avec la réduction du taux moyen de combustion. La variation du "burn-up" dans les réacteurs avancés a donc 2 effets non négligeables pour les scénarios incluant des réacteurs critiques: on observe (a) une variation de la fraction de réacteurs thermiques et de réacteurs avancés dans le parc (b) une variation de la composition du "top-up" et, par conséquent, une différente composition isotopique d'équilibre dans les réacteurs avancés.

Les résultats de cette étude sont présentés dans le Tableau 5.13 qui donne l'inventaire massique aux déchets en fonction du taux de combustion moyen de l'ATW; dans l'Annexe C.6 on montre la variation du facteur de réduction de la toxicité en fonction du taux de combustion de l'ATW.

	Taux de combustion (GW _j /t _{NL})								
	100	140	150	200	250				
AM	0.045	0.032	0.029	0.022	0.017				
TRU	0.254	0.182	0.170	0.127	0.102				
NL	2.043	1.969	1.957	1.914	1.888				

Tableau 5.13: Schéma 3b - Inventaire massique aux déchets pour différents taux de combustion

	Taux de combustion (GW _j /t _{NL})								
	100	140	150	200	250				
AM	0.045	0.032	0.029	0.022	0.017				
TRU	0.254	0.182	0.170	0.127	0.102				
NL	2.043	1.969	1.957	1.914	1.888				

(kg/TWh_e)

Les résultats obtenus confirment l'importance d'augmenter le taux de combustion des réacteurs avancés pour limiter la masse des TRU aux déchets; en effet la majorité des TRU et des AM aux déchets vient des pertes au retraitement du combustible avancé. En particulier cette étude montre l'importance d'obtenir un taux de combustion moyen de l'ordre de 150 GW_i/t_{NI}: une réduction du "burn-up" à 100 GW_i/t_{NL} augmente d'environ 50% les rejets totaux de AM et de TRU et ne permet pas d'atteindre les objectifs de réduction de la radiotoxicité fixés dans le cadre de cette étude (facteur 100 par rapport au Cycle Ouvert). L'augmentation du taux de combustion au-delà de cette valeur permet de réduire encore plus la masse des TRU et des AM aux déchets; une telle réduction est tout de même de moins en moins significative pour des forts taux de combustion.

On peut enfin observer que l'impact du paramètre étudié sur la masse totale des NL aux déchets est presque négligeable: en fait la majorité des NL vient du retraitement du combustible REP-UOX et, par conséquent, la variation du "burn-up" des réacteurs avancés n'affecte pas ce résultat d'une façon significative⁵⁶.

5.7.2 Pertes au retraitement

Une analyse de sensibilité au taux de pertes au retraitement a été effectuée pour le scénario Double Strata. Au cours de cette étude paramétrique on a maintenu inchangé le taux de pertes de l'uranium et du plutonium dans les procédés aqueux (0.1%) et on a fait varier le taux de pertes des AM dans les procédés aqueux (0.1% ou 1%) et celui de tous les NL dans les procédés pyrochimiques (0.1% - 0.5% - 1%). On a donc considéré 5 situations possibles: dans celle de référence (Cas 1 dans la notation suivante) le taux de pertes au retraitement est de 0.1% pour tout procédé de séparation; dans le Cas 3 on a augmenté le taux de pertes des procédés pyrochimiques (0.5%) tout en laissant inchangé celui des procédés aqueux. Dans les

⁵⁶ Cette considération ne s'applique pas au schéma 5, qui ne contient que des réacteurs avancés dans le parc.

autres cas étudiés le taux de pertes des AM est fixé à 1% pour les méthodes aqueuses et on fait varier le taux de pertes des procédés pyrochimiques (0.1% - Cas 2, 0.5% - Cas 4 et 1% - Cas 5). Le facteur de réduction de la toxicité est présenté dans la Figure 5.25 pour les 5 cas de l'étude, tandis que les bilans massiques détaillés et les courbes de radiotoxicité sont donnés dans l'Annexe C.6.





Cette étude paramétrique montre que une haute efficacité de séparation des AM dans les procédés aqueux n'est pas essentielle pour atteindre les critères minimaux de réduction de la radiotoxicité: même avec un taux de pertes au retraitement de 1% pour les AM, le Double Strata permet de réduire la radiotoxicité des déchets d'un facteur 100 par rapport au schéma de référence. Par contre il est indispensable de limiter le taux de pertes des procédés pyrochimiques du deuxième stratum à 0.1%. Si on autorise un taux de pertes de 1% dans le deuxième stratum, l'inventaire du Pu aux déchets augmente de 3 fois et celui des AM de 9 fois environ; on observe aussi une augmentation d'environ 5 fois de la toxicité des déchets par rapport au cas de référence.

Il est enfin intéressant de remarquer comme la variation du taux de pertes pour différents isotopes/méthodes de séparation modifie non seulement la masse des TRU aux déchets mais aussi leur composition: les courbes de radiotoxicité ont en effet une allure différente dans les 5 cas étudiés.

La deuxième partie de cette étude paramétrique sur le taux de pertes consiste à appliquer, à tout procédé pyrochimique, un taux de pertes plus élevé par rapport à celui considéré dans le cas de référence. Cela correspond donc à une situation où les progrès dans la mise au point de cette technologie sont moins rapides que supposé. Les 4 scénarios de transmutation ont donc été réévalués pour un taux de pertes de 0.5% pour le procédé pyrochimique tout en laissant inchangé l'efficacité de séparation pour les méthodes aqueuses. Les résultats de cette étude sont montrés dans la Figure 5.26: on donne le facteur de réduction de la radiotoxicité pour les 4 schémas en considérant soit le taux de pertes de référence (ligne pointillée) soit le taux de pertes de 0.5% (ligne continue). Les bilans massiques détaillés, ainsi que l'évolution de la toxicité sont donnés dans l'Annexe C.6.

Figure 5.26: Facteur de réduction de la radiotoxicité des schémas de transmutation pour un taux de pertes de 0.5% dans les procédés pyrochimiques



Comme on avait déjà montré dans l'étude paramétrique limitée au Double Strata, il est indispensable d'avoir un taux de pertes au retraitement bien inférieur à 0.5% pour le combustible avancé si l'on veut atteindre les objectifs envisagés en terme de réduction de la toxicité des déchets. Sous les nouvelles conditions aucune stratégie envisagée ne parvient pas à obtenir le facteur 100 sur la radiotoxicité des déchets par rapport au Cycle Ouvert. La diminution de l'efficacité du procédé de séparation pyrochimique pénalise surtout les scénarios qui ont une grande fraction de réacteurs avancés dans le parc;
l'augmentation de la radioxicité est donc plus significative pour la stratégie de réacteurs rapides et à l'impact minimal sur le Double Strata. Il est aussi intéressant de remarquer que, sous ces nouvelles hypothèses, le Double Strata a les meilleures performances en matière de réduction de la toxicité dans la période comprise entre 10^3 et 10^5 ans.

5.8 Inventaire massique en pile et hors pile

L'estimation de l'inventaire massique des NL et des TRU est importante soit dans une situation d'équilibre soit dans un scénario de sortie de l'option nucléaire; dans le premier cas, pour une puissance électrique du parc donnée, il est préférable de minimiser la quantité de NL et de TRU présents dans l'ensemble du parc de façon à réduire les difficultés associées à leur gestion et à limiter l'activité et la toxicité totales en cas d'accident. Dans un scénario de sortie de l'option nucléaire, la minimisation de l'inventaire massique à l'équilibre est encore plus importante: en effet, si on fait l'hypothèse d'une période de fonctionnement du parc nucléaire à l'équilibre de quelques centaines d'années, la radiotoxicité des NL présents dans le parc peut être de quelque ordre de grandeur supérieure à celle des déchets nucléaires accumulés lors du fonctionnement du parc. Si on ne prend aucune mesure pour la gestion des NL présents dans le parc et donc tout l'inventaire massique, en pile et hors pile, est mis directement aux déchets, les bénéfices de la mise en œuvre d'une stratégie de transmutation sont largement perdus.

On définit comme inventaire massique de NL (TRU) en pile, la quantité de NL (TRU) présents dans tous les réacteurs du parc. D'une manière analogue, on définit comme inventaire massique de NL (TRU) hors pile la quantité de NL (TRU) faisant partie du cycle du combustible sans être matériellement dans le réacteur; pour le calcul de l'inventaire hors pile on considère donc soit le combustible déjà irradié et entreposé dans les piscines de refroidissement soit le combustible neuf stocké dans l'attente de la mise en pile.

Le but de cette section est donc d'évaluer l'inventaire massique des NL et des TRU présents dans le parc nucléaire à l'équilibre et la radiotoxicité additionnelle associée à ces NL. L'analyse de l'incinération de l'inventaire résiduel des TRU à l'équilibre est l'objet du prochain chapitre de la thèse.

5.8.1 Calculs en conditions d'équilibre

Les inventaires massiques des TRU et des NL présentés dans ce paragraphe correspondent à un parc nucléaire à l'équilibre ayant une puissance électrique totale de 1 GW_e. Les Tableaux 5.14 et 5.15 donnent les inventaires, en pile et hors pile, des TRU et de tous les NL pour chaque stratégie étudiée et montrent aussi la contribution de chaque réacteur du parc à l'inventaire massique total. Les Figures 5.27 et 5.28

donnent une représentation graphique de l'inventaire massique des TRU et des NL à l'équilibre pour les schémas de transmutation.

	Schéma 1	Schéma 2	Schéma 3a	Schéma 3b	Schéma 4	Schéma 5 Cœur	Schéma 5 Couvertures	
	En - pile							
REP	0.51	0.92	0.32	0.40	0.87	-	-	
RNR	-	1.41	3.17	-	1.34	6.24	0.73	
ADS	-	-	-	1.97	1.22	-	-	
Total	0.51	2.33	3.50	2.37	3.43	6.24	0.73	
	Hors - pile							
REP	0.97	1.78	0.61	0.76	1.69	-	-	
RNR	-	2.78	1.83	-	2.64	3.60	0.58	
ADS	-	-	-	1.88	0.89	-	-	
Total	0.97	4.57	2.44	2.64	5.22	3.60	0.58	
	Total							
Total	1.48	6.90	5.94	5.01	8.64	9.84	1.31	

Tableau 5.14: Inventaire massique des TRU (ton/GWe)

Tableau 5.15: Inventaire massique des NL (ton/GWe)

	Schéma 1	Schéma 2	Schéma 3a	Schéma 3b	Schéma 4	Schéma 5 Cœur	Schéma 5 Couvertures
				En - pile			
REP	74.17	59.32	46.89	58.27	56.22	0.00	0.00
RNR	-	3.22	10.00	0.00	3.05	27.65	53.36
ADS	-	0.00	0.00	1.99	1.28	0.00	0.00
Total	74.17	62.54	56.89	60.26	60.55	27.65	53.36
	Hors - pile						
REP	68.02	88.35	65.67	81.60	83.73	0.00	0.00
RNR	-	6.43	5.85	0.00	6.09	16.21	31.98
ADS	-	0.00	0.00	1.90	0.93	0.00	0.00
Total	68.02	94.78	71.51	83.51	90.76	16.21	31.98
	Total						
Total	178.05	157.32	128.40	143.77	151.31	43.85	85.34

L'inventaire massique des NL en pile a été obtenu en moyennant la composition du combustible en DDI et en FDI; de façon analogue, les deux contributions à l'inventaire hors pile ont été calculées comme moyenne entre le début et la fin des périodes de refroidissement et de fabrication du combustible.

Il faut souligner en premier que l'introduction d'un cycle du combustible partiellement ou entièrement fermé augmente inévitablement l'inventaire massique des TRU dans le parc: par rapport au Cycle Ouvert la quantité de TRU augmente de 3 - 7 fois selon la stratégie utilisée. Si on compare les stratégies étudiées, la Double Composante permet de minimiser la quantité totale de TRU présents dans le parc à l'équilibre: en particulier le schéma qui utilise les ADS pour incinérer les TRU a l'inventaire minimal de TRU en pile. Par contre les Schémas 2 et 4, qui utilisent du combustible MOX dans les REP et dans les RNR, ont un inventaire de TRU hors pile environ double par rapport à celui des deux stratégies à Double Composante. En effet, le procédé de séparation PUREX requiert un temps de refroidissement beaucoup plus long par rapport à la méthode pyrochimique utilisée dans les autres schémas et, par conséquent, augmente la quantité de combustible stocké dans les piscines de refroidissement. Par rapport aux autres, la stratégie innovante basée sur des RNR a l'inventaire total de TRU plus élevé: si on ajoute la contribution des couvertures fertiles à celle du cœur, on a environ un facteur 2 par rapport à la Double Composante.

Si, au contraire, on considère l'inventaire massique des NL les scénarios considérés ont des valeurs proches et inférieures à celles du cycle ouvert. Les Schémas 3a et 5, qui ont la fraction de REP plus faible dans le parc, minimisent l'inventaire massique des NL dans le cycle du combustible.

Pour compléter cette analyse on a évalué la radiotoxicité des NL présents dans le cycle du combustible à l'équilibre pour un parc nucléaire ayant une puissance totale de 100 GW_e. Les courbes de radiotoxicité sont présentées dans l'Annexe C.7.



Figure 5.27: Inventaire massique des TRU (kg/GWe)

Figure 5.28: Inventaire massique des NL (kg/GWe)



5.8.2 Prise en compte de la période de fonctionnement du parc

Au cours de ce paragraphe on se propose d'évaluer l'inventaire massique et la radiotoxicité globale de la matière nucléaire en fonction du temps de fonctionnement du parc dans des conditions d'équilibre. Pour cela, on ajoute l'inventaire massique à l'équilibre aux déchets à haute activité et à l'uranium irradié accumulés au cours des années de fonctionnement du parc. Cette hypothèse correspond donc à un arrêt immédiat de toute installation nucléaire du parc et à la mise aux déchets de tous les NL sans traitement ultérieur; ces hypothèses sont bien sûr extrêmes, mais permettent de montrer qu'une stratégie de transmutation efficace est possible uniquement si on peut réduire l'inventaire massique présent en pile et hors pile au moment de l'arrêt des centrales nucléaires.

Pour le calcul des inventaires massiques en pile et hors pile, on a considéré un parc nucléaire qui produit 750 TWh_e par an, ce qui correspond à une puissance électrique installée d'environ 100 GW_e, et un temps de fonctionnement du parc à l'équilibre de 100 ans. Les inventaires massiques des TRU et des NL sont donnés dans le Tableau 5.16.

	Schéma 1	Schéma 2	Schéma 3a	Schéma 3 b	Schéma 4	Schéma 5	
	TRU						
Déchets à haute activité	2424.03	557.13	7.14	13.63	8.47	12.61	
Inventaire en pile et hors pile	148.48	691.97	596.35	509.17	866.97	1124.08	
Total	2572.51	1249.10	603.50	522.79	875.44	1136.69	
Facteur de réduction massique	-	2.06	4.26	4.92	2.94	2.26	
	NL						
Déchets à haute activité	170311.2	694.5	126.5	147.7	138.9	142.8	
U irradié	-	133390.9	106278.9	133741.4	126445.7	-	
Inventaire en pile et hors pile	17832.4	15774.5	12890.8	14616.1	15175.3	13023.3	
Total	188143.6	149860.0	119296.2	148505.1	141759.8	13166.1	

Tableau 5.16: Bilan massique des TRU et des NL après 100 ans de fonctionnement d'un parc de 100 GW_e à l'équilibre (tonnes)

On peut avant tout remarquer que, même après 100 ans de fonctionnement du parc à l'équilibre, l'inventaire des TRU dans le parc est largement supérieur à celui présent dans les déchets à haute activité; c'est seulement après quelques milliers d'années de fonctionnement que la masse de TRU aux déchets à haute activité atteint le même niveau de celle en pile et hors pile.

Si tout le combustible en pile et hors pile est directement mis aux déchets au moment de l'arrêt de l'option nucléaire, les performances de réduction massique des TRU et de réduction de toxicité par rapport au cycle ouvert se dégradent considérablement. Le facteur de réduction massique des TRU, de l'ordre de 180 - 300 si on ne considère que les déchets à haute activité, devient, sous ces hypothèses restrictives, de l'ordre de 2 - 5 selon la stratégie choisie. D'une façon analogue la réduction de la radiotoxicité⁵⁷, montrée dans la Figure 5.29, est très inférieure à l'objectif fixé pour cette étude sur la transmutation.





5.8.3 Conséquences pour la transmutation

D'après les résultats qu'on vient de présenter, il apparaît clairement que la transmutation permet de réduire d'une façon significative la toxicité des déchets radioactifs seulement si on trouve des solutions efficaces pour incinérer l'inventaire massique des TRU présents dans le cycle du combustible au moment de l'arrêt des réacteurs nucléaires. Si on n'arrive pas à satisfaire cette condition, aucune stratégie de transmutation ne peut atteindre les objectifs minimaux de réduction de la masse et de la radiotoxicité des déchets. Les avantages assurés par la transmutation ne seraient donc plus suffisants pour justifier la réalisation de nouveaux réacteurs et l'introduction d'un cycle du combustible autant compliqué.

⁵⁷ Dans le calcul de radiotoxicité effectué ici on n'a pas considéré l'évolution du combustible allant aux déchets à haute activité dans la période qui va de sa séparation jusqu'à l'arrêt du parc; cette simplification a un impact réduit sur la radiotoxicité globale de tous les NL surtout pour t >> 100 ans.

Dans un scénario de sortie de l'option nucléaire il est donc nécessaire qu'une partie du parc, notamment les systèmes dédiés à clore le cycle du combustible, continue à fonctionner pendant quelques décades après l'arrêt des autres installations de façon à incinérer la majorité des TRU présents dans le parc et de minimiser l'inventaire additionnel des TRU aux déchets. Au cours du prochain chapitre on cherchera de vérifier si les réacteurs dédiés peuvent effectivement incinérer leurs propres déchets sans recevoir aucun support fissile du reste du parc et on évaluera aussi s'il y a des solutions optimales pour réduire le temps nécessaire au "phase-out" définitif de l'option nucléaire.

5.9 Conclusions

Cette étude a montré que la réalisation d'une stratégie de séparation et de transmutation du plutonium et des actinides mineurs permet d'atténuer la radiotoxicité des déchets à haute activité et de réduire la rigueur des conditions à respecter dans les dépôts géologiques. En conditions d'équilibre les quatre scénarios de transmutation analysés garantissent la réduction de l'inventaire massique aux déchets d'un facteur 175 minimum pour les TRU et d'un facteur 1100 minimum pour les NL par rapport au cycle ouvert. En terme de radiotoxicité, les scénarios de transmutation analysés permettent de réduire la radiotoxicité des NL d'un facteur 100 par rapport au cycle ouvert de référence. Les objectifs primaires fixés au début de cette étude sont ainsi atteints. Afin d'obtenir de telles performances d'incinération, il est tout de même nécessaire de multirecycler indéfiniment le combustible, d'avoir des taux de combustion élevés et des pertes au retraitement très limitées. En particulier, dans tous les scénarios considérés il apparaît nécessaire de limiter au-dessous de 0.1% le taux de pertes au retraitement des procédés pyrochimiques.

Du point de vue de la production des déchets à haute activité, les quatre stratégies de transmutation sont équivalentes car le choix d'un schéma de transmutation affecte l'inventaire massique des TRU et la radiotoxicité des NL d'un facteur deux au maximum. Par contre les différents scénarios de transmutation imposent différentes contraintes dans la gestion du combustible et donnent lieu à une différente composition du parc nucléaire. En particulier les quatre stratégies se différencient nettement quant au débit massique du combustible avancé au retraitement et à ses caractéristiques. Le schéma Double Strata minimise le débit massique du combustible avancé au retraitement et à la fabrication, mais le combustible à traiter est considérablement plus "chaud" par rapport au combustible MOX standard. Par contre, les stratégies incluant des RNR, et en particulier la stratégie "Tout rapide", ont un débit massique de noyaux lourds beaucoup plus important mais leur combustible est beaucoup moins actif, ce qui limite les contraintes sur les procédés de séparation et de fabrication du combustible. Quant à la composition du parc nucléaire, le Double Strata permet de maximiser la fraction de réacteurs conventionnels dans le parc, en limitant la fraction des réacteurs avancés au 6% du parc. Les stratégies à Double Composante sont

caractérisées par une fraction plus élevée de réacteurs avancés dans le parc, 22% pour la stratégie incluant des réacteurs hybrides et 34% pour celle incluant des RNR.

Si on veut comparer les performances des réacteurs critiques et hybrides pour la transmutation, le principal avantage des ADS est qu'ils permettent de concevoir des cœurs chargés uniquement avec des actinides mineurs ou éventuellement avec des TRU et de minimiser ainsi le nombre de systèmes avancés dans le parc. Par contre ces systèmes sont pénalisés par leur complexité technique et par des difficultés opérationnelles. Il apparaît ainsi clair que le rôle des ADS est circonscrit à l'incinération des actinides mineurs dans une stratégie de type Double Strata, alors que les réacteurs critiques sont probablement plus efficaces pour une gestion globale des TRU.

Il faut enfin noter que la stratégie de recyclage du plutonium seul ne permet pas d'atteindre des résultats, en terme de réduction de la masse et de la radiotoxicité des déchets, comparables à ceux qu'on peut concevoir avec la transmutation de tous les transuraniens. Cette stratégie est tout de même très efficace pour gérer la pile du plutonium. Elle est aussi technologiquement plus simple à implémenter et pourrait être une première étape vers une stratégie de type Double Strata.

Cette étude a enfin mis en relief deux points fondamentaux, communs à toute stratégie de transmutation, et souvent négligés au cours des analyses sur la transmutation.

Lors de l'établissement des performances des stratégies de transmutation par rapport au cycle ouvert, il faut aussi considérer la gestion de l'inventaire massique, en pile et hors pile, présent dans le parc nucléaire à l'équilibre. Si, après l'arrêt de l'option nucléaire, aucune mesure n'est prise pour son incinération, les avantages assurés par la transmutation seraient considérablement réduits et ne seraient plus suffisants à justifier l'introduction de cette technologie complexe.

Un dernier aspect important à souligner est lié à la production de quantités importantes d'uranium, appauvri ou irradié, lors de l'utilisation des réacteurs à eau légère. La pile d'uranium, si elle n'est pas gérée convenablement, contribue de manière prépondérante à la radiotoxicité à très long terme; la transmutation des TRU seuls est donc relativement inefficace pour une réduction de la toxicité des NL dans les périodes successives à 10⁵ ans. Parmi les 6 scénarios comparés au cours de cette thèse, celui composé seulement par des RNR est le seul à assurer soit une utilisation optimale des ressources soit une minimisation de la radiotoxicité à très long terme; cette stratégie est donc la seule qui permet d'atteindre directement tous les critères du développement durable.

6 Analyse du phase-out de l'option nucléaire

Le but de ce chapitre est de vérifier si les réacteurs avancés, optimisés pour un fonctionnement en conditions d'équilibre, peuvent être utilisés pour réduire l'inventaire des TRU dans un scénario de sortie de l'option nucléaire; dans une telle circonstance le "top-up" provenant des réacteurs conventionnels n'est plus disponible et les réacteurs avancés sont alimentés uniquement par leur propre combustible qui est donc multirecyclé jusqu'à son épuisement. En particulier, il est important de vérifier si cette transition est possible et si elle requiert de modifications notables du cycle du combustible ou du design des réacteurs avancés. Il est enfin intéressant de comparer les performances des réacteurs critiques et des réacteurs hybrides dans un scénario de "phase-out" et d'en évaluer les avantages et les désavantages respectifs.

Au cours de ce chapitre on a analysé un transitoire de "phase-out" pour les deux schémas à Double Composante. On a modélisé une situation limite dans laquelle tous les réacteurs nucléaires à eau légère sont mis hors service au même instant et ensuite les réacteurs avancés à spectre rapide gèrent leur propre inventaire de NL. Les réacteurs avancés, critiques ou hybrides, sont donc progressivement mis hors service au fur et à mesure que l'inventaire en NL est incinéré. Cette simulation a été conduite pour un parc nucléaire de 1000 GW_e de puissance installée en se fixant l'objectif de réduire l'inventaire massique des TRU d'un facteur 100 par rapport à la situation à l'équilibre: sous ces hypothèses l'inventaire massique résiduel est inférieur aux déchets à haute activité accumulés pendant 100 ans de fonctionnement du parc à l'équilibre et pendant le "phase-out". On a ensuite prolongé la simulation jusqu'à réduire devantage l'inventaire massique résiduel des TRU, jusqu'à une valeur limite fixée à 15 tonnes. Les TRU résiduels constitueraient ainsi moins du 20% de l'inventaire total mis aux déchets au cours du fonctionnement du parc à l'équilibre. On pourrait, en principe, continuer ultérieurement l'incinération de l'inventaire massique résiduel jusqu'à qu'il ne soit plus suffisant à charger un seul réacteur.

Au cours de ce chapitre on a focalisé l'attention sur la réduction de l'inventaire massique des réacteurs avancés sans considérer celui des REP; ce choix est lié au fait que l'incinération des TRU présents dans les REP ne constitue pas un problème majeur du point de vue technique et qu'une étude précise de l'incinération des TRU dans les REP dépend considérablement des hypothèses faites pour leur mise hors service.

L'incinération de l'inventaire massique hors pile des REP ne pose aucune difficulté technique et ne nécessite pas d'analyses supplémentaires: on peut faire l'hypothèse que la fabrication du combustible est interrompue 2 ans avant l'arrêt des REP afin que les réserves de combustible neuf soient terminées au moment de la mise hors service de ces réacteurs. L'incinération du combustible irradié des REP-UOX stocké dans les piscines de refroidissement est faite en premier dans les réacteurs dédiés sans que rien ne soit modifié par rapport à la situation à l'équilibre; en fait les réacteurs avancés ne perçoivent la mise hors

service des REP qu'après 4 ans, le temps de refroidissement du combustible REP-UOX. En conclusion, l'incinération de l'inventaire hors pile des réacteurs thermiques décale simplement de 4 ans⁵⁸ le moment dans lequel les réacteurs avancés commencent à brûler leur propre inventaire.

Par contre l'étude de l'incinération de l'inventaire en pile des REP requiert des analyses supplémentaires car la composition des TRU dans le combustible REP au moment de leur arrêt est différente par rapport à celle du combustible en fin d'irradiation. On peut tout de même indiquer de façon qualitative que le procès d'incinération de l'inventaire en pile des REP requiert environ 2 ans de fonctionnement de la totalité des réacteurs avancés du parc et ne présente aucune difficulté technique étant donnée la très bonne qualité du Pu.

6.1 Modélisation du transitoire

Au cours de cette section on décrit la modélisation du transitoire de sortie de l'option nucléaire et les approximations effectuées au cours de cette étude. La Figure 6.1 donne une représentation schématique de l'évolution de la composition du combustible au cours du transitoire de "phase-out"; la ligne pointillée décrit le cycle à l'équilibre, tandis que la ligne continue décrit l'évolution du combustible au cours de ce chapitre on utilisera le terme "stade" pour indiquer un cycle complet du combustible, incluant la fabrication, l'irradiation en pile, le refroidissement et la séparation, pendant le transitoire de "phase-out". La durée d'un stade est donnée par la somme des temps de permanence du combustible en pile et hors pile.

Dans la situation d'équilibre le combustible déchargé des réacteurs avancés, après refroidissement et séparation, est mélangé au "top-up" provenant des REP et recommence un nouveau cycle d'équilibre. Quand le "top-up" des REP a été épuisé et on commence le "phase-out" du nucléaire, le combustible déchargé des réacteurs avancés, après refroidissement et séparation, passe au stade suivant pour la fabrication du combustible frais. Le combustible ainsi obtenu, après la période de stockage, sera irradié à son tour dans les réacteurs avancés et passera ensuite au stade successif. On rappelle que dans une situation à l'équilibre l'apport des NL issus des réacteurs thermiques compense exactement le déficit de NL dû aux fissions dans les réacteurs avancés et aux pertes au retraitement et permet de maintenir inchangée la composition isotopique du combustible dans chaque point du cycle du combustible. Dans une situation transitoire de "phase-out", au contraire, la composition du combustible est différente à chaque stade et, vu qu'aucune addition externe de matière fissile n'est possible, le nombre de réacteurs avancés en service diminue avec le temps pour compenser la disparition des NL à cause des fissions et des pertes au retraitement.

⁵⁸ C' esà-dire de la durée du refroidissement du combustible REP-UOX.



Figure 6.1: Modélisation simplifiée du cycle du combustible au cours du "phase-out"

Si on laissait simplement évoluer le combustible selon le schéma de calcul présenté dans la Figure 6.1, on obtiendrait des systèmes avec un coefficient de multiplication très dégradé et qui ne pourraient donc pas être réalisés dans la pratique. A chaque stade du "phase-out" les caractéristiques du combustible ont donc été modifiées de façon à avoir un système réaliste: le coefficient de multiplication du réacteur critique en fin de cycle est proche de 1 et celui du réacteur hybride en début de cycle est proche à la valeur de projet. Dans le cas du réacteur critique IFR on a ajusté la fraction respective d'uranium et de transuraniens dans le combustible de façon à optimiser la courbe de réactivité au cours du cycle; à chaque stade il est donc nécessaire d'extraire du combustible une partie de l'uranium et de le mettre directement aux déchets. Dans le cas du réacteur hybride ATW du Schéma 3b on a du ajuster la fraction respective de NL et de Zr dans le combustible de façon à maintenir le coefficient de multiplication de projet en DDC au cours des stades. Cette méthode garantit une description soignée du cycle du combustible, ainsi que la fonctionnalité et la faisabilité des réacteurs dédiés tout au long du "phase-out".

