Dossier d’Alternance présenté par : **Fabien Boulland**

Spécialité : **Sciences et Technologies Nucléaires 1ère année**

Promotion : **2013-2016**

Antenne Alternance Saint-Denis de l’EICnam

**Modèles d’épuisement pour l’optimisation du combustible d’un petit réacteur à neutrons rapides fonctionnant sans rechargement**

Réalisé au sein de l’entreprise :

ALTRAN EILIS

|  |  |
| --- | --- |
| Tuteur enseignant : | [GALICHET Emmanuelle](javascript:ouvreFenetre('./visu_info_intervenant.php?uid=abb_6_1_1_51d2f4432b4a9&intervenant_id=201113651','height=480')) |
| Membre enseignant : | GALICHET Emmanuelle |
| Tuteur entreprise : | JACQUET Philippe (ALTRAN) |
| Membre entreprise : | SECHAUD Matthieu (AREVA NP) |

eicnam

Remerciements

Ce mémoire a été réalisé au sein de l’entreprise ALTRAN Technologies dans le département Energy Industry and Life Science (EILiS).

Je tiens tout d’abord à adresser mes remerciements à l’ingénieur docteur Philippe Jacquet, mon tuteur en entreprise, pour ses nombreux conseils et pour m’avoir permis de débuter mon apprentissage dans de bonnes conditions de travail.

Je remercie également l’ensemble du plateau ALTRAN et plus particulièrement les ingénieurs Moaad Bouzekri, Stéphane Depoisier, Jean-François Delmond, Benjamin Braunn, ainsi qu’Imed Limaiem pour leur disponibilité, leurs conseils techniques et leur bonne humeur qui ont largement contribués à mon intégration au sein de l’équipe.

Pour finir, je tiens à remercier madame Emmanuelle Galichet, ma tutrice enseignante, ainsi que tout le corps enseignant de la formation Sciences et Technologies du Nucléaire pour leurs enseignements.

Abréviations

|  |  |
| --- | --- |
| **Abréviation** | **Nom complet** |
| EPR | European Pressurized Reactor |
| gif | Generation IV International Forum |
| MCNP | Monte Carlo N Particles |
| REP | Réacteur à Eau Pressurisée |
| RNR | Réacteur à Neutrons Rapides |
| SMR | Small Modular Reactor |
| SPX | SuperPhénix |

Table des matieres

[1. INTRODUCTION GENERALE 7](#_Toc397097558)

[1.1. Contexte actuel 7](#_Toc397097559)

[1.2. Les réacteurs 4eme génération 7](#_Toc397097560)

[1.3. Définition et caractéristiqueS des SMR 8](#_Toc397097561)

[2. PRESENTATION DE L’ENTREPRISE 9](#_Toc397097562)

[2.1. Présentation 9](#_Toc397097563)

[2.2. Ma place dans l’entreprise 10](#_Toc397097564)

[2.3. Contexte de l’étude présentée 10](#_Toc397097565)

[3. PROBLEMATIQUE 10](#_Toc397097566)

[3.1. Présentation de l’etude 10](#_Toc397097567)

[3.2. Equation de Bateman 12](#_Toc397097568)

[3.2.1. Chaine d’évolution restreinte 12](#_Toc397097569)

[3.2.2. Epuisement sans flux neutronique 14](#_Toc397097570)

[3.2.3. Epuisement avec flux neutronique 16](#_Toc397097571)

[4. METHODES DE RESOLUTION 17](#_Toc397097572)

[4.1. methode exacte 17](#_Toc397097573)

[4.1.1. Methode de la « variation de la constante » 17](#_Toc397097574)

[4.1.2. Resolution d’un probleme a valeur propre 18](#_Toc397097575)

[4.1.3. Expression des conditions limites 20](#_Toc397097576)

[4.2. Methodes Alternatives 21](#_Toc397097577)

[4.2.1. Methode explicite : Runge kutta 1 21](#_Toc397097578)

[4.2.2. Methode Explicite-O5 : Approximation à l’ordre 5 22](#_Toc397097579)

[4.2.3. simplification du Modele ‘exact’ 23](#_Toc397097580)

[4.3. application 24](#_Toc397097581)

[4.3.1. Présentation du cas de cellule Superphénix 24](#_Toc397097582)

[4.3.2. Sections efficaces 26](#_Toc397097583)

[4.3.3. Résultats des différents modèles 26](#_Toc397097584)

[4.3.4. Performances des modèles 26](#_Toc397097585)

[5. EXPLOITATION du modele rk1 27](#_Toc397097586)

[5.1. Epuisements « MonteCarlo » 27](#_Toc397097587)

[5.2. Analyse physique 28](#_Toc397097588)

[5.3. prolongement de l’étude 28](#_Toc397097589)

[6. CONCLUSION GENERALE 29](#_Toc397097590)

Liste des tableaux

[Tableau 1 : Listes de vecteurs potentiellement exploitables (voir références [7], [8], [9]) 11](#_Toc397097591)

[Tableau 2 : Période de demi-vie des noyaux lourds – voir selon Nudat 2.6 15](#_Toc397097592)

[Tableau 3 : Expression de la matrice d’évolution de la chaine restreinte 19](#_Toc397097593)

[Tableau 4 : Expression de la matrice d’évolution de la chaine simplifiée 23](#_Toc397097594)

[Tableau 5 : Composition isotopique des noyaux lourds de SuperPhénix 25](#_Toc397097595)

[Tableau 6 : Sections efficaces calculées par DRAGON 26](#_Toc397097596)

[Tableau 7 : Performances des modèles 27](#_Toc397097597)

Liste des FIGURES

[Figure 1 : Organigramme d’ALTRAN 9](#_Toc397097598)

[Figure 2 : Evolution complète des chaînes de désintégration des noyaux lourds 13](#_Toc397097599)

[Figure 3 : Evolution simplifiée des chaînes de désintégration des noyaux lourds 14](#_Toc397097600)

[Figure 4 : Illustration de la méthode Runge Kutta 1 21](#_Toc397097601)

[Figure 5 : Illustration d’une cellule combustible SuperPhénix 24](#_Toc397097602)

[Figure 6 : Evolution de la quantité d’U235 soumis à un flux neutronique 30](#_Toc397097603)

[Figure 7 : Evolution de la quantité d’U238 soumis à un flux neutronique 31](#_Toc397097604)

[Figure 8 : Evolution de la quantité de Pu239 soumis à un flux neutronique 32](#_Toc397097605)

[Figure 9 : Evolution de la quantité de Pu240 soumis à un flux neutronique 33](#_Toc397097606)

[Figure 10 : Evolution de la quantité de Pu241 soumis à un flux neutronique 34](#_Toc397097607)

[Figure 11 : Evolution de la quantité d’Am241 soumis à un flux neutronique 35](#_Toc397097608)

[Figure 12 : Evolution de la quantité de Pu242 soumis à un flux neutronique 36](#_Toc397097609)

[Figure 13 : Evolution de la quantité de Pu238 soumis à un flux neutronique 37](#_Toc397097610)

[Figure 14 : Evolution des noyaux lourds du combustible soumis à un flux neutronique – vecteur Pu initial SPX 38](#_Toc397097611)

[Figure 15 : Evolution des noyaux lourds du combustible soumis à un flux neutronique – vecteur Pu initial REP 39](#_Toc397097612)

[Figure 16: Comparaison du modèle RK1 et DRAGON 40](#_Toc397097613)

[Figure 17: Evolution du Pu239 et du Pu241 à partir d’un vecteur Pu initial SPX 41](#_Toc397097614)

[Figure 18: Evolution du Pu240 et du Pu241 à partir d’un vecteur Pu initial SPX 42](#_Toc397097615)

[Figure 19: Evolution du Pu239 et du Pu240 à partir d’un vecteur Pu initial SPX 43](#_Toc397097616)

[Figure 20: Evolution du Pu239 et du Pu241 à partir d’un vecteur Pu initial de REP épuisé à 43000MWj/t 44](#_Toc397097617)

[Figure 21: Evolution du Pu240 et du Pu241 à partir d’un vecteur Pu initial de REP épuisé à 43000MWj/t 45](#_Toc397097618)

[Figure 22: Evolution du Pu239 et du Pu240 à partir d’un vecteur Pu initial de REP épuisé à 43000MWj/t 46](#_Toc397097619)

# INTRODUCTION GENERALE

## Contexte actuel

A partir des années 70, l’augmentation durable du prix du pétrole, les objectifs de sécurité énergétique et les perspectives de plus en plus contraignantes de réduction des émissions de CO2 ont suscité une renaissance des nouveaux projets de constructions de centrales nucléaires. Ils ont été suivis cependant d’une interruption des investissements de projets nucléaires aux États-Unis et en Europe à la suite des accidents de Three Miles Island (1979) et de Tchernobyl (1986).

Après la prise de conscience du réchauffement climatique, le concept de développement durable émerge et l’énergie nucléaire suscite un regain d’intérêt. Cela s’explique par le fait que l’énergie nucléaire émet très peu de quantité de gaz à effet de serre contrairement aux énergies fossiles. L’énergie nucléaire affiche ainsi une progression et une évolution dynamique tant sur le plan technique qu’industriel. Les réacteurs de 3ème génération sont en cours de construction, notamment le réacteur conçu par Areva : l’EPR, en construction à Flamanville (France), Olkiluoto (Finlande), Taishan (Chine) et en projet à Hinkley Point (Angleterre).

Le nucléaire produit, dans le monde et en France, respectivement 17% et 75% de l’électricité. Les scientifiques du monde entier travaillent déjà au développement des réacteurs de 4ème génération qui seront probablement en exploitation durant la deuxième moitié du 21e siècle.

## Les réacteurs 4eme génération

En vue du développement des réacteurs de 4ème génération, le GIF (Generation IV International Forum) a été créé par 9 pays en 2000. Aujourd’hui, il en compte 12 : l’Afrique du Sud, l’Argentine, le Brésil, le Canada, la Chine, la Corée du Sud, les Etats-Unis, la France, la Grande-Bretagne, le Japon, la Russie et la Suisse ainsi que la Communauté Européenne de l’Energie Atomique (EURATOM). Le but de ce forum est de promouvoir le développement d’ici 2040 de nouveaux réacteurs et de nouveaux cycles de combustibles permettant de réduire la consommation des ressources, la quantité de déchets radioactifs et les possibilités de prolifération nucléaire (détournement des technologies civiles pour la confection d’armes nucléaires).