Une fois définie la composition du combustible et les caractéristiques du cœur à chaque stade, il s'agit simplement d'évaluer le nombre de réacteurs en fonction au cours du transitoire de sortie de l'option nucléaire et de calculer l'évolution de l'inventaire massique résiduel. Au cours du remontage du parc, c' està-dire de l'application de cette étude sur le combustible au parc nucléaire, on a effectué les hypothèses simplificatrices que la gestion du cœur est faite dans un seul batch et que la totalité du combustible provenant du stade précédent est chargé dans le parc. La première hypothèse admet que le nombre de réacteurs en fonction se maintient constant tout au long de chaque stade, alors que, si on considérait un chargement/déchargement fractionné des cœurs, le nombre de réacteurs en fonction dans le

parc diminuerait graduellement vers la fin de chaque stade. La deuxième hypothèse permet le fonctionnement d'un nombre fractionnaire de réacteurs. Il faut souligner que l'approximation d'irradier le combustible dans un réacteur non complètement chargé est raisonnable vu le grand nombre de réacteurs avancés dans un parc de 1000 GW_e. Pour un parc de petite taille on pourrait envisager de décaler la mise en pile d'une partie du combustible frais de façon à avoir toujours des réacteurs complètement chargés. On rappelle enfin que la durée de chaque stade est donnée par la somme des temps de permanence en pile et hors pile; lors de chaque stade tout le combustible provenant du stade précédent subit un passage en pile. Les bilans massiques et toutes les autres grandeurs qui caractérisent le transitoire de "phase-out" sont donc données uniquement au début et à la fin de chaque stade ot été obtenues par interpolation linéaire.

Après cette présentation des principales caractéristiques de l'étude, on cherchera maintenant à formuler des équations qui décrivent l'incinération de l'inventaire massique dans un scénario de "phaseout" et à mettre en relief les aspects essentiels d'un tel processus.

Pour des raisons de simplicité on se met en premier dans la situation schématique de la Figure 6.1 où il n'y a ni appoint externe de NL ni reprise de NL au cours du cycle. De plus on suppose que le taux de combustion moyen du combustible ne change pas au cours des stades et on néglige les pertes au retraitement, étant donné que L<<B. On indique ici avec M l'inventaire massique total au début du stade, avec T_0 le temps de permanence du combustible en pile⁵⁹, avec T_1 le temps de permanence du combustible hors pile, avec B le taux de combustion moyen du combustible (exprimé en terme de fraction des NL fissionnés) et avec L le taux de pertes au retraitement.

On définit deux grandeurs importantes dans une analyse de "phase-out": ξ , vitesse d'incinération, qui donne la fraction du combustible fissionné par unité de temps, ($\xi = \frac{B}{T_0}$) et μ , fraction du temps dans

lequel le combustible demeure dans le réacteur ($\mu = \frac{T_0}{T_0 + T_1}$). Au cours de chaque stade, qui a une durée

de T₀ + T₁, la variation massique des NL est proportionnelle à la masse initiale de NL et au taux de combustion moyen: $\Delta M = -B \cdot M$. La quantité de NL allant au stade successif est exprimée par la relation $M \cdot (1-B) \cdot (1-L) \approx M \cdot (1-B)$.

Si on considère simplement l'évolution des NL d'un stade au suivant, sans donc décrire en détail ce qui se produit à l'intérieur de chaque stade, on peut approximer cette situation par

⁵⁹ T₀ peut être exprimé en fonction du temps effectif d'irradiation T_{irr} et du facteur de charge f: $T_0 = \frac{I_{irr}}{f}$.

 $dM = -\frac{B}{T_0 + T_1} \cdot M \cdot dt = -(\mu \cdot \xi) \cdot M \cdot dt.$ L'équation qui régit l'évolution des NL est donc $M = M_0 \cdot e^{-\mu \cdot \xi \cdot t} = M_0 \cdot e^{-\omega \cdot t}, \text{ avec } \omega = \mu \cdot \xi.$ L'évolution de l'inventaire massique résiduel en NL peut être donc approximé par une décroissance de type exponentiel⁶⁰ avec une demi-vie de $T_{\frac{1}{2}} = \frac{\ln 2}{\mu \cdot \xi}.$

Si l'on veut décrire d'une façon plus réaliste un transitoire de "phase-out" il faut tenir compte qu'un retrait ou un appoint d'uranium peut être nécessaire lors de la séparation ou de la fabrication du combustible et que le taux de combustion moyen peut aussi varier selon les stades. En plus, au cours des analyses suivantes, on tiendra explicitement compte des pertes au retraitement. Par la suite on indiquera avec D la fraction de NL mis directement aux déchets par rapport à ceux présents au début du stade (D est donc négatif s'il y a un appoint externe d'uranium). Il s'avère donc utile l'introduction d'un nouveau paramètre, ω^* (oméga étoile), qui regroupe toutes les grandeurs significatives dans un transitoire de sortie de l'option nucléaire:

$$\omega^* = \frac{B + L - B \cdot L + D}{T_0 + T_1} = \mu \cdot \left(\xi + \frac{L - B \cdot L + D}{T_0}\right) = \omega + \mu \cdot \frac{L - B \cdot L + D}{T_0}.$$
 Puisque B, D et T₀

peuvent changer d'un stade au suivant, oméga étoile peut aussi varier à chaque stade⁶¹. Dans un cas réel l'inventaire résiduel des NL décroît donc de façon exponentielle, avec une constante de temps qui change à chaque stade. Il est opportun de rappeler ici qu'une telle modélisation des transitoires de "phase-out" permet de tenir compte explicitement et soigneusement de tous les phénomènes qu'on vient de décrire.

Une fois démontrée que les réacteurs avancés sont à même de fonctionner dans une situation de "phase-out", il faut évaluer le temps nécessaire à clore définitivement toutes les installations nucléaires. Il s'agit alors de quantifier des objectifs réalistes en terme de réduction de l'inventaire massique résiduel en NL ou en TRU. En effet le temps de sortie définitive de l'option nucléaire, avec la fermeture définitive de toute installation, dépend des performances de réduction massique qu'on veut obtenir. Pour estimer les performances de réduction massique on peut suivre les approches suivantes:

- Réduire l'inventaire massique des TRU ou des NL à l'équilibre d'un facteur donné
- Réduire l'inventaire des TRU jusqu'à une valeur fixée
- Evaluer l'inventaire massique résiduel des TRU et des NL pour un temps de "phase-out" fixé
- Minimiser l'inventaire total des NL dans le parc, jusqu'à que l'inventaire des NL ne soit plus suffisant à charger un réacteur

Dans la présente étude on a privilégié les 2 premiers critères de réduction massique.

⁶⁰ Si, au contraire, on restreint l'analyse à un stade particulier, la quantité de NL incinérés est constante au cours du temps, ce qui donne une décroissance linéaire de l'inventaire massique en NL durant chaque stade.

⁶¹ Au cours de cette analyse on a supposé T₀ constant tout au long du transitoire de "phase-out".

6.2 Composition du combustible au cours du "phase-out"

Cette section montre les résultats de l'évolution du combustible au cours des différents stades du "phase-out" et décrit les modifications nécessaires pour tenir compte des contraintes sur le coefficient de multiplication. Il est important de souligner que le calcul de caractérisation du combustible a été fait de manière indépendante de la taille du parc nucléaire auquel il sera appliqué et des critères retenus en terme de réduction massique.

Dans la première phase de cette analyse on a appliqué la méthode décrite dans la Figure 6.1 sans effectuer aucun ajustement pour atteindre la réactivité optimale du réacteur; on se propose ainsi d'étudier l'évolution du coefficient de multiplication et de déterminer si la réalisation d'un transitoire de "phase-out" est possible sans effectuer des changements substantiels dans le cycle du combustible et/ou dans les caractéristiques des cœurs. La Figure 6.2 donne, pour les schémas 3a et 3b, l'évolution du coefficient de multiplication pour les premiers 5 stades après l'arrêt des réacteurs thermiques qu'on aurait si on ne modifiait aucune caractéristique des cœurs et du cycle du combustible par rapport à la situation à l'équilibre.⁶² Des informations supplémentaires, et notamment l'évolution de la composition du combustible, sont données dans l'Annexe D.1.

Figure 6.2: Evolution de la réactivité des réacteurs avancés dans un scénario de phase-out



⁶² Cette analyse est limitée aux 5 premiers stades, vu l'impossibilité de mettre en fonction des réacteurs avec un coefficient de multiplication si dégradé.

Le k_{eff} diminue considérablement dès le premier stade, en particulier pour le réacteur sous critique; au stade 5 on observe, par rapport aux valeurs de projet, une perte de réactivité de plus de 20% pour l'ATW et d'environ 15% pour l'IFR. La différence de réactivité entre deux stades successifs diminue progressivement et tend à s'annuler quand la composition approche un état d'équilibre.

A partir du premier stade, le k_{eff} de l'IFR est inférieur à l'unité, même en début de cycle; un tel réacteur ne pourrait donc pas fonctionner dans la réalité. Même l'ADS, qui est pourtant plus flexible aux variations de réactivité par rapport à un réacteur critique, ne peut pas être mis en service avec un coefficient de multiplication si dégradé.

La perte de réactivité est un effet de la dégradation de la qualité du combustible au cours des stades. Dans le cas du Schéma 3b on observe une diminution de l'inventaire des NL fissiles, en particulier du ²³⁹Pu, et un déplacement progressif de la composition du combustible vers les noyaux à masse plus élevée. Dans le cas du Schéma 3a, au contraire, la fraction des TRU dans le combustible se réduit progressivement et est remplacée par de l'uranium. On observe aussi une faible dégradation de la qualité du Pu par rapport à la composition à l'équilibre.

D'après ces considérations il apparaît évident que les méthodes utilisées dans la situation d'équilibre ne peuvent pas être appliquées telles quelles au transitoire de "phase-out" et il est donc indispensable de modifier de façon consistante les caractéristiques des réacteurs ou les procédés de fabrication et de séparation du combustible. Ces modifications ont l'objectif de maintenir une réactivité optimale dans le réacteur au cours du transitoire de sortie de l'option nucléaire tout en limitant le plus possible l'impact sur le cycle du combustible à l'équilibre.

Les caractéristiques principales du combustible, ainsi que l'évolution de sa composition au cours du transitoire de sortie de l'option nucléaire sont données dans l'Annexe D.2 pour les 2 schémas étudiés.

Dans le cas du Schéma 3a on a extrait du cycle du combustible une partie de l'uranium au moment du retraitement du combustible irradié; cela permet d'empêcher l'accumulation de l'uranium dans le combustible au cours des stades⁶³. Pour chaque stade on a donc optimisé la quantité d'uranium déchargé de façon à respecter les contraintes sur le k_{eff} de l'IFR au stade successif. Une telle solution requiert uniquement la modification du procédé de séparation du combustible irradié, avec l'introduction d'un procédé d'une étape de séparation supplémentaire à l'aval du retraitement pyrochimique: l'uranium doit être sépare lors du retraitement du combustible et ensuite mélangé aux TRU dans les proportions souhaitées. Du point de vue technique une telle solution apparaît donc facilement réalisable. Néanmoins on peut remarquer que cette méthode ne permet pas de maîtriser complètement la quantité d'uranium

⁶³ En théorie on pourrait maîtriser complètement l'inventaire total des déchets, sans donc décharger l'uranium, en modifiant opportunément la géométrie du réacteur critique et en augmentant la masse de NL dans le cœur; cette solution a tout de même de gros désavantages, comme une augmentation du temps nécessaire au "phase-out" et une complication de la gestion du cœur car la géométrie du cœur devrait être changée à chaque stade.

présente dans le combustible des réacteurs avancés. Tout de même ce désavantage ne constitue pas une limite importante de cette méthode car la quantité d'uranium irradié qui est déchargée de l'IFR et mise aux déchets lors du transitoire de "phase-out" est moindre par rapport à celle produite par les REP au cours du fonctionnement du parc à l'équilibre et à l'inventaire d'uranium présent dans les REP au moment de leur mise hors service. Par contre la reprise de l'uranium au cours du cycle (D positif dans l'expression pour ω^*) permet d'augmenter considérablement l'oméga étoile et de réduire donc le temps nécessaire au "phase-out".

L'optimisation du combustible pour l'IFR a été effectuée en ajustant les fractions respectives d'uranium et des TRU en début de vie; par conséquent la masse des NL chargés dans le réacteur et le taux de combustion moyen restent inchangés par rapport à la situation d'équilibre. Au cours des stades on observe une modification de la composition des TRU et, en particulier, une progressive dégradation de la fraction d'isotopes fissiles: dans la situation d'équilibre la proportion de noyaux fissiles dans les TRU est d'environ 43% en DDV, grâce à la contribution du "top-up" fortement enrichi en ²³⁹Pu. Cette proportion descend à 32% au premier stade et diminue au cours du temps jusqu'à une valeur d'environ 26% au-delà du vingtième stade; en particulier la fraction de ²³⁹Pu dans le combustible diminue considérablement. Pour compenser une telle dégradation de la qualité des TRU il s'avère nécessaire de réduire progressivement la fraction d'uranium, constitué essentiellement d'isotopes fertiles, dans le combustible. La fraction des TRU passe donc de 33% à la situation d'équilibre à 41%-42% aux derniers stades analysés au cours de cette étude.

Dans le cas du Schéma 3b l'élimination de l'uranium lors du retraitement ne produirait pas d'effets notables sur la réactivité à cause de sa faible concentration dans le combustible; la seule solution pour monter le k_{eff} est donc d'augmenter l'inventaire massique en NL de chaque réacteur. L'augmentation de l'inventaire des NL dans le cœur a donc le double objectif de réduire la fraction de neutrons perdus à cause des fuites et des captures parasites et de limiter la perte de réactivité au cours du cycle. A chaque stade on a donc réévalué la fraction respective de Zr et des NL dans le cœurs du cycle. Cette solution requiert donc de modifier uniquement les procédés de fabrication du combustible sans changer la géométrie du cœur et le procédé de séparation. Par contre la variation du vecteur isotopique du combustible peut avoir des conséquences négatives sur les paramètres de sûreté du réacteur; l'étude d'un tel effet n'a tout de même pas été effectuée au cours de cette thèse⁶⁴. Si l'on fait abstraction de ce problème et que l'on considère uniquement les performances d'incinération du réacteur, l'augmentation de l'inventaire massique du combustible en DDV réduit le taux de combustion moyen si on laisse inchangés la puissance

⁶⁴ Il faut souligner aussi qu'on n'a pas considéré la stabilité et donc la faisabilité technique des combustibles à matrice inerte avec de fortes concentrations de NL.

du réacteur et le temps d'irradiation du combustible. On a donc une réduction progressive de l'oméga étoile et une prolongation du temps nécessaire au "phase-out".

L'optimisation du combustible de l'ATW pour le transitoire de "phase-out" a été faite en augmentant la fraction de NL dans le combustible au prix d'une réduction de la quantité de Zr, de façon à maintenir le k_{eff} de projet en DDC. Suite à ces modifications l'inventaire des NL chargés dans le cœur augmente au cours des stades avec une diminution conséquente du taux de combustion moyen du combustible; ce dernier se stabilise sur des valeurs inférieures de 40% environ par rapport à celles d'équilibre. Si on analyse la composition du combustible en DDV au cours du transitoire de "phase-out", la fraction de noyaux fissiles et, en particulier celle du ²³⁹Pu, diminue considérablement; par rapport à la situation d'équilibre, où les noyaux fissiles constituent un tiers environ de la masse totale, cette fraction diminue du 10% au premier stade pour se stabiliser graduellement jusqu'à une valeur de 9% environ. On remarque aussi un déplacement de la composition du combustible vers les TRU à haut nombre atomique et, en particulier, vers les isotopes fertiles du Cm.

6.2.1 Analyse de l'oméga étoile

Une considération à part mérite l'analyse de l'oméga étoile au cours des stades: la Figure 6.3 montre l'évolution du ω^* pour les Schémas 3a et 3b et donne aussi, en ligne pointillée, les valeurs de ω^* qu'on aurait s'il n'y avait ni de retrait d'uranium ni de modifications à l'inventaire massique du cœur. Ces valeurs, qu'on indiquera aussi comme $\omega^*(t_0)$, correspondent aux valeurs d'oméga étoile dans la situation d'équilibre⁶⁵. Il est très important de remarquer que les modifications apportées aux réacteurs pour pouvoir tenir le cycle avec le nouveau combustible changent radicalement les constantes de temps du transitoire de "phase-out". Dans le cas de l'IFR du Schéma 3a, en passant du Stade 0 au Stade 1 on retire plus de 11% des NL présents avant l'irradiation, ce qui permet presque de doubler le ω^* par rapport au cas sans retrait de NL. La fraction de NL retirés diminue considérablement après les premiers stades et se stabilise autour de 5-6%; l'effet du retrait de l'uranium reste quand même très important car il permet de remonter d'au moins 30% l'oméga étoile de ce réacteur tout au long du transitoire considéré. Par contre, dans le cas de l'ATW du Schéma 3b, l'augmentation de l'inventaire de NL dans le cœur réduit progressivement le ω^* qui se stabilise au 60% environ de la valeur d'équilibre.

 $^{^{65}}$ L'application de ces valeurs à un scénario de transmutation réel est hypothétique, si on considère les valeurs de k_{eff} des réacteurs correspondants (Fig. 6.2). Leur insertion dans le graphique a uniquement le but de visualiser l'impact, sur le ω^* , de la modification du cycle du combustible au cours du "phase-out".



Figure 6.3 Evolution de l'oméga étoile durant le "phase-out" pour les Schémas 3a et 3b

Une comparaison de l'oméga étoile des 2 schémas montre que l'ATW permet une réduction plus rapide de l'inventaire massique résiduel au cours des premiers 30 - 40 ans du "phase-out", tandis que, audelà de cette date, les performances des deux systèmes sont comparables.

Dans les considérations qui suivent on a appliqué à un même inventaire massique initial les facteurs de réductions "réels", obtenus avec des calculs rigoureux du transitoire (ω^* variable) et ceux simplement déduits à partir de la situation à l'équilibre ($\omega^* = \omega^*(t_0)$). La Figure 6.4, qui donne le facteur de réduction de l'inventaire massique initial en fonction du temps, met clairement en relief l'effet des modifications au cycle du combustible sur le transitoire de sortie de l'option nucléaire. Il est très intéressant de remarquer que l'utilisation pour tout le transitoire des valeurs de l'oméga étoile calculées à l'équilibre ($\omega^*(t_0)$) conduit à une surestimation importante de la vitesse d'incinération de l'inventaire massique pour le Schéma 3b et à un effet opposé pour le Schéma 3a. On a donc une sous-estimation importante du temps de "phase-out" pour la stratégie incluant des ADS et un effet opposé pour celle qui utilise des RNR. Si, à titre d'exemple, on veut évaluer le temps nécessaire pour réduire d'un facteur 10 l'inventaire massique présent à t₀, on obtient une valeur de 70 ans pour le Schéma 3b et de 75 ans pour le Schéma 3a; les périodes qu'on obtiendrait en extrapolant les constantes de temps à l'équilibre seraient de 48 et de 120 ans respectivement.



Figure 6.4: Réduction de l'inventaire massique initial au cours du "phase-out"

6.3 Résultats pour des parcs nucléaires de référence

Au cours de cette section on applique l'analyse effectuée au niveau du combustible à un parc nucléaire avec 1000 GW_e de puissance électrique installée pour en étudier l'évolution de l'inventaire massique au cours d'un transitoire de "phase-out". On fixe à $t_0 = 0$ le moment où les réacteurs avancés ne reçoivent plus de support fissile du reste du parc⁶⁶.

L'étude de caractérisation du combustible décrite dans la section précédente permet de déterminer la composition du combustible tout au long de chaque stade, de durée $T_0 + T_1$, et, en particulier, au moment de la fabrication, de la mise en pile, de la fin de l'irradiation et de la séparation. Dans le cadre d'une étude de remontage du parc, vu que le nombre de réacteurs en fonction est supposé constant dans chaque stade, il est néanmoins plus simple de définir l'inventaire massique au début de stade comme la totalité du combustible provenant du stade précédent avant qu'il ne soit mis en pile, et comme inventaire massique en fin de stade la totalité des NL après l'irradiation, le refroidissement et la séparation.

⁶⁶ Comme on l'a déjà souligné dans la section introductive de ce chapitre, au cours de cette étude on ne traite pas l'incinération de l'inventaire massique des REP et donc t₀ coïncide avec la mise hors service des réacteurs à eau. On rappelle que l'incinération de l'inventaire massique des REP décalerait simplement de 4-6 ans t₀ selon si on veut incinérer seulement l'inventaire hors pile ou la totalité de l'inventaire massique des REP.

Pour des raisons de simplicité on suppose que t_0 se situe à la moitié exacte du stade 0 qui a donc une durée de moitié par rapport aux autres stades. L'inventaire massique total à t_0 a donc été évalué comme la valeur moyenne entre le début et la fin du stade.

Les résultats de cette étude de "phase-out" pour un parc nucléaire complet sont présentés par la suite sous forme de graphiques et de tableaux: le Tableau 6.1 donne l'inventaire massique des NL et des TRU dans les réacteurs avancés lors du "phase-out" et le Tableau 6.2 montre la réduction de l'inventaire massique qu'on obtient au cours du transitoire par rapport aux valeurs initiales. La Figure 6.5 illustre l'évolution de l'inventaire massique des TRU au cours du transitoire de sortie de l'option nucléaire. Des tableaux plus complets, contenant les inventaires massiques et d'autres données importantes pour caractériser tous les stades du transitoire, sont présentés en Annexe D.3, ainsi que d'autres graphiques illustrant l'évolution de l'inventaire massique en NL au cours du "phase-out".

Tableau 6 1. Inventaires massic	uies des réacteurs avai	ncés au cours du trans	itoire de "phase-out	" (tonnes) ⁶⁷
1 ubicau 0.1. myomanos massic		nees au cours au trans	none de phase out	(tonnes)

Tomps (ons)	Sché	ma 3a	Schéma 3b		
Temps (ans)	NL	TRU	NL	TRU	
0	15021.19	5075.88	3988.00	3932.99	
25	6653.48	2438.63	1550.18	1506.15	
50	3151.77	1211.91	733.34	706.65	
75	1540.74	612.27	364.68	350.03	
100	766.17	311.83	185.48	177.69	
125	391.85	160.70	95.64	91.51	
150	201.12	83.11	49.66	47.48	
175	104.41	43.07	25.88	24.73	
200	53.76	22.35	13.52	12.92	

Tableau 6.2: Réduction massique au cours du "phase-out" par rapport à t_0 (%)

Tomps (ons)	Sché	ma 3a	Schéma 3b		
Temps (ans)	NL	TRU	NL	TRU	
25	55.7%	52.0%	61.1%	61.7%	
50	79.0%	76.1%	81.6%	82.0%	
75	89.7%	87.9%	90.9%	91.1%	
100	94.9%	93.9%	95.3%	95.5%	
125	97.4%	96.8%	97.6%	97.7%	
150	98.7%	98.4%	98.8%	98.8%	
175	99.3%	99.2%	99.4%	99.4%	
200	99.6%	99.6%	99.7%	99.7%	

⁶⁷ Les données pour t compris entre 2 stades ont été obtenues par interpolation linéaire des valeurs au début et à la fin du stade.



Figure 6.5: Evolution de l'inventaire massique en TRU au cours du "phase-out" (tonnes)

Au cours de l'évaluation de l'inventaire massique à l'équilibre pour tous les scénarios de transmutation, on a observé que les deux scénarios à Double Composante permettent de minimiser la quantité de TRU et de NL dans les réacteurs avancés. En particulier l'inventaire massique à t₀ est minimal pour la Double Composante avec ADS: l'inventaire des TRU à gérer est environ 20% inférieur par rapport au scénario incluant des RNR. Si on associe cette considération au fait que le facteur de réduction massique du Schéma 3a est plus faible par rapport à celui du Schéma 3b, on peut conclure que ce dernier a un inventaire résiduel des TRU minimal pour n'importe quelle durée du transitoire.

Pour conclure l'analyse des transitoires de "phase-out" on a appliqué aux deux scénarios étudiés les deux premiers critères définis au cours de la section 6.1: on compare ainsi le temps nécessaire à réduire l'inventaire massique des TRU à 1% de la valeur initiale ou à une valeur fixée (25 tonnes). Dans le premier cas on obtient une durée du "phase-out" similaire pour les deux schémas (170 ans pour le Schéma avec des RNR et 159 pour le Schéma avec des ADS); un tel résultat témoigne que les performances en terme de réduction massique de l'inventaire initial sont presque équivalentes dans les deux cas traités. Si le but est de réduire l'inventaire massique en TRU à une valeur fixée, l'utilisation des ADS a un léger avantage par rapport aux RNR: l'objectif est atteint une vingtaine d'années plus tôt (170 et 190 ans respectivement). La différence entre les deux stratégies analysées est de l'ordre de 10% seulement; aucune des 2 méthodes ne montre donc un avantage déterminant par rapport à l'autre.

Pour compléter la comparaison entre les deux scénarios à Double Composante on a considéré aussi la masse de TRU mise aux déchets lors du fonctionnement du parc à l'équilibre dans l'évaluation de l'inventaire massique résiduel, fonction de la durée du "phase-out". On a donc pris comme référence un parc avec une puissance de 1000 GW_e qui a fonctionné pendant 100 ans en conditions d'équilibre. Les résultats de cette analyse sont illustrés dans la Figure 6.6: les lignes horizontales représentent l'inventaire des TRU présents dans les déchets à haute activité après la période de fonctionnement à l'équilibre. Des résultats numériques sont donnés dans l'Annexe D.3.

Figure 6.6: Inventaire massique des TRU aux déchets incluant aussi les déchets produits au cours des 100 ans de fonctionnement à l'équilibre du parc à l'équilibre (tonnes)



Une telle analyse permet avant tout de fixer un ordre de grandeur de la longueur du transitoire de sortie de l'option nucléaire; on peut indiquer comme durée minimale une valeur de 100-125 ans, pour les valeurs considérées du taux de pertes au retraitement (0.1%) et de la longueur de la période de fonctionnement du parc à l'équilibre (100 ans). En effet, au-dessous des 75 ans l'inventaire massique résiduel en TRU des réacteurs rapides est encore d'un ordre de grandeur supérieur à celui accumulé au cours du fonctionnement du parc à l'équilibre.

Ces résultats montrent aussi que, dans le but de minimiser l'inventaire total des TRU aux déchets, les performances des réacteurs avancés lors du transitoire de "phase-out" sont aussi importantes, sinon plus importantes, que celles dans la situation d'équilibre. En effet, si on compare les inventaires massiques des

TRU aux déchets, le Schéma 3b a des valeurs inférieures pour tout transitoire de "phase-out" inférieur à 125 ans, bien que l'inventaire des TRU aux déchets en conditions d'équilibre soit environ doubles par rapport à celui du Schéma 3a.

Afin de compléter cette analyse on a jugé opportun de modifier le paramètre du temps de fonctionnement du parc à l'équilibre de 100 ans à 500 ans⁶⁸; les résultats de ce calcul sont illustrés dans la Figure 6.7 ci-dessous.

Figure 6.7: Inventaire massique des TRU aux déchets incluant aussi les déchets produits au cours des 500 ans de fonctionnement à l'équilibre du parc à l'équilibre (tonnes)



Par rapport au cas précédent, la prolongation du fonctionnement du parc à l'équilibre (ou une augmentation du taux de pertes au retraitement), favorisent le schéma 3a par rapport au Schéma 3b: en particulier la durée du "phase-out" pour laquelle les performances des 2 réacteurs sont équivalentes diminue de 125 (Fig. 6.6) à 70 ans environ (Fig. 6.7). On peut aussi remarquer que la prolongation du "phase-out" du Schéma 3b au-delà de 125 ans n'appporte plus aucun bénéfice significatif car l'inventaire des TRU aux déchets est alors dominé par ceux produits en conditions d'équilibre. Il apparaît donc évident que la détermination de la durée appropriée du "phase-out" dépend non seulement des

⁶⁸ Il est intéressant de noter que, en première approximation, l'inventaire des TRU produits à l'équilibre est directement proportionnel au temps de fonctionnement du parc et du taux de pertes au retraitement: cette analyse est donc tout aussi valable pour un taux de pertes de 0.5% et un temps de fonctionnement du parc de 100 ans.

caractéristiques intrinsèques de chaque schéma de transmutation mais aussi du temps de fonctionnement du parc à l'équilibre et du taux de pertes au retraitement.

Le dernier aspect qu'on veut toucher au cours de cette analyse de sortie de l'option nucléaire est de déterminer l'évolution de la puissance du parc durant ce transitoire. Pour des raisons principalement politiques, il apparaît préférable de pouvoir réduire le plus rapidement possible la puissance fournie par le parc nucléaire au cours du transitoire de sortie de l'option nucléaire. Les résultats d'une telle analyse pour les schémas 3a et 3b sont présentés dans la Figure 6.8 où l'on montre l'évolution de la puissance du parc en fonction du temps.

Selon cette perspective la stratégie à Double Composante avec ADS a un avantage indéniable par rapport à celle utilisant des RNR: en conditions d'équilibre les réacteurs avancés contribuent seulement pour quelque peu plus du 20% à la puissance totale du parc et, par conséquent, au moment de la mise hors service des réacteurs à eau légère la puissance du parc se réduit immédiatement à cette valeur. Par contre la stratégie à Double Composante avec RNR a l'inventaire minimal de REP dans le parc en conditions d'équilibre et doit maintenir en fonction une fraction plus importante de réacteurs nucléaires au moment de l'arrêt des REP; comme on peut l'observer sur la Figure 6.8 une telle situation continue tout au long du "phase-out". Par exemple, la période nécessaire pour réduire la puissance du parc d'un facteur 10 par rapport à la valeur nominale d'équilibre, est de seulement 10 ans pour le Schéma 3b et d'environ 40 ans pour le Schéma 3a.



Figure 6.8: Evolution de la puissance du parc au cours du "phase-out" (tonnes)

6.4 Conclusions

L'étude du "phase-out" a montré que, dans le but de minimiser la masse totale des TRU présente dans les déchets à haute activité, les performances de réduction massique au cours du "phase-out" sont aussi importantes que celles du parc nucléaire en conditions d'équilibre.

Abstraction faite de toute analyse de sûreté ainsi que de la faisabilité technique du combustible exigé, les réacteurs avancés, critiques ou hybrides, sont à même d'incinérer leur propre inventaire de déchets et donc de minimiser l'inventaire résiduel des TRU produits par un parc nucléaire à l'équilibre. La transition d'un régime d'équilibre au régime de "phase-out" requiert des modifications du procédé de séparation (Schéma 3a) ou de fabrication du combustible (Schéma 3b); il s'agit néanmoins de modifications relativement "marginales", qui n'affectent donc pas la conception de base des systèmes avancés concernés.

Les réacteurs hybrides et les réacteurs critiques ont des performances très similaires en terme de réduction de l'inventaire résiduel des TRU; dans ce cadre l'avantage des ADS est principalement associé à un plus faible inventaire massique de TRU en condition d'équilibre.

L'analyse détaillée du "phase-out" de l'option nucléaire a montré que la période de "phase-out" doit être assez longue afin de réduire l'inventaire massique des TRU au même ordre de grandeur que celui produit lors du fonctionnement du parc à l'équilibre. En addition au temps de "phase-out", il faut tenir compte du temps nécessaire à rejoindre l'état d'équilibre et du temps de fonctionnement du parc à l'équilibre, qui doit être au moins du même ordre de grandeur que le temps de "phase-out". Donc, si on veut établir une stratégie viable d'incinération des TRU en cycle fermé, il est nécessaire de prévoir un temps minimal d'utilisation de l'énergie nucléaire de 200-300 ans.

7 Conclusions générales

La croissance des besoins énergétiques mondiaux et l'adoption d'une perspective à long terme pour l'évaluation des différentes sources d'énergie portent à reconsidérer le rôle de l'énergie nucléaire dans le contexte énergétique global. L'efficacité d'utilisation des ressources et la protection de l'environnement sont devenus des paramètres prioritaires et, dans le cadre de l'énergie nucléaire, le "back-end" du cycle du combustible et la gestion des déchets radioactifs ont gagné l'intérêt croissant de la communauté scientifique et représentent actuellement un axe porteur de la recherche nucléaire. La séparation et la transmutation des actinides et des produits de fission à vie longue peuvent représenter une solution efficace de ces problèmes et mieux répondre aux exigences d'un développement durable: la séparation et la réutilisation du combustible irradié permettraient, d'une part, d'améliorer l'utilisation des ressources d'uranium naturel et, d'autre part, de réduire la masse et la radiotoxicité des déchets à haute activité.

L'analyse des parcs nucléaires avancés, qui incluent des systèmes à spectre rapide dédiés à l'incinération des transuraniens avec un cycle fermé du combustible, présente de nombreux défis liés aux nouveaux phénomènes qui doivent être traités convenablement. Par rapport aux réacteurs rapides traditionnels, les systèmes avancés, critiques ou sous critiques, sont caractérisés par la présence d'un combustible très dégradé, par des caloporteurs innovants dont les propriétés neutroniques sont moins bien connues et par un taux de combustion très élevé. En plus, la recherche d'une situation à l'équilibre pour un combustible recyclé indéfiniment requiert une attention particulière à la modélisation de l'irradiation en pile aussi bien que du refroidissement du combustible, de sa fabrication et de son retraitement.

Ce travail de thèse a permis de tester les performances des principaux outils de calcul couramment utilisés dans l'analyse des systèmes avancés grâce à la mise en place d'un benchmark spécifiquement ciblé sur un système sous critique dédié à l'incinération des actinides mineurs. On a donc pu établir une route de calcul standard, fiable et capable de modéliser efficacement tout le cycle du combustible. Cet outil de calcul a ensuite permis d'effectuer une analyse physique détaillée et complète de différentes stratégies de transmutation.

7.1 Standardisation des outils de calcul pour les ADS

Afin de tester la fiabilité et la précision des outils de calcul utilisés dans l'analyse des systèmes avancés, le Nuclear Science Commitee de l'AEN a organisé un benchmark sur un ADS dédié à la transmutation des actinides mineurs. L'auteur de cette thèse a contribué à la formulation du benchmark, a participé à cet exercice avec une solution commune PSI/CEA et a enfin effectué l'analyse physique finale des différentes solutions. Les sept solutions parvenues ont mis en évidence des écarts considérables lors

du calcul de paramètres neutroniques fondamentaux en début de vie: en particulier on a relevé des discordances dans la valeur des sections efficaces microscopiques, non seulement des actinides mineurs mais aussi de la majorité des isotopes du plutonium, et dans d'importantes grandeurs intégrales, telles que le coefficient de multiplication en milieu infini, le coefficient de multiplication homogène du cœur, la distribution du flux neutronique et le niveau de la source externe de neutrons. Les calculs d'évolution ont aussi mis en évidence de considérables écarts entre les solutions, en particulier pour la courbe de réactivité et pour la composition du combustible en fin d'irradiation.

L'utilisation de données de base différentes peut expliquer seulement en partie les écarts observés lors du calcul des coefficients de multiplication du cœur; il faudrait aussi évaluer l'impact de l'utilisation de différentes méthodes pour la mise en forme des données nucléaires et d'autres approximations dans le calcul de cœur. Au-delà de ces problèmes, bien connus, concernant les données nucléaires, cette étude a mis en évidence des imprécisions plus surprenantes dans le calcul de grandeurs fondamentales ou dans la modélisation du cœur: on peut mentionner ici l'évaluation de la puissance thermique du cœur ("Q values"), le choix inadéquat des régions d'évolution distinctes, l'utilisation d'une chaîne de décroissance incomplète pour les noyaux lourds, la fréquence de re-calcul du spectre neutronique et la méthode d'intégration de la puissance thermique au cours de chaque passe d'évolution. Ces approximations/imprécisions ont un effet particulièrement significatif pour des cœurs sous critiques et avec un fort taux de combustion, tels que l'ADS de ce benchmark, mais il s'agit tout de même de problèmes génériques, qui ont aussi un impact sur le calcul de réacteurs critiques chargés avec un combustible plus traditionnel. On a enfin noté des écarts très importants lors de l'évaluation de la source de neutrons externes, un paramètre fondamental dans un ADS car il détermine la puissance requise à l'accélérateur de protons

D'après les résultats de ce benchmark, l'état global des outils de calcul pour des systèmes avancés fortement chargés en transuraniens est satisfaisant pour des analyses préliminaires ou pour des études de scénarios plus générales. Néanmoins l'incertitude sur la plupart des grandeurs neutroniques d'intérêt est encore trop élevée pour permettre des études de projet plus détaillées pour les systèmes avancés. L'amélioration de la précision des calculs exige ainsi (a) une réévaluation, à l'aide de nouvelles expériences, des données nucléaires de base du plutonium, des actinides mineurs et du plomb, (b) l'utilisation de méthodes adéquates pour les calculs d'évolution et (c) la solution des problèmes observés dans l'estimation de la source externe de neutrons.

7.2 Comparaison de stratégies de transmutation

L'étude détaillée de cinq scénarios, représentatifs de quatre stratégies différentes de gestion des déchets radioactifs, a montré que la mise en œuvre d'une stratégie de transmutation avec un cycle fermé du combustible permet de réduire significativement l'inventaire massique en actinides allant aux déchets ainsi que leur radiotoxicité. En condition d'équilibre et quelle que soit la stratégie de transmutation adoptée, on parvient à réduire la radiotoxicité des noyaux lourds aux déchets d'un facteur 100 minimum et l'inventaire massique des actinides de plus de 1100 fois. Toutes les stratégies de transmutation proposées atteignent confortablement les objectifs de réduction de la radiotoxicité fixés au début de l'étude (facteur 100 par rapport au cycle ouvert). Tout de même la réalisation d'un cycle du combustible fermé vis-à-vis de tous les transuraniens comporte d'importants problèmes technologiques lors du retraitement, de la fabrication et du transport du combustible à cause de la contamination du cycle par de fortes concentrations d'actinides mineurs. Les combustibles avancés, très enrichis en transuraniens et soumis à un fort taux de combustion, sont caractérisés par une grande activité, chaleur de décroissance et émission de neutrons; cela impose le développement et la mise en œuvre à l'échelle industrielle de procédés de type pyrochimique pour la séparation du combustible.

L'adoption d'un schéma de transmutation particulier ne change pas de façon significative ni l'inventaire massique aux déchets ni leur radiotoxicité: à cet égard le choix d'un réacteur critique ou d'un ADS comme incinérateur d'actinides est indifférent. La stratégie basée uniquement sur des réacteurs rapides a aussi les mêmes performances de réduction massique que les stratégies de transmutation plus traditionnelles, qui contiennent une large fraction de réacteurs à eau dans le parc.

La réalisation d'objectifs si ambitieux en terme de réduction massique des déchets impose le respect des trois conditions suivantes pour le cycle du combustible: il est indispensable de recycler indéfiniment tous les transuraniens avec un cycle fermé du combustible, de minimiser le taux de pertes au retraitement et d'atteindre un taux de combustion très élevé dans les réacteurs avancés. Ce travail de thèse a clairement montré que la stratégie de recyclage du plutonium seul, ainsi que d'autres stratégies de transmutation à cycle partiellement ouvert [NEA-02], permet d'obtenir un facteur de réduction massique plus limité. Quant aux deux autres paramètres du cycle du combustible, on a montré l'intérêt d'augmenter le plus possible le taux de combustion moyen, préférablement au-dessus de 150 GW_j/t_{NL} et la nécessité d'obtenir un taux de séparation des noyaux lourds très élevé (99.9%), en particulier pour les procédés pyrochimiques.

Si le choix d'une stratégie de transmutation particulière a un impact marginal sur la production de déchets à haute activité, elles se différencient nettement quant à la composition du parc nucléaire, au débit massique du combustible avancé au retraitement et à son activité spécifique. Le schéma Double Strata

permet de maximiser la fraction de réacteurs conventionnels dans le parc et de minimiser le débit massique du combustible avancé au retraitement et à la fabrication; par contre le combustible à traiter est extrêmement actif et émet une quantité de neutrons très importante. A l'opposé la stratégie à Double Composante avec RNR est caractérisée par une fraction plus élevée de réacteurs avancés dans le parc et prévoit ainsi un débit massique plus important au cycle du combustible avancé; par contre l'activité et la chaleur de décroissance du combustible sont plus limitées. La stratégie à Double Composante avec ADS se pose entre ces deux cas. La stratégie "tout rapide", qui n'a que des réacteurs avancés dans le parc, se différencie nettement par rapport aux autres schémas de transmutation: l'activité et la chaleur de décroissance du combustible sont beaucoup plus limitées, ce qui réduit les difficultés technologiques pour le retraitement. Par contre le débit massique du combustible avancé au retraitement et à la fabrication est très important, supérieur de l à 2 ordres de grandeur par rapport aux autres stratégies.

On peut remarquer que chaque stratégie de transmutation qui comprend des réacteurs à eau ordinaire dans le parc produit de grandes quantités d'uranium, appauvri et irradié, qui devront être gérées convenablement. Parmi tous les scénarios analysés au cours de cette thèse, le schéma innovateur "tout rapide" est le seul qui assure une utilisation optimale des ressources en uranium naturel et qui permet une stabilisation, voir une réduction, de la pile d'uranium.

Afin de quantifier de façon correcte les bénéfices de la transmutation par rapport au cycle ouvert de référence, il est nécessaire de considérer aussi l'inventaire massique de NL et de TRU, en pile et hors pile, présent dans le parc nucléaire à l'équilibre. En effet, si après l'arrêt de l'option nucléaire, aucune mesure n'est prise pour son incinération, les avantages assurés par la mise en œuvre d'une stratégie d'incinération seraient fortement réduits et ne justifieraient pas l'introduction de cette technologie complexe. L'analyse détaillée du "phase-out" de l'option nucléaire pour les deux scénarios à double composante, pris ici en tant qu'exemple, a montré que les réacteurs avancés, critiques ou sous critiques, sont, en principe, à même d'incinérer l'inventaire résiduel des TRU à l'équilibre avec des modifications appropriées du cycle du combustible. Tout de même, afin de réduire de façon significative l'inventaire massique à l'équilibre, il est nécessaire de prévoir une durée de "phase-out" assez longue, de l'ordre de 75 ans. Compte tenu du temps nécessaire à rejoindre l'état d'équilibre, du temps de fonctionnement du parc à l'équilibre et du temps de "phase-out", la mise en œuvre d'une stratégie de transmutation efficace vis-àvis de la réduction massique des déchets nucléaires doit prévoir un temps minimal de l'utilisation de l'énergie nucléaire très long, bien supérieur à 100 ans.

Par rapport aux réacteurs critiques, les ADS peuvent tolérer des paramètres de sûreté beaucoup plus dégradés et peuvent ainsi être chargés avec du combustible sans uranium. Cela permet de minimiser le nombre de réacteurs avancés dans le parc et de réduire le débit massique du combustible avancé au retraitement. Par contre les systèmes hybrides sont pénalisés par leur complexité technique et par des difficultés opérationnelles. Si on considère une situation de "phase-out" de l'option nucléaire, les deux

types de réacteurs avancés, RNR et ADS, ont des performances très similaires en terme d'incinération de l'inventaire massique résiduel; les ADS sont tout de même avantagés par un inventaire massique plus faible en conditions d'équilibre. Compte tenu de tous ces aspects, le rôle des ADS semble être circonscrit à l'incinération des actinides mineurs seuls dans une stratégie de type Double Strata, alors que les réacteurs critiques à spectre rapide sont plus adaptés à une gestion simultanée du plutonium et des actinides mineurs.

REFERENCES

- [Ali-01] "Caractérisation neutronique des systèmes hybrides en régime stationnaire et transitoire", G. ALIBERTI, Thèse de l'Université Louis Pasteur, Strasbourg, Octobre 2001.
- [ALM-93] "Utility Industry Review of the ALMR Plant Design Program", San José, California, USA, 20-21 May 1993.
- [AP-84] "The HETC package for the VAX: Version 1.1. A user guide", F. ATCHISON and M.PEPIN, March 1984.
- [AS-01] "ORIHET 3 Version 1.12: A guide for users", F. ATCHISON and H.SCHAAL, March 2001.
- [ASP-01] "Les centrales nucléaires dans le monde 2001", Association Suisse Pour l'Energie Atomique, Berne, 2001.
- [BAT-97] "CAPRA Core Studies High Burn-Up Core Conceptual Study", H.M. BEAUMONT et al., Global 97: International Conference on Future Nuclear Systems, Yokohama (Japan) 5-10 October 1997
- [Ber-00] "Contribution à une proposition d'un développement à long terme de l'énergie nucléaire: le concept TASSE (Thorium based Accelerator driven System with Simplified fuel cycle for long term Energy production", V. BERTHOU, Thèse de l'Université d'Evry soutenue le 20 Octobre 2000.
- [BM-01] "Nuclear energy economics in a sustainable development perspective", E.BERTEL and R. MORRISON, 14-17 NEA News 2001-No 19.1.
- [Bru-87] "Our common futur (Bruntland Report)", G. BRUNTLAND, Oxford University Press, Oxford, 1987.
- [BTS-88] "The PRISM concept for a safe, economic and testable liquid metal fast reactor plant", R. C. BERGLUND, F. E. TIPPETS and L. N. SALERNO, Energia Nucleare, vol.4 pages 38-46, 1987.
- [CCG-97] "Cycle du combustible des réacteurs à neutrons rapides, code MECCYCO Notice d'utilisation", J. M. CAISSO, D. CESTIA et J. P. GROUILLER, Communication interne CEA, SPCI/LNSC 87 - 340.
- [Cze-98] "Avancées dans le calcul neutronique des réacteurs à neutrons rapides. Démonstration sur le réacteur SUPER-PHENIX", S. CZERNECKI, Thèse de l'Université de Provence soutenue le 10 novembre 1998.

- [DRR-96] "ERANOS: Manuel des méthodes les calculs d'évolution", J. Y. DORIATH, J. M. RIEUNIER et G. RIMPAULT, Communication interne CEA, SPRC/LEPh 96 204.
- [EU-00] "Green Paper Towards a European strategy for the security of energy supply", COM (2000) 769, Commission de la Communauté Européenne, Bruxelles, 2000.
- [GKC-01] "The cross-section sensitivity of the minor actinides in a lead-bismuth cooled acceleratordriven burner system", C. S. GIL, J. D. KIM and J. H. CHANG, International Conference on Nuclear Data for Science and Technology (ND2001), Tsukuba, Japan, 7-12 October 2001.
- [GRO-87] "Cycle du combustible des réacteurs à neutrons rapides, code MECCYCO ", J. P. GROUILLER et al., Proc. Int. Conf. On the Physics of Reactors: Operation, Design and Computation (Physor 90), 23-27 avril 1990, Marseille, France, p. XI 24.
- [Guy-98] J. C. GUYOT, communication personnelle.
- [IAEA-94] "Safety Series No. 115-I: International Basic Safety Standards for Protection against Ionizing Radiation and for the Safety of Radiation Source", IAEA (International Atomic Energy Agency), Vienna, 1994.
- [IAEA-96] Fast Reactor Database, IAEA, IAEA-TECDOC-866, February 1996.
- [IAEA-00] "Nuclear Power Reactors in the World", IAEA, Vienna, 2000.
- [IEA-98] "World Energy Outlook", OECD/IEA (International Energy Agency), Paris, 1998.
- [IEA-99] "Bilans énergétiques des pays non membres, édition 1999", OECD/IEA, Paris, 1999.
- [Kad-95] "Transmutation des Actinides Mineurs: analyse de systèmes basés sur un accélérateur de protons et validation des méthodes de calcul", Y. KADI, Thèse de l'Université de Provence soutenue le 6 octobre 1995.
- [Köb-98] "Experimentelle Neutronbilanzuntersuchungen zum Wassereinbruch in einen Hochtemperaturreaktor mit niedrig angereichrtem Uranbrennstoff" O. KOEBERL, Thèse 1803 de l'Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne (1998).
- [Köb-00] "A Concept of a Particle-Bed Breeder Reactor with Nitride Fuel" O. KOEBERL, 8th International Conference on Nuclear Engineering ICONE8, 2-6 April 2000, Baltimora, USA.
- [Len-01] "Radioactive waste management and sustainable development", J. LANG-LENTON LEON, 18-20 NEA News 2001-No 19.1.
- [Muk-90] "Higher Actinides Transmutation Using Higher Actinide Burner Reactors", T. MUKAIYAMA et al., Proc. of the PHYSOR 90 Conference, Vol. 1, I-97, Marseille, France, April 1990.

- [Nak-92] "Present Status of the OMEGA Program in Japan", M. NAKAMURA et al., Proc. Second OECD/NEA Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Separation and Transmutaton, Argonne, 1992.
- [NEA-96] "JAERI Proposal of Benchmark Problem on Methods and Data to Calculate the Nuclear Characteristics in Accelerator-Based Transmutation Systems with Fast Neutron Flux", OECD/NEA NSC (Nuclear Energy Agency, Nuclear Science Committee) Task Force on Physics Aspects of Different Transmutation Concepts, NSC/DOC(96), 1996.
- [NEA-96a] "Fast Plutonium Burning Reactors: Beginning of Life", Physics of Plutonium Recycling: Volume IV, OECD/NEA, Paris, 1996.
- [NEA-96b] "Plutonium Recycling in Fast Reactors", Physics of Plutonium Recycling: Volume V, OECD/NEA, Paris, 1996.
- [NEA-99] "Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation; Status and Assessment Report", OECD/NEA, Paris, May 1999.
- [NEA-99a] "L'énergie nucléaire dans une perspective de développement durable", OECD/NEA, Paris, 1999.
- [NEA-00] "Données sur l'énergie nucléaire", OECD/NEA, Paris, 2000.
- [NEA-00a] "Calculations of Different Transmutation Concepts, An International Benchmark Exercise", OECD/NEA, Paris, 2000.
- [NEA-00b] "Uranium 1999. Ressources, production et demande d'uranium", AEN et AIEA, OECD/NEA, Paris, 2000.
- [NEA-01] "Comparison Calculations for an Accelerator-Driven Minor Actinide Burner", OECD/NEA, NEA/NSC/DOC(2001)13, Paris, 2001.
- [NEA-02] "Accelerator-Driven Systems (ADS) and Fast Reactors (FR) in Advanced Nuclear Fuel Cycles. A Comparative Study", OECD/NEA, Paris, 2002.
- [Pil-98] "Summary of 1997 and 1998 CAPRA results", S. PILLON, Communication interne CEA, SIS/CAPRA/98/20/1004.
- [PTD-98] "Current status of the CAPRA program", S. PILLON et al., ENC World Nuclear Congress, Nice, France 25-28 October 1998.
- [RB-97] "Traité de neutronique", P. REUSS et J. BUSSAC, Editions Hermann, 1978.
- [RRR-92] "The ECCO / JEF 2 library", G. RIMPAULT et al., Communication interne CEA, SPRC/LEPh 92-231.

- [RSJ-96] "Schéma de calcul de référence du formulaire ERANOS et orientations pour le schéma de calcul de projet", G. RIMPAULT et al., Communication interne CEA, SPRC/LEPh 96-220.
- [RTV-99] "Schéma de calcul ERANOS d'évolution des compositions à puissance ajustée", G. RITTER,J. TOMMASI et M. VALADE, Communication interne CEA, SPRC/LEDC 99-421.
- [Sam-98] "CESAR: A Simplified Evolution Code for Reprocessing Applications", M. SAMSON et al., Proc. 5th Int. Conf. On Recycling, Conditioning and Disposal (RECOD 98), Nice, France 25-28 October 1998, p. 986.
- [SR-97] "Qualification du formulaire ERANOS pour la perte de réactivité de Super Phénix", P. SMITH et G. RIMPAULT, Communication interne CEA, SPRC/LEPh 97-239.
- [Tch-98] "Etude du potentiel de transmutation et des caractéristiques de sûreté d'un système hybride: accélérateur - réacteur sous critique", A. TCHISTIAKOV, Thèse de l'Université de Provence soutenue le 7 avril 1998.
- [Tom-95] "Synthesis of Fast Reactors Capabilities to Burn Long-Lived Nuclear Waste", J. TOMMASI et al., Proc. of GLOBAL 95 Conference, 786, Versailles, France, September 1995.
- [Tom-98] J. TOMMASI, communication personnelle.
- [TR-92] "Concepts of Accelerator Based Transmutation Systems", H. TAKAHASHI and H. RIEF, Proc. of the Specialist's Meeting on Accelerator-based Transmutation, 2-26, PSI Villigen, Suisse, 24-26 March1992.
- [TWG-01] "A European Roadmap for Developing Accelerator Driven Systems (ADS) for Nuclear Waste Incineration", Report of the European Technical Working Group on ADS, April 2001.
- [UNS-94] "Ionising Radiation: Sources and Biological Effects", UNSCEAR, New York, 1994.
- [Val-00] "Etude de l'incinération des transuraniens en réacteur à sel fondu" M. VALADE, Thèse de l'Université de Strasbourg soutenue le 27 octobre 2000.
- [VS-95] "The SPIN Program" M. VIALA and M. SALVATORES, Proc. of the GLOBAL '95 Conf., 118, Versailles, September 1995.
- [WB-00] "Closing the Nuclear Fuel Cycle: Issues and perspectives", P. WYDLER and L. BATSLE, Sixth OECD/NEA Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Separation and Transmutaton, Madrid, 11-13 December 2000.
- [WK-94] "A Physical Assessment of the Effectiveness of Different Actinide Transmutation Systems", P.
 WYDLER and Y. KADI, Proc. Third OECD/NEA Information Exchange Meeting on Actinide
and Fission Product Partitioning and Transmutation, Cadarache, France, 12-14 Deember 1994 (NEA/P&T Report No. 13).

- [WT-99] "Comparison calculations for an accelerator-driven minor actinide burner", P. WYDLER and H. TAKANO, NEA/NSC/DOC(1999) 13, 1999.
- [Yan-00] W. S. YANG, comunication personnelle.
- [YK-01] "Blanket Design Studies of a Lead-Bismuth Eutectic-Cooled Accelerator Transmutation of Waste System", W. S. YANG and H.S. KHALIL, Nuclear Technology, 135, (2001).
- [YKS-01] "Effects of Lead and Bismuth Cross-sections on ATW Subcriticality Predictions", W. S. YANG, H.S. KHALIL and C. G. STENBERG, 1999, ANS Winter Meeting, Transactions of the ANS, Volume 81, TANSAO 81 1-374 (1999), ISSN 0003-081X, pp.273-275, 14-18 November 1999, California, USA.
- [You-97] "Etude conceptuelle de réacteurs nucléaires sous-critiques couplés à un accélérateur de protons"G. YOUINOU, Thèse de l'Université de Provence soutenue le 20 novembre 1997.
- [YSI-96] "Core Performance of Fast Reactors for Actinide Recycling Using Metal, Nitride and Oxide Fuels", T. TUKOO et al., Nuclear Technology, 116, 173 (1996).

Annexe A (Chapitre 3)

Annexe A.1: Découpage multigroupe à 33 groupes	
Annexe A.2: Chaîne de décroissance des NL	210
Annexe A.3: Liste des PF explicites inclus dans les 2 chaînes de décroissance	211
Chaîne d'évolution avec 160 PF explicites	211
Chaîne d'évolution avec 80 PF explicites	211
Annexe A.4: Energies moyennes dégagées par fission et par capture	212
Annexe A.5: Procédure d'évolution modifiée	213
Annexe A.6: Evolution du spectre au cours de l'irradiation	214
Annexe A.7: Facteurs de conversion de la toxicité (Sv/Bq)	215

Annexe A.1: Découpage multigroupe à 33 groupes

Groupe	Energie supérieure (eV)	Energie inférieure (eV)	Léthargie	Largeur en léthargie
1	1.964 E+07	1.000 E+07	-0.675	0.675
2	1.000 E+07	6.065 E+06	0.000	0.500
3	6.065 E+06	3.679 E+06	0.500	0.500
4	3.679 E+06	2.231 E+06	1.000	0.500
5	2.231 E+06	1.353 E+06	1.500	0.500
6	1.353 E+06	8.208 E+05	2.000	0.500
7	8.208 E+05	4.979 E+05	2.500	0.500
8	4.979 E+05	3.020 E+05	3.000	0.500
9	3.020 E+05	1.832 E+05	3.500	0.500
10	1.832 E+05	1.111 E+05	4.000	0.500
11	1.111 E+05	6.738 E+04	4.500	0.500
12	6.738 E+04	4.087 E+04	5.000	0.500
13	4.087 E+04	2.479 E+04	5.500	0.500
14	2.479 E+04	1.503 E+04	6.000	0.500
15	1.503 E+04	9.119 E+03	6.500	0.500
16	9.119 E+03	5.531 E+03	7.000	0.500
17	5.531 E+03	3.355 E+03	7.500	0.500
18	3.355 E+03	2.035 E+03	8.000	0.500
19	2.035 E+03	1.234 E+03	8.500	0.500
20	1.234 E+03	7.485 E+02	9.000	0.500
21	7.485 E+02	4.540 E+02	9.500	0.500
22	4.540 E+02	3.043 E+02	10.000	0.400
23	3.043 E+02	1.486 E+02	10.400	0.717
24	1.486 E+02	9.166 E+01	11.117	0.483
25	9.166 E+01	6.790 E+01	11.600	0.300
26	6.790 E+01	4.017 E+01	11.900	0.525
27	4.017 E+01	2.260 E+01	12.425	0.575
28	2.260 E+01	1.371 E+01	13.000	0.500
29	1.371 E+01	8.315 E+00	13.500	0.500
30	8.315 E+00	4.000 E+00	14.000	0.732
31	4.000 E+00	5.400 E-01	14.732	2.002
32	5.400 E-01	1.000 E-01	16.734	1.686
33	1.000 E-01	1.100 E-04	18.421	6.812

Tableau A.1.1: Découpage multigroupe (eV)

Annexe A.2: Chaîne de décroissance des NL

Figure A.2.1: Chaîne de décroissance complète des NL incluant les isotopes du californium



Annexe A.3: Liste des PF explicites inclus dans les 2 chaînes de décroissance

Chaîne d'évolution avec 160 PF explicites

⁷⁶Ge ¹²¹Sb ¹²³Sb ¹²⁴Sb ¹²⁵Sb ¹²⁶Sb ⁷⁵As ¹²²Te ¹²³Te ¹²⁴Te ¹²⁵Te ¹²⁶Te ^{127m}Te ¹²⁸Te ^{129m}Te ⁷⁷Se ⁷⁸Se ⁸⁰Se ¹³⁰Te ¹³²Te ⁸¹Br ¹²⁷**I** ¹²⁹**I** ¹³¹**I** ¹³⁵**I** 82Kr 83Kr 84Kr 85Kr 86Kr ¹²⁸Xe ¹²⁹Xe ¹³⁰Xe ¹³¹Xe ¹³²Xe ¹³³Xe ¹³⁴Xe ¹³⁵Xe ¹³⁶Xe ⁸⁵Rb ⁸⁶Rb ⁸⁷Rb ⁸⁶Sr ⁸⁸Sr ⁸⁹Sr ⁹⁰Sr ¹³³Cs ¹³⁴Cs ¹³⁵Cs ¹³⁶Cs ¹³⁷Cs ¹³⁴Ba ¹³⁵Ba ¹³⁶Ba ¹³⁷Ba ¹³⁸Ba ¹⁴⁰Ba ⁸⁹Y ⁹⁰Y ⁹¹Y ⁹⁰Zr ⁹¹Zr ⁹²Zr ⁹³Zr ⁹⁴Zr ⁹⁵Zr ⁹⁶Zr ¹³⁹La ¹⁴⁰La ¹⁴⁰Ce ¹⁴¹Ce ¹⁴²Ce ¹⁴³Ce ¹⁴⁴Ce ⁹⁵Nb ⁹⁵Mo ⁹⁶Mo ⁹⁷Mo ⁹⁸Mo ⁹⁹Mo ¹⁰⁰Mo ¹⁴¹Pr ¹⁴³Pr ⁹⁹Tc ¹⁴²Nd ¹⁴³Nd ¹⁴⁴Nd ¹⁴⁵Nd ¹⁴⁶Nd ¹⁴⁷Nd ¹⁴⁸Nd ¹⁵⁰Nd 100 Ru 101 Ru 102 Ru 103 Ru 104 Ru 106 Ru ¹⁴⁷Pm ^{148m}Pm ¹⁴⁸Pm ¹⁴⁹Pm ¹⁵¹Pm ¹⁴⁷Sm ¹⁴⁸Sm ¹⁴⁹Sm ¹⁵⁰Sm ¹⁵¹Sm ¹⁵²Sm ¹⁵³Sm ¹⁰³Rh ¹⁰⁵Rh ¹⁰⁴Pd ¹⁰⁵Pd ¹⁰⁶Pd ¹⁰⁷Pd ¹⁰⁸Pd 110Pd ¹⁵⁴Sm ¹⁰⁹Ag ¹¹¹Ag ¹⁵³Eu ¹⁵⁴Eu ¹⁵⁵Eu ¹⁵⁶Eu ¹⁵⁷Eu ¹¹⁰Cd ¹¹¹Cd ¹¹²Cd ¹¹³Cd ¹¹⁴Cd ^{115m}Cd ¹¹⁶Cd ¹⁵⁴Gd ¹⁵⁵Gd ¹⁵⁶Gd ¹⁵⁷Gd ¹⁵⁸Gd ¹⁶⁰Gd ¹¹⁵In ¹⁵⁹Tb ¹⁶⁰Tb 115 Sn 116S n 117 Sn 118 Sn 119 Sn 120 Sn 122 Sn 123 Sn 124 Sn ¹⁶⁰Dy ¹⁶¹Dy ¹⁶²Dy ¹⁶³Dy ¹⁶⁴Dy ¹²⁵Sn ¹²⁶Sn

Chaîne d'évolution avec 80 PF explicites

⁸⁵Rb
⁸⁷Rb
⁹⁰Sr
⁹¹Y
⁹⁰Zr
⁹¹Zr
⁹²Zr
⁹³Zr
⁹⁵Mo
⁹⁷Mo
⁹⁸Mo
⁹⁹Mo
¹⁰⁰Mo
⁹⁹Tc
¹⁰¹Ru
¹⁰²Ru
¹⁰³Rh
¹⁰⁵Pd
¹⁰⁶Pd
¹⁰⁷Pd
¹⁰⁸Pd
¹⁰⁶Pd
¹⁰⁶Pd
¹⁰⁷Pd
¹⁰⁸Pd
¹¹⁰Cd
¹¹³Cd
¹¹⁵In
¹²¹Sb
¹²⁵Sb

Annexe A.4: Energies moyennes dégagées par fission et par capture

Le Tableau A.4.1 donne les énergies moyennes dégagées par fission et par capture utilisées au cours de cette thèse. L'énergie dégagée par fission est divisée en 2 composantes: énergie due aux γ (prompt et retardés) et énergie due aux fragments de fission.