Le GIF a retenu six types de réacteurs nucléaires comme étant les technologies les plus prometteuses pour les prochaines décennies:

* Molten Salt Reactor : Réacteur à neutrons rapides à sels fondus
* Gas‐Cooled Fast Reactor : Réacteur à neutrons rapides à caloporteur gaz
* Lead-Cooled Fast Reactor : Réacteur à neutrons rapides à caloporteur plomb
* Sodium‐Cooled Fast Reactor : Réacteur à neutrons rapides à caloporteur sodium
* Supercritical Water Cooled Reactor : Réacteur à neutrons thermiques à eau supercritique
* Very High Temperature Reactor : Réacteur à neutrons thermiques à très haute température

Le préconcept retenu pour cette étude par ALTRAN est un petit réacteur de type « à neutrons rapides refroidi au gaz ».

## Définition et caractéristiqueS des SMR

Selon l’AIEA, les réacteurs de petites et moyennes puissances (SMR, Small Modular Reactor) ont une puissance électrique comprise entre 300MWe et 700 MWe. Il y a aujourd’hui intérêt croissant pour développer ce type de réacteur. En effet, on compte actuellement 131 SMR en exploitation dans 26 pays, soit une capacité de 59 GWe et 14 SMR en construction dans six pays tel que l’Argentine, la Chine, l’Inde, le Pakistan, la Russie et la Slovaquie.

Outre l’aspect de puissance et de taille qui caractérise les SMR, ils ont d’autres propriétés intéressantes qui découlent de ces deux caractéristiques :

* Le délai de construction est réduit : Le début du retour d’investissement est donc plus rapide ;
* De plus, avec leur cout unitaire plus faible, ils offrent une meilleure gestion des risques financiers, c’est donc une option intéressante pour les pays en voie de développement ;
* La co-génération est possible grâce à leur modularité, les SMR peuvent être utilisés dans d’autres applications industrielles telles que le chauffage urbain, le dessalement de l’eau et la production d’hydrogène ;
* La conception du réacteur est simplifiée, en intégrant la totalité du circuit primaire dans la cuve ;
* La faible puissance du SMR, en particulier volumique, contribue à une meilleure sûreté passive. Les préconcepts actuels visent l’autonomie des installations : les réacteurs ne nécessiteraient ainsi d’intervention humaine ni en fonctionnement, ni en situations incidentelles ou accidentelles. ;
* La réduction de la maintenance et la capacité à fournir de la chaleur et de l’électricité pendant des années sans recharger le combustible a pour effet d’augmenter grandement son temps de fonctionnement ;
* Le SMR est également adapté aux régions reculées possédant un réseau haute tension peu développées. En effet il est possible de transporter un SMR sur un navire pour alimenter et chauffer une ville puis retirer le SMR quand son temps de fonctionnement est achevé ;
* Pour finir, cette technologie n’est pas une utopie mais bien un projet d’actualité[[1]](#footnote-2) : elle existe déjà pour la propulsion navale telle que les sous-marins et les navires et suscite l’intérêt des électriciens du monde entier. Par exemple la société russe ROSATOM planifie de mettre à l’eau un brise-glace géant en 2015, équipé de deux réacteurs RITM-200 de 55Mwe chacun, fonctionnant sans rechargement jusqu’à 40 ans (voir référence [4]).

# PRESENTATION DE L’ENTREPRISE

## Présentation

ALTRAN est une société de conseil en ingénierie fondée en 1982 par Alexis Kniazeff et Hubert Martigny. ALTRAN s’est rapidement imposé comme leader européen de son secteur sur l’ensemble des métiers de l’ingénierie : automobile, ferroviaire, aéronautique, télécommunication et énergie.

Considéré comme un partenaire stratégique de grandes industries, ALTRAN accompagne ses clients tout au long de leur processus d’innovation. Elle mène différentes études allant de la recherche fondamentale appliquée jusqu’aux procédés d’innovation. Avec une dimension internationale, ALTRAN est présent dans plus de 20 pays à travers le monde.

Afin de mieux saisir l’étendue de ses missions et moyens, voici quelques chiffres clés :

* Chiffres d’affaire 2013 : 1 633 M€.
* Plus de 21000 collaborateurs en 2014.
* 500 clients majeurs dans le monde entier.
* 80 filiales présentes dans plus de 20 pays en Europe, Amérique latine, aux États-Unis et en Asie.

ALTRAN est composée de deux grandes entités (voir illustration en Figure 1):

* ALTRAN TI : Technology et Industrie qui comprend :
* ALTRAN AIT: Automobile, Infrastructure and Transportation.
* ALTRAN EILiS: Energy, Industry and Life Science.
* ALTRAN ASD: Aerospace and Defense.
* ALTRAN FG/TEM est constitué de:
* ALTRAN FG: Finance and Government.
* ALTRAN TEM: Telecom and Media.

Figure 1 : Organigramme d’ALTRAN

## Ma place dans l’entreprise

L’étude qui fait l’objet de ce rapport a été effectuée dans la division Energy, Industry and Life Science (EILiS). Ce centre réalise des études pour AREVA et s’intéresse principalement aux problèmes énergétiques et prend en charge, en particulier, les études de sûreté des réacteurs français existants et en construction (EPR) :

* Modélisation de transitoires incidentels, accidentels et de fonctionnement normal ;
* Calculs scientifiques consistant à développer et utiliser des méthodes, procédures, jeux de données afin de réaliser des simulations, d’extraire les résultats pour ainsi les valoriser dans un document d’ingénierie ;
* Etudes de sensibilités et d’analyse de données permettant d’apporter des réponses quant à l’importance de chaque paramètre dans un scénario de transitoire donné ;
* Vérification d’études indépendantes afin de contrôler et de s’assurer qu’une étude réponde aux exigences énoncées.

Je suis donc apprenti ingénieur chez ALTRAN dans la division EILiS au sein du plateau situé à AREVA La Défense.

## Contexte de l’étude présentée

Le secteur de l’énergie nucléaire se compose d’industriels leader dans la conception des centrales destinées au marché mondial et de challengers se concentrant sur des activités intellectuelles techniquement pointues à forte valeur ajoutée. La conception d’un réacteur innovant est une opération complexe, pour laquelle il n’existe pas de méthodologie traditionnelle. Dans le cadre de ses activités de R&D dédiées au secteur des réacteurs nucléaires, ALTRAN s’intéresse à l’application de différentes méthodes très innovantes à la problématique de préconception des SMR.

C’est dans ce contexte qu’ALTRAN a lancé le projet PHR. L’objectif de ce projet est de définir un nouveau préconcept innovant de SMR répondant à un cahier de charge ambitieux en termes de sûreté, compétitivité économique et gestion des déchets à vie longue.

# PROBLEMATIQUE

## Présentation de l’etude

Dans le cadre de la préconception d’un SMR de type « pile », un des objectifs de performance les plus contraignants est le maintien en service du réacteur pendant une durée importante de plusieurs années sans rechargement, avec une puissance non dérisoire évidemment. La réalisation de cet objectif est possible grâce au dimensionnement du système de contrôle de la réactivité qui permet de garder le réacteur critique pendant toute sa durée de fonctionnement. Toutefois ce système, qu’il soit de type « barre de poisons », « réflecteur mobile », « barre de combustible », etc., est technologiquement limité[[2]](#footnote-3). L’optimisation de la perte de la réactivité[[3]](#footnote-4) au cours de l’épuisement du combustible est donc une nécessité : ce dernier point est particulièrement conditionné à la qualité du vecteur Pu[[4]](#footnote-5) composant le combustible du cœur du réacteur.

Dans le cadre des études des réacteurs innovants, la problématique relative au vecteur Pu se résume généralement à l’étude du cycle d’équilibre, c’est-à-dire du cycle représentatif d’un cœur après N rechargements d’une fraction 1/N du combustible du cœur. Dans le cadre d’un réacteur sans rechargement, la problématique de l’optimisation du vecteur Pu initial chargé dans le cœur est innovant. Une étude antérieure réalisée par ALTRAN a montré qu’elle était aussi essentielle : tous les vecteurs Pu disponibles « sur le marché » (voir Tableau 1) ne permettent pas d’approcher les performances affichées des autres SMR à neutrons rapides comme par exemple, le réacteur 4S de Toshiba (voir référence [6]).

L’objectif de ce travail est d’étudier la faisabilité d’un contrôle de la population des noyaux lourds des combustibles par épuisement naturel et par épuisement en réacteur d’irradiation. A cette fin il est nécessaire de simuler de nombreuses évolutions de la composition du combustible sur de longues périodes, avec des caractéristiques d’irradiation et de refroidissement variées. Pour cela, il faut développer un modèle d’épuisement performant et précis. Les noyaux étudiés sont essentiellement les isotopes impactant la réactivité des cœurs de réacteurs à neutrons rapides.

|  |  |  |  |  |  |  |
| --- | --- | --- | --- | --- | --- | --- |
| **Vecteur Pu** | **Pu238** | **Pu239** | **Pu240** | **Pu241** | **Pu242** | **Am241** |
| **PWR – 33000MWj/t** | 1,3 | 56,6 | 23,2 | 13,9 | 4,7 | 0,3 |
| **PWR – 43000MWj/t** | 2 | 52,5 | 24,1 | 14,7 | 6,2 | 0,5 |
| **PWR – 53000MWj/t** | 2,7 | 50,4 | 24,1 | 15,2 | 7,1 | 0,5 |
| **BWR - 30400 MWj/t** | 0 | 56,8 | 23,8 | 14,3 | 5,1 | 0 |
| **CANDU - 7500 MWj/t** | 0 | 66,6 | 26,6 | 5,3 | 1,5 | 0 |
| **AGR - 18000 MWj/t** | 0,6 | 53,7 | 30,8 | 9,9 | 5 | 0 |
| **Magnox - 3000 MWj/t** | 0,1 | 80 | 16,9 | 2,7 | 0,3 | 0 |
| **Magnox - 5000 MWj/t** | 0 | 68,5 | 25 | 5,3 | 1,2 | 0 |
| **GFR - Pu2035** | 3,6 | 47,4 | 29,6 | 8,2 | 10,4 | 0,8 |
| **Toshiba ‘4S’** | 0 | 66 | 27 | 2 | 5 | 0 |

Tableau 1 : Listes de vecteurs potentiellement exploitables (voir références [7], [8], [9])

## Equation de Bateman

L’étude de la population de noyaux lourds dans le combustible conduit à résoudre les équations de Bateman. Ces dernières décrivent l’évolution temporelle de la concentration de chaque noyau par un bilan de chaque terme de disparition et d’apparition. L’équation générale de Bateman est la suivante (voir [12]) :

Avec :

* : La concentration de l’isotope i
* : La section efficace des réactions conduisant à la formation de l'isotope i à partir de l'isotope j
* : Le rendement de fission de l'isotope i
* : La section de fission de l'isotope j
* : La constante de décroissance radioactive de l'élément j qui conduit à la formation de l'isotope i
* : La section d'absorption de l'isotope i
* : La constante de décroissance radioactive de l'isotope i
* : Le flux neutronique

Cette équation générale doit être simplifiée afin de l’adapter au problème que l’on souhaite modéliser. Dans les prochains chapitres présentent la chaine de décroissance restreinte et les déclinaisons des équations de Bateman sans et avec flux.