	Capture	Fission	Fission (y)	Fission (total)		Capture
²³² Th	4.78	176.77		176.77	¹⁵ N	2.49
²³¹ Pa	5.57	183.11		183.11	⁵⁴ Fe	9.30
²³³ Pa	5.20	179.88		179.88	⁵⁶ Fe	7.65
²³² U	5.75	180.53		180.53	⁵⁷ Fe	10.44
²³³ U	6.84	181.60		181.60	⁵⁸ Fe	6.58
²³⁴ U	5.30	178.53	12.53	191.06	⁵⁰ Cr	9.26
²³⁵ U	6.55	183.33	12.96	196.29	⁵² Cr	7.94
²³⁶ U	5.12	180.30	13.84	194.14	⁵³ Cr	9.72
²³⁸ U	5.48	186.30	14.73	201.03	⁵⁴ Cr	6.25
²³⁸ Pu	5.65	184.93	12.27	197.20	⁵⁸ Ni	9.00
²³⁹ Pu	6.53	189.72	11.91	201.63	⁶⁰ Ni	7.82
²⁴⁰ Pu	5.24	191.11	13.07	204.18	⁶¹ Ni	10.60
²⁴¹ Pu	6.31	191.36	13.20	204.56	⁶² Ni	6.84
²⁴² Pu	5.03	191.90	14.51	206.41	⁶⁴ Ni	6.10
²⁴⁴ Pu	4.72	191.06	14.96	206.02	⁹⁰ Zr	7.20
²³⁷ Np	5.48	186.60	12.21	198.81	⁹¹ Zr	8.64
²³⁹ Np	5.17	185.24	13.14	198.38	⁹² Zr	6.73
²⁴¹ Am	5.54	194.20	12.30	206.50	⁹⁴ Zr	6.47
²⁴² Am	6.36	191.39	11.84	203.23	⁹⁶ Zr	5.58
^{242m} Am	6.36	191.39	11.84	203.23	Мо	8.00
²⁴³ Am	5.36	189.30	13.26	202.56	Mn	7.27
²⁴² Cm	5.70	192.01	10.46	202.47	^{182}W	6.19
²⁴³ Cm	6.80	190.60	13.26	203.86	¹⁸³ W	7.41
²⁴⁴ Cm	5.52	192.50	13.05	205.55	¹⁸⁴ W	5.75
²⁴⁵ Cm	6.45	195.06	11.74	206.80	¹⁸⁶ W	5.47
²⁴⁶ Cm	5.16	194.78	12.13	206.91	Pb	5.42
²⁴⁷ Cm	6.21	195.42	12.52	207.94	²⁰⁹ Bi	4.60
²⁴⁸ Cm	4.71	195.14	12.92	208.06		

Tableau A.4.1: Energies moyennes dégagées par fission et par capture (MeV)

Annexe A.5: Procédure d'évolution modifiée

On décrit ici schématiquement la procédure d'évolution à la puissance ajustée qu'on a mis au point et qu'on a utilisée au cours de l'étude des scénarios à l'équilibre. On indiquera par la suite le début du passe d'évolution avec l'indice 0 et la fin du passe d'évolution avec l'indice T; on dénote aussi avec un astérisque les grandeurs qui sont calculées uniquement pour déterminer la valeur de la puissance ajustée de normalisation et qui sont effacées aussitôt.

a) Calcul d'évolution"classique" pour évaluer la puissance moyenne

- Calcul du flux Φ_0 à t = 0
- Normalisation du flux à la puissance nominale: Φ_0^*
- Calcul d'évolution et création des concentrations à t = T: N_T^*
- Calcul de la puissance à t = T obtenue avec Φ_0^* : P_T^*

b) Estimation de la puissance moyenne par interpolation linéaire entre 0 et T et calcul de la puissance ajustée

•
$$P_{moy}^* = \frac{P_{nom} + P_T^*}{2}$$

•
$$P_{adj} = \frac{P_{nom}^2}{P_{moy}^*}$$

c) Calcul d'évolution avec normalisation du flux à la puissance ajustée

- Normalisation du flux à la puissance ajustée: Φ_0^{adj}
- Calcul d'évolution et création des concentrations à t = T: N_T
- Calcul de la puissance à t = T: P_T
- Calcul et vérification de la puissance moyenne: $P_{moy} = \frac{P_{adj} + P_T}{2}$

Annexe A.6: Evolution du spectre au cours de l'irradiation

Figure A.6.1: Evolution du spectre neutronique de cœur à l'équilibre au cours de l'irradiation

(normalisation à un flux total unitaire)





(normalisation à un flux total unitaire)



Nuclide	Sv/Bq	Nuclide	Sv/Bq	Nuclide	Sv/Bq	Nuclide	Sv/Bq
⁸⁶ Rb	2.8 E-09	¹³² Te	3.7 E-09	²⁰⁹ Pb	5.7 E-11	²³² U	3.3 E-07
⁸⁷ Rb	1.5 E-09	¹²⁹ I	1.1 E-07	²¹⁰ Pb	6.8 E-07	²³³ U	5.0 E-08
⁸⁹ Sr	2.6 E-09	¹³¹ I	2.2 E-08	²¹¹ Pb	1.8 E-10	²³⁴ U	4.9 E-08
⁹⁰ Sr	2.8 E-08	¹³⁵ I	9.3 E-10	²¹² Pb	5.9 E-09	²³⁵ U	4.6 E-08
⁹⁰ Y	2.7 E-09	^{134}Cs	1.9 E-08	²¹⁴ Pb	1.4 E-10	²³⁶ U	4.6 E-08
⁹¹ Y	2.4 E-09	¹³⁵ Cs	2.0 E-09	²¹⁰ Bi	1.3 E-09	²³⁸ U	4.4 E-08
⁹³ Zr	2.8 E-10	¹³⁶ Cs	3.0 E-09	²¹² Bi	2.6 E-10	²³⁷ Np	1.1 E-07
⁹⁵ Zr	8.8 E-10	¹³⁷ Cs	1.3 E-08	²¹³ Bi	2.0 E-10	²³⁸ Np	9.1 E-10
^{93m} Nb	1.2 E-10	^{135m} Ba	4.5 E-10	²¹⁴ Bi	1.1 E-10	²³⁹ Np	8.0 E-10
103 Ru	7.3 E-10	¹⁴⁰ Ba	2.5 E-09	²¹⁰ Po	2.4 E-07	²⁴⁰ Np	8.2 E-11
105 Ru	2.6 E-10	¹⁴⁰ La	2.0 E-09	²²³ Fr	2.3 E-09	²³⁸ Pu	2.3 E-07
¹⁰⁶ Ru	7.0 E-09	¹⁴¹ Ce	7.1 E-10	²²³ Ra	1.0 E-07	²³⁹ Pu	2.5 E-07
105 Rh	3.7 E-10	¹⁴³ Ce	1.1 E-09	²²⁴ Ra	6.5 E-08	²⁴⁰ Pu	2.5 E-07
¹⁰⁶ Rh	1.6 E-10	¹⁴⁴ Ce	5.2 E-09	²²⁵ Ra	9.5 E-08	²⁴¹ Pu	4.7 E-09
107 Pd	3.7 E-11	143 Pr	1.2 E-09	²²⁶ Ra	2.8 E-07	²⁴² Pu	2.4 E-07
¹¹¹ Ag	1.3 E-09	144 Pr	5.0 E-11	²²⁷ Ra	8.4 E-11	²⁴³ Pu	8.5 E-11
¹¹³ Cd	2.5 E-08	¹⁴⁷ Nd	1.1 E-09	²²⁸ Ra	6.7 E-07	²⁴⁴ Pu	2.4 E-07
^{115m} Cd	3.3 E-09	¹⁴⁷ Pm	2.6 E-10	²²⁵ Ac	2.4 E-08	²⁴¹ Am	2.0 E-07
¹¹⁵ In	3.2 E-08	¹⁴⁸ Pm	2.7 E-09	²²⁷ Ac	1.1 E-06	²⁴² Am	3.0 E-10
¹²³ Sn	2.1 E-09	^{148m} Pm	1.8 E-09	²²⁸ Ac	4.3 E-10	^{242m} Am	1.9 E-07
¹²⁵ Sn	3.1 E-09	¹⁴⁹ Pm	9.9 E-10	²²⁷ Th	8.9 E-09	²⁴³ Am	2.0 E-07
¹²⁶ Sn	4.7 E-09	¹⁵¹ Pm	7.3 E-10	²²⁸ Th	7.0 E-08	²⁴² Cm	1.2 E-08
¹²⁴ Sb	2.5 E-09	147 Sm	4.9 E-08	²²⁹ Th	4.8 E-07	²⁴³ Cm	1.5 E-07
¹²⁵ Sb	1.1 E-09	151 Sm	9.8 E-11	²³⁰ Th	2.1 E-07	²⁴⁴ Cm	1.2 E-07
¹²⁶ Sb	1.4 E-09	¹⁵³ Sm	7.4 E-10	²³¹ Th	3.4 E-10	²⁴⁵ Cm	2.1 E-07
^{126m} Sb	3.6 E-11	¹⁵⁴ Eu	2.0 E-09	²³² Th	2.2 E-07	²⁴⁶ Cm	2.1 E-07
¹²³ Te	4.4 E-09	¹⁵⁵ Eu	3.2 E-10	²³⁴ Th	3.4 E-09	²⁴⁷ Cm	1.9 E-07
^{125m} Te	8.7 E-10	¹⁵⁶ Eu	2.2 E-09	²³¹ Pa	7.1 E-07	²⁴⁸ Cm	7.7 E-07
¹²⁷ Te	1.7 E10	¹⁵⁷ Eu	6.0 E-10	²³³ Pa	8.7 E-10		
^{127m} Te	2.3 E09	¹⁶⁰ Tb	1.6 E-09	²³⁴ Pa	5.1 E-10		
^{129m} Te	3.0 E-09						

Annexe A.7: Facteurs de conversion de la toxicité (Sv/Bq)

Annexe B (Chapitre 4)

Annexe B.1: Description du cœur PRISM original	219
Annexe B.2: Description du cœur MAB (réacteur du benchmark)	220
Annexe B.3: Composition du combustible des réacteurs du Double Strata	221
Annexe B.4: Résultats du benchmark - calculs en DDV	222
Sections efficaces	222
Taux de réactions et traverses de flux	222
Annexe B.5: Etude de sensibilité de KAERI	233
Annexe B.6: Résultats du benchmark - calculs d'évolution	
Coefficient de multiplication homogène	
Intensité de la source externe de neutrons	236
Composition du combustible en FDI	
Annexe B.7: Décomposition du bêta effectif	238

Annexe B.1: Description du cœur PRISM original

On se propose ici de donner une brève description du cœur et des assemblages du réacteur PRISM (modèle de référence- configuration brûleur d'actinides mineurs), qui a servi de modèle pour le réacteur hybride MAB du benchmark [ALM-93].

Le cœur PRISM de référence est constitué par 253 assemblages hexagonaux de 498 cm de hauteur et ayant un pas de réseau de 14.35 cm. La partie centrale du cœur est constituée par 66 assemblages de combustible, 30 assemblages contenant des NL fertiles, 6 assemblages de contrôle, 6 assemblages d'expansion et 1 assemblage central pour le "shut-down" du réacteur. Cette région interne est entourée par 42 assemblages contenant des NL fertiles, 48 assemblages de réflecteur et 54 de protection neutronique latérale.

Chaque assemblage de combustible est composé par 271 aiguilles et a une longueur totale de 426.7 cm; la longueur active du combustible est de 134.6 cm. La pastille du combustible a un diamètre externe de 0.551 cm et est entourée par une gaine en acier HT9; le diamètre total de l'aiguille est ainsi de 0.659 cm.

A partir de ce modèle géométrique de référence, GE a développé un cœur dédié à l'incinération des actinides mineurs; par rapport au modèle de référence qu'on vient de décrire, la longueur active du combustible a été réduite jusqu'à une valeur de 100 cm.

Les autres assemblages du cœur ont les mêmes dimensions externes (longueur totale et pas de réseau) que les assemblages de combustible et se différencient par le nombre et la dimension des aiguilles qui les composent. Les assemblages qui contiennent les NL fertiles, placés dans les zones internes et externes du cœur, sont composés par 127 aiguilles de 1.074 cm de diamètre externe. Les assemblages de réflecteur et d'absorbants contiennent 61 aiguilles de 1.624 cm de diamètre, alors que les écrans de protection contiennent uniquement 7 aiguilles de 4.5 cm de diamètre.

Annexe B.2: Description du cœur MAB (réacteur du benchmark)

Le tableau suivant donne la composition de chaque région du cœur du MAB; la nomenclature reprend celle du modèle géométrique du cœur présenté dans la Figure 4.3 de cette thèse. Dans les deux colonnes de gauche on donne la composition des NL présents dans la région du combustible pour les deux cœurs, de "start-up" et à l'équilibre, définis au cours de ce benchmark. Les trois colonnes de droite donnent la composition des structure et du caloporteur pour les trois régions du cœur; ces valeurs sont les mêmes pour les deux configurations étudiées.

	Combust	ible (NL)		Combustible	Réflecteur	Cible
	Equilibre	Start-Up				
²³² U	6.214E-10		⁹⁰ Zr	3.847E-03		
²³³ U	6.524E-09		⁹¹ Zr	8.465E-04		
²³⁴ U	1.039E-04		⁹² Zr	1.285E-03		
²³⁵ U	1.895E-05		⁹⁴ Zr	1.292E-03		
²³⁶ U	1.018E-05		⁹⁶ Zr	2.064E-04		
²³⁷ U	6.214E-09		¹⁵ N	1.058E-02		
²³⁸ U	2.019E-08		⁵⁴ Fe	9.759E-04	2.990E-03	
²³⁷ Np	2.745E-04	4.377E-04	⁵⁶ Fe	1.488E-02	4.560E-02	
²³⁸ Np	2.051E-07		⁵⁷ Fe	3.507E-04	1.075E-03	
²³⁸ Pu	4.147E-04	4.226E-05	⁵⁸ Fe	4.386E-05	1.344E-04	
²³⁹ Pu	9.449E-05	5.051E-04	⁵⁰ Cr	1.128E-04	3.458E-04	
²⁴⁰ Pu	5.293E-04	2.321E-04	⁵² Cr	2.096E-03	6.422E-03	
²⁴¹ Pu	4.330E-05	1.232E-04	⁵³ Cr	2.328E-04	7.134E-04	
²⁴² Pu	1.623E-04	9.102E-05	⁵⁴ Cr	5.682E-05	1.741E-04	
²⁴¹ Am	4.978E-04	8.084E-04	⁵⁸ Ni	6.451E-05	1.977E-04	
²⁴² Am	2.982E-05	1.089E-05	⁶⁰ Ni	2.384E-05	7.305E-05	
^{242m} Am	4.378E-04	5.827E-04	⁶¹ Ni	1.015E-06	3.111E-06	
²⁴³ Am	8.855E-08	4.079E-08	⁶² Ni	3.173E-06	9.724E-06	
²⁴² Cm	3.379E-06	3.326E-06	⁶⁴ Ni	7.792E-07	2.388E-06	
²⁴³ Cm	3.591E-04	2.371E-04	Мо	1.163E-04	3.565E-04	
²⁴⁴ Cm	8.122E-05	3.164E-05	Mn	1.114E-04	3.412E-04	
²⁴⁵ Cm	4.104E-05	5.355E-07	^{182}W	6.984E-06	2.140E-05	
²⁴⁶ Cm	3.682E-06		¹⁸³ W	3.770E-06	1.155E-05	
²⁴⁷ Cm	1.065E-06		¹⁸⁴ W	8.045E-06	2.465E-05	
²⁴⁸ Cm	6.214E-10		¹⁸⁶ W	7.439E-06	2.280E-05	
			Pb	6.360E-03	4.075E-03	1.320E-02
			²⁰⁹ Bi	7.865E-03	5.039E-03	1.632E-02

Tableau B.2.1: Concentrations isotopique dans chaque région du cœur du MAB (en 10²⁴ at/cm³)

Annexe B.3: Composition du combustible des réacteurs du Double Strata

Le Tableau B.3.1 donne l'inventaire massique des TRU pour tous les réacteurs qui composent le premier stratum de la stratégie Double Strata utilisée pour la définition du benchmark. Le Tableau B.3.2 donne le vecteur isotopique des actinides mineurs allant du premier au deuxième stratum dans une situation d'équilibre; on a aussi inclus le vecteur isotopique du combustible en DDV pour les cœurs du MAB de "start-up" et à l'équilibre (Cf. Tableau B.2.1).

	REP-UOX	REP-MOX 1	REP-MOX 2	CAPRA
²³⁷ Np	1.695	0.532	0.526	0.303
²³⁸ Pu	1.184	8.153	10.580	5.131
²³⁹ Pu	14.150	47.790	52.790	49.415
²⁴⁰ Pu	6.503	38.480	46.530	77.362
²⁴¹ Pu	3.451	18.330	21.290	12.435
²⁴² Pu	2.550	19.440	27.360	38.901
²⁴¹ Am	1.104	7.785	9.875	5.847
^{242m} Am	0.003	0.072	0.107	0.159
²⁴³ Am	0.560	4.878	6.227	5.913
²⁴² Cm	0.000	0.000	0.001	0.001
²⁴³ Cm	0.003	0.030	0.033	0.033
²⁴⁴ Cm	0.223	2.700	3.039	2.038
²⁴⁵ Cm	0.020	0.500	0.570	0.225
²⁴⁶ Cm				0.011

Tableau B.3.1: Composition du combustible irradié après 5 ans de refroidissement (kg/TWhe)

Tableau B.3.2: Vecteur isotopique des AM allant au deuxième stratum ("top-up") et composition ducombustible pour le cœur du MAB de "start-up" et à l'équilibre (%)

	Top-up	Start-Up	Equilibre		Top-up	Start-Up	Equilibre
²³⁴ U			3.34%	²⁴¹ Am	38.77%	26.03%	16.02%
²³⁵ U			0.61%	^{242m} Am	0.54%	0.35%	0.96%
²³⁶ U			0.33%	²⁴³ Am	28.37%	18.76%	14.09%
²³⁷ Np	19.02%	14.09%	8.84%	²⁴² Cm	0.00%	0.00%	0.00%
²³⁸ Pu		1.36%	13.35%	²⁴³ Cm	0.16%	0.11%	0.11%
²³⁹ Pu		16.26%	3.04%	²⁴⁴ Cm	11.55%	7.63%	11.56%
²⁴⁰ Pu		7.47%	17.04%	²⁴⁵ Cm	1.56%	1.02%	2.61%
²⁴¹ Pu		3.97%	1.39%	²⁴⁶ Cm	0.03%	0.02%	1.32%
²⁴² Pu		2.93%	5.22%	²⁴⁷ Cm		0.00%	0.12%
				²⁴⁸ Cm		0.00%	0.03%

Annexe B.4: Résultats du benchmark - calculs en DDV

Sections efficaces

Les Tableaux de B.4.1 à B.4.4 donnent les valeurs des sections efficaces microscopiques, condensées en 1 seul groupe énergétique, calculées par les participants au benchmark.

Les Figures B.4.1 et B.4.2 donnent, pour le cœur d'équilibre, les sections efficaces microscopiques de capture et de fission obtenues par PSI/CEA et SCK-CEN en utilisant deux méthodes de condensation différentes: à partir d'un calcul de cellule et à partir des résultats du calcul de cœur.

Les Figures B.4.3 et B.4.4 montrent, enfin, les sections efficaces microscopiques de fission pour le cœur à l'équilibre (les résultats correspondants pour la capture sont présentés directement dans le chapitre 4).

Taux de réactions et traverses de flux

Les Figures de B.4.5 à B.4.8 donnent, pour les cœurs de "start-up" et à l'équilibre, les taux de production et d'absorption des différents isotopes.

Les Figures de B.4.9 à B.4.11 comparent les traverses radiales et axiales du flux neutronique dans le cœur de "start-up". Les résultats correspondants pour le cœur à l'équilibre sont présentés directement dans le chapitre 4.

	ENDF			JI	EF			JEN	DL
	ANL	KAERI	PSI/CEA	SCK-CEN	PSI/CEA	SCK-CEN	RIT	CIEMAT	JAERI
	(cellule)	(cellule)	(cellule)	(cellule)	(cœur)	(cœur)	(cœur)	(cœur)	(cœur)
²³⁴ U	0.491	0.542	0.537	0.494	0.586	0.534	0.538	0.461	0.467
²³⁵ U	0.441	0.491	0.501	0.442	0.544	0.488	0.479	0.486	0.486
²³⁶ U	0.364	0.505	0.497	0.466	0.537	0.500	0.504	0.402	0.404
²³⁷ Np	1.279	1.430	1.384	1.281	1.504	1.385	1.392	1.480	1.481
²³⁸ Np	0.054	0.392	0.157	0.139	0.173	0.153	0.154	0.388	0.390
²³⁸ Pu	0.743	0.498	0.493	0.445	0.536	0.482	0.485	0.590	0.591
²³⁹ Pu	0.378	0.462	0.464	0.406	0.520	0.451	0.455	0.454	0.458
²⁴⁰ Pu	0.408	0.504	0.454	0.451	0.502	0.490	0.494	0.520	0.518
²⁴¹ Pu	0.328	0.516	0.427	0.486	0.455	0.509	0.511	0.440	0.438
²⁴² Pu	0.360	0.442	0.378	0.393	0.414	0.426	0.428	0.438	0.437
²⁴¹ Am	1.387	1.802	1.755	1.648	1.872	1.751	1.758	1.578	1.580
^{242m} Am	0.301	0.510	0.479	0.430	0.499	0.450	0.451	0.505	0.505
²⁴³ Am	1.190	1.569	1.500	1.415	1.618	1.519	1.526	1.418	1.418
²⁴² Cm	0.238	0.463	0.446	0.403	0.499	0.448	0.451	0.456	0.457
²⁴³ Cm	0.187	0.194	0.192	0.169	0.215	0.189	0.191	0.341	0.342
²⁴⁴ Cm	0.697	0.484	0.480	0.450	0.521	0.479	0.481	0.621	0.613
²⁴⁵ Cm	0.265	0.298	0.295	0.267	0.321	0.289	0.291	0.322	0.321
²⁴⁶ Cm	0.183	0.208	0.203	0.187	0.224	0.205	0.207	0.304	0.304
²⁴⁷ Cm	0.271	0.298	0.285	0.269	0.306	0.288	0.289	0.445	0.442
²⁴⁸ Cm	0.198	0.222	0.216	0.199	0.245	0.224	0.226	0.243	0.245

Tableau B.4.1: Sections efficaces de capture à 1 groupe énergétique pour le cœur à l'équilibre

Tableau B.4.2: Sections efficaces de capture à 1 groupe énergétique pour le cœur de "start-up"

	ENDF			JI	EF			JENDL		
	ANL	KAERI	PSI/CEA	SCK-CEN	PSI/CEA	SCK-CEN	RIT	CIEMAT	JAERI	
	(cellule)	(cellule)	(cellule)	(cellule)	(cœur)	(cœur)	(cœur)	(cœur)	(cœur)	
²³⁴ U	-	0.479	0.483	-	-	-	0.482	0.422	0.428	
²³⁵ U	-	0.432	0.447	-	-	-	0.424	0.446	0.446	
²³⁶ U	-	0.454	0.454	-	-	-	0.454	0.362	0.365	
²³⁷ Np	1.164	1.250	1.226	1.128	1.356	1.215	1.225	1.330	1.330	
²³⁸ Np	-	0.352	0.133	-	-	-	0.131	0.358	0.360	
²³⁸ Pu	0.699	0.434	0.428	0.391	0.476	0.424	0.428	0.530	0.532	
²³⁹ Pu	0.331	0.387	0.394	0.343	0.450	0.379	0.384	0.393	0.396	
²⁴⁰ Pu	0.374	0.438	0.395	0.395	0.449	0.431	0.435	0.470	0.470	
²⁴¹ Pu	0.300	0.477	0.388	0.453	0.416	0.472	0.475	0.403	0.401	
²⁴² Pu	0.327	0.381	0.331	0.342	0.371	0.371	0.375	0.395	0.395	
²⁴¹ Am	1.261	1.625	1.588	1.496	1.719	1.584	1.594	1.423	1.426	
^{242m} Am	0.260	0.462	0.416	0.402	0.442	0.419	0.421	0.468	0.468	
²⁴³ Am	1.079	1.386	1.345	1.258	1.473	1.347	1.357	1.281	1.281	
²⁴² Cm	0.205	0.387	0.382	0.339	0.437	0.376	0.380	0.408	0.408	
²⁴³ Cm	0.165	0.162	0.163	0.142	0.187	0.158	0.160	0.310	0.311	
²⁴⁴ Cm	0.643	0.446	0.436	0.415	0.480	0.439	0.442	0.563	0.558	
²⁴⁵ Cm	0.243	0.260	0.256	0.234	0.284	0.253	0.255	0.301	0.300	
²⁴⁶ Cm	0.166	0.180	0.180	0.163	0.201	0.178	0.180	0.271	0.272	
²⁴⁷ Cm	-	0.266	0.255	-	-	-	0.259	0.420	0.417	
²⁴⁸ Cm	-	0.192	0.190	-	-	-	0.195	0.215	0.216	

								1	
	ENDF			Jł	EF			JEN	DL
	ANL	KAERI	PSI/CEA	SCK-CEN	PSI/CEA	SCK-CEN	RIT	CIEMAT	JAERI
	(cellule)	(cellule)	(cellule)	(cellule)	(cœur)	(cœur)	(cœur)	(cœur)	(cœur)
²³⁴ U	0.379	0.329	0.368	0.374	0.350	0.356	0.355	0.328	0.339
²³⁵ U	1.715	1.810	1.791	1.717	1.873	1.786	1.792	1.787	1.792
²³⁶ U	0.106	0.093	0.108	0.108	0.102	0.103	0.102	0.096	0.099
²³⁷ Np	0.371	0.315	0.355	0.363	0.336	0.344	0.342	0.341	0.353
²³⁸ Np	0.355	2.089	3.283	3.172	3.401	3.284	3.291	2.080	2.088
²³⁸ Pu	1.172	1.101	1.142	1.142	1.135	1.131	1.131	1.119	1.135
²³⁹ Pu	1.697	1.758	1.776	1.731	1.819	1.765	1.769	1.741	1.753
²⁴⁰ Pu	0.423	0.375	0.398	0.418	0.381	0.401	0.400	0.376	0.388
²⁴¹ Pu	2.265	2.397	2.345	2.282	2.445	2.371	2.379	2.399	2.399
²⁴² Pu	0.304	0.261	0.279	0.300	0.264	0.285	0.284	0.267	0.277
²⁴¹ Am	0.306	0.252	0.289	0.292	0.273	0.277	0.276	0.269	0.279
^{242m} Am	3.485	2.960	3.093	2.851	3.221	2.965	2.975	2.944	2.948
²⁴³ Am	0.242	0.195	0.226	0.228	0.212	0.215	0.214	0.194	0.202
²⁴² Cm	0.173	0.583	0.629	0.638	0.607	0.615	0.614	0.737	0.753
²⁴³ Cm	2.350	3.116	3.080	2.980	3.198	3.082	3.092	2.854	2.862
²⁴⁴ Cm	0.481	0.419	0.470	0.476	0.449	0.453	0.452	0.431	0.445
²⁴⁵ Cm	2.146	2.551	2.571	2.432	2.679	2.525	2.533	2.515	2.521
²⁴⁶ Cm	0.306	0.256	0.295	0.299	0.278	0.282	0.281	0.272	0.281
²⁴⁷ Cm	1.928	1.917	1.923	1.927	1.924	1.925	1.927	2.203	2.211
²⁴⁸ Cm	0.345	0.294	0.334	0.337	0.317	0.321	0.319	0.297	0.308

Tableau B.4.3: Sections efficaces de fission à 1 groupe énergétique pour le cœur à l'équilibre

Tableau B.4.4: Sections efficaces de fission à 1 groupe énergétique pour le cœur de "start-up"

	ENDF			JI	EF			JEN	DL
	ANL	KAERI	PSI/CEA	SCK-CEN	PSI/CEA	SCK-CEN	RIT	CIEMAT	JAERI
	(cellule)	(cellule)	(cellule)	(cellule)	(cœur)	(cœur)	(cœur)	(cœur)	(cœur)
²³⁴ U	-	0.358	0.402	-	-	-	0.384	0.351	0.360
²³⁵ U	-	1.688	1.679	-	-	-	1.680	1.697	1.701
²³⁶ U	-	0.102	0.119	-	-	-	0.111	0.103	0.106
²³⁷ Np	0.400	0.345	0.390	0.392	0.362	0.374	0.372	0.365	0.374
²³⁸ Np	-	1.956	3.067	-	-	-	3.107	1.977	1.983
²³⁸ Pu	1.198	1.119	1.168	1.162	1.150	1.150	1.149	1.133	1.146
²³⁹ Pu	1.673	1.708	1.726	1.691	1.761	1.717	1.721	1.702	1.710
²⁴⁰ Pu	0.450	0.401	0.430	0.444	0.404	0.428	0.426	0.398	0.407
²⁴¹ Pu	2.172	2.248	2.208	2.157	2.311	2.230	2.239	2.282	2.282
²⁴² Pu	0.329	0.285	0.307	0.324	0.284	0.309	0.308	0.286	0.294
²⁴¹ Am	0.332	0.275	0.318	0.315	0.293	0.301	0.299	0.289	0.297
^{242m} Am	3.296	2.782	2.803	2.688	2.947	2.784	2.795	2.807	2.810
²⁴³ Am	0.263	0.214	0.251	0.248	0.229	0.235	0.234	0.210	0.215
²⁴² Cm	0.190	0.620	0.672	0.674	0.638	0.653	0.650	0.762	0.776
²⁴³ Cm	2.257	2.945	2.931	2.836	3.054	2.922	2.933	2.713	2.720
²⁴⁴ Cm	0.515	0.454	0.511	0.510	0.478	0.489	0.487	0.456	0.468
²⁴⁵ Cm	2.031	2.388	2.400	2.296	2.513	2.374	2.383	2.399	2.404
²⁴⁶ Cm	0.334	0.281	0.327	0.324	0.300	0.308	0.306	0.289	0.297
²⁴⁷ Cm	-	1.927	1.931	-	-	-	1.935	2.144	2.150
²⁴⁸ Cm	-	0.320	0.366	-	-	-	0.345	0.317	0.326



Figure B.4.1: Comparaison des méthodes de condensation: (a) Sections efficaces de capture de l'uranium, du neptunium et du plutonium

(b) Sections efficaces de capture de l'américium et du curium





Figure B.4.2: Comparaison des méthodes de condensation: (a) Sections efficaces de fission de l'uranium, du neptunium et du plutonium

(b) Sections efficaces de fission de l'américium et du curium





Figure B.4.3: Sections efficaces de fission à pour le cœur à l'équilibre (U, Np et Pu): (a) Calcul de cellule

(b) Calcul de cœur





Figure B.4.4: Sections efficaces de fission à pour le cœur à l'équilibre (Am et Cm): (a) Calcul de cellule

(b) Calcul de cœur





Figure B.4.5: Taux de production pour le cœur de "start-up"

Figure B.4.6: Taux de production pour le cœur à l'équilibre





Figure B.4.7: Taux d'absorption pour le cœur de "start-up"

Figure B.4.8: Taux d'absorption pour le cœur à l'équilibre





Figure B.4.9: Traverse radiale du cœur à Z = 100 cm (cœur de "start-up")

Figure B.4.10: Traverse axiale du cœur à R = 0 cm (cœur de "start-up")





Figure B.4.11: Traverse axiale du cœur à R = 56 cm (cœur de "start-up")

Annexe B.5: Etude de sensibilité de KAERI

Le Tableau B.5.1 montre les résultats principaux de l'étude de sensibilité aux données de base effectuée par KAERI dans le cadre du benchmark sur le MAB. On donne ici la variation du k_{eff} en DDV du cœur de "start-up" (géométrie simplifiée) associé à la substitution systématique, pour chaque actinide, pour le ¹⁵N, le Pb et le ²⁰⁹Bi, des données de base de référence (ENDF/B-VI) par des évaluations JEF 2.2 ou JENDL 3.2. Le cœur de référence a un k_{eff} de 1.00007.