### Chaine d’évolution restreinte

Pour calculer l’équation de Bateman pour chaque isotope, il est nécessaire de prendre compte l’évolution des noyaux lourds soumis à un flux neutronique. Cette chaine illustrée en Figure 2 représente l’évolution des noyaux lourds soumis à leur décroissance naturelle et à un flux neutronique. Elle fait apparaitre en particulier les noyaux fissiles et fertiles. Elle exclue les produits de fission dont l’étude de l’évolution dépasse le cadre de ce mémoire.

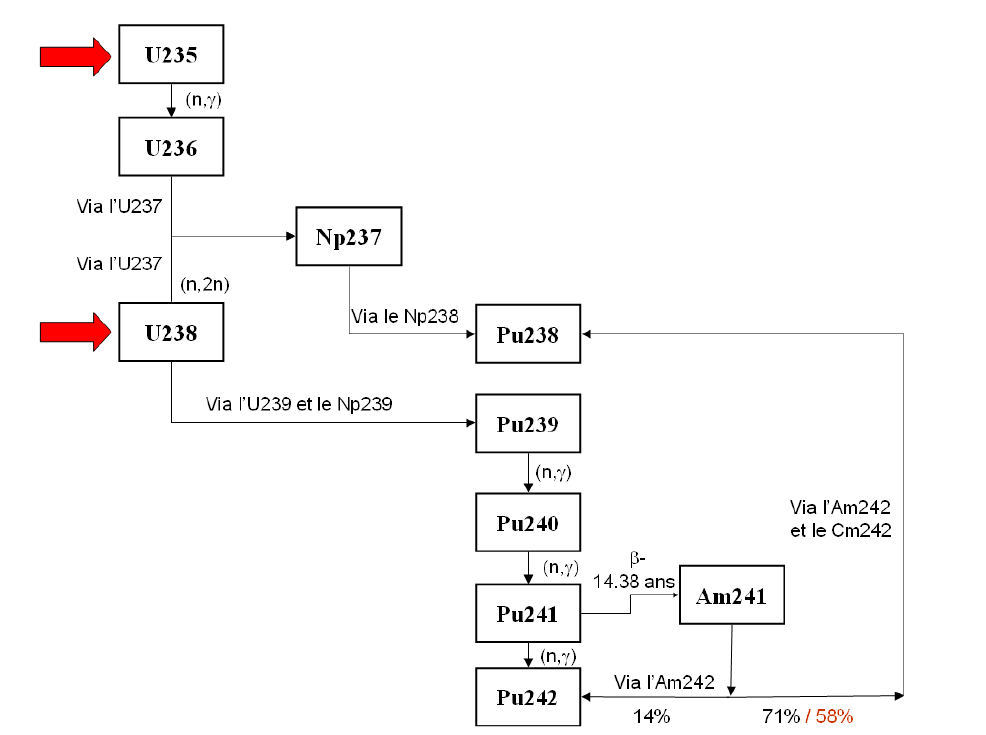
Les noyaux lourds de ce schéma sont issus de la famille d’uranium jusqu’aux isotopes du curium. Cependant, dans ce travail, il est pris en compte uniquement les isotopes du vecteur Pu initial ainsi que l’U235 et l’U238. Les autres noyaux sont considérés en très petite quantité par rapport aux noyaux étudiés, ou bien sans impact sur l’évolution de ces derniers. Leur présence sera donc négligée et n’auront pas d’influence sur la composition du combustible. Le détail des arguments de restriction de cette chaine est présenté dans la référence [7]. On remarquera toutefois que dans le cadre de notre problématique de refroidissement et d’irradiation sur de longues périodes, les décroissances des différents noyaux du vecteur Pu sont toutes considérées.

La chaine de décroissance restreinte est illustrée par la Figure 3.



Figure 2 : Evolution complète des chaînes de désintégration des noyaux lourds

*Extrait de la référence [7]*



α

24E3 ans

α

38E5 ans

Figure 3 : Evolution simplifiée des chaînes de désintégration des noyaux lourds

*Extrait modifié de la référence [7]*

**Remarque** : les valeurs (71%/58%) relatives à la production de Pu238 à partir de l’Am241 sont des valeurs indicatives. Cet isotope est en effet assez mal calculé, et ce rendement de production est souvent ajusté selon les circonstances.

### Epuisement sans flux neutronique

L’évolution des noyaux du vecteur Pu dans un modèle d’épuisement naturel ne prend pas en compte les sections efficaces et le flux neutronique ce qui simplifie l’équation de Bateman :

Seuls les premiers noyaux fils issus des réactions de désintégrations sont pris en compte car on considère que les prochains noyaux fils n’auront pas d’impact sur la réactivité au vu des longues périodes de demi-vie :

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

Les noyaux lourds, excepté le Pu241, se désintègrent par la radioactivité alpha.

La radioactivité alpha est caractérisée par l’émission d’une particule alpha qui est un noyau d’hélium, ; elle se traduit par l’équation :

Le Pu241 se désintègre par la radioactivité , correspondant à la transformation d’un neutron en proton[[5]](#footnote-6). La désintégration se traduit par l’équation :

Les équations de Bateman du modèle d’épuisement sans flux pour chaque noyau lourd sont les suivantes:

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

L’équation de Bateman sans flux dépend de la concentration des noyaux et de la constante de décroissance radioactive relative au temps de demi-vie[[6]](#footnote-7) :

Une collecte des données de décroissance permet d’établir le Tableau 2.

|  |  |
| --- | --- |
| Noyaux |  |
| Pu238 | 87,7 |
| Pu239 | 24110 |
| Pu240 | 6561 |
| Pu241 | 14,325 |
| Pu242 | 375000 |
| Am241 | 432,6 |
| U238 | 4,47 × 109 |
| U235 | 7,04 × 108 |

Tableau 2 : Période de demi-vie des noyaux lourds – voir selon Nudat 2.6[[7]](#footnote-8)

### Epuisement avec flux neutronique

Pour ce modèle d’épuisement, les équations de Bateman différent des équations sans flux par l’ajout des termes d’irradiation. Les sections efficaces peuvent être visualisées avec le logiciel JANIS 4.0[[8]](#footnote-9). La section efficace est une surface représentant la probabilité qu’un neutron entre en collision d’un noyau. Son unité usuelle est le barn, soit 1024.

Les sections efficaces d’intérêt sont les sections d’absorption, plus exactement celles de fission et de capture radiative, notées respectivement ,:

La section efficace d’absorption correspond donc à la probabilité qu’un noyau absorbe un neutron, transformant ainsi durablement ce noyau soit de manière « radicale » par une réaction de fission, soit par la capture un neutron formant parfois un radionucléide aux caractéristiques très différentes du noyau mère (on parlera par exemple au phénomènes d’activation).

Prenons par exemple le cas de l’isotope Pu238. La création de celui-ci est due :

* Aux captures successives à partir de l’U235.   
  En effet la capture neutronique de l’U235 est considérée car il possède une section efficace de capture non négligeable. Par captures successives puis par deux désintégrations beta de l’U237 et du Np238 qui possèdent des demi-vies respectives de 6 et 2 jours, l’U235 se transmute en Pu238.
* Aux captures successives à partir de l’Am241.   
  En effet, l’Am241, par capture, se transforme en Am242 ou en Am242 métastable[[9]](#footnote-10) qui se désintègrent par une réaction (resp. ) en Cm242 (resp. Pu242) avec une probabilité de 84% (resp. 16%). Le Cm242 se désintègre enfin par réaction alpha avec une période de 162 jours en Pu238. L’Am242 métastable n’est pas prise en compte : en faible quantité, sa période de décroissance est trop longue pour contribuer notablement à la production de Pu238. La décroissance de l’Am242 est considérée immédiate. Soumis au flux neutronique, la totalité du Cm242 ne produira pas forcément du Pu238. La filiation de l’Am241 au Pu238 est donc complexe, et usuellement « sacrifié[[10]](#footnote-11) » dans les différents codes d’évolution.

Les équations de Bateman pour l’épuisement avec flux pour chaque noyau lourd sont les suivantes :

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

# METHODES DE RESOLUTION

Dans ce chapitre, différentes méthodes de résolution des équations de Bateman sont présentées. Ces méthodes sont adaptées au modèle d’épuisement avec flux, et donc a fortiori, au modèle d’épuisement sans flux.

## methode exacte

Il existe dans la littérature des méthodes de résolution « générale » de l’équation de Bateman, par exemple celle exposée dans la référence [10]. Toutefois la méthode exposée dans ce chapitre, bien que simple, n’a pas été publiée à notre connaissance.

### Methode de la « variation de la constante »

On peut généraliser les équations de Bateman : la concentration du noyau i est décrite par l’équation suivante :

|  |  |
| --- | --- |
|  | Eq. 1 |

Où :

Cette équation du premier ordre avec second membre non nul, coefficient constant, se résout usuellement par la méthode dite « de la variation de la constante », et conduit à la solution générale :

Avec :

Le problème se résume donc à la détermination d’une primitive, dont la constante est déterminée par la condition limite à l’instant initial.

Cette formulation est généralement suffisante pour résoudre exactement les systèmes d’équations des cas de chaine de décroissance en ligne directe, c’est-à-dire les chaines où les différents noyaux ne font pas partie de leur propre filiation. La considération de toutes les interactions du Pu238 introduit des boucles.