		JEF 2.2		JENDL 3.2				
	k _{eff}	Δk (pcm)	$\Delta k/atome^1$	$\mathbf{k}_{\mathbf{eff}}$	Δk (pcm)	∆k/atome ¹		
²³⁷ Np	0.998257	-181	-4.14	0.997425	-265	-6.05		
²⁴¹ Am	0.986861	-1321	-16.34	0.99744	-263	-3.25		
^{242m} Am	0.996619	-345	-316.8	0.997574	-250	-229.57		
²⁴³ Am	0.992768	-730	-12.53	0.99502	-505	-8.67		
²⁴² Cm	1.00008	1	245.16	1.00008	1	245.16		
²⁴³ Cm	1.00102	95	285.63	1.00065	58	174.38		
²⁴⁴ Cm	1.00118	111	4.68	0.999148	-92	-3.88		
²⁴⁵ Cm	1.00675	668	211.13	1.00266	259	81.86		
²⁴⁶ Cm	-	-	-	1.00006	-1	-18.67		
²³⁸ Pu	1.00073	66	15.62	1.00067	60	14.2		
²³⁹ Pu	0.996104	-397	-7.86	0.999828	-24	-0.48		
²⁴⁰ Pu	0.998555	-152	-6.55	0.997618	-245	-10.56		
²⁴¹ Pu	0.999424	-65	-5.28	1.00114	107	8.69		
²⁴² Pu	1.00007	0	0	1.00007	0	0		
¹⁵ N	0.995843	-423	-	0.99551	-456	-		
²⁰⁹ Bi	0.99934	-73	-	0.999303	-77	-		
Pbnat	1.00687	680	-	0.988994	-1108	-		
NL	-	-2250	-	-	-1160	-		
Total	-	-2066	-	-	-2801	-		

Tableau B.5.1: Effet sur le k_{eff} de la substitution des données de base pour les principaux isotopes (cœur de "start-up" en DDV)

¹ exprimé en 1E-24

Annexe B.6: Résultats du benchmark - calculs d'évolution

Coefficient de multiplication homogène

Tableau B.6.1: Principales caractéristiques des calculs d'évolution pour le cœur de "start-up"

Temps (ans)	0	1	2	3	4	5
		Coeffi	cient de multi	iplication hom	logène	
ANL	0.9855	0.9702	0.9592	0.9471	0.9329	0.9163
CIEMAT	0.9575	0.9482	0.9414	0.9350	0.9253	0.9163
KAERI	0.9455	0.9425	0.9371	0.9296	0.9193	0.9060
JAERI	0.9650	0.9572	0.9502	0.9426	0.9341	0.9244
PSI/CEA	0.9480	0.9393	0.9332	0.9269	0.9198	0.9115
RIT (JEF)	0.9590	0.9520	0.9460	0.9400	0.9290	0.9200
RIT (JENDL)	0.9624	0.9511	0.9407	0.9299	0.9179	0.9065
SCK-CEN	0.9590	0.9471	0.9389	0.9318	0.9259	0.9178
	(Coefficient de	multiplication	ı homogène dı	ı cœur sans P	F
ANL	0.9855	0.9773	0.9740	0.9703	0.9649	0.9576
CIEMAT	0.9575	0.9515	0.9476	0.9423	0.9391	0.9298
KAERI	0.9455	0.9476	0.9483	0.9482	0.9462	0.9424
JAERI	0.9650	0.9617	0.9596	0.9574	0.9547	0.9512
PSI/CEA	0.9480	0.9479	0.9443	0.9435	0.9431	0.9404
RIT (JEF)	0.9598	0.9590	0.9610	0.9600	0.9610	0.9560
RIT (JENDL)	0.9620	0.9550	0.9510	0.9500	0.9450	0.9410
SCK-CEN	0.9590	0.9537	0.9503	0.9474	0.9441	0.9432
		Intensité d	le la source de	e neutrons ext	ernes (n/s)	
ANL	6.10E+17	1.29E+18	1.81E+18	2.40E+18	3.16E+18	4.12E+18
CIEMAT	1.65E+18	1.99E+18	2.25E+18	2.59E+18	2.97E+18	3.51E+18
KAERI	4.11E+18	4.34E+18	4.75E+18	5.34E+18	6.18E+18	7.33E+18
JAERI	1.25E+18	1.61E+18	1.84E+18	2.14E+18	2.48E+18	2.88E+18
PSI/CEA	2.26E+18	2.67E+18	2.95E+18	3.23E+18	3.56E+18	3.96E+18
RIT (JEF)	2.54E+18	2.57E+18	3.32E+18	3.46E+18	4.06E+18	4.83E+18
SCK-CEN	2.29E+18	2.90E+18	3.36E+18	3.83E+18	4.18E+18	4.54E+18

Temps (ans)	0	1	2	3	4	5		
	Coefficient de multiplication homogène							
ANL	0.9689	0.9699	0.9685	0.9617	0.9497	0.9331		
CIEMAT	0.9367	0.9493	0.9534	0.9534	0.9488	0.9407		
KAERI	0.9417	0.9518	0.9537	0.9496	0.9399	0.9256		
JAERI	0.9494	0.9564	0.9597	0.9589	0.9544	0.9463		
PSI/CEA	0.9437	0.9467	0.9484	0.9470	0.9423	0.9343		
RIT	0.9570	0.9630	0.9620	0.9620	0.9540	0.9400		
SCK-CEN	0.9551	0.9587	0.9586	0.9610	0.9589	0.9498		
	Coefficient de multiplication homogène du cœur sans PF							
ANL	0.9689	0.9779	0.9852	0.9878	0.9858	0.9796		
CIEMAT	0.9367	0.9506	0.9572	0.9633	0.9596	0.9545		
KAERI	0.9417	0.9579	0.9674	0.9721	0.9724	0.9688		
JAERI	0.9494	0.9614	0.9704	0.9757	0.9778	0.9768		
PSI/CEA	0.9437	0.9527	0.9610	0.9667	0.9695	0.9694		
RIT	0.9569	0.9704	0.9759	0.9830	0.9870	0.9840		
SCK-CEN	0.9551	0.9628	0.9667	0.9730	0.9734	0.9719		
		Intensité d	le la source de	e neutrons ext	ernes (n/s)			
ANL	1.39E+18	1.33E+18	1.39E+18	1.70E+18	2.30E+18	3.18E+18		
CIEMAT	2.54E+18	1.96E+18	1.78E+18	1.75E+18	1.95E+18	2.38E+18		
KAERI	4.49E+18	3.77E+18	3.64E+18	3.95E+18	4.67E+18	5.80E+18		
JAERI	1.94E+18	1.63E+18	1.48E+18	1.50E+18	1.67E+18	2.00E+18		
PSI/CEA	2.55E+18	2.38E+18	2.27E+18	2.31E+18	2.52E+18	2.86E+18		
RIT	2.70E+18	2.23E+18	1.99E+18	1.93E+18	2.77E+18	3.39E+18		
SCK-CEN	2.47E+18	2.21E+18	2.24E+18	2.07E+18	2.20E+18	2.64E+18		

Tableau B.6.2: Principales caractéristiques des calculs d'évolution pour le cœur à l'équilibre



Intensité de la source externe de neutrons

Figure B.6.1 Intensité de la source externe pour le cœur de "start-up" (valeurs corrigées pour le k_{eff})

Figure B.6.2 Intensité de la source externe pour le cœur à l'équilibre (valeurs corrigées pour le keff)



Composition du combustible en FDI

	ANL	CIEMAT	JAERI	KAERI	PSI/CEA	RIT	SCK CEN
²³⁴ U	5.236E-06	5.469E-06	5.721E-06	5.927E-06	6.120E-06	6.053E-06	5.606E-06
²³⁵ U	3.376E-07	3.160E-07	3.050E-07	3.840E-07	3.727E-07	4.062E-07	2.524E-07
²³⁶ U	1.506E-07	1.430E-07	1.369E-07	2.242E-08	1.404E-07	1.481E-07	8.712E-09
²³⁷ Np	2.695E-04	2.648E-04	2.605E-04	2.464E-04	2.658E-04	2.483E-04	2.553E-04
²³⁸ Np	1.900E-07	1.974E-07	2.051E-07	2.091E-07	-	2.244E-07	-
²³⁸ Pu	2.328E-04	2.442E-04	2.584E-04	2.730E-04	2.847E-04	2.813E-04	3.328E-04
²³⁹ Pu	3.025E-04	2.953E-04	2.856E-04	2.664E-04	2.822E-04	2.605E-04	2.703E-04
²⁴⁰ Pu	2.639E-04	2.631E-04	2.644E-04	2.610E-04	2.722E-04	2.637E-04	2.176E-04
²⁴¹ Pu	6.522E-05	6.705E-05	6.551E-05	6.175E-05	6.475E-05	6.093E-05	5.919E-05
²⁴² Pu	1.162E-04	1.175E-04	1.185E-04	1.159E-04	1.236E-04	1.254E-04	8.449E-05
²⁴¹ Am	4.960E-04	4.912E-04	4.833E-04	4.280E-04	4.555E-04	4.185E-04	4.321E-04
^{242m} Am	3.219E-05	3.585E-05	3.802E-05	3.966E-05	3.202E-05	4.626E-05	2.288E-05
²⁴³ Am	3.875E-04	3.819E-04	3.785E-04	3.440E-04	3.626E-04	3.420E-04	3.460E-04
²⁴² Cm	2.014E-05	2.011E-05	2.103E-05	2.371E-05	2.466E-05	2.397E-05	3.272E-05
²⁴³ Cm	2.554E-06	3.037E-06	2.896E-06	3.288E-06	3.479E-06	3.172E-06	3.905E-06
²⁴⁴ Cm	2.687E-04	2.869E-04	2.918E-04	3.118E-04	3.081E-04	3.178E-04	3.140E-04
²⁴⁵ Cm	5.515E-05	4.747E-05	4.675E-05	4.284E-05	4.174E-05	4.293E-05	4.223E-05
²⁴⁶ Cm	4.123E-06	4.148E-06	3.857E-06	3.946E-06	3.370E-06	3.760E-06	3.581E-06
²⁴⁷ Cm	1.153E-07	1.758E-07	1.418E-07	1.273E-07	9.223E-08	1.102E-07	9.743E-08
²⁴⁸ Cm	4.600E-09	1.201E-08	6.865E-09	5.785E-09	2.937E-09	3.947E-09	3.265E-09

Tableau B.6.3: Composition isotopique du cœur de "start-up" en FDI (atomes/barn·cm)

Tableau B.6.4: Composition isotopique du cœur à l'équilibre en FDI (atomes/barn·cm)

	ANL	CIEMAT	JAERI	KAERI	PSI/CEA	RIT	SCK CEN
²³⁴ U	9.140E-05	9.393E-05	9.370E-05	8.815E-05	9.141E-05	8.776E-05	8.967E-05
²³⁵ U	2.078E-05	1.951E-05	1.971E-05	2.089E-05	2.143E-05	2.123E-05	2.129E-05
²³⁶ U	1.182E-05	1.176E-05	1.175E-05	1.146E-05	1.178E-05	1.173E-05	1.383E-05
²³⁷ Np	1.620E-04	1.558E-04	1.529E-04	1.461E-04	1.563E-04	1.445E-04	1.472E-04
²³⁸ Np	1.251E-07	1.309E-07	1.345E-07	1.361E-07	-	1.479E-07	1.255E-07
²³⁸ Pu	3.563E-04	3.826E-04	3.868E-04	3.905E-04	4.126E-04	3.929E-04	4.336E-04
²³⁹ Pu	1.190E-04	1.024E-04	1.025E-04	9.270E-05	9.584E-05	9.326E-05	9.565E-05
²⁴⁰ Pu	4.743E-04	4.650E-04	4.642E-04	4.523E-04	4.739E-04	4.508E-04	3.971E-04
²⁴¹ Pu	5.656E-05	6.234E-05	6.349E-05	6.121E-05	6.094E-05	6.314E-05	5.891E-05
²⁴² Pu	1.589E-04	1.595E-04	1.596E-04	1.553E-04	1.644E-04	1.613E-04	1.345E-04
²⁴¹ Am	2.898E-04	2.817E-04	2.770E-04	2.465E-04	2.591E-04	2.364E-04	2.443E-04
^{242m} Am	2.694E-05	3.078E-05	3.157E-05	3.193E-05	2.664E-05	3.482E-05	2.084E-05
²⁴³ Am	2.880E-04	2.807E-04	2.783E-04	2.534E-04	2.643E-04	2.484E-04	2.510E-04
²⁴² Cm	1.295E-05	1.310E-05	1.354E-05	1.490E-05	1.580E-05	1.517E-05	2.084E-05
²⁴³ Cm	2.187E-06	2.493E-06	2.380E-06	2.618E-06	2.963E-06	2.571E-06	3.188E-06
²⁴⁴ Cm	3.118E-04	3.324E-04	3.361E-04	3.545E-04	3.550E-04	3.593E-04	3.587E-04
²⁴⁵ Cm	9.057E-05	7.973E-05	7.836E-05	6.923E-05	7.018E-05	6.916E-05	6.938E-05
²⁴⁶ Cm	4.271E-05	4.179E-05	4.157E-05	4.187E-05	4.208E-05	4.192E-05	4.193E-05
²⁴⁷ Cm	3.841E-06	4.435E-06	4.367E-06	3.804E-06	3.966E-06	3.942E-06	3.951E-06
²⁴⁸ Cm	1.217E-06	1.452E-06	1.428E-06	1.233E-06	1.234E-06	1.253E-06	1.245E-06

Annexe B.7: Décomposition du bêta effectif

Le Tableau B.7.1 donne la décomposition, en DDV, du bêta effectif par isotope pour les deux cœurs analysés au cours du benchmark.

		Cœur de '	"start-up"		Cœur à l'équilibre			
	ANL	JAERI	PSI	CIEMAT	ANL	JAERI	PSI	CIEMAT
²³³ U	-	-	-	-	0.001	0.001	0.001	-
²³⁴ U	-	-	-	-	5.599	5.606	4.692	5.496
²³⁵ U	-	-	-	-	6.313	6.320	6.568	8.087
²³⁶ U	-	-	-	-	0.273	0.285	0.297	0.302
²³⁷ Np	19.361	19.567	22.564	28.803	12.072	12.088	13.810	18.269
²³⁸ Np	-	-	-	-	-	0.021	0.129	0.085
²³⁸ Pu	2.267	2.176	2.440	3.849	22.851	22.197	25.014	37.026
²³⁹ Pu	59.407	58.686	61.205	83.345	11.782	11.805	12.586	17.478
²⁴⁰ Pu	9.700	9.775	9.605	12.679	22.192	22.241	21.726	29.721
²⁴¹ Pu	48.304	47.230	46.660	69.745	18.399	18.343	18.560	28.005
²⁴² Pu	5.489	6.074	5.856	7.467	9.728	10.658	10.191	13.342
²⁴¹ Am	11.510	11.722	10.948	17.497	7.030	7.073	6.570	10.884
^{242m} Am	-	2.720	2.025	3.184	-	8.367	6.532	10.057
²⁴³ Am	-	11.578	13.763	4.021	-	8.519	10.019	3.007
²⁴² Cm	-	-	-	0.001	-	-	-	0.003
²⁴³ Cm	-	-	0.237	0.451	-	-	0.269	0.521
²⁴⁴ Cm	-	-	4.601	7.422	-	-	6.864	11.709
²⁴⁵ Cm	-	4.106	4.111	8.117	-	11.794	12.047	23.619
²⁴⁶ Cm	-	-	-	0.020	-	-	-	1.773
²⁴⁷ Cm	-	-	-	-	-	-	-	1.955
²⁴⁸ Cm	-	-	-	-	-	-	-	0.093
Total	156.038	173.534	184.015	246.241	116.241	145.176	155.874	221.431

Tableau B.7.1: Contribution de chaque isotope au $\beta_{eff}(pcm)$

Annexe C (Chapitre 5)

Annexe C.1: Modèles R-Z simplifiés des réacteurs à spectre rapide
Cœur CAPRA HBU
Cœur IFR Sousgénérateur (CR=0.5)
Cœur IFR Isogénérateur (CR=1)
Cœur ATW
Cœur MAB
Annexe C.2: Bilan massique des réacteurs à l'équilibre
Cœur REP - UOX
Cœur REP - MOX
Cœur CAPRA HBU
Cœur IFR Sousgénérateur (CR = 0.5)
Cœur IFR Isogénérateur (CR = 1)
Cœur ATW
Cœur MAB
Annexe C.3: Contribution de chaque réacteur du parc à la radiotoxicité globale
Annexe C.4: Décomposition de la radiotoxicité par noyau
Annexe C.5: Etude des caractéristiques du combustible
Activité du combustible en fonction du temps de refroidissement
Annexe C.6: Etudes paramétriques
Schéma 3b: Variation du taux de combustion moyen du réacteur hybride
Double Strata: Variation du taux de pertes au retraitement
Performances des scénarios de transmutation pour une valeur plus élevée du taux de pertes au
retraitement pyrochimique
Annexe C.7: Radiotoxicité de l'inventaire massique du combustible à l'équilibre
Annexe C.1: Modèles R-Z simplifiés des réacteurs à spectre rapide

Cœur CAPRA HBU

Le cœur CAPRA HBU est constitué par un réseau de 678 assemblages de forme hexagonale disposés en 16 couronnes concentriques; le pas du réseau est de 18.1 cm. Les premières 13 couronnes contiennent 366 assemblages de combustible, dont 168 moins enrichis en plutonium occupant la région interne et 198 plus enrichis placés à l'extérieur, 42 assemblages de diluants et 33 assemblages de contrôle. Le cœur est entouré par 238 assemblages de réflecteur. Chaque assemblage de combustible est composé par 387 aiguilles contenant de la matière fissile et par 82 aiguilles contenant du carbure de bore (¹¹B₄C) comme modérateur, ce qui thermalise quelque peu le spectre neutronique. Les pastilles de combustible ont une forme annulaire, avec un diamètre interne de 1.5 mm et un diamètre externe de 5.27 mm et sont entourées par une gaine qui a un diamètre externe de 6.35 mm. Chaque assemblage mesure 334 cm de haut avec une longueur active du combustible de 1 m.







Le cœur a été représenté en 2D en utilisant le modèle cylindrique montré dans la Figure C.1.1. Pour le calcul de cellule, le combustible a été décrit par un modèle à deux zones cylindriques, tandis que les autres assemblages de diluant et de contrôle, ainsi que le réflecteur axial et radial, ont été modélisés de façon homogène. Les Tables C.1.1 et C.2.2. donnent la composition de chaque région du cœur à l'équilibre: les densités atomiques sont exprimées en 10^{24} at/cm³ pour une température de 20 °C.

	C1	C2		C1 /	′ C2	
²³³ U	1.06E-09	1.06E-09	0	1.21E-02	⁵⁴ Cr	6.23E-05
²³⁴ U	1.32E-05	1.31E-05	¹¹ B	6.36E-03	⁵⁸ Ni	1.36E-03
²³⁵ U	5.61E-06	5.35E-06	С	1.59E-03	⁶⁰ Ni	5.02E-04
²³⁶ U	7.88E-06	7.85E-06	Na	8.08E-03	⁶¹ Ni	2.14E-05
²³⁸ U	3.42E-03	3.31E-03	⁵⁴ Fe	9.29E-04	⁶² Ni	6.68E-05
²³⁸ Pu	8.26E-05	8.86E-05	⁵⁶ Fe	1.42E-02	⁶⁴ Ni	1.64E-05
²³⁹ Pu	8.04E-04	8.47E-04	⁵⁷ Fe	3.34E-04	Мо	1.59E-04
²⁴⁰ Pu	1.06E-03	1.09E-03	⁵⁸ Fe	4.18E-05	Ti	6.10E-05
²⁴¹ Pu	2.09E-04	2.24E-04	⁵⁰ Cr	1.24E-04	Si	2.67E-04
²⁴² Pu	4.71E-04	4.85E-04	⁵² Cr	2.30E-03	Mn	2.38E-04
²⁴⁴ Pu	4.70E-08	4.87E-08	⁵³ Cr	2.55E-04		

Tableau C.1.1: Composition du combustible à l'équilibre $(10^{24} \text{ at/cm}^3)$

Tableau C.1.2: Concentrations dans les autres régions du cœur (10²⁴ at/cm³)

	R1	R2	R3	R4	D	S	R5
⁵⁴ Fe	1.57E-03	9.23E-04	3.43E-04	2.61E-03	6.48E-04	3.43E-04	2.61E-03
⁵⁶ Fe	2.40E-02	1.41E-02	5.23E-03	3.98E-02	9.88E-03	5.23E-03	3.98E-02
⁵⁷ Fe	5.66E-04	3.32E-04	1.23E-04	9.37E-04	2.33E-04	1.23E-04	9.37E-04
⁵⁸ Fe	7.08E-05	4.15E-05	1.54E-05	1.17E-04	2.91E-05	1.54E-05	1.17E-04
⁵⁰ Cr	2.10E-04	1.23E-04	4.56E-05	3.47E-04	8.63E-05	4.56E-05	3.47E-04
⁵² Cr	3.89E-03	2.28E-03	8.48E-04	6.45E-03	1.60E-03	8.48E-04	6.45E-03
⁵³ Cr	4.33E-04	2.54E-04	9.42E-05	7.16E-04	1.78E-04	9.42E-05	7.16E-04
⁵⁴ Cr	1.06E-04	6.19E-05	2.30E-05	1.75E-04	4.35E-05	2.30E-05	1.75E-04
⁵⁸ Ni	2.30E-03	1.35E-03	5.01E-04	3.81E-03	9.48E-04	5.01E-04	3.81E-03
⁶⁰ Ni	8.51E-04	4.99E-04	1.85E-04	1.41E-03	3.50E-04	1.85E-04	1.41E-03
⁶¹ Ni	3.62E-05	2.12E-05	7.89E-06	6.00E-05	1.49E-05	7.89E-06	6.00E-05
⁶² Ni	1.13E-04	6.64E-05	2.46E-05	1.88E-04	4.66E-05	2.46E-05	1.88E-04
⁶⁴ Ni	2.78E-05	1.63E-05	6.05E-06	4.60E-05	1.14E-05	6.05E-06	4.60E-05
Мо	2.69E-04	1.58E-04	5.86E-05	4.46E-04	1.11E-04	5.86E-05	4.46E-04
Ti	1.03E-04	6.06E-05	2.25E-05	1.71E-04	4.25E-05	2.25E-05	1.71E-04
Si	4.52E-04	2.65E-04	9.84E-05	7.49E-04	1.86E-04	9.84E-05	7.49E-04
Mn	4.04E-04	2.37E-04	8.80E-05	6.69E-04	1.66E-04	8.80E-05	6.69E-04
Na	8.26E-03	8.26E-03	1.99E-02	6.78E-03	6.09E-03	1.99E-02	6.78E-03

Cœur IFR Sousgénérateur (CR=0.5)

Le cœur IFR optimisé pour l'incinération du Pu est constitué par 757 assemblages de forme hexagonale disposés en 17 couronnes concentriques; le pas du réseau est de 15.6 cm. Les premières 3 couronnes sont composées par des assemblages de réflecteur entourés par une couronne d'assemblages absorbants contenant du carbure de bore; cette région centrale est entourée par 420 assemblages de combustible et par 30 assemblages de contrôle. A la périphérie du cœur on a enfin positionné 86 assemblages de réflecteur et 186 assemblages de protection neutronique radiale. Chaque assemblage de combustible, qui mesure 160 cm, est divisé en 4 régions axiales: une protection inférieure de 30 cm d'épaisseur qui contient du carbure de bore, une couche de 15 cm de réflecteur, 45 cm de combustible et enfin un plénum supérieur de 70 cm.

La modélisation du cœur, en R-Z, utilisée pour les calculs est montrée dans la Figure C.1.2. En accord avec les spécifications du benchmark, toutes les régions du cœur ont été modélisées de façon homogène pour le calcul de cellule. La composition isotopique de chaque région, exprimée en 10^{24} at/cm³, est montrée dans les Tableaux C.1.2 et C.1.3 pour le cœur à l'équilibre et pour une température de 20°C.