Dans le cadre de cette étude, on remarquera que l’hypothèse d’une décomposition des solutions des équations de Bateman sous la forme d’une base de fonction d’exponentielles de constantes semble tout à fait valide :

|  |  |  |
| --- | --- | --- |
|  |  | Eq. 2 |

Cette formulation est tout à fait compatible avec la forme générale de la solution de l’équation de Bateman :

Enfin on remarquera toutefois que ce chapitre ne constitue pas une validation mathématique rigoureuse de l’hypothèse Eq. 2.

### Resolution d’un probleme a valeur propre

Les constatations du chapitre précédent permettent d’aborder le système d’équation couplées de Bateman comme un problème d’algèbre linéaire. En effet, en injectant la forme de l’Eq. 2 dans l’équation générale Eq. 1 :

|  |  |  |
| --- | --- | --- |
|  |  | Eq. 3 |

Vérifiée pour tous les instants , le système d’équations s’écrit :

|  |  |  |
| --- | --- | --- |
|  |  | Eq. 4 |

Il s’agit d’un problème à valeurs propres très classique.

Une façon simple pour établir ce problème est d’écrire le système d’équations sous forme matricielle : on recherche les vecteurs Y solutions du problème :

|  |  |  |
| --- | --- | --- |
|  | Avec :  et  *Le* Tableau 3 *explicite les termes de la matrice* | Eq. 5 |

En supposant que peut s’écrire sous la forme de fonctions exponentielles (Eq. 2), et en considérant que l’équation est valable en tout t  (raisonnement identique à Eq. 4):

|  |  |  |
| --- | --- | --- |
|  |  | Eq. 6 |

Ainsi, sont des vecteurs propres de la matrice du problème, et l’on connait déjà ses valeurs propres : ce sont ses termes diagonaux. Le problème se résume donc à un système linéaire : trouver les noyaux des matrices , pour chaque *k*.

|  |  |  |  |  |  |  |  |  |
| --- | --- | --- | --- | --- | --- | --- | --- | --- |
| **M** | **1** | **2** | **3** | **4** | **5** | **6** | **7** | **8** |
| **1** |  | 0 | 0 | 0 | 0 |  |  | 0 |
| **2** |  |  | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 |  |
| **3** | 0 |  |  | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 |
| **4** | 0 | 0 |  |  | 0 | 0 | 0 | 0 |
| **5** | 0 | 0 | 0 |  |  |  | 0 | 0 |
| **6** | 0 | 0 | 0 |  | 0 |  | 0 | 0 |
| **7** | 0 |  | 0 | 0 | 0 | 0 |  | 0 |
| **8** | 0 | 0 | 0 | 0 |  | 0 | 0 |  |

Tableau 3 : Expression de la matrice d’évolution de la chaine restreinte

### Expression des conditions limites

La seule connaissance des valeurs propres de la matrice ne permet pas de connaitre les solutions des équations de Bateman. En effet, si constitue la matrice de vecteurs propres[[11]](#footnote-12) obtenue par une méthode de résolution de système linéaire, leur norme est arbitraire.

|  |  |  |
| --- | --- | --- |
|  |  | Eq. 7 |

La considération des valeurs des concentrations de noyaux à l’instant initial permet de fixer une norme, et d’obtenir la matrice solution du problème :

|  |  |  |
| --- | --- | --- |
|  | Sachant que :    On cherche telle que :  Trivialement : | Eq. 8 |

## Methodes Alternatives

### Methode explicite : Runge kutta 1

Usuellement la résolution de l’équation de Bateman se fait par une méthode numérique appelée méthode Runge Kutta. Cette méthode se caractérise :

* par son ordre, on utilise souvent l’ordre 1 (RK1), l’ordre 2 (RK2) et l’ordre 4 (RK4)
* par son pas de temps : c’est une méthode explicite qui nécessite le calcul de la solution à tous les instants précédant l’instant d’intérêt. Il est donc nécessaire de réaliser calculs pour connaitre les concentrations de noyaux à l’instant .

Un ordre important permet d’améliorer la précision de la solution et d’augmenter le pas de temps, et ainsi diminuer le nombre de calculs.

Privilégiant la simplicité de la méthode à la réduction du nombre de calculs, l’application de la méthode RK1 est envisagée dans cette étude.

Cette méthode peut s’expliquer simplement : itérativement, la concentration de chaque noyau à l’instant i+1 découle de la concentration et de la dérivée temporelle de cette dernière à l’instant précédent i avec l’hypothèse que cette dérivée est constante.

Une illustration des résultats de cette méthode est présentée par la Figure 4, sur la résolution du problème simple :



Figure 4 : Illustration de la méthode Runge Kutta 1

L’équation utilisée est la suivante :

* est le pas de temps, qui doit être suffisamment fin vis-à-vis de la cinétique des différents noyaux[[12]](#footnote-13) ;
* est le vecteur des concentrations de noyaux lourds à l’instant i ;
* la fonction .

Rapportée à l’étude, et sont :

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

A titre d’exemple, la méthode RK1 appliquée à l’épuisement sans flux de l’isotope Pu239 conduit à:

Un exemple d’équation d’épuisement sans flux  pour un noyau présentant un terme d’apparition, l’Am241, est:

A titre d’exemple, la méthode RK1 appliquée à l’épuisement avec flux de l’isotope Pu239 conduit à:

### Methode Explicite-O5 : Approximation à l’ordre 5

Afin de disposer d’une méthode explicite simple et minimisant le nombre de calculs, l’évolution des concentrations autour de l’instant peut-être approchée à l’ordre N par une série de Taylor :

Cette méthode est particulièrement simple dans une optique de résolution numérique sous forme matricielle :

Une méthode itérative explicite simple permet de connaitre l’évolution des concentrations des noyaux, moyennant le choix d’un pas de temps suffisamment fin :

On retiendra N=5 dans le cadre de cette étude, afin de retenir un pas de temps de 1 an.

### simplification du Modele ‘exact’

La méthode exacte présentée dans le chapitre 4.1 souffre d’un manque de robustesse :

* Intrinsèque à la méthode : M est-elle toujours diagonalisable ?
* Des méthodes numériques nécessaires à la résolution du problème : par exemple, la bibliothèque VBA de calculs matriciel « matrix.xla »[[13]](#footnote-14) nécessite plusieurs ajustements pour parvenir à fonctionner sans aberration, mais ne permet pas de résoudre le problème de la chaine restreinte présentée dans le chapitre 3.2.1.

Afin de renforcer ce point, une solution simple est de simplifier le problème pour rendre la matrice plus creuse, au détriment de phénomènes physiques dont les effets peuvent être considérés comme anecdotiques. Les simplifications retenues sont les suivantes :

* Non modélisation de la production de Pu238 par capture sur l’Am241 ;
* Non modélisation de la production d’U235 par décroissance du Pu239 ;
* Non modélisation de la production d’U238 par décroissance du Pu242.

Le Tableau 4 explicite les termes de la matrice ainsi simplifiée.

|  |  |  |  |  |  |  |  |  |
| --- | --- | --- | --- | --- | --- | --- | --- | --- |
| **M** | **1** | **2** | **3** | **4** | **5** | **6** | **7** | **8** |
| **1** |  | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 |  | 0 |
| **2** |  |  | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 |  |
| **3** | 0 |  |  | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 |
| **4** | 0 | 0 |  |  | 0 | 0 | 0 | 0 |
| **5** | 0 | 0 | 0 |  |  |  | 0 | 0 |
| **6** | 0 | 0 | 0 |  | 0 |  | 0 | 0 |
| **7** | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 |  | 0 |
| **8** | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 |  |

Tableau 4 : Expression de la matrice d’évolution de la chaine simplifiée

## application

### Présentation du cas de cellule Superphénix

Le cas appliqué à cette étude est un combustible enrichi au plutonium utilisé dans le cœur fissile du réacteur à neutrons rapides Superphénix.

Une des particularités de SuperPhénix est la surgénération. La surgénération était très intéressante et recherchée dans les réacteurs à neutrons rapides. C’est un processus qui permet de produire plus de matières fissiles que d’en consommer en utilisant l’uranium 238 qui est fertile. En effet, soumis à un flux neutronique rapide, l’uranium 238 capture un neutron pour se transformer en plutonium 239 qui est fissile, en émettant deux particules β. De plus, une enveloppe d’uranium﻿ 238 est placée autour du cœur. C’est cette enveloppe d’uranium﻿ 238 qui permet la surgénération. Ce travail est axé uniquement sur l’étude du combustible du cœur fissile.

Le réacteur SuperPhénix produit une puissance thermique nominale de 3000 MW avec une disponibilité de 75%. La puissance thermique effective du réacteur est :

Le flux neutronique est proportionnel à cette puissance thermique effective :

* : le flux en n/cm²/s
* : la section macroscopique de fission du combustible en
* : le taux de fission en fissions/
* : la puissance thermique volumique dans la pastille, dans le cas de notre modélisation de SuperPhénix, elle vaut : 562 W/cm3
* : l’énergie libérée par la fission d’un noyau lourd. Pour simplifier, on la prend égale à 200 MeV.
* : la section efficace microscopique de fission du noyau i, en cm2
* : la concentration du noyau i en noyau/cm3

La cellule de combustible SuperPhénix est illustrée dans la Figure 5.



Figure 5 : Illustration d’une cellule combustible SuperPhénix

La masse du combustible est un mélange de dioxyde d’uranium et de dioxyde de plutonium. Sa masse est de 36 tonnes avec un enrichissement massique, E%wt, en plutonium de 15,78%.

On en déduit donc la masse en Pu et en U qui vaut :

et

Cependant, le dioxygène n’est pas pris en compte dans les prochains calculs car il n’intervient pas dans les réactions nucléaires. Il est nécessaire de recalculer les masses de plutonium et d’uranium pur à l’aide de cette formule :

, où la somme ne porte que sur les isotopes du vecteur Pu

, où la somme ne porte que sur les isotopes d’uranium

Où la distribution isotopique des noyaux lourds du combustible est présentée en Tableau 5.