_					_		
				IF			
²³² Th	1.73E-11	²³⁹ Pu	1.34E-03	²⁴⁶ Cm	5.78E-06	⁵⁸ Ni	6.74E-05
²³¹ Pa	7.86E-14	²⁴⁰ Pu	1.12E-03	²⁴⁷ Cm	4.12E-07	⁶⁰ Ni	2.58E-05
²³³ Pa	2.15E-12	²⁴¹ Pu	2.16E-04	²⁴⁸ Cm	1.65E-07	⁶¹ Ni	1.12E-06
²³² U	1.53E-12	²⁴² Pu	3.80E-04	Na	7.64E-03	⁶² Ni	3.54E-06
²³³ U	3.07E-09	²⁴⁴ Pu	1.47E-11	⁵⁴ Fe	1.04E-03	⁶⁴ Ni	8.98E-07
²³⁴ U	2.43E-05	²⁴¹ Am	1.19E-04	⁵⁶ Fe	1.64E-02	Mo	1.21E-04
²³⁵ U	8.97E-06	²⁴² Am	8.82E-11	⁵⁷ Fe	3.94E-04	Mn	4.22E-05
²³⁶ U	9.24E-06	^{242m} Am	6.81E-06	⁵⁸ Fe	5.01E-05	⁹⁰ Zr	1.64E-03
²³⁷ U	1.00E-15	²⁴³ Am	9.97E-05	⁵⁰ Cr	1.16E-04	⁹¹ Zr	3.61E-04
²³⁸ U	7.41E-03	²⁴² Cm	2.98E-07	⁵² Cr	2.24E-03	⁹² Zr	5.48E-04
²³⁷ Np	1.05E-04	²⁴³ Cm	7.67E-07	⁵³ Cr	2.54E-04	⁹⁴ Zr	5.51E-04
²³⁹ Np	7.37E-11	²⁴⁴ Cm	7.58E-05	⁵⁴ Cr	6.31E-05	⁹⁶ Zr	8.80E-05
²³⁸ Pu	1.62E-04	²⁴⁵ Cm	1.35E-05				

Tableau C.1.3: Composition du combustible à l'équilibre $(10^{24} \text{ at/cm}^3)$

Tableau C.1.4: Concentrations dans les autres régions du cœur $(10^{24} \text{ at/cm}^3)$

	P1	P2	Ε	R2	R 1	R3	G
⁵⁴ Fe	6.84E-04	8.79E-04	8.15E-04	2.80E-03	1.04E-03	3.53E-03	2.82E-04
⁵⁶ Fe	1.08E-02	1.39E-02	1.29E-02	4.42E-02	1.64E-02	5.58E-02	4.46E-03
⁵⁷ Fe	2.59E-04	3.34E-04	3.09E-04	1.06E-03	3.94E-04	1.34E-03	1.07E-04
⁵⁸ Fe	3.30E-05	4.24E-05	3.93E-05	1.35E-04	5.01E-05	1.70E-04	1.36E-05
⁵⁰ Cr	7.64E-05	9.82E-05	9.11E-05	3.13E-04	1.16E-04	3.95E-04	3.15E-05
⁵² Cr	1.48E-03	1.90E-03	1.76E-03	6.04E-03	2.24E-03	7.62E-03	6.09E-04
⁵³ Cr	1.67E-04	2.15E-04	1.99E-04	6.83E-04	2.54E-04	8.63E-04	6.89E-05
⁵⁴ Cr	4.16E-05	5.34E-05	4.96E-05	1.70E-04	6.31E-05	2.15E-04	1.71E-05
⁵⁸ Ni	4.44E-05	5.70E-05	5.29E-05	1.81E-04	6.74E-05	2.29E-04	1.83E-05
⁶⁰ Ni	1.70E-05	2.18E-05	2.02E-05	6.94E-05	2.58E-05	8.76E-05	7.00E-06
⁶¹ Ni	7.34E-07	9.43E-07	8.76E-07	3.00E-06	1.12E-06	3.79E-06	3.03E-07
⁶² Ni	2.33E-06	3.00E-06	2.78E-06	9.54E-06	3.54E-06	1.20E-05	9.62E-07
⁶⁴ Ni	5.91E-07	7.59E-07	7.05E-07	2.42E-06	8.98E-07	3.05E-06	2.44E-07
Мо	7.95E-05	1.02E-04	9.49E-05	3.25E-04	1.21E-04	4.11E-04	3.28E-05
Mn	2.78E-05	3.57E-05	3.31E-05	1.14E-04	4.22E-05	1.43E-04	1.15E-05
Na	7.75E-03	3.55E-03	6.07E-03	7.75E-03	1.68E-02	3.55E-03	2.08E-02
¹⁰ B	9.28E-03	9.50E-03	8.02E-03				
¹¹ B	3.76E-02	3.84E-02	3.25E-02				
С	1.17E-02	1.20E-02	1.01E-02				

Cœur IFR Isogénérateur (CR=1)

Le cœur IFR isogénérateur est constitué par 939 assemblages de forme hexagonale ayant un pas de réseau de 15.7 cm. Les premières 3 couronnes sont constituées par des assemblages fertiles entourés par une couronne d'assemblages absorbants contenant du carbure de bore; autour de cette île centrale on a disposé 420 assemblages de combustible et 30 assemblages de contrôle. La région multiplicatrice du cœur est entourée par une couronne d'assemblages fertiles, une couronne d'assemblages de réflecteur radial et par 198 assemblages de protection neutronique radiale.

Les assemblages de combustible ont les mêmes caractéristiques que ceux du cœur IFR décrit précédemment sauf que la protection inférieure et le réflecteur ont été remplacés par des couvertures axiales. Les assemblages fertiles sont divisés en deux régions: la partie inférieure contient du matériel fertile tandis que la partie supérieure est constituée par du réflecteur.

La modélisation du cœur en 2D est donnée dans la Figure C.1.3 et la composition des différentes régions du cœur est montrée dans les tables suivantes pour une température de 20°C. Pour le calcul de cellule, on a appliqué les mêmes approximations utilisées pour le réacteur IFR sousgénérateur décrit précédemment.





	C1		C1	C2	C3
232	CI	232	4 205 12	1.05E 10	1 (15 10
231	5.13E-11	233	4.38E-13	1.25E-12	1.61E-12
	2.47E-13	235U	2.02E-10	3.53E-10	4.55E-10
²³³ Pa	6.51E-13	²³⁴ U	2.89E-06	4.92E-06	6.34E-06
²³⁷ Np	1.88E-05	²³⁵ U	1.63E-05	8.23E-06	1.06E-05
²³⁹ Np	9.41E-12	²³⁶ U	6.84E-06	1.21E-05	1.56E-05
²³⁸ Pu	3.26E-05	²³⁷ U	6.96E-13	1.25E-12	1.61E-12
²³⁹ Pu	1.73E-03	²³⁸ U	8.56E-03	1.24E-02	1.60E-02
²⁴⁰ Pu	6.71E-04	⁵⁴ Fe	1.04E-03	1.04E-03	9.13E-04
²⁴¹ Pu	6.55E-05	⁵⁶ Fe	1.64E-02	1.64E-02	1.44E-02
²⁴² Pu	5.38E-05	⁵⁷ Fe	3.94E-04	3.94E-04	3.46E-04
²⁴⁴ Pu	1.95E-12	⁵⁸ Fe	5.01E-05	5.01E-05	4.41E-05
²⁴¹ Am	3.51E-05	⁵⁰ Cr	1.16E-04	1.16E-04	1.02E-04
²⁴² Am	2.80E-11	⁵² Cr	2.24E-03	2.24E-03	1.97E-03
^{242m} Am	2.16E-06	⁵³ Cr	2.54E-04	2.54E-04	2.23E-04
²⁴³ Am	1.07E-05	⁵⁴ Cr	6.31E-05	6.31E-05	5.55E-05
²⁴² Cm	9.05E-08	⁵⁸ Ni	6.74E-05	6.74E-05	5.92E-05
²⁴³ Cm	1.86E-07	⁶⁰ Ni	2.58E-05	2.58E-05	2.26E-05
²⁴⁴ Cm	7.72E-06	⁶¹ Ni	1.12E-06	1.12E-06	9.80E-07
²⁴⁵ Cm	1.43E-06	⁶² Ni	3.54E-06	3.54E-06	3.11E-06
²⁴⁶ Cm	6.55E-07	⁶⁴ Ni	8.98E-07	8.98E-07	7.89E-07
²⁴⁷ Cm	4.71E-08	Мо	1.21E-04	1.21E-04	1.06E-04
²⁴⁸ Cm	2.01E-08	Mn	4.22E-05	4.22E-05	3.70E-05
		⁹⁰ Zr	1.53E-03	1.86E-03	2.40E-03
		⁹¹ Zr	3.36E-04	4.09E-04	5.28E-04
		⁹² Zr	5.10E-04	6.21E-04	8.01E-04
		⁹⁴ Zr	5.12E-04	6.24E-04	8.05E-04
		⁹⁶ Zr	8.19E-05	9.97E-05	1.29E-04
		Na	7.64E-03	7.64E-03	5.65E-03

Tableau C.1.5: Composition du combustible à l'équilibre $(10^{24} \text{ at/cm}^3)$

	Р	Ε	R1	R2	G
⁵⁴ Fe	8.79E-04	8.15E-04	1.04E-03	3.53E-03	2.82E-04
⁵⁶ Fe	1.39E-02	1.29E-02	1.64E-02	5.58E-02	4.46E-03
⁵⁷ Fe	3.34E-04	3.09E-04	3.94E-04	1.34E-03	1.07E-04
⁵⁸ Fe	4.24E-05	3.93E-05	5.01E-05	1.70E-04	1.36E-05
⁵⁰ Cr	9.82E-05	9.11E-05	1.16E-04	3.95E-04	3.15E-05
⁵² Cr	1.90E-03	1.76E-03	2.24E-03	7.62E-03	6.09E-04
⁵³ Cr	2.15E-04	1.99E-04	2.54E-04	8.63E-04	6.89E-05
⁵⁴ Cr	5.34E-05	4.96E-05	6.31E-05	2.15E-04	1.71E-05
⁵⁸ Ni	5.70E-05	5.29E-05	6.74E-05	2.29E-04	1.83E-05
⁶⁰ Ni	2.18E-05	2.02E-05	2.58E-05	8.76E-05	7.00E-06
⁶¹ Ni	9.43E-07	8.76E-07	1.12E-06	3.79E-06	3.03E-07
⁶² Ni	3.00E-06	2.78E-06	3.54E-06	1.20E-05	9.62E-07
⁶⁴ Ni	7.59E-07	7.05E-07	8.98E-07	3.05E-06	2.44E-07
Мо	1.02E-04	9.49E-05	1.21E-04	4.11E-04	3.28E-05
Mn	3.57E-05	3.31E-05	4.22E-05	1.43E-04	1.15E-05
Na	3.55E-03	6.07E-03	1.68E-02	3.55E-03	2.08E-02
¹⁰ B	9.50E-03	8.02E-03			
¹¹ B	3.84E-02	3.25E-02			
С	1.20E-02	1.01E-02			

Tableau C.1.6: Concentrations dans les autres régions du cœur $(10^{24} \text{ at/cm}^3)$

Cœur ATW

Le cœur ATW, dont le modèle en R-Z est donné dans la Figure C.1.4, est composé de 379 assemblages hexagonaux ayant un pas de réseau de 16.1 cm. La première couronne autour de la cible de spallation centrale est constituée par un diffuseur de neutrons en Pb-Bi et est entourée par 102 assemblages de combustible à faible enrichissement et par 90 assemblages à plus haute teneur en NL. Le cœur est entouré par 2 couronnes de réflecteur radial et par une couronne de protections neutroniques radiales. Le point d'impact du faisceau de protons est fixé à 169.6 cm de façon à maximiser l'importance des neutrons de spallation.

Chaque assemblage de combustible est composé par 217 aiguilles ayant un diamètre externe de 0.635 cm, inclusif d'une gaine de 0.056 cm d'épaisseur. L'assemblage, divisé en deux zones externes de réflecteur axial et une zone active de 112.5 cm au centre, mesure 316.8 cm de longueur. Au niveau du calcul de cellule, la région de combustible a été découpée en 3 zones cylindriques tandis que les autres régions du cœur ont été modélisées de façon homogène. La composition isotopique du cœur à l'équilibre et des autres régions, exprimée en 10^{24} at/cm³, est montrée dans les tables suivantes, pour une température de référence de 20°C.







	IF	OF		IF	OF
²³² Th	5.12E-12	6.15E-12	⁵⁴ Fe	4.40E-04	4.40E-04
²³¹ Pa	1.36E-14	1.64E-14	⁵⁶ Fe	6.71E-03	6.71E-03
²³³ Pa	7.85E-13	9.42E-13	⁵⁷ Fe	1.58E-04	1.58E-04
²³² U	6.80E-14	8.16E-14	⁵⁸ Fe	1.98E-05	1.98E-05
²³³ U	4.86E-10	5.83E-10	⁵⁰ Cr	5.09E-05	5.09E-05
²³⁴ U	1.05E-05	1.26E-05	⁵² Cr	9.45E-04	9.45E-04
²³⁵ U	2.48E-06	2.98E-06	⁵³ Cr	1.05E-04	1.05E-04
²³⁶ U	3.24E-06	3.89E-06	⁵⁴ Cr	2.56E-05	2.56E-05
²³⁸ U	1.49E-08	1.79E-08	⁵⁸ Ni	2.91E-05	2.91E-05
²³⁸ Pu	7.71E-05	9.25E-05	⁶⁰ Ni	1.07E-05	1.07E-05
²³⁹ Pu	2.95E-04	3.55E-04	⁶¹ Ni	4.58E-07	4.58E-07
²⁴⁰ Pu	4.25E-04	5.11E-04	⁶² Ni	1.43E-06	1.43E-06
²⁴¹ Pu	9.93E-05	1.19E-04	⁶⁴ Ni	3.51E-07	3.51E-07
²⁴² Pu	1.85E-04	2.22E-04	Мо	5.25E-05	5.25E-05
²⁴⁴ Pu	2.34E-11	2.81E-11	Mn	5.02E-05	5.02E-05
²³⁷ Np	4.06E-05	4.88E-05	⁹⁰ Zr	2.35E-03	2.20E-03
²³⁹ Np	4.05E-11	4.86E-11	⁹¹ Zr	5.11E-04	4.80E-04
²⁴¹ Am	5.01E-05	6.01E-05	⁹² Zr	7.68E-04	7.20E-04
²⁴² Am	3.94E-11	4.73E-11	⁹⁴ Zr	7.55E-04	7.09E-04
^{242m} Am	3.04E-06	3.65E-06	⁹⁶ Zr	1.18E-04	1.11E-04
²⁴³ Am	5.27E-05	6.33E-05	¹⁸² W	3.15E-06	3.15E-06
²⁴² Cm	1.65E-07	1.98E-07	¹⁸³ W	1.70E-06	1.70E-06
²⁴³ Cm	4.92E-07	5.90E-07	¹⁸⁴ W	3.63E-06	3.63E-06
²⁴⁴ Cm	5.08E-05	6.10E-05	¹⁸⁶ W	3.35E-06	3.35E-06
²⁴⁵ Cm	9.57E-06	1.15E-05	Pb	9.10E-03	9.10E-03
²⁴⁶ Cm	5.82E-06	6.99E-06	²⁰⁹ Bi	1.12E-02	1.12E-02
²⁴⁷ Cm	5.47E-07	6.57E-07			
²⁴⁸ Cm	2.91E-07	3.50E-07			

Tableau C.1.7: Composition du combustible à l'équilibre $(10^{24} \text{ at/cm}^3)$

	7	r	ſ	r
	Р	R1	R2	Т
Pb	2.40E-03	3.99E-03	9.16E-03	1.31E-02
²⁰⁹ Bi	2.97E-03	4.94E-03	1.13E-02	1.62E-02
⁵⁴ Fe	1.06E-03	2.96E-03	1.28E-03	
⁵⁶ Fe	1.62E-02	4.51E-02	1.95E-02	
⁵⁷ Fe	3.82E-04	1.06E-03	4.59E-04	
⁵⁸ Fe	4.78E-05	1.33E-04	5.74E-05	
⁵⁰ Cr	1.23E-04	3.42E-04	1.48E-04	
⁵² Cr	2.29E-03	6.36E-03	2.74E-03	
⁵³ Cr	2.54E-04	7.06E-04	3.05E-04	
⁵⁴ Cr	6.20E-05	1.72E-04	7.44E-05	
⁵⁸ Ni	7.04E-05	1.96E-04	8.45E-05	
⁶⁰ Ni	2.60E-05	7.23E-05	3.12E-05	
⁶¹ Ni	1.11E-06	3.08E-06	1.33E-06	
⁶² Ni	3.46E-06	9.62E-06	4.15E-06	
⁶⁴ Ni	8.50E-07	2.36E-06	1.02E-06	
Мо	1.27E-04	3.53E-04	1.52E-04	
Mn	1.21E-04	3.38E-04	1.46E-04	
^{182}W	7.62E-06	2.12E-05	9.14E-06	
¹⁸³ W	4.11E-06	1.14E-05	4.94E-06	
^{184}W	8.77E-06	2.44E-05	1.05E-05	
¹⁸⁶ W	8.11E-06	2.26E-05	9.74E-06	
¹⁰ B	9.53E-03			
¹¹ B	3.86E-02			
С	1.20E-02			

Tableau C.1.8: Concentrations dans les autres régions du cœur $(10^{24} \text{ at/cm}^3)$

Cœur MAB

Le cœur MAB a déjà été décrit dans l'Annexe B.2. On donne ici seulement la composition des NL du combustible à l'équilibre en DDV.

		COMB	
²³² Th	4.69E-11	²⁴⁴ Pu	2.87E-10
²³¹ Pa	2.40E-13	²³⁷ Np	2.49E-04
²³³ Pa	5.64E-12	²³⁹ Np	3.81E-10
²³² U	1.48E-12	²⁴¹ Am	4.94E-04
²³³ U	6.12E-09	²⁴² Am	3.91E-10
²³⁴ U	1.01E-04	^{242m} Am	3.06E-05
²³⁵ U	2.39E-05	²⁴³ Am	4.08E-04
²³⁶ U	2.25E-05	²⁴² Cm	9.28E-07
²³⁸ U	2.57E-08	²⁴³ Cm	3.45E-06
²³⁸ Pu	4.32E-04	²⁴⁴ Cm	3.81E-04
²³⁹ Pu	9.85E-05	²⁴⁵ Cm	7.52E-05
²⁴⁰ Pu	4.91E-04	²⁴⁶ Cm	4.82E-05
²⁴¹ Pu	5.55E-05	²⁴⁷ Cm	4.80E-06
²⁴² Pu	1.84E-04	²⁴⁸ Cm	2.48E-06

Tableau C.1.9: Composition du combustible à l'équilibre $(10^{24} \text{ at/cm}^3)$

	CAPRA	IFR Isogén.	ATW	MAB	IFR Sousgén.
Combustible	MOX	Ac - Zr	Ac - Zr	AcN - ZrN	Ac - Zr
Caloporteur	Na	Na	Pb/Bi	Pb/Bi	Na
P _{th} (MW)	3600	1575	840	377	1575
P _e (MW)	1450	600	311	136	600
P _e nette (MW)	-	-	275.04	118.84	-
Efficacité (%)	40.28	38.1	37.02	31.52	38.1
jepn (jours)	1320	1550	870	1241	1550
Durée d'irradiation du combustible (jours)	1553	1825	1093.4	1460	1825
Fu (%)	85	85	80	85	85
Durée du cycle (jours)	220	310	145	1241	310
Numéro de cycles	6	5	6	1	5
Taux de combustion moyen (GW _{th} /t _{NL})	184.98	139.1	250.05	148.76	127.46 / 5.64*
Taux de combustion moyen (%)	18.42	14.21	24.97	15.05	12.92 / 0.56*

Tableau C.1.10: Données récapitulatives des systèmes à spectre rapide

* Valeurs correspondantes au cœur et aux couvertures fertiles

Annexe C.2: Bilan massique des réacteurs à l'équilibre

Cœur REP - UOX

	Fabrication	DDI	FDI	Retraitement
²³² U	0.000			0.000
²³³ U	0.000			0.000
²³⁴ U	0.000			0.011
²³⁵ U	100.552			18.356
²³⁶ U	0.000			13.207
²³⁸ U	2293.549			2206.922
²³⁸ Pu	0.000			1.006
²³⁹ Pu	0.000			14.915
²⁴⁰ Pu	0.000			6.847
²⁴¹ Pu	0.000			3.711
²⁴² Pu	0.000			2.274
²⁴⁴ Pu	0.000			0.000
²³⁷ Np	0.000			1.724
²³⁹ Np	0.000			0.000
²⁴¹ Am	0.000			0.910
²⁴² Am	0.000			0.000
^{242m} Am	0.000			0.000
²⁴³ Am	0.000			0.670
²⁴² Cm	0.000			0.000
²⁴³ Cm	0.000			0.000
²⁴⁴ Cm	0.000			0.239
²⁴⁵ Cm	0.000			0.024
²⁴⁶ Cm	0.000			0.000
²⁴⁷ Cm	0.000			0.000
²⁴⁸ Cm	0.000			0.000
U	2394.101			2238.496
Pu	0.000			28.753
Np	0.000			1.724
Am	0.000			1.580
Cm	0.000			0.263
NL	2394.101			2270.816
TRU	0.000			32.320
MA	0.000			3.567

Tableau C.2.1: Bilan massique du combustible (kg/TWhe)

Cœur REP - MOX

Tableau C.2.2:	Bilan	massique	du	combustib	ole	(kg/TV	Wh _e)

	Fabrication	DDI	FDI	Retraitement
²³² U	0.000	0.000	0.000	0.000
²³³ U	0.000	0.000	0.000	0.000
²³⁴ U	0.000	0.024	0.179	0.538
²³⁵ U	5.506	5.507	2.634	2.643
²³⁶ U	0.000	0.000	0.635	0.663
²³⁸ U	2194.665	2194.752	2119.207	2119.207
²³⁸ Pu	6.704	6.680	6.655	6.705
²³⁹ Pu	100.649	100.653	50.026	50.023
²⁴⁰ Pu	46.159	46.160	39.360	39.976
²⁴¹ Pu	25.002	22.697	24.097	17.411
²⁴² Pu	15.322	15.323	17.813	17.814
²⁴⁴ Pu	0.000	0.000	0.002	0.002
²³⁷ Np	0.000	0.000	0.464	0.533
²³⁹ Np	0.000	0.000	0.000	0.000
²⁴¹ Am	0.000	2.306	2.976	9.592
²⁴² Am	0.000	0.000	0.000	0.000
^{242m} Am	0.000	0.000	0.067	0.064
²⁴³ Am	0.000	0.000	4.824	4.821
²⁴² Cm	0.000	0.000	0.421	0.000
²⁴³ Cm	0.000	0.000	0.029	0.025
²⁴⁴ Cm	0.000	0.000	2.877	2.222
²⁴⁵ Cm	0.000	0.000	0.389	0.389
²⁴⁶ Cm	0.000	0.000	0.036	0.036
²⁴⁷ Cm	0.000	0.000	0.001	0.001
²⁴⁸ Cm	0.000	0.000	0.000	0.000
U	2200.171	2200.283	2122.655	2123.051
Pu	193.835	191.513	137.953	131.930
Np	0.000	0.000	0.464	0.533
Am	0.000	2.306	7.867	14.478
Cm	0.000	0.000	3.753	2.673
NL	2394.007	2394.102	2272.691	2272.665
TRU	193.835	193.819	150.036	149.614
MA	0.000	2.306	12.083	17.684

Cœur CAPRA HBU

	Fabrication	DDI	FDI	Retraitement
²³² U	0.000	0.000	0.000	0.000
²³³ U	0.000	0.000	0.000	0.000
²³⁴ U	1.186	1.307	0.942	1.186
²³⁵ U	0.496	0.500	0.360	0.370
²³⁶ U	0.715	0.736	0.658	0.716
²³⁸ U	308.361	308.361	258.282	258.282
²³⁸ Pu	7.870	7.746	4.355	4.405
²³⁹ Pu	76.169	76.164	50.177	50.294
²⁴⁰ Pu	99.667	99.646	78.545	79.056
²⁴¹ Pu	20.159	18.304	15.650	11.163
²⁴² Pu	44.625	44.625	35.433	35.434
²⁴⁴ Pu	0.005	0.005	0.003	0.003
²³⁷ Np	0.000	0.003	0.275	0.329
²³⁹ Np	0.000	0.000	0.117	0.000
²⁴¹ Am	0.000	1.852	2.591	7.023
²⁴² Am	0.000	0.000	0.002	0.000
^{242m} Am	0.000	0.000	0.169	0.163
²⁴³ Am	0.000	0.000	5.592	5.591
²⁴² Cm	0.000	0.000	0.298	0.000
²⁴³ Cm	0.000	0.000	0.036	0.030
²⁴⁴ Cm	0.000	0.000	2.468	1.888
²⁴⁵ Cm	0.000	0.000	0.233	0.233
²⁴⁶ Cm	0.000	0.000	0.013	0.013
²⁴⁷ Cm	0.000	0.000	0.000	0.000
²⁴⁸ Cm	0.000	0.000	0.000	0.000
U	310.758	310.904	260.242	260.555
Pu	248.494	246.490	184.165	180.355
Np	0.000	0.003	0.392	0.329
Am	0.000	1.852	8.354	12.776
Cm	0.000	0.000	3.047	2.164
NL	559.252	559.249	456.200	456.179
TRU	248.494	248.345	195.958	195.625
MA	0.000	1.855	11.793	15.270

Cœur IFR Sousgénérateur (CR = 0.5)

	Fabrication	DDI	FDI	Retraitement
²³² U	0.000	0.000	0.000	0.000
²³³ U	0.000	0.000	0.000	0.000
²³⁴ U	0.000	0.000	0.000	0.000
²³⁵ U	1.687	1.775	1.538	1.688
²³⁶ U	0.626	0.629	0.483	0.487
²³⁸ U	0.648	0.656	0.635	0.649
²³⁸ Pu	523.605	523.605	468.250	468.250
²³⁹ Pu	11.433	11.361	9.437	9.712
²⁴⁰ Pu	95.352	95.351	69.517	69.620
²⁴¹ Pu	79.661	79.855	67.519	67.903
²⁴² Pu	15.442	14.714	9.948	9.033
²⁴⁴ Pu	27.279	27.279	23.366	23.367
²³⁷ Np	0.000	0.000	0.000	0.000
²³⁹ Np	7.360	7.374	4.360	4.381
²⁴¹ Am	0.000	0.000	0.103	0.000
²⁴² Am	8.544	9.258	6.079	6.973
^{242m} Am	0.000	0.000	0.002	0.000
²⁴³ Am	0.489	0.487	0.495	0.490
²⁴² Cm	7.199	7.198	6.065	6.065
²⁴³ Cm	0.021	0.006	0.449	0.021
²⁴⁴ Cm	0.055	0.054	0.058	0.055
²⁴⁵ Cm	5.491	5.285	5.496	5.092
²⁴⁶ Cm	0.981	0.981	0.949	0.949
²⁴⁷ Cm	0.422	0.422	0.423	0.423
²⁴⁸ Cm	0.030	0.030	0.030	0.030
U	0.012	0.012	0.012	0.012
Pu	0.000	0.000	0.000	0.000
Np	526.566	526.665	470.906	471.074
Am	229.167	228.560	179.786	179.633
Cm	7.360	7.374	4.463	4.381
NL	16.233	16.943	12.641	13.528
TRU	7.014	6.790	7.419	6.583
MA	786.338	786.332	675.215	675.199

Tableau C.2.4: Bilan massique du combustible (kg/TWhe)

Cœur IFR Isogénérateur (CR = 1)

	Fabrication	DDI	FDI	Retraitement
²³² U	0.000	0.000	0.000	0.000
²³³ U	0.000	0.000	0.000	0.000
²³⁴ U	0.201	0.219	0.223	0.258
²³⁵ U	1.139	1.142	0.525	0.530
²³⁶ U	0.480	0.485	0.525	0.535
²³⁸ U	605.435	605.435	542.128	542.128
²³⁸ Pu	2.307	2.294	2.198	2.291
²³⁹ Pu	122.992	122.989	85.443	85.552
²⁴⁰ Pu	47.862	47.878	46.654	46.688
²⁴¹ Pu	4.686	4.465	5.143	4.670
²⁴² Pu	3.868	3.868	3.872	3.872
²⁴⁴ Pu	0.000	0.000	0.000	0.000
²³⁷ Np	1.325	1.329	1.111	1.119
²³⁹ Np	0.000	0.000	0.114	0.000
²⁴¹ Am	2.512	2.728	2.048	2.514
²⁴² Am	0.000	0.000	0.001	0.000
^{242m} Am	0.155	0.154	0.157	0.155
²⁴³ Am	0.773	0.773	0.774	0.774
²⁴² Cm	0.007	0.002	0.136	0.007
²⁴³ Cm	0.013	0.013	0.014	0.013
²⁴⁴ Cm	0.559	0.538	0.605	0.560
²⁴⁵ Cm	0.104	0.104	0.105	0.105
²⁴⁶ Cm	0.048	0.048	0.048	0.048
²⁴⁷ Cm	0.003	0.003	0.003	0.003
²⁴⁸ Cm	0.001	0.001	0.001	0.001
U	607.254	607.280	543.401	543.451
Pu	181.715	181.494	143.310	143.074
Np	1.325	1.329	1.225	1.119
Am	3.440	3.656	2.980	3.444
Cm	0.736	0.710	0.913	0.738
NL	794.471	794.470	691.828	691.825
TRU	187.217	187.190	148.428	148.374
MA	5.502	5.695	5.118	5.300

Tableau C.2.5: Bilan massique du cœur interne (kg/TWh _e)
--

	Fabrication	DDI	FDI	Retraitement
²³² U	0.000	0.000	0.000	0.000
²³³ U	0.000	0.000	0.000	0.000
²³⁴ U	0.558	0.558	0.509	0.509
²³⁵ U	0.938	0.938	0.746	0.748
²³⁶ U	1.382	1.382	1.342	1.342
²³⁸ U	1435.470	1435.470	1388.643	1388.643
²³⁸ Pu	0.000	0.000	0.020	0.020
²³⁹ Pu	0.000	0.000	37.445	37.550
²⁴⁰ Pu	0.000	0.000	1.241	1.241
²⁴¹ Pu	0.000	0.000	0.028	0.025
²⁴² Pu	0.000	0.000	0.001	0.001
²⁴⁴ Pu	0.000	0.000	0.000	0.000
²³⁷ Np	0.000	0.000	0.206	0.206
²³⁹ Np	0.000	0.000	0.107	0.000
²⁴¹ Am	0.000	0.000	0.001	0.004
²⁴² Am	0.000	0.000	0.000	0.000
^{242m} Am	0.000	0.000	0.000	0.000
²⁴³ Am	0.000	0.000	0.000	0.000
²⁴² Cm	0.000	0.000	0.000	0.000
²⁴³ Cm	0.000	0.000	0.000	0.000
²⁴⁴ Cm	0.000	0.000	0.000	0.000
²⁴⁵ Cm	0.000	0.000	0.000	0.000
²⁴⁶ Cm	0.000	0.000	0.000	0.000
²⁴⁷ Cm	0.000	0.000	0.000	0.000
²⁴⁸ Cm	0.000	0.000	0.000	0.000
U	1438.349	1438.349	1391.240	1391.243
Pu	0.000	0.000	38.735	38.837
Np	0.000	0.000	0.314	0.206
Am	0.000	0.000	0.001	0.004
Cm	0.000	0.000	0.000	0.000
NL	1438.349	1438.349	1430.290	1430.290
TRU	0.000	0.000	39.050	39.047
MA	0.000	0.000	0.315	0.211

Tableau C.2.6: Bilan massique des couvertures (kg/TWhe)