Il y avait donc environ 5 tonnes de plutonium﻿﻿ dans le cœur fissile de SuperPhénix.

|  |  |  |
| --- | --- | --- |
| Noyaux | | %wti |
| Vecteur Pu | Pu238 | 0,38 |
| Pu239 | 69,08 |
| Pu240 | 23,04 |
| Pu241 | 4,82 |
| Pu242 | 1,64 |
| Am241 | 1,04 |
| Uranium | U238 | 99,48 |
| U235 | 0,52 |

Tableau 5 : Composition isotopique des noyaux lourds de SuperPhénix

La densité en U et en Pu est respectivement 10,97 g/ et 11,50 g/. La densité en U/Pu est :

Afin de calculer les concentrations de noyaux lourds dans la pastille, il faut « diluer » le trou central de cette dernière. La fraction volumique de combustible dans la pastille est de 81%. La densité du combustible effective est donc :

On en déduit la concentration en atomes par centimètre cube à l’aide de la relation :

Avec :

* : la masse totale de noyau i
* : la masse molaire du noyau i
* Na : le nombre d’Avogadro
* : le volume du combustible

### Sections efficaces

Les sections efficaces de fission, de capture, d’absorption ainsi que les sections efficaces de production (« nufission », où nu est la multiplicité) sont calculées par le code DRAGON-VERSION4, en simulant la cellule SuperPhénix avec la bibliothèque de données nucléaire JEFF3.1.2 au format « Draglib » avec le maillage énergétique SHEM à 315 groupes[[14]](#footnote-15). Les valeurs des sections efficaces condensées à 1 groupe d’énergie sont présentées dans le Tableau 6.

|  |  |  |  |  |
| --- | --- | --- | --- | --- |
| Section efficace (barn) | Fission | Capture | Absorption | nufission |
| Pu238 | 1,25750 | 0,49969 | 1,75719 | 3,77010 |
| Pu239 | 1,75820 | 0,46005 | 2,21825 | 5,18940 |
| Pu240 | 0,41239 | 0,45653 | 0,86892 | 1,26420 |
| Pu241 | 2,43800 | 0,44950 | 2,88750 | 7,26670 |
| Pu242 | 0,29929 | 0,44868 | 0,74797 | 0,93702 |
| Am241 | 0,30307 | 1,69060 | 1,99367 | 1,06020 |
| U238 | 1,83740 | 0,51767 | 2,35507 | 4,52570 |
| U235 | 0,04958 | 0,26424 | 0,31382 | 0,13804 |

Tableau 6 : Sections efficaces calculées par DRAGON

### Résultats des différents modèles

Les différents modèles ont été comparés au code étalon VESTA2 couplant :

* le code MCNP4 qui résout l’équation du transport
* le module Phénix qui résout les équations de Bateman

VESTA utilise la bibliothèque de données nucléaires JEFF3.3 dans un format qui diffèrent fortement du format de la bibliothèque DRAGON. Les méthodes numériques entre MCNP et DRAGON diffèrent aussi notablement de par le fait que VESTA utilise la méthode Monte Carlo qui est une méthode probabiliste et DRAGON utilise la méthode déterministe.

Les résultats et leurs interprétations sont disponibles dans les  « annexes – épuisement avec flux » dans les Figure 6 à Figure 13.

### Performances des modèles

Les différents modèles diffèrent par leur performances, que l’on peut mesurer par :

* La quantité de calculs nécessaires à la résolution des équations de Bateman ;
* La robustesse des méthodes employées ;
* La simplicité de mise en œuvre dans un environnement de développement C++ ;
* La précision obtenue

Un résumé des performances des différents modèles est présenté par le Tableau 7.

|  |  |  |  |  |
| --- | --- | --- | --- | --- |
|  | **Appréciation** | **Explicite-RK1** | **Explicite-05** | **Exact Simplifié** |
| **Minimisation du nombre de calculs** | Dénombrement des opérations\* | - | + | + |
| **Robustesse** | Qualitative | ++ | ++ | -- |
| **Simplicité de mise en œuvre** | Qualitative | ++ | + | 0 |
| **Précision** | Qualitative | + | ++ | -\*\* |

Tableau 7 : Performances des modèles

(\*) : Dénombrement des opérations simples (arithmétiques), complexes (produit de matrices, etc), couteuses (inversion de matrice, etc).

(\*\*) : La précision sur le Pu238 est inférieure pour le modèle « Exact Simplifié ».

La méthode RK1 nécessite une quantité importante de calculs (approximativement 2500). Cependant, cette méthode est fiable et précise. C’est cette méthode qui sera utilisé pour l’exploitation dans le paragraphe suivant. En utilisant la méthode d’ordre 1 de Runge Kutta, on privilégie la simplicité à la précision.

La méthode explicite à l’ordre 5 est une méthode relativement robuste et sollicitant peu de calculs (environ 500). La méthode, relativement simple à mettre en œuvre à l’aide de la série de Taylor d’ordre 5 et de l’usage de calculs itératifs, conserve une précision correcte.

La méthode exacte simplifiée possède une robustesse insuffisante. En effet, par la modification ou suppression d’un des termes de la matrice, celle-ci fournit des résultats aberrants d’où la nécessité de la simplifier. Ce manque de robustesse est impactant sur la précision du modèle. Le nombre de calculs reste faible comparativement à la méthode RK1 (environ 500), mais plusieurs étapes de calculs matriciels sont coûteuses.

# EXPLOITATION du modele rk1

## Epuisements « MonteCarlo »

L’objectif de cette étude est de connaitre «l’image » du vecteur Pu donné par un ensemble de transformations caractérisées par les paramètres suivants :

* Un enrichissement massique en oxyde de plutonium compris entre 10% et 60%.
* Une irradiation dans un réacteur présentant le même spectre que dans SuperPhénix (les sections efficaces ne sont pas recalculées) caractérisée par une puissance volumique dans la pastille comprise entre 50W/cm3  et 1000W/cm3 d’une durée comprise entre 1 mois et 10 ans
* Suivie d’un refroidissement d’une durée comprise entre 6 mois et 20 ans.

Cette image est un ensemble de vecteurs Pu susceptibles d’être chargés dans le SMR étudié par ALTRAN à l’horizon 2050.

Deux vecteurs Pu ont été étudiés :

* Un vecteur Pu provenant de la cellule SPX (voir Tableau 5) et Figure 17 à Figure 19.
* Un vecteur Pu provenant d’un combustible REP épuisé à 43000MWj/t (voir Tableau 1) et Figure 20 à Figure 22 qui représente l’évolution du Pu239, Pu240 et Pu241 en fonction de l’irradiation.

## Analyse physique

Les résultats sont présentés en « annexe - exploitation du modèle RK1 » dans les

Figure 17 à Figure 22.

Le code couleur correspondant aux paramètres de transformations est présenté dans le tableau suivant :

|  |  |  |
| --- | --- | --- |
| **Code couleur** | **Irradiation - puissance volumique** | |
| **SPX** | **REP** |
|  | Faible (<250 W/cm3) | Faible (<50 W/cm3) |
|  | Modéré (entre 250 et 500 W/cm3) | Modéré (entre 50 et700 W/cm3) |
|  | Elevé (>500 W/cm3) | Elevé (>700 W/cm3) |

Les croix représentent le vecteur Pu à l’instant initial (voir Tableau 1 et Tableau 5).

Chaque croix représente un vecteur Pu obtenu après une irradiation et un refroidissement naturel.

Les flèches rouges indiquent l’effet de l’irradiation prolongée sur la composition du vecteur Pu. Les flèches bleues indiquent l’effet du refroidissement sur le vecteur Pu.

De manière générale, pour les deux combustibles, le Pu239 voit sa quantité diminuer sous une forte irradiation. Sa période de décroissance naturelle étant trop élevée, il ne sera pas impacté par le refroidissement naturel (voir Tableau 2).

De façon analogue au Pu239, le Pu240 n’est pas impacté par le refroidissement naturel du fait de sa durée de vie importante. Toutefois, sa quantité augmente soumis à une forte irradiation. En effet, il est généré par la capture neutronique du Pu239.

La quantité de Pu241 diminue. En effet, contrairement au Pu239 et au Pu240, le Pu241 est impacté par le refroidissement naturel du fait de sa faible durée de vie (voir Tableau 2) en plus d’être accéléré par une irradiation prolongée.

## prolongement de l’étude

On a donc démontré qu’un contrôle du vecteur Pu sur la proportion de Pu239, Pu240 et Pu241 était possible par transmutation.

La suite de l’étude serait d’optimiser l’épuisement vis à vis de plusieurs critères tels que :

* la perte de réactivité durant l’exploitation d’un combustible épuisé dans un SMR
* la durée totale du processus
* la complexité d’un tel processus, etc

# CONCLUSION GENERALE

Cette première année d’alternance se conclue par la production de ce mémoire d’entreprise. Cela m’a permis de faire le point sur les compétences acquises le long de cette année ainsi que les difficultés rencontrées.

La première difficulté rencontrée lors des deux premières séquences en entreprise a été d’une manière générale le langage employé. En effet, il a été difficile de suivre une conversation ponctuée de toutes sortes d’acronymes et d’abréviations. Cependant, après un certain temps d’adaptation, chaque conversation était une source d’informations essentielles et utiles à ma progression personnelle.

Pendant la première séquence professionnelle, je me suis familiarisé avec le système d’exploitation Linux ainsi que le code de calcul TRIPOLI4. Il a d’abord fallu prendre en main Linux ainsi que les commandes les plus utiles ce qui a demandé un automatisme à acquérir pour les utiliser rapidement. Ensuite, le code TRIPOLI4 a été utilisé pour estimer le coefficient de multiplication effectif, noté , en fonction du volume du combustible et de l’enrichissement massique de l’uranium 235 et 238. L’aide de mon tuteur a été nécessaire pour comprendre le fonctionnement du code de calcul.

Les deux séquences d’entreprises m’ont immergé dans un environnement totalement inconnu.

Pour la dernière séquence entreprise, la partie académique m’a été profitable. En effet, grâce aux enseignements théoriques, et notamment en physique nucléaire, l’étude d’un cœur de réacteur nucléaire, regroupant les demi-vies des noyaux, les chaînes de décroissances radioactives, les équations de fission ainsi que les sections efficaces de capture, d’absorption et de fission ont pu être facilement appréhendées.

Pour finir, cette année a été riche en apprentissages tant sur le domaine académique que professionnelle. Le nucléaire étant une science très vaste, une masse conséquente de notion reste à maîtriser. Les cours théoriques ont été perçus comme une base de culture générale indispensable du nucléaire qui m’a fourni une bonne notion des sciences nucléaires.

ANNEXE - EPUISEMENT AVEC FLUX



Figure 6 : Evolution de la quantité d’U235 soumis à un flux neutronique

Soumis à un flux de neutrons rapides, l’U235 diminue au cours du temps. En effet, ayant une grande section efficace de fission et une section efficace de capture non négligeable, l’U235 a tendance à absorber un neutron pour engendrer soit une réaction de fission ou de capture selon les réactions respectives:

De plus, l’U235 disparaît également par décroissance naturelle en émettant une particule α selon la réaction:

Cependant, la désintégration naturelle du Pu239 par émission d’une particule α engendre la formation de l’U235, qui reste toutefois négligeable par rapport à l’exposition d’un flux neutronique, selon la réaction:



Figure 7 : Evolution de la quantité d’U238 soumis à un flux neutronique

Soumis à un flux de neutrons rapides, la quantité d’U238 diminue pendant la phase d’irradiation. En effet, l’U238 a tendance à absorber un neutron pour engendrer une réaction de capture mais possède une faible probabilité de générer une réaction de fission selon les réactions respectives:

Cependant, on néglige la quantité de l’U239 par la réaction de capture. En effet, sa demi-vie étant de 23 minutes, on considère qu’il n’a pas d’impact sur notre modèle d’épuisement qui est d’une durée de 15 ans. L’U239 décroît rapidement vers le Np239 en émettant une particule β- selon la réaction

Le Np239 a également une durée de vie très courte (2,3 jours). De ce fait, il n’a pas d’impact sur le modèle d’épuisement. Il se désintègre en Pu239 en émettant une particule β- selon la réaction

La réaction finale de capture peut se résumer à :

La décroissance naturelle de l’U238 est également prise en compte dans ce modèle d’épuisement mais reste anecdotique.



Figure 8 : Evolution de la quantité de Pu239 soumis à un flux neutronique

Soumis à un flux de neutrons rapides, la quantité de Pu239 diminue au cours du temps. En effet, le Pu239 absorbe un neutron pour soit engendrer une réaction de fission ou de capture donnant le Pu240 selon les réactions respectives:

X

De plus, le Pu239 disparaît également par décroissance naturelle en émettant une particule α selon la réaction:

Cependant, la réaction de capture de l’U238 conduit à la formation de Pu239 selon la réaction:



Figure 9 : Evolution de la quantité de Pu240 soumis à un flux neutronique

Soumis à un flux de neutrons rapides, la quantité de Pu240 augmente puis finit par se stabiliser. En effet, il est produit par réaction de capture du Pu239 selon la réaction suivante:

Cependant, le Pu240 engendre une réaction de capture et de fission selon les réactions respectives:

X

De plus, le Pu240 se désintègre en U236 par décroissance naturelle en émettant une particule α selon la réaction:

Ces trois dernières réactions participent à la stabilisation de la quantité de Pu240.

Il est à noter que le modèle VESTA diverge des autres modèles.



Figure 10 : Evolution de la quantité de Pu241 soumis à un flux neutronique

Soumis à un flux de neutrons rapides, la quantité de Pu241 diminue puis stagne au cours du temps. En effet, ayant une grande section efficace de fission, une section de capture non négligeable et une courte demi-vie (14 ans), le Pu241 disparaît rapidement en émettant une particule β- selon les réactions respectives:

Toutefois, il y a une production du Pu241 dû à la capture du Pu240 qui contrebalance la diminution de Pu241 selon la réaction suivante:

Il est à noter que le modèle VESTA diverge des autres modèles.



Figure 11 : Evolution de la quantité d’Am241 soumis à un flux neutronique

Soumis à un flux de neutrons rapides, la quantité d’Am241 augmente légèrement puis diminue au cours du temps. En effet, il est rapidement produit par la courte décroissance naturelle du Pu241 (14 ans) selon la réaction suivante:

Cependant il a tendance à capturer un neutron dû à sa grande section de capture pour donner de l’Am242 et de l’Am242 métastable et il a une probabilité de fissionner selon les réactions respectives:

(85%) + (15%)

X

Toutefois, par décroissance naturelle, il se désintègre en Np237 en émettant un noyau d’hélium selon la réaction:

Ces trois dernières réactions participent à la diminution de l’Am241.

Il est à noter que le modèle VESTA et DRAGON diverge des autres modèles.



Figure 12 : Evolution de la quantité de Pu242 soumis à un flux neutronique

Soumis à un flux de neutrons rapides, la quantité de Pu242 augmente. En effet, il est produit par la réaction de capture de Pu241 selon la réaction suivante:

Cependant, malgré des sections de capture et de fission faible, il existe une probabilité non nulle de capturer et de fissionner un neutron selon les réactions respectives:

X

Toutefois, par décroissance naturelle, le noyau de Pu242, possédant une longue durée de vie

(375000 ans), se désintègre en U238 en émettant un noyau d’hélium selon la réaction:

Ces 3 dernières réactions sont moins importantes que la première ce qui amène à une production de Pu242.

Il est à noter que le modèle VESTA diverge des autres modèles.



Figure 13 : Evolution de la quantité de Pu238 soumis à un flux neutronique

Soumis à un flux de neutrons rapides, La quantité de Pu238 augmente au cours du temps. De ce fait, il a une forte probabilité d’absorber un neutron pour soit fissionner ou le capturer pour se transformer en Pu239 selon les réactions respectives:

X

Il est également soumis à sa décroissance naturelle relativement courte (87 ans) en émettant un rayonnement α selon la réaction:

Cependant, il y a une production du Pu238 par décroissance naturelle du Cm242 (particule β-) et du Np238 (particule α) ainsi qu’une probabilité que le Pu239 engendre une réaction dite « 2n ».

Pour ce cas, les modèles sont nettement différents. On constate que les modèles VESTA et DRAGON convergent, de même que les modèles RK1 et O5. Quant au modèle exacte simplifié, il simule mal l’évolution du Pu238.

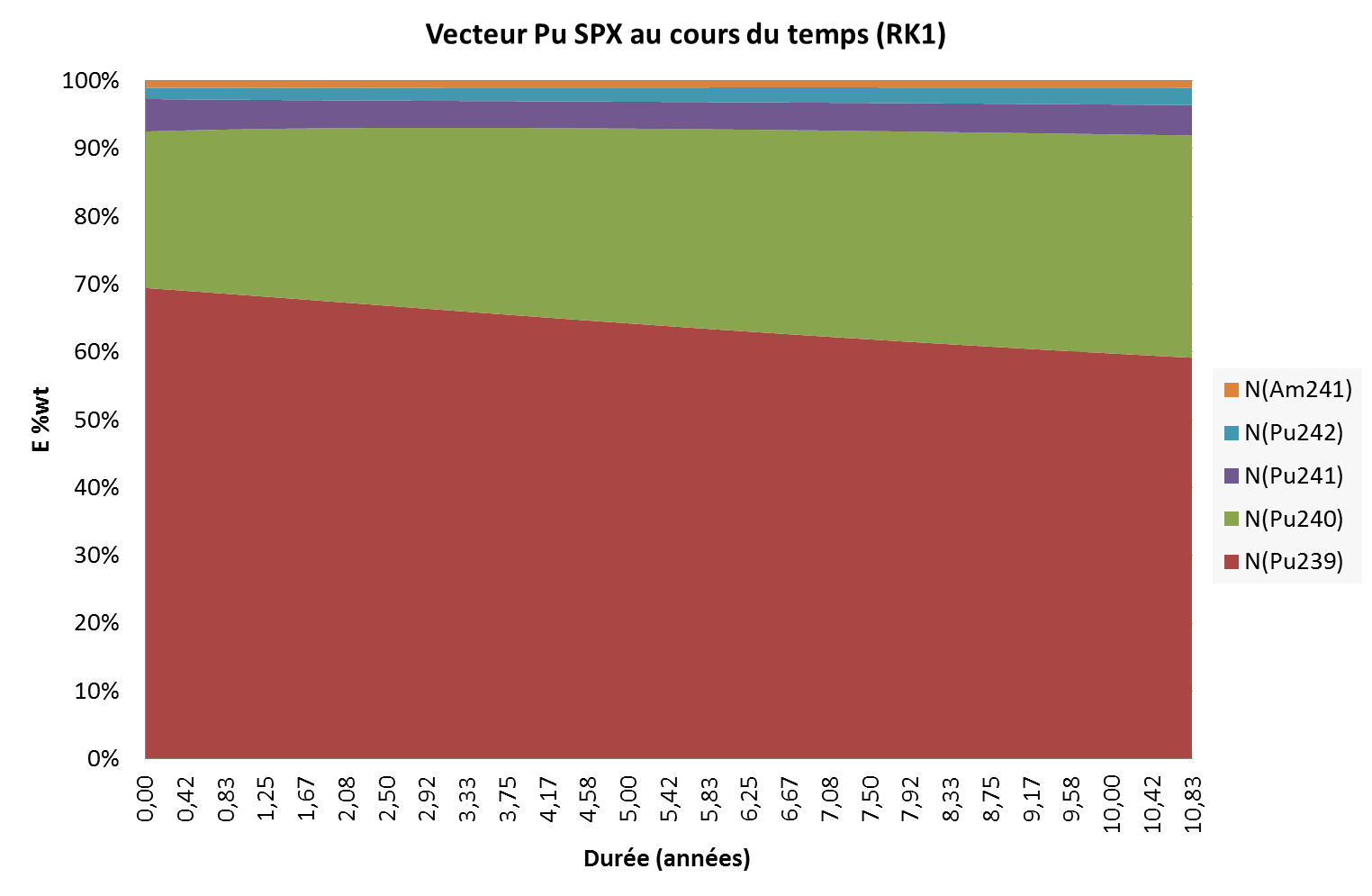


Figure 14 : Evolution des noyaux lourds du combustible soumis à un flux neutronique – vecteur Pu initial SPX

On constate une variation de la composition du vecteur Pu après 10 ans d’irradiation notamment par transmutation du Pu239 en Pu240. Effectivement, une diminution du Pu239 est perceptible au profit d’une augmentation du Pu241. Comparativement les variations des autres nucléides ne semblent pas modifiées de manière sensible.