Cœur ATW

	Fabrication	DDI	FDI	Retraitement
²³² U	0.000	0.000	0.000	0.000
²³³ U	0.000	0.000	0.000	0.000
²³⁴ U	3.966	4.195	3.571	3.968
²³⁵ U	0.942	0.945	0.940	0.943
²³⁶ U	1.236	1.253	1.208	1.236
²³⁸ U	0.006	0.006	0.006	0.006
²³⁸ Pu	29.614	29.433	24.807	25.699
²³⁹ Pu	113.959	113.962	55.280	55.290
²⁴⁰ Pu	164.771	165.493	136.520	137.986
²⁴¹ Pu	38.636	36.815	26.499	24.061
²⁴² Pu	72.213	72.214	63.326	63.329
²⁴⁴ Pu	0.000	0.000	0.000	0.000
²³⁷ Np	15.535	15.567	8.715	8.761
²³⁹ Np	0.000	0.000	0.000	0.000
²⁴¹ Am	19.478	21.266	13.514	15.905
²⁴² Am	0.000	0.000	0.000	0.000
^{242m} Am	1.187	1.181	1.200	1.188
²⁴³ Am	20.673	20.671	18.101	18.098
²⁴² Cm	0.064	0.016	1.372	0.064
²⁴³ Cm	0.193	0.188	0.202	0.193
²⁴⁴ Cm	20.014	19.263	20.632	19.112
²⁴⁵ Cm	3.784	3.783	3.714	3.713
²⁴⁶ Cm	2.312	2.312	2.317	2.316
²⁴⁷ Cm	0.218	0.218	0.219	0.219
²⁴⁸ Cm	0.116	0.116	0.117	0.117
U	6.149	6.399	5.725	6.153
Pu	419.193	417.917	306.434	306.365
Np	15.535	15.567	8.715	8.761
Am	41.337	43.117	32.815	35.191
Cm	26.701	25.897	28.573	25.735
NL	508.915	508.897	382.261	382.205
TRU	502.766	502.498	376.536	376.052
MA	83.573	84.581	70.103	69.687

Cœur MAB

Tableau C.2.8: Bilan massique du combustible (kg/TWhe)
--

	Fabrication	DDI	FDI	Retraitement
²³² U	0.000	0.000	0.000	0.000
²³³ U	0.002	0.002	0.002	0.002
²³⁴ U	28.067	29.014	26.194	28.088
²³⁵ U	6.675	6.676	6.680	6.682
²³⁶ U	6.314	6.328	6.289	6.318
²³⁸ U	0.007	0.007	0.007	0.007
²³⁸ Pu	122.304	121.566	119.188	122.438
²³⁹ Pu	27.995	28.028	27.977	28.031
²⁴⁰ Pu	140.179	144.244	132.763	140.290
²⁴¹ Pu	15.900	15.152	17.519	15.910
²⁴² Pu	52.826	52.835	52.856	52.877
²⁴⁴ Pu	0.000	0.000	0.000	0.000
²³⁷ Np	70.090	70.313	45.764	46.035
²³⁹ Np	0.000	0.000	0.000	0.000
²⁴¹ Am	141.647	142.169	85.377	86.714
²⁴² Am	0.000	0.000	0.028	0.000
^{242m} Am	8.795	8.752	8.172	8.093
²⁴³ Am	117.869	117.858	80.123	80.110
²⁴² Cm	0.267	0.075	5.437	0.265
²⁴³ Cm	0.997	0.974	0.880	0.839
²⁴⁴ Cm	110.535	106.387	104.300	96.619
²⁴⁵ Cm	21.896	21.894	20.057	20.054
²⁴⁶ Cm	14.098	14.096	14.008	14.004
²⁴⁷ Cm	1.410	1.410	1.410	1.410
²⁴⁸ Cm	0.730	0.730	0.735	0.735
U	41.065	42.027	39.173	41.096
Pu	359.204	361.825	350.304	359.545
Np	70.090	70.313	45.765	46.036
Am	268.311	268.779	173.700	174.916
Cm	149.933	145.565	146.826	133.924
NL	888.602	888.509	755.767	755.517
TRU	847.537	846.482	716.594	714.420
MA	488.333	484.657	366.291	354.875

Annexe C.3: Contribution de chaque réacteur du parc à la radiotoxicité globale



Figure C.3.1: Décomposition de la radiotoxicité pour le Schéma 3a

Figure C.3.2: Décomposition de la radiotoxicité pour le Schéma 3b





Figure C.3.3: Décomposition de la radiotoxicité pour le Schéma 4

Figure C.3.4: Décomposition de la radiotoxicité pour le Schéma 5



Annexe C.4: Décomposition de la radiotoxicité par noyau



Figure C.4.1: Schéma 2 - Décomposition de la radiotoxicité par noyau

Figure C.4.2: Schéma 3b - Décomposition de la radiotoxicité par noyau





Figure C.4.3: Schéma 4 - Décomposition de la radiotoxicité par noyau

Figure C.4.4: Schéma 5 - Décomposition de la radiotoxicité par noyau



Annexe C.5: Etude des caractéristiques du combustible

Dans les tableaux qui suivent on donne la contribution de chaque NL présent dans le combustible à l'activité, à la chaleur de décroissance et à la source de neutrons au moment de son retraitement.

Isotona	Activité	Chaleur de décroissance	Source de neutrons
Isotohe	(Bq/kg _{NL})	(W/kg _{NL})	(n/s-kg _{NL})
²³² U	7.866E+05	6.823E-07	2.009E-02
²³³ U	4.088E+02	3.209E-10	5.465E-12
²³⁴ U	5.156E+07	4.035E-05	8.807E-01
²³⁵ U	8.819E+04	6.625E-08	1.779E-03
²³⁶ U	6.632E+05	4.856E-07	8.969E-03
²³⁸ U	1.101E+07	7.535E-06	1.910E+01
²³⁷ Np	5.813E+06	4.603E-06	0.000E+00
²³⁹ Np	1.481E+10	1.051E-03	0.000E+00
²³⁸ Pu	1.775E+12	1.588E+00	5.726E+04
²³⁹ Pu	4.798E+10	4.033E-02	1.099E+03
²⁴⁰ Pu	1.402E+11	1.185E-01	2.084E+04
²⁴¹ Pu	2.771E+13	2.393E-02	0.000E+00
²⁴² Pu	1.086E+09	8.653E-04	1.376E+04
²⁴³ Pu	1.235E+03	3.931E-11	0.000E+00
²⁴¹ Am	5.082E+11	4.609E-01	1.437E+04
²⁴² Am	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00
^{242m} Am	1.046E+10	1.251E-04	0.000E+00
²⁴³ Am	1.490E+10	1.295E-02	4.036E+02
²⁴² Cm	8.928E+09	8.852E-03	1.760E+03
²⁴³ Cm	1.919E+10	1.894E-02	7.288E+02
²⁴⁴ Cm	2.777E+12	2.624E+00	1.067E+07
²⁴⁵ Cm	1.032E+09	9.285E-04	3.449E+01
²⁴⁶ Cm	1.669E+08	1.481E-04	1.263E+05
²⁴⁷ Cm	1.235E+03	1.059E-09	4.127E-05
²⁴⁸ Cm	1.097E+04	3.676E-08	2.860E+03
²⁴⁹ Bk	4.507E+05	2.402E-09	7.222E-04
²⁴⁹ Cf	3.974E+05	4.235E-07	2.031E-02
²⁵⁰ Cf	7.200E+05	7.237E-07	1.950E+03
²⁵¹ Cf	9.583E+03	9.475E-09	0.000E+00
²⁵² Cf	1.939E+05	3.787E-07	2.252E+04
PF	1.726E+13	1.412E+00	-
TOTAL	5.030E+13	6.312E+00	1.093E+07

Tableau C.5.1: Caractéristiques du combustible REP-MOX au retraitement
(après 7 ans de refroidissement)

Isotope	Activité	Chaleur de décroissance	Source de neutrons
232	$(\mathbf{B}\mathbf{q}/\mathbf{K}\mathbf{g}_{\mathbf{NL}})$	(W/Kg_{NL})	$(\mathbf{n}/\mathbf{s}-\mathbf{k}\mathbf{g}_{\mathbf{NL}})$
233 T T	3.62/E+04	3.146E-08	9.262E-04
²³⁴	6.128E+04	4.810E-08	8.193E-10
²³⁴ U	4.874E+08	3.815E-04	8.326E+00
²³⁵ U	5.286E+04	3.971E-08	1.066E-03
²³⁶ U	3.064E+06	2.243E-06	4.144E-02
²³⁸ U	5.747E+06	3.933E-06	9.971E+00
²³⁷ Np	1.538E+07	1.218E-05	0.000E+00
²³⁹ Np	7.392E+10	5.246E-03	0.000E+00
²³⁸ Pu	4.990E+12	4.464E+00	1.610E+05
²³⁹ Pu	2.065E+11	1.736E-01	4.730E+03
²⁴⁰ Pu	1.186E+12	1.003E+00	1.764E+05
²⁴¹ Pu	7.601E+13	6.563E-02	0.000E+00
²⁴² Pu	9.249E+09	7.369E-03	1.172E+05
²⁴³ Pu	1.028E+05	3.270E-09	0.000E+00
²⁴¹ Am	1.587E+12	1.439E+00	4.487E+04
²⁴² Am	1.123E+11	3.582E-03	0.000E+00
^{242m} Am	1.127E+11	1.348E-03	0.000E+00
²⁴³ Am	7.383E+10	6.414E-02	2.000E+03
²⁴² Cm	9.623E+10	9.542E-02	1.898E+04
²⁴³ Cm	9.785E+10	9.657E-02	3.716E+03
²⁴⁴ Cm	1.004E+13	9.485E+00	3.857E+07
²⁴⁵ Cm	2.604E+09	2.343E-03	8.702E+01
²⁴⁶ Cm	2.486E+08	2.206E-04	1.882E+05
²⁴⁷ Cm	2.150E+03	1.843E-09	7.185E-05
²⁴⁸ Cm	3.144E+03	1.054E-08	8.200E+02
²⁴⁹ Bk	9.861E+04	5.256E-10	1.580E-04
²⁴⁹ Cf	6.769E+04	7.214E-08	3.460E-03
²⁵⁰ Cf	1.170E+05	1.176E-07	3.168E+02
²⁵¹ Cf	1.081E+02	1.068E-10	0.000E+00
²⁵² Cf	6.247E+02	1.220E-09	7.255E+01
PF	6.238E+13	4.859E+00	-
TOTAL	1.570E+14	2.177E+01	3.928E+07

Tableau C.5.2: Caractéristiques du combustible CAPRA au retraitement
(après 7 ans de refroidissement)

Isotone	Activité	Chaleur de décroissance	Source de neutrons
Isotope	(Bq/kg _{NL})	(W/kg_{NL})	(n/s-kg _{NL})
²³² U	1.111E+05	9.633E-08	2.836E-03
²³³ U	9.657E+04	7.580E-08	1.291E-09
²³⁴ U	4.929E+08	3.858E-04	8.419E+00
²³⁵ U	4.946E+04	3.715E-08	9.976E-04
²³⁶ U	1.974E+06	1.445E-06	2.670E-02
²³⁸ U	7.408E+06	5.069E-06	1.285E+01
²³⁷ Np	1.456E+08	1.153E-04	0.000E+00
²³⁹ Np	5.714E+10	4.055E-03	0.000E+00
²³⁸ Pu	7.824E+12	7.000E+00	2.524E+05
²³⁹ Pu	2.033E+11	1.709E-01	4.655E+03
²⁴⁰ Pu	7.248E+11	6.129E-01	1.078E+05
²⁴¹ Pu	4.377E+13	3.779E-02	0.000E+00
²⁴² Pu	4.338E+09	3.456E-03	5.496E+04
²⁴³ Pu	1.765E+05	5.617E-09	0.000E+00
²⁴¹ Am	1.124E+12	1.019E+00	3.178E+04
²⁴² Am	2.411E+11	7.690E-03	0.000E+00
^{242m} Am	2.419E+11	2.894E-03	0.000E+00
²⁴³ Am	5.707E+10	4.958E-02	1.546E+03
²⁴² Cm	3.344E+12	3.316E+00	6.595E+05
²⁴³ Cm	1.279E+11	1.262E-01	4.856E+03
²⁴⁴ Cm	1.936E+13	1.829E+01	7.438E+07
²⁴⁵ Cm	7.661E+09	6.893E-03	2.560E+02
²⁴⁶ Cm	6.042E+09	5.360E-03	4.573E+06
²⁴⁷ Cm	1.326E+05	1.137E-07	4.432E-03
²⁴⁸ Cm	2.504E+06	8.390E-06	6.529E+05
²⁴⁹ Bk	3.977E+09	2.120E-05	6.373E+00
²⁴⁹ Cf	1.568E+08	1.671E-04	8.015E+00
²⁵⁰ Cf	1.022E+09	1.028E-03	2.769E+06
²⁵¹ Cf	2.013E+06	1.990E-06	0.000E+00
²⁵² Cf	2.230E+07	4.355E-05	2.590E+06
PF	1.553E+14	1.534E+01	-
TOTAL	2.324E+14	4.600E+01	8.608E+07

Tableau C.5.3: Caractéristiques du combustible IFR sousgénérateur au retraitement (après 2 ans de refroidissement)

Isotope	pe Activité Chaleur de décroissance		Source de neutrons	
232	(Bq/kg_{NL})	(W/kg_{NL})	$(n/s-kg_{NL})$	
²³² U 233–-	4.830E+04	4.189E-08	1.233E-03	
²³³ U	1.280E+05	1.005E-07	1.712E-09	
²³⁴ U	1.790E+09	1.401E-03	3.058E+01	
²³⁵ U	1.480E+05	1.112E-07	2.985E-03	
²³⁶ U	5.813E+06	4.256E-06	7.862E-02	
²³⁸ U	1.403E+02	9.598E-11	2.433E-04	
²³⁷ Np	4.499E+08	3.562E-04	0.000E+00	
²³⁹ Np	2.635E+11	1.870E-02	0.000E+00	
²³⁸ Pu	3.200E+13	2.863E+01	1.032E+06	
²³⁹ Pu	2.496E+11	2.098E-01	5.716E+03	
²⁴⁰ Pu	2.276E+12	1.925E+00	3.385E+05	
²⁴¹ Pu	1.802E+14	1.556E-01	0.000E+00	
²⁴² Pu	1.816E+10	1.447E-02	2.302E+05	
²⁴³ Pu	2.168E+06	6.899E-08	0.000E+00	
²⁴¹ Am	3.961E+12	3.593E+00	1.120E+05	
²⁴² Am	9.032E+11	2.881E-02	0.000E+00	
^{242m} Am	9.063E+11	1.084E-02	0.000E+00	
²⁴³ Am	2.631E+11	2.286E-01	7.127E+03	
²⁴² Cm	1.553E+13	1.540E+01	3.063E+06	
²⁴³ Cm	6.888E+11	6.797E-01	2.616E+04	
²⁴⁴ Cm	1.123E+14	1.061E+02	4.316E+08	
²⁴⁵ Cm	4.634E+10	4.169E-02	1.548E+03	
²⁴⁶ Cm	5.091E+10	4.516E-02	3.853E+07	
²⁴⁷ Cm	1.456E+06	1.249E-06	4.867E-02	
²⁴⁸ Cm	3.555E+07	1.191E-04	9.271E+06	
²⁴⁹ Bk	8.565E+10	4.565E-04	1.372E+02	
²⁴⁹ Cf	2.818E+09	3.004E-03	1.441E+02	
²⁵⁰ Cf	2.357E+10	2.369E-02	6.384E+07	
²⁵¹ Cf	5.861E+07	5.795E-05	0.000E+00	
²⁵² Cf	8.702E+08	1.700E-03	1.011E+08	
PF	3.420E+14	3.550E+01	-	
TOTAL	6.918E+14	1.927E+02	6.491E+08	

Tableau C.5.4: Caractéristiques du combustible ATW au retraitement	
(après 2 ans de refroidissement)	

Isotona	Activité	Chaleur de décroissance	Source de neutrons
Isotope	(Bq/kg _{NL})	(W/kg _{NL})	(n/s-kg _{NL})
²³² U	3.792E+05	3.289E-07	9.684E-03
²³³ U	6.803E+05	5.339E-07	9.094E-09
²³⁴ U	7.256E+09	5.678E-03	1.239E+02
²³⁵ U	6.006E+05	4.511E-07	1.211E-02
²³⁶ U	1.701E+07	1.246E-05	2.301E-01
²³⁸ U	1.018E+02	6.965E-11	1.766E-04
²³⁷ Np	1.353E+09	1.071E-03	0.000E+00
²³⁹ Np	6.680E+11	4.741E-02	0.000E+00
²³⁸ Pu	8.731E+13	7.812E+01	2.817E+06
²³⁹ Pu	7.240E+10	6.086E-02	1.658E+03
²⁴⁰ Pu	1.325E+12	1.121E+00	1.971E+05
²⁴¹ Pu	6.823E+13	5.892E-02	0.000E+00
²⁴² Pu	8.684E+09	6.919E-03	1.100E+05
²⁴³ Pu	5.660E+06	1.801E-07	0.000E+00
²⁴¹ Am	1.238E+13	1.123E+01	3.500E+05
²⁴² Am	3.523E+12	1.124E-01	0.000E+00
^{242m} Am	3.535E+12	4.229E-02	0.000E+00
²⁴³ Am	6.672E+11	5.796E-01	1.807E+04
²⁴² Cm	3.663E+13	3.632E+01	7.224E+06
²⁴³ Cm	1.719E+12	1.696E+00	6.527E+04
²⁴⁴ Cm	3.252E+14	3.073E+02	1.249E+09
²⁴⁵ Cm	1.434E+11	1.290E-01	4.791E+03
²⁴⁶ Cm	1.768E+11	1.568E-01	1.338E+08
²⁴⁷ Cm	5.500E+06	4.716E-06	1.838E-01
²⁴⁸ Cm	1.379E+08	4.623E-04	3.597E+07
²⁴⁹ Bk	1.904E+11	1.015E-03	3.051E+02
²⁴⁹ Cf	1.061E+10	1.131E-02	5.423E+02
²⁵⁰ Cf	6.846E+10	6.882E-02	1.854E+08
²⁵¹ Cf	1.720E+08	1.701E-04	0.000E+00
²⁵² Cf	1.694E+09	3.308E-03	1.967E+08
PF	1.837E+14	1.801E+01	-
TOTAL	7.256E+14	4.551E+02	1.812E+09

Tableau C.5.5: Caractéristiques du combustible MAB au retraitement	
(après 2 ans de refroidissement)	

Isotope	Activité	Chaleur de décroissance	Source de neutrons
20000000	(Bq/kg _{NL})	(W/kg_{NL})	(n/s-kg _{NL})
²³² U	2.285E+04	1.982E-08	5.835E-04
²³³ U	9.671E+03	7.591E-09	1.293E-10
²³⁴ U	7.456E+07	5.835E-05	1.274E+00
²³⁵ U	5.332E+04	4.005E-08	1.075E-03
²³⁶ U	1.612E+06	1.180E-06	2.180E-02
²³⁸ U	8.489E+06	5.809E-06	1.473E+01
²³⁷ Np	3.680E+07	2.914E-05	0.000E+00
²³⁹ Np	7.220E+09	5.124E-04	0.000E+00
²³⁸ Pu	1.827E+12	1.634E+00	5.892E+04
²³⁹ Pu	2.473E+11	2.079E-01	5.663E+03
²⁴⁰ Pu	4.931E+11	4.170E-01	7.333E+04
²⁴¹ Pu	2.238E+13	1.932E-02	0.000E+00
²⁴² Pu	7.113E+08	5.667E-04	9.012E+03
²⁴³ Pu	2.205E+04	7.016E-10	0.000E+00
²⁴¹ Am	4.008E+11	3.635E-01	1.133E+04
²⁴² Am	7.564E+10	2.413E-03	0.000E+00
^{242m} Am	7.590E+10	9.080E-04	0.000E+00
²⁴³ Am	7.210E+09	6.264E-03	1.953E+02
²⁴² Cm	1.005E+12	9.970E-01	1.983E+05
²⁴³ Cm	3.065E+10	3.025E-02	1.164E+03
²⁴⁴ Cm	2.109E+12	1.992E+00	8.101E+06
²⁴⁵ Cm	8.341E+08	7.505E-04	2.787E+01
²⁴⁶ Cm	6.812E+08	6.044E-04	5.156E+05
²⁴⁷ Cm	1.510E+04	1.294E-08	5.046E-04
²⁴⁸ Cm	3.028E+05	1.015E-06	7.896E+04
²⁴⁹ Bk	4.790E+08	2.553E-06	7.676E-01
²⁴⁹ Cf	1.932E+07	2.059E-05	9.877E-01
²⁵⁰ Cf	1.284E+08	1.291E-04	3.478E+05
²⁵¹ Cf	2.693E+05	2.662E-07	0.000E+00
²⁵² Cf	3.052E+06	5.960E-06	3.544E+05
PF	1.317E+14	1.288E+01	_
TOTAL	1.604E+14	1.856E+01	9.756E+06

Tableau C.5.6: Caractéristiques du combustible IFR isogénérateur au retraitement (après 2 ans de refroidissement)

Activité du combustible en fonction du temps de refroidissement

Dans les Figures C.5.1 et C.5.2 on donne l'évolution de l'activité totale et de la composante due aux décroissances α en fonction de la durée du refroidissement.

Figure C.5.1: Evolution de l'activité du combustible en fonction du temps de décroissance (Bq/kg)



Figure C.5.2: Evolution de l'activité a du combustible en fonction du temps de décroissance (Bq/kg)



Annexe C.6: Etudes paramétriques

Schéma 3b: Variation du taux de combustion moyen du réacteur hybride

Dans la Figure C.6.1 on donne le facteur de réduction de la radiotoxicité pour le scénario Double Composante avec ADS par rapport au cycle ouvert; toutes les caractéristiques de ce schéma sont inchangées et le seul taux de combustion est fait varier entre les valeurs limite de 100 et 250 GW_i/t_{NL} .



Figure C.6.1: Schéma 3b - Facteur de réduction de la radiotoxicité des NL aux déchets

Double Strata: Variation du taux de pertes au retraitement

On donne par la suite les résultats de l'étude de sensibilité au taux de pertes au retraitement. Le Cas 1 se rapporte à un taux de pertes de 0.1% indépendant de l'isotope et de la méthode de séparation. Dans le Cas 3 les pertes au retraitement des procédés aqueux sont inchangées, tandis que celles des procédés pyrochimiques ont été portées au 0.5%. Les autres cas étudiés se rapportent à un taux de pertes des AM de 1% pour les méthodes aqueuses et de 0.1% (Cas 2), 0.5% (Cas 4) ou 1% (Cas 5) pour le procédé pyrochimique.

Tableau C.6.1: Schéma 4	- Inventaire	massique aux	déchets en	fonction	des pertes a	u retraitement
	mventune	mussique uux	decinets en	rometion	des pertes d	a retraitement

	Cas 1	Cas 2	Cas 3	Cas 4	Cas 5
²³³ U	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001
²³⁴ U	1.854	1.841	8.027	7.903	15.133
²³⁵ U	12.836	12.838	14.189	14.295	16.031
²³⁶ U	9.283	9.284	10.590	10.658	12.296
²³⁸ U	1715.190	1715.995	1699.340	1717.955	1720.292
²³⁸ Pu	3.827	3.805	13.936	13.742	25.593
²³⁹ Pu	8.997	8.939	35.896	35.367	66.884
²⁴⁰ Pu	25.830	25.828	31.768	31.905	39.153
²⁴¹ Pu	31.221	31.165	61.849	61.471	97.611
²⁴² Pu	7.157	7.152	10.597	10.593	14.697
²⁴⁴ Pu	12.899	12.879	24.433	24.302	37.926
²³⁷ Np	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001
²⁴¹ Am	7.714	33.498	26.752	52.247	74.605
^{242m} Am	0.489	0.820	2.268	2.567	4.650
²⁴³ Am	6.449	24.166	24.043	41.479	62.125
²⁴² Cm	0.015	0.016	0.073	0.073	0.141
²⁴³ Cm	0.055	0.129	0.239	0.310	0.526
²⁴⁴ Cm	6.132	12.684	27.368	33.546	58.424
²⁴⁵ Cm	1.219	2.090	5.627	6.419	11.582
²⁴⁶ Cm	0.788	0.835	3.867	3.857	7.462
²⁴⁷ Cm	0.079	0.080	0.389	0.384	0.747
²⁴⁸ Cm	0.041	0.041	0.203	0.199	0.389
U	1739.163	1739.959	1732.147	1750.811	1763.754
Pu	86.105	85.964	164.543	163.640	256.272
Np	3.827	3.805	13.936	13.743	25.593
Am	14.653	58.485	53.064	96.292	141.380
Cm	8.329	15.874	37.766	44.788	79.270
NL	1852.077	1904.086	2001.456	2069.275	2266.269
TRU	112.913	164.127	269.310	318.463	502.515
AM	26.809	78.163	104.766	154.823	246.243

(g/TWh_e)

La Figure C.6.2 donne, pour le schéma Double Strata, l'évolution de la radiotoxicité des NL aux déchets en fonction des différents taux de pertes au retraitement. On a inclus dans ce graphique, en tant que référence, la radiotoxicité des déchets du cycle ouvert.

Figure C.6.2: Schéma 4 – Evolution de la radiotoxicité des NL aux déchets (Sv/TWhe)



Performances des scénarios de transmutation pour une valeur plus élevée du taux de pertes au retraitement pyrochimique

On donne ci-dessous le bilan massique et les courbes de radiotoxicité pour les quatre schémas de transmutation analysés au cours de cette thèse. Ces valeurs ont été obtenues en appliquant un taux de pertes de 0.5% aux procédés de retraitement de type pyrochimique.

	Schéma 3a	Schéma 3b	Schéma 4	Schéma 5
²³³ U	0.000	0.000	0.000	0.000
²³⁴ U	0.300	3.080	8.194	8.027
²³⁵ U	13.147	12.617	16.684	14.189
²³⁶ U	9.421	9.621	13.155	10.590
²³⁸ U	1809.400	2262.827	1772.067	1699.340
²³⁸ Pu	1322.682	9.077	19.458	13.936
²³⁹ Pu	2.272	18.323	53.823	35.896
²⁴⁰ Pu	25.596	136.280	126.033	31.768
²⁴¹ Pu	24.665	127.998	290.148	61.849
²⁴² Pu	6.612	18.816	52.616	10.597
²⁴⁴ Pu	10.490	43.995	132.467	24.433
²³⁷ Np	0.001	0.000	0.000	0.001
²⁴¹ Am	3025.558	13.277	33.541	26.752
^{242m} Am	39.160	0.893	2.452	2.268
²⁴³ Am	2080.127	11.470	37.871	24.043
²⁴² Cm	0.106	0.039	0.133	0.073
²⁴³ Cm	8.655	0.101	0.398	0.239
²⁴⁴ Cm	772.936	9.423	39.619	27.368
²⁴⁵ Cm	103.220	1.744	7.680	5.627
²⁴⁶ Cm	6.199	0.770	4.779	3.867
²⁴⁷ Cm	0.162	0.055	0.451	0.389
²⁴⁸ Cm	0.020	0.022	0.241	0.203
U	1832.267	2288.145	1810.101	1732.147
Pu	69.637	345.412	655.086	164.543
Np	1322.683	9.077	19.458	13.936
Am	5144.846	25.639	73.864	53.064
Cm	891.296	12.153	53.300	37.766
NL	9260.729	2680.426	2611.808	2001.456
TRU	7428.461	392.281	801.708	269.310
AM	7358.825	46.869	146.622	104.766

Tableau C.6.2: Inventaire massique aux déchets pour les 4 schémas de transmutation (g/TWhe)



Figure C.6.3: Evolution de la radiotoxicité des NL aux déchets pour un taux de pertes de 0.5% dans les procédés pyrochimiques (Sv/TWh_e)
Annexe C.7: Radiotoxicité de l'inventaire massique du combustible à l'équilibre

Dans la Figure C.5.7.1 on donne la radiotoxicité des NL, en pile et hors pile, présents dans un parc de 100 GW_e à l'équilibre.





Annexe D (Chapitre 6)

Annexe D.1: Analyse du "phase-out" sans ajustement des procédures d'équilibre



Figure D.1.1: Composition du combustible du Schéma 3a en DDV dans un transitoire de "phase-out" (%)

Figure D.1.2: Composition du combustible du Schéma 3b en DDV dans un transitoire de "phase-out" (%)



En général on observe que la fraction massique tend à augmenter au cours des stades pour les isotopes qui sont plus abondants dans le combustible à l'équilibre que dans le "top-up". Un comportement opposé est propre des isotopes plus abondants dans le "top-up" que dans le combustible à l'équilibre.

Annexe D.2: Analyse du "phase-out" avec ajustement des procédures d'équilibre

Les tableaux et les graphiques suivants donnent, pour chaque stade du transitoire de sortie de l'option nucléaire, les informations plus importantes sur le cycle du combustible et sur sa composition. Ces résultats se réfèrent à la modélisation "correcte" du transitoire, qui tient compte des ajustements nécessaires à obtenir une réactivité optimale des réacteurs. Les Tableaux D.2.1 et D.2.2 donnent les informations indispensables à l'analyse de chaque stade du "phase-out" pour les réacteurs avancés des Schémas 3a et 3b. Les Figures D.2.1 et D.2.2 montrent l'évolution de la composition du combustible en DDV à différents stades du transitoire.

	Taux de	Footour D	Oméga Etoile	Fraction de	Fraction de
	combustion	Facteur D	(%/an)	TRU en DDV	TRU en FDV
Stade 0	14.2%	11.3%	2.55%	33.04%	30.23%
Stade 1	14.2%	8.4%	2.27%	34.80%	32.01%
Stade 2	14.2%	8.0%	2.22%	35.50%	32.83%
Stade 3	14.2%	7.9%	2.21%	36.20%	33.61%
Stade 4	14.2%	7.2%	2.14%	37.00%	34.44%
Stade 5	14.2%	6.8%	2.10%	37.60%	35.09%
Stade 6	14.2%	6.6%	2.08%	38.10%	35.62%
Stade 7	14.2%	6.3%	2.05%	38.60%	36.15%
Stade 8	14.2%	6.2%	2.04%	39.00%	36.57%
Stade 9	14.2%	6.1%	2.03%	39.40%	36.98%
Stade 10	14.2%	6.0%	2.02%	39.80%	37.38%
Stade 11	14.2%	5.7%	1.99%	40.20%	37.79%
Stade 12	14.2%	5.5%	1.97%	40.50%	38.10%
Stade 13	14.2%	5.2%	1.94%	40.70%	38.31%
Stade 14	14.2%	5.2%	1.94%	40.80%	38.43%
Stade 15	14.2%	5.1%	1.93%	40.90%	38.55%
Stade 16	14.2%	5.1%	1.93%	41.00%	38.65%
Stade 17	14.2%	5.1%	1.93%	41.10%	38.76%
Stade 18	14.2%	5.1%	1.92%	41.20%	38.87%
Stade 19	14.2%	5.0%	1.92%	41.30%	38.97%
Stade 20	14.2%	4.8%	1.90%	41.40%	39.07%
Stade 21	14.2%	4.8%	1.90%	41.40%	39.09%
Stade 22	14.2%	5.0%	1.92%	41.40%	39.10%
Stade 23	14.2%	4.8%	1.90%	41.50%	39.19%
Stade 24	14.2%	4.8%	1.90%	41.50%	39.20%
Stade 25	14.2%	4.8%	1.90%	41.55%	39.25%
Stade 26	14.2%	4.8%	1.90%	41.60%	39.31%
Stade 27	14.2%	4.8%	1.90%	41.65%	39.36%
Stade 28	14.2%	4.8%	1.90%	41.70%	39.41%

Tableau D.2.1: Caractéristiques du combustible du Schéma 3a durant le "phase-out"

	NL chargés dans le cœur (kg)	Taux de	Oméga Etoile (%/an)	Fraction de TRU en DDV
Stade 0	2922.62	25.0%	3.12%	98.39%
Stade 1	3370.22	21.7%	2.71%	98.00%
Stade 2	3738.84	19.6%	2.45%	97.64%
Stade 3	3975.81	18.4%	2.30%	97.33%
Stade 4	4160.12	17.6%	2.20%	97.06%
Stade 5	4370.76	16.8%	2.10%	96.83%
Stade 6	4476.08	16.4%	2.05%	96.63%
Stade 7	4555.07	16.1%	2.01%	96.47%
Stade 8	4634.06	15.8%	1.98%	96.34%
Stade 9	4713.05	15.6%	1.95%	96.22%
Stade 10	4765.71	15.4%	1.92%	96.13%
Stade 11	4792.04	15.3%	1.91%	96.05%
Stade 12	4818.37	15.2%	1.90%	95.98%
Stade 13	4844.70	15.1%	1.89%	95.93%
Stade 14	4871.03	15.1%	1.88%	95.88%
Stade 15	4897.36	15.0%	1.87%	95.84%
Stade 16	4923.69	14.9%	1.86%	95.81%
Stade 17	4950.02	14.8%	1.85%	95.77%
Stade 18	4976.35	14.8%	1.84%	95.75%
Stade 19	5002.68	14.7%	1.83%	95.72%
Stade 20	5002.68	14.7%	1.83%	95.70%
Stade 21	5029.01	14.6%	1.83%	95.68%
Stade 22	5029.01	14.6%	1.83%	95.66%
Stade 23	5055.34	14.5%	1.82%	95.64%
Stade 24	5055.34	14.5%	1.82%	95.62%
Stade 25	5055.34	14.5%	1.82%	95.61%
Stade 26	5081.67	14.5%	1.81%	95.59%
Stade 27	5081.67	14.5%	1.81%	95.58%
Stade 28	5081.67	14.5%	1.81%	95.57%
Stade 29	5081.67	14.5%	1.81%	95.56%
Stade 30	5108.00	14.4%	1.80%	95.55%
Stade 31	5108.00	14.4%	1.80%	95.54%
Stade 32	5108.00	14.4%	1.80%	95.54%
Stade 33	5108.00	14.4%	1.80%	95.53%
Stade 34	5108.05	14.4%	1.80%	95.53%

Tableau D.2.2: Caractéristiques du combustible du Schéma 3b durant le phase-out



Figure D.2.1: Composition du combustible du Schéma 3a en DDV au cours du phase-out

Figure D.2.2: Composition du combustible du Schéma 3b en DDV au cours du "phase-out"



Annexe D.3: Remontage du parc nucléaire de référence

On donne par la suite des données supplémentaires pour l'analyse complète du transitoire de "phaseout" appliquée au parc nucléaire de référence produisant 1000 GW_e de puissance électrique. La Figure D.3.1 montre l'évolution de l'inventaire massique en NL pour les deux scénarios analysés en fonction de la durée du "phase-out". Les Tableaux D.3.1 et D.3.2 donnent les caractéristiques plus importantes du parc pour les différents stades. Ces tableaux incluent, entre autres, le nombre de réacteurs avancés en fonction, la puissance totale du parc et les inventaires massiques au début et à la fin de chaque stade. Le dernier tableau (D.3.3) donne l'inventaire total des TRU mis aux déchets à haute activité en fonction de la durée du "phase-out" en assumant que le parc nucléaire a fonctionné en conditions d'équilibre pour une période de 100 ans.

Figure D.3.1: Evolution de l'inventaire massique en NL au cours du "phase-out" (tonnes)



	(ma	asses en tonn	les)			
	Stade 0	Stade 1	Stade 2	Stade 3	Stade 4	Stade 5
Temps (ans)	0	4	12	20	28	36
FR (nombre)	613.1	456.8	353.2	274.8	214.2	168.3
FR (%)	100.0%	74.5%	57.6%	44.8%	34.9%	27.5%
$P_e(GW_e)$	367.83	274.06	211.95	164.91	128.51	101.00
Masse NL en DDS ¹	17215.72	12826.66	9919.73	7718.18	6014.67	4726.86
Masse TRU en DDS	5688.07	4463.68	3521.50	2793.98	2225.43	1777.30
Masse NL en FDS ²	14768.07	11002.47	8509.85	6621.62	5160.23	4055.52
Masse TRU en FDS	4463.68	3521.50	2793.98	2225.43	1777.30	1422.94
Uranium déchargé (ton)	1941.41	1082.74	791.67	606.95	433.37	320.77
	Stade 6	Stade 7	Stade 8	Stade 9	Stade 10	Stade 11
Temps (ans)	44	52	60	68	76	84
FR (nombre)	133.0	105.3	83.8	66.7	53.2	42.4
FR (%)	21.7%	17.2%	13.7%	10.9%	8.7%	6.9%
$P_e(GW_e)$	79.80	63.19	50.25	40.02	31.91	25.46
Masse NL en DDS	3734.75	2957.44	2351.90	1873.01	1493.27	1191.55
Masse TRU en DDS	1422.94	1141.57	917.24	737.97	594.32	479.00
Masse NL en FDS	3204.43	2537.53	2018.01	1607.12	1281.29	1022.39
Masse TRU en FDS	1141.57	917.24	737.97	594.32	479.00	386.34
Uranium déchargé (ton)	246.99	185.64	145.00	113.85	89.74	68.46
	Stade 12	Stade 13	Stade 14	Stade 15	Stade 16	Stade 17
Temps (ans)	92	100	108	116	124	132
FR (nombre)	34.0	27.3	22.0	17.7	14.3	11.5
FR (%)	5.5%	4.5%	3.6%	2.9%	2.3%	1.9%
$P_e(GW_e)$	20.38	16.37	13.19	10.63	8.58	6.92
Masse NL en DDS	953.94	766.17	617.33	497.75	401.54	324.06
Masse TRU en DDS	386.34	311.83	251.87	203.58	164.63	133.19
Masse NL en FDS	818.51	657.41	529.71	427.11	344.56	278.07
Masse TRU en FDS	311.83	251.87	203.58	164.63	133.19	107.79
Uranium déchargé (ton)	52.34	40.09	31.96	25.57	20.49	16.45
	Stade 18	Stade 19	Stade 20	Stade 21	Stade 22	Stade 23
Temps (ans)	140	148	156	164	172	180
FR (nombre)	9.3	7.5	6.1	4.9	4.0	3.2
FR (%)	1.5%	1.2%	1.0%	0.8%	0.7%	0.5%
$P_e(GW_e)$	5.59	4.51	3.65	2.95	2.39	1.93
Masse NL en DDS	261.62	211.28	170.66	138.22	111.99	90.54
Masse TRU en DDS	107.79	87.26	70.65	57.22	46.36	37.57
Masse NL en FDS	224.50	181.30	146.45	118.61	96.10	77.69
Masse TRU en FDS	87.26	70.65	57.22	46.36	37.57	30.45
Uranium déchargé (ton)	13.22	10.63	8.22	6.62	5.56	4.32
	Stade 24	Stade 25	Stade 26	Stade 27		
Temps (ans)	188	196	204	212		
FR (nombre)	2.6	2.1	1.7	1.4		
FR (%)	0.4%	0.3%	0.3%	0.2%		
P _e (GW _e)	1.57	1.27	1.03	0.83		
Masse NL en DDS	73.37	59.41	48.11	38.96		
Masse TRU en DDS	30.45	24.68	20.01	16.23		
Masse NL en FDS	62.96	50.98	41.28	33.43		
	24.69	20.01	16.22	12.16		

3.56

2.87

2.32

1.88

Tableau D.3.1: Schéma 3a - Caractéristiques principales du parc au cours du transitoire de "phase-out"

Uranium déchargé (ton)

	Stade 0	Stade 1	Stade 2	Stade 3	Stade 4	Stade 5
Temps (ans)	0	3	9	15	21	27
FR (nombre)	779.6	507.3	358.1	270.8	211.1	165.5
FR (%)	100.0%	65.1%	45.9%	34.7%	27.1%	21.2%
Pe (Gwe)	214.42	139.52	98.48	74.47	58.06	45.53
Masse NL en DDS	4556.85	3419.14	2677.43	2153.02	1756.38	1447.09
Masse TRU en DDS	4501.85	3364.14	2623.92	2102.27	1709.44	1404.50
Masse NL en FDS	3419.14	2677.43	2153.02	1756.38	1447.09	1204.21
Masse TRU en FDS	3364.14	2623.92	2102.27	1709.44	1404.50	1165.98
	Stade 6	Stade 7	Stade 8	Stade 9	Stade 10	Stade 11
Temps (ans)	33	39	45	51	57	63
FR (nombre)	134.5	110.5	91.1	75.4	63.0	53.0
FR (%)	17.3%	14.2%	11.7%	9.7%	8.1%	6.8%
Pe (Gwe)	37.00	30.40	25.07	20.75	17.32	14.58
Masse NL en DDS	1204.21	1006.87	844.76	711.05	600.35	507.92
Masse TRU en DDS	1165.98	972.96	814.94	684.99	577.67	488.25
Masse NL en FDS	1006.87	844.76	711.05	600.35	507.92	430.16
Masse TRU en FDS	972.96	814.94	684.99	577.67	488.25	413.16
	Stade 12	Stade 13	Stade 14	Stade 15	Stade 16	Stade 17
Temps (ans)	Stade 12 69	Stade 13 75	Stade 14 81	Stade 15 87	Stade 16 93	Stade 17 99
Temps (ans) FR (nombre)	Stade 12 69 44.6	Stade 13 75 37.6	Stade 14 81 31.8	Stade 15 87 26.8	Stade 16 93 22.7	Stade 17 99 19.2
Temps (ans) FR (nombre) FR (%)	Stade 12 69 44.6 5.7%	Stade 13 75 37.6 4.8%	Stade 14 81 31.8 4.1%	Stade 15 87 26.8 3.4%	Stade 16 93 22.7 2.9%	Stade 17 99 19.2 2.5%
Temps (ans) FR (nombre) FR (%) Pe (Gwe)	Stade 12 69 44.6 5.7% 12.28 12.28	Stade 13 75 37.6 4.8% 10.35	Stade 14 81 31.8 4.1% 8.74	Stade 15 87 26.8 3.4% 7.38	Stade 16 93 92.7 2.9% 6.24 6.24	Stade 17 99 19.2 2.5% 5.28
Temps (ans) FR (nombre) FR (%) Pe (Gwe) Masse NL en DDS	Stade 12 69 44.6 5.7% 12.28 430.16	Stade 13 75 37.6 4.8% 10.35 364.68	Stade 14 81 31.8 4.1% 8.74 309.46	Stade 15 87 26.8 3.4% 7.38 262.86	Stade 16 93 92.7 2.9% 6.24 223.48	Stade 17 99 19.2 2.5% 5.28 190.18
Temps (ans) FR (nombre) FR (%) Pe (Gwe) Masse NL en DDS Masse TRU en DDS	Stade 12 69 44.6 5.7% 12.28 430.16 413.16 16	Stade 13 75 37.6 4.8% 10.35 364.68 350.03	Stade 14 81 31.8 4.1% 8.74 309.46 296.86	Stade 15 87 26.8 3.4% 7.38 262.86 252.03	Stade 16 93 22.7 2.9% 6.24 223.48 214.19	Stade 17 99 19.2 2.5% 5.28 190.18 182.20
Temps (ans) FR (nombre) FR (%) Pe (Gwe) Masse NL en DDS Masse TRU en DDS Masse NL en FDS	Stade 12 69 44.6 5.7% 12.28 430.16 413.16 364.68	Stade 13 75 37.6 4.8% 10.35 364.68 350.03 309.46	Stade 14 81 31.8 4.1% 8.74 309.46 296.86 262.86	Stade 15 87 26.8 3.4% 7.38 262.86 252.03 223.48	Stade 16 93 22.7 2.9% 6.24 223.48 214.19 190.18	Stade 17 99 19.2 2.5% 5.28 190.18 182.20 161.98
Temps (ans) FR (nombre) FR (%) Pe (Gwe) Masse NL en DDS Masse TRU en DDS Masse NL en FDS Masse TRU en FDS	Stade 12 69 44.6 5.7% 12.28 430.16 413.16 364.68 350.03 350.03	Stade 13 75 37.6 4.8% 10.35 364.68 350.03 309.46 296.86	Stade 14 81 31.8 4.1% 8.74 309.46 296.86 262.86 252.03	Stade 15 87 26.8 3.4% 7.38 262.86 252.03 223.48 214.19	Stade 16 93 22.7 2.9% 6.24 223.48 214.19 190.18 182.20	Stade 17 99 19.2 2.5% 5.28 190.18 182.20 161.98 155.14
Temps (ans) FR (nombre) FR (%) Pe (Gwe) Masse NL en DDS Masse TRU en DDS Masse NL en FDS Masse TRU en FDS	Stade 12 69 44.6 5.7% 12.28 430.16 413.16 364.68 350.03 Stade 18	Stade 13 75 37.6 4.8% 10.35 364.68 350.03 309.46 296.86 Stade 19	Stade 14 81 31.8 4.1% 8.74 309.46 296.86 262.86 252.03 Stade 20	Stade 15 87 26.8 3.4% 7.38 262.86 252.03 223.48 214.19 Stade 21	Stade 16 93 22.7 2.9% 6.24 223.48 214.19 190.18 182.20 Stade 22	Stade 17 99 19.2 2.5% 5.28 190.18 182.20 161.98 155.14 Stade 23
Temps (ans) FR (nombre) FR (%) Pe (Gwe) Masse NL en DDS Masse TRU en DDS Masse TRU en FDS Masse TRU en FDS Temps (ans)	Stade 12 69 44.6 5.7% 12.28 430.16 413.16 364.68 350.03 Stade 18 105 105	Stade 13 75 37.6 4.8% 10.35 364.68 350.03 309.46 296.86 Stade 19 111	Stade 14 81 31.8 4.1% 8.74 309.46 296.86 262.86 252.03 Stade 20 117	Stade 15 87 26.8 3.4% 7.38 262.86 252.03 223.48 214.19 Stade 21 123	Stade 16 93 93 22.7 2.9% 6.24 223.48 214.19 190.18 182.20 Stade 22 129	Stade 17 99 19.2 2.5% 5.28 190.18 182.20 161.98 155.14 Stade 23 135
Temps (ans) FR (nombre) FR (%) Pe (Gwe) Masse NL en DDS Masse TRU en DDS Masse TRU en FDS Masse TRU en FDS Temps (ans) FR (nombre)	Stade 12 69 44.6 5.7% 12.28 430.16 413.16 364.68 350.03 Stade 18 105 16.3	Stade 13 75 37.6 4.8% 10.35 364.68 350.03 309.46 296.86 Stade 19 111 13.8	Stade 14 81 31.8 4.1% 8.74 309.46 296.86 262.86 252.03 Stade 20 117 11.8	Stade 15 87 26.8 3.4% 7.38 262.86 252.03 223.48 214.19 Stade 21 123 10.0	Stade 16 93 93 22.7 2.9% 6.24 223.48 214.19 190.18 182.20 Stade 22 129 8.5 8.5	Stade 17 99 19.2 2.5% 5.28 190.18 182.20 161.98 155.14 Stade 23 135 7.3
Temps (ans) FR (nombre) FR (%) Pe (Gwe) Masse NL en DDS Masse TRU en DDS Masse TRU en FDS Masse TRU en FDS Temps (ans) FR (nombre) FR (%)	Stade 12 69 44.6 5.7% 12.28 430.16 413.16 364.68 350.03 Stade 18 105 16.3 2.1% 2.1%	Stade 13 75 37.6 4.8% 10.35 364.68 350.03 309.46 296.86 Stade 19 111 13.8 1.8%	Stade 14 81 31.8 4.1% 8.74 309.46 296.86 262.86 252.03 Stade 20 117 11.8 1.5%	Stade 15 87 26.8 3.4% 7.38 262.86 252.03 223.48 214.19 Stade 21 123 10.0 1.3%	Stade 16 93 22.7 2.9% 6.24 223.48 214.19 190.18 182.20 Stade 22 129 8.5 1.1%	Stade 17 99 19.2 2.5% 5.28 190.18 182.20 161.98 155.14 Stade 23 135 7.3 0.9%
Temps (ans) FR (nombre) FR (%) Pe (Gwe) Masse NL en DDS Masse TRU en DDS Masse TRU en FDS Masse TRU en FDS Temps (ans) FR (nombre) FR (%) Pe (Gwe)	Stade 12 69 44.6 5.7% 12.28 430.16 413.16 364.68 350.03 Stade 18 105 16.3 2.1% 4.48	Stade 13 75 37.6 4.8% 10.35 364.68 350.03 309.46 296.86 Stade 19 111 13.8 1.8% 3.80	Stade 14 81 31.8 4.1% 8.74 309.46 296.86 262.86 252.03 Stade 20 117 11.8 1.5% 3.24	Stade 15 87 26.8 3.4% 7.38 262.86 252.03 223.48 214.19 Stade 21 123 10.0 1.3% 2.75	Stade 16 93 93 22.7 2.9% 6.24 223.48 214.19 190.18 182.20 Stade 22 129 8.5 1.1% 2.35 1.1%	Stade 17 99 19.2 2.5% 5.28 190.18 182.20 161.98 155.14 Stade 23 135 7.3 0.9% 1.99
Temps (ans) FR (nombre) FR (%) Pe (Gwe) Masse NL en DDS Masse TRU en DDS Masse TRU en FDS Masse TRU en FDS Temps (ans) FR (nombre) FR (%) Pe (Gwe) Masse NL en DDS	Stade 12 69 44.6 5.7% 12.28 430.16 413.16 364.68 350.03 Stade 18 105 16.3 2.1% 4.48 161.98	Stade 13 75 37.6 4.8% 10.35 364.68 350.03 309.46 296.86 Stade 19 111 13.8 1.8% 3.80 138.09	Stade 14 81 31.8 4.1% 8.74 309.46 296.86 262.86 252.03 Stade 20 117 11.8 1.5% 3.24 117.82	Stade 15 87 26.8 3.4% 7.38 262.86 252.03 223.48 214.19 Stade 21 123 10.0 1.3% 2.75 100.53	Stade 16 93 93 22.7 2.9% 6.24 223.48 214.19 190.18 182.20 Stade 22 129 8.5 1.1% 2.35 85.85	Stade 17 99 19.2 2.5% 5.28 190.18 182.20 161.98 155.14 Stade 23 135 7.3 0.9% 1.99 73.31
Temps (ans) FR (nombre) FR (%) Pe (Gwe) Masse NL en DDS Masse TRU en DDS Masse TRU en FDS Masse TRU en FDS Temps (ans) FR (nombre) FR (%) Pe (Gwe) Masse NL en DDS Masse TRU en DDS	Stade 12 69 44.6 5.7% 12.28 430.16 413.16 364.68 350.03 Stade 18 105 16.3 2.1% 4.48 161.98 155.14	Stade 13 75 37.6 4.8% 10.35 364.68 350.03 309.46 296.86 Stade 19 111 13.8 1.8% 3.80 138.09 132.21	Stade 14 81 31.8 4.1% 8.74 309.46 296.86 262.86 252.03 Stade 20 117 11.8 1.5% 3.24 117.82 112.78	Stade 15 87 26.8 3.4% 7.38 262.86 252.03 223.48 214.19 Stade 21 123 10.0 1.3% 2.75 100.53 96.20	Stade 16 93 93 22.7 2.9% 6.24 223.48 214.19 190.18 182.20 Stade 22 129 8.5 1.1% 2.35 85.85 82.14 14	Stade 17 99 19.2 2.5% 5.28 190.18 182.20 161.98 155.14 Stade 23 135 7.3 0.9% 1.99 73.31 70.13
Temps (ans) FR (nombre) FR (%) Pe (Gwe) Masse NL en DDS Masse TRU en DDS Masse TRU en FDS Masse TRU en FDS Temps (ans) FR (nombre) FR (%) Pe (Gwe) Masse NL en DDS Masse TRU en DDS Masse NL en FDS	Stade 12 69 44.6 5.7% 12.28 430.16 413.16 364.68 350.03 Stade 18 105 16.3 2.1% 4.48 161.98 155.14 138.09	Stade 13 75 37.6 4.8% 10.35 364.68 350.03 309.46 296.86 Stade 19 111 13.8 1.8% 3.80 138.09 132.21 117.82	Stade 14 81 31.8 4.1% 8.74 309.46 296.86 262.86 252.03 Stade 20 117 11.8 1.5% 3.24 117.82 112.78 100.53	Stade 15 87 26.8 3.4% 7.38 262.86 252.03 223.48 214.19 Stade 21 123 10.0 1.3% 2.75 100.53 96.20 85.85	Stade 16 93 22.7 2.9% 6.24 223.48 214.19 190.18 182.20 Stade 22 129 8.5 1.1% 2.35 85.85 82.14 73.31	Stade 17 99 19.2 2.5% 5.28 190.18 182.20 161.98 155.14 Stade 23 135 7.3 0.9% 1.99 73.31 70.13 62.66

Tableau D.3.2: Schéma 3b - Caractéristiques principales du parc au cours du transitoire de "phase-out"

(masses en tonnes)

	Stade 24	Stade 25	Stade 26	Stade 27	Stade 28	Stade 29
Temps (ans)	141	147	153	159	165	171
FR (nombre)	6.2	5.3	4.5	3.9	3.3	2.8
FR (%)	0.8%	0.7%	0.6%	0.5%	0.4%	0.4%
Pe (Gwe)	1.70	1.46	1.24	1.06	0.91	0.78
Masse NL en DDS	62.66	53.55	45.77	39.15	33.49	28.64
Masse TRU en DDS	59.92	51.21	43.76	37.42	32.01	27.37
Masse NL en FDS	53.55	45.77	39.15	33.49	28.64	24.50
Masse TRU en FDS	51.21	43.76	37.42	32.01	27.37	23.41
	Stade 30	Stade 31	Stade 32			
Temps (ans)	177	183	189			
FR (nombre)	2.4	2.1	1.8			
FR (%)	0.3%	0.3%	0.2%			
Pe (Gwe)	0.66	0.56	0.48			
Masse NL en DDS	24.50	20.97	17.95			
Masse TRU en DDS	23.41	20.04	17.15			
Masse NL en FDS	20.97	17.95	15.36			
Masse TRU en FDS	20.04	17.15	14.68			

¹ DDS - Début De Stade

² FDS - Fin De Stade

Tableau D.3.3: Inventaire massique des TRU en fonction de la durée du "phase-out" (tonnes)

(incluant les déchets produits au cours du fonctionnement du parc à l'équilibre)

Durée (ans)	Schéma 3a	Schéma 3b
0	5146.91	4066.21
25	2509.67	1639.36
50	1282.95	839.87
75	683.31	483.24
100	382.87	310.91
125	231.74	224.73
150	154.14	180.70
175	114.10	157.95
200	93.38	146.13
Inventaire à l'équilibre	71.04	133.22

Remerciements

Cette thèse a été réalisée dans le cadre d'une collaboration entre le Commissariat à l'Energie Atomique (CEA), l'Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne (EPFL) et l'Institut Paul Scherrer (PSI). Les travaux ont été effectués au sein du département de l'Energie et Sureté Nucléaires du PSI.

Je voudrais dans un premier temps remercier M. Chawla, chef du Laboratoire de Physique des Réacteurs et de Comportement des Systèmes au PSI et à l'EPFL, M. Salvatores, directeur de recherche au CEA, et M. Zaetta, chef du Service de Physique des Réacteurs et du Cycle au CEA, pour m'avoir permis d'entreprendre cette recherche.

Je tiens à remercier M. Chawla pour avoir accepté, en tant que professeur à l'EPFL, de diriger cette thèse et de m'avoir accordé son soutien personnel et sa confiance. Je remercie également M. Martin, professeur à l'EPFL, pour avoir accepté de présider le jury de cette thèse ainsi que M. Chawla, M. Ravetto, professeur à l'Ecole Polytechnique de Turin, M. Rimpault, agent du CEA, M. Tran, professeur à l'EPFL, et M. Wydler, mon superviseur au PSI, pour avoir accepté d'être rapporteurs.

Je tiens à exprimer toute ma reconnaissance à Monsieur Wydler pour l'intérêt qu'il a porté à mon travail, pour la confiance qu'il m'a toujours témoignée et pour les conseils précieux qu'il a apportés tout au long de cette thèse.

Je remercie également M. Tommasi et M. Rimpault, agents du CEA, pour avoir répondu avec compétence et sollicitude à toutes mes questions concernant les codes de calcul ECCO et ERANOS ainsi que pour l'attention qu'ils ont dédiée à mon travail.

Un grand merci à M. Hollard pour ses précieux conseils linguistiques et pour le temps qu'il a accordé à la lecture de ce manuscrit.

Je veux enfin rappeler ici tous les amis avec qui j'ai partagé des bons moments à la cantine et j'ai passé d'amusantes soirées en Argovie: Bernhard, Catherine, Cédric, Cezarina, Claude, Christine, Fabio, Francis, Giuseppe, Klaus, Manuela, Massimo, Omar, Rafael, Thierry, Toni, Xavier et tous ceux qui m'ont démontré leur amitié.

Curriculum Vitae

Marco Cometto

Nationalité: Italienne

Date et lieu de naissance: Aosta (I), le 2 août 1969 Adresse: 5, rue du Petit Seminaire, 11100 Aosta, Italie

ETUDES

Juin 2002	Passé le dernier niveau du programme CFA (Chartered Financial Analyst)
Juin 1997	Habilitation à la profession d'ingénieur - examen d'Etat (Turin-Italie)
Février 1997	Diplôme d'ingénieur nucléaire: Polytechnique de Turin (Italie)
Juillet 1995	Diplôme d'Etudes Approfondies (DEA) en "Physique et modélisation des systèmes énergétiques": <i>Université de Provence (France)</i> .
Juillet 1987	Baccalauréat: Lycée Classique "XXVI Février" (Aoste-Italie)

EXPERIENCES PROFESSIONNELLES

	Institut Paul Scherrer - PSI, Suisse
04/99 - Présent	Doctorand à l'EPFL: projets internationaux organisés par l'OECD/AEN.
	Responsable des calculs et de l'analyse technique pour le rapport d'évaluation sur la transmutation du plutonium et des actinides mineurs dans des cycles nucléaires innovants, organisé par OECD/NEA Nuclear Development Committee.
	Définition d'un benchmark sur les systèmes hybrides organisé par le Nuclear Science Committee. Auteur de la solution commune CEA/PSI. Responsable de l'analyse scientifique des résultats et de la publication du rapport définitif de l'AEN.
04/98 - 04/99	Ingénieur nucléaire dans le cadre d'une collaboration bilatérale CEA/PSI.
	Analyse préliminaire de différents concepts de réacteurs avancés refroidis à métaux liquides pour la stratégie Double Strata.
	Commissariat à l'Energie Atomique, CEA Cadarache, France
04/96 - 06/96	Stage finalisé au développement d'une nouvelle méthodologie pour les analyses de sensibilité et d'incertitude dans les réacteurs thermiques.
04/95 - 09/95	Etude du recyclage des actinides mineurs en mode hétérogène dans les REP.

PUBLICATIONS

"Comparative Study of ADS and FR in Advanced Nuclear Fuel Cycles", OECD/NEA report, 2002. Contribution aux chapitres 2 et 3.

B.C. Na, M. Cometto, P. Wydler

"OECD/NEA Benchmark Calculations for an Accelerator-Driven Minor Actinide Burner", International Conference on Accelerator Application / Accelerator Driven Transmutation Technology and Applications 01, Reno, USA, 12-15 November 2001.

B.C. Na, M. Cometto, P. Wydler, H. Takano, M. Kellet "OECD/NEA Comparison Calculations for an Accelerator-Driven System Using Different Nuclear Data Libraries", supplement of the Journal of Nuclear Science and Technology, August 2002, Vol.2, pp.835-840.

M. Cometto, B.C. Na, P. Wydler "Comparison Calculations for an Accelerator-Driven Minor Actinide Burner", OECD/NEA report, NEA/NSC/DOC(2001) 13.

M. Cometto, B.C. Na, P. Wydler "OECD/NEA Benchmark Calculations for Accelerator-Driven Systems", Sixth Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation, Madrid, 11-13 December 2000, pp. 379-393.

G.S. Bauer, P. Wydler, A. Stanculescu, M. Cometto "Beam trips and target/subcritical reactor problems in accelerator-driven facilities", OECD/NEA Workshop Proceedings, 355-370: Workshop of Utilisation and reliability of high power proton accelerators, Mito (Japon), 13-15 October 1998.

M. Delpech, M. Cometto, Dr. T. Takeda "Plutonium recycling in PWRs: effect of nuclear data uncertainties", International Conference PHYSOR 96, H 51-60, Mito (Japon), October 1996.

M. Delpech, S. L. Huang, M. Cometto, S. Marguet, P. Risch "PWR's Potentialities for Minor Actinides Burning", International Conference GLOBAL 95, 1586-1593, Versailles, July 1995.