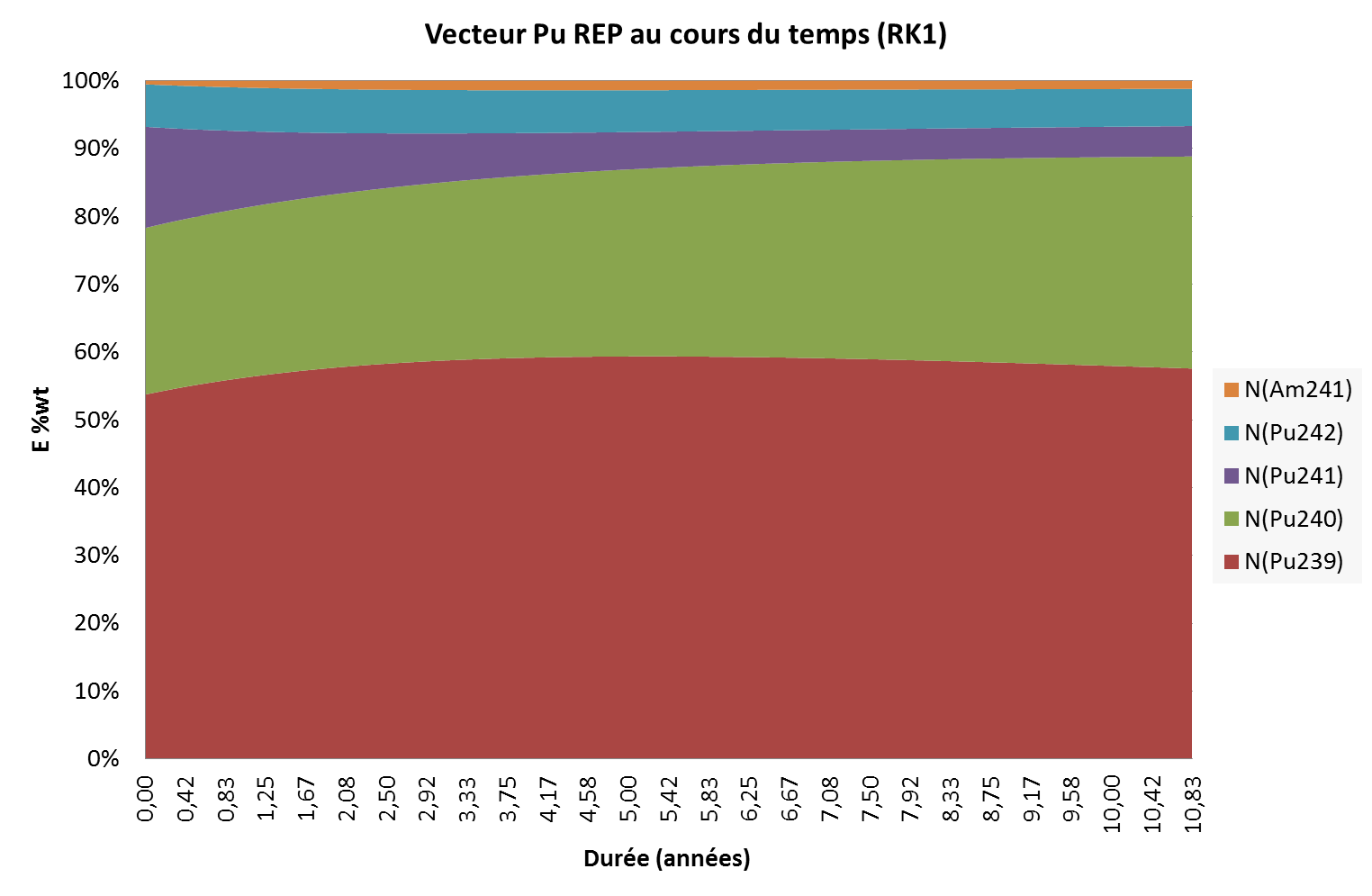


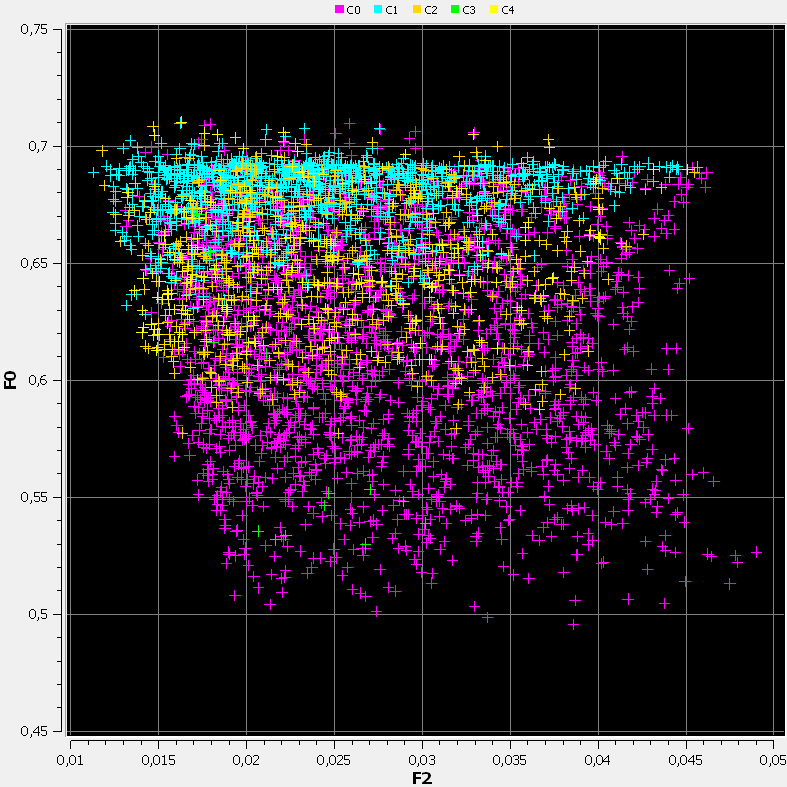
Figure 15 : Evolution des noyaux lourds du combustible soumis à un flux neutronique – vecteur Pu initial REP

On constate une variation de la composition du vecteur Pu d’un REP après 10 ans d’irradiation notamment par transmutation du Pu239 en Pu240. Effectivement, une diminution du Pu239 est perceptible au profit d’une augmentation du Pu240. Par ailleurs, on constate que la proportion de Pu241, contrairement aux résultats obtenus avec le vecteur SPX, évolue de manière notable et atteint un équilibre pour approcher la proportion de Pu241 du SPX.

La Figure 16 ci-dessous indique les écarts relatifs des concentrations des 8 noyaux selon le modèle RK1 et le code DRAGON. Un très faible écart peut être constaté pour tous les noyaux sauf l’U235 et l’Am241. Cela s’explique par le fait que DRAGON réévalue le flux au cours de l’épuisement contrairement à la méthode RK1 qui utilise un flux constant. Cependant, si le même flux est utilisé dans RK1, les écarts auront une différence moins importante.

Figure 16: Comparaison du modèle RK1 et DRAGON

ANNEXE – EXPLOITATION DU MODELE RK1

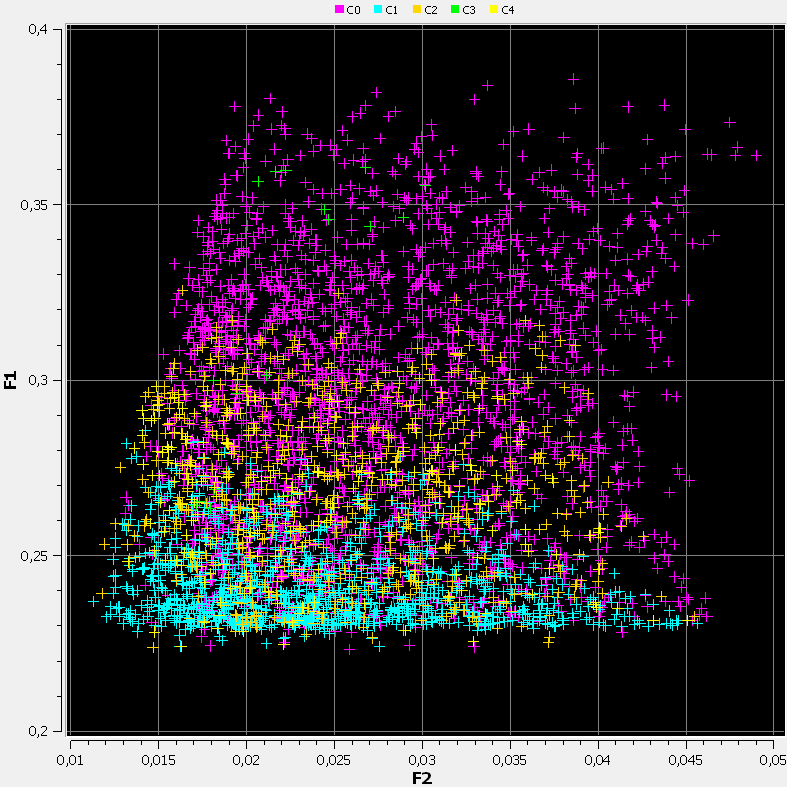




N(Pu239)/N(Pu)

N(Pu241)/N(Pu)

Figure 17: Evolution du Pu239 et du Pu241 à partir d’un vecteur Pu initial SPX



N(Pu241)/N(Pu)

N(Pu240)/N(Pu)

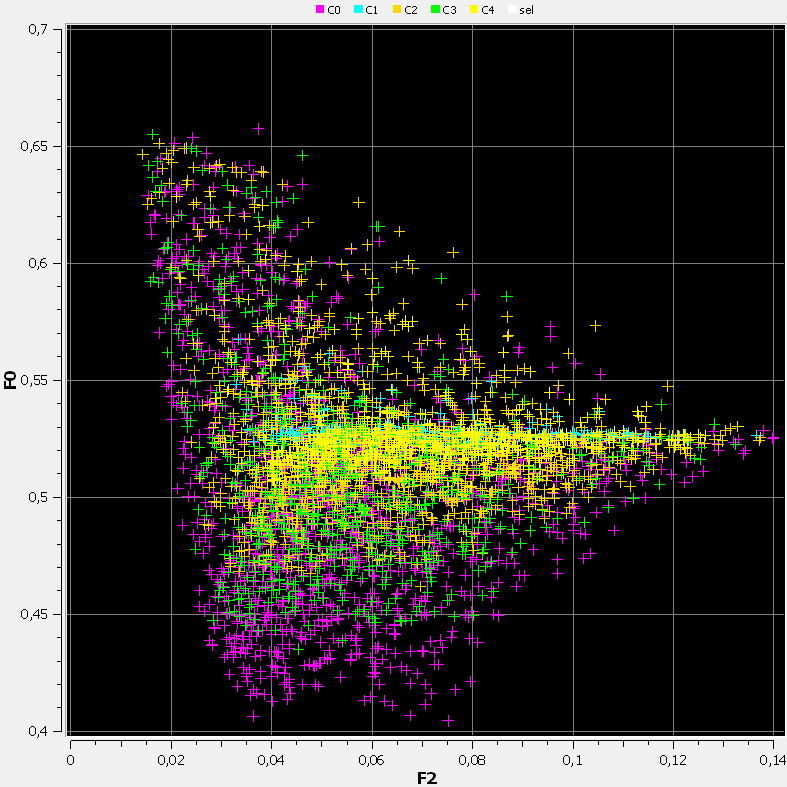
Figure 18: Evolution du Pu240 et du Pu241 à partir d’un vecteur Pu initial SPX



N(Pu239)/N(Pu)

N(Pu240)/N(Pu)

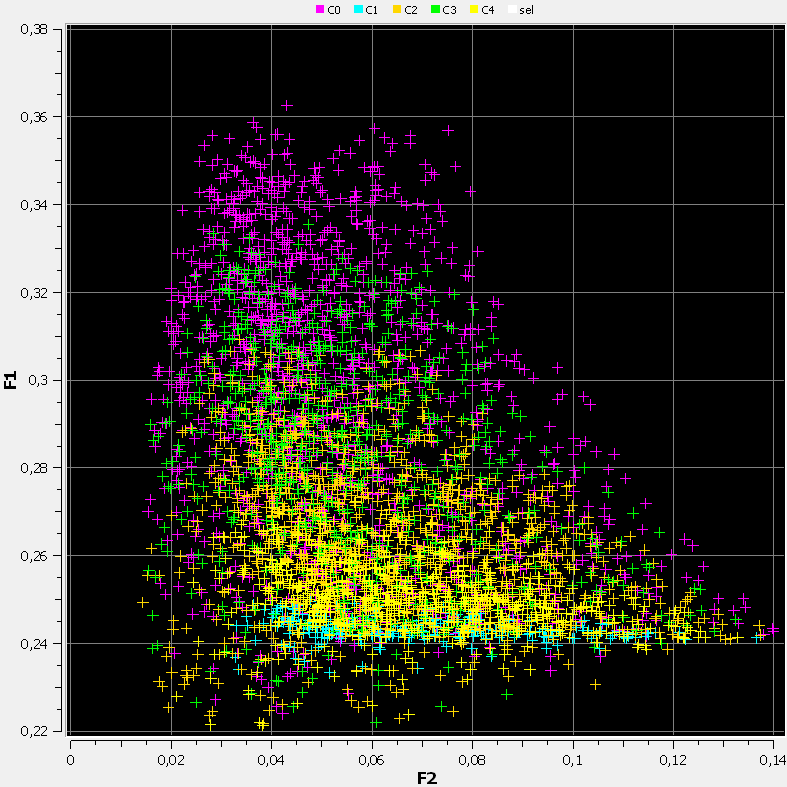
Figure 19: Evolution du Pu239 et du Pu240 à partir d’un vecteur Pu initial SPX



N(Pu239)/N(Pu)

N(Pu241)/N(Pu)

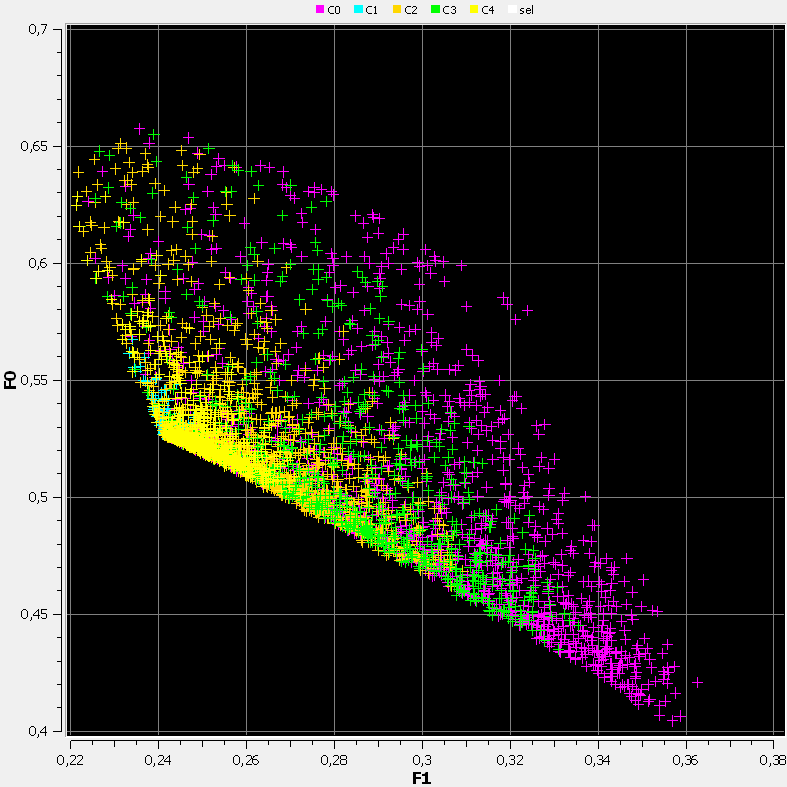
Figure 20: Evolution du Pu239 et du Pu241 à partir d’un vecteur Pu initial de REP épuisé à 43000MWj/t



N(Pu240)/N(Pu)

N(Pu241)/N(Pu)

Figure 21: Evolution du Pu240 et du Pu241 à partir d’un vecteur Pu initial de REP épuisé à 43000MWj/t



N(Pu239)/N(Pu)

N(Pu240)/N(Pu)

Figure 22: Evolution du Pu239 et du Pu240 à partir d’un vecteur Pu initial de REP épuisé à 43000MWj/t

References

1. *Status of Small and Medium Sized Reactor Designs*, AIEA, September 2011  
   Site web : <http://www.iaea.org/NuclearPower/Downloads/Technology/files/SMR-booklet.pdf>
2. Projet SMR Antares

Site web: <http://www.areva.com/mediatheque/liblocal/docs/activites/reacteurs-services/reacteurs/pdf-plaq-antares-va/index.html#/-2/>

1. Projet Flexblue

Site web:<http://fr.dcnsgroup.com/wp-content/uploads/2012/07/0907_DCNS_1207072_FLEXBLUE_FR.pdf>

1. Small nuclear reactor for power and icebreaking

Site web: <http://www.world-nuclear-news.org/NN_Small_nuclear_reactors_for_power_and_icebreaking_0710112.html>

1. Procédé de traitement PUREX

Site web: <http://www.cea.fr/content/download/80052/1536000/file/Proc%C3%A9d%C3%A9-PUREX.pdf>

1. *Advanced 4S (Super Safe, Small and Simple) LMR*, A. Minato and N. Handa,   
   Référence interne XA0056275
2. *Méthodologie d’optimisation d’un cœur de réacteur à neutrons rapides, application à l’identification de solutions (combustible, cœur, système) permettant des performances accrues* , Thèse CEA, Réf. tel-00660567, JJ.X. Ingremeau, Janvier 2012
3. *NDA Plutonium Options* - For comment: August 2008 - October 2008 , NDA
4. General solution of Bateman equations for nuclear transmutations, J.Cetnar, January 2006, annals of Nuclear Energy
5. Java based nuclear data information system

<http://www.oecd-nea.org/Janis/>

1. National data nuclear center

<http://www.nndc.bnl.gov/nudat2/reCenter.jsp?z=92&n=145>

1. *Précis de neutronique,*P.Reuss, EDP Sciences, 2003

Résumé

L’activité de R&D d’ALTRAN est portée sur un projet ambitieux visant à l’élaboration d’un SMR de type RNR-G.

Le sujet de ce mémoire porte sur la problématique du contrôle de l’épuisement du combustible destiné aux petits réacteurs nucléaires à neutrons rapides. Plus particulièrement il porte sur la modélisation de l’évolution isotopique des différents noyaux constituant le vecteur Pu pendant l’épuisement dans un cœur de réacteur d’irradiation suivi d’une période de refroidissement.

Après avoir explicité l’équation de Bateman décrivant l’évolution des différents isotopes au cours du temps, ce mémoire présente différentes modélisations et méthodes numériques permettant de résoudre la problématique explicitée. Ces différentes modélisations sont comparée à un code de calcul neutronique DRAGON afin d’estimer leurs précisions.

Enfin un des modèles retenu pour ses performances (précision, robustesse, et rapidité de calcul) est exploité afin de débuter la réponse à la question : « peut-on contrôler simplement la qualité d’un vecteur Pu ? »

Mots clés :

- MODELE SIMPLIFIE D’EPUISEMENT

- BATEMAN

- NEUTRONIQUE

- REACTEURS NUCLEAIRES

- SMR A NEUTRONS RAPIDES



1. L’industrie française du secteur nucléaire n’a pas lancé de véritable programme autour des concepts de SMR. Le CEA a en effet estimé, compte tenu de la bonne qualité du réseau électrique Français, que les installations de grandes tailles étaient plus intéressantes que les technologies SMR. AREVA ayant abandonné son projet de SMR nommé ANTARES (voir référence [2]), seul le projet FLEXBLUE porté principalement par la DCNS demeure d’actualité dans un contexte financier toutefois difficile (voir la référence [3]). On se reportera à la référence [1] pour illustrer le panel des projets de SMR développés à travers le monde. [↑](#footnote-ref-2)
2. L’hypothèse d’un système de contrôle de la réactivité capable d’absorber 10000 pcm est assumée. La vérification de cette hypothèse doit faire l’objet d’une étude de conception ultérieure. [↑](#footnote-ref-3)
3. Deux postes de pertes de réactivité dominent : l’empoisonnement par l’accumulation des produits de fissions capturant et la diminution de la quantité de noyaux fissiles. [↑](#footnote-ref-4)
4. On appelle « vecteur Pu » la répartition des isotopes produits concomitamment dans les réacteurs nucléaires, récupérés par piégeage par procédé PUREX (voir la référence [6]). Il décrit les différents isotopes du Plutonium du Pu238 au Pu242 incluant également l’Am241. L’Am241 est compris dans le combustible car il est produit par décroissance naturelle 𝛽- du Pu241. [↑](#footnote-ref-5)
5. Ceci est dû à la transmutation d’un quark down en un quark up. En effet, un neutron est constitué de deux quark down (d) et d’un quark up (u) à contrario du proton qui possède deux quark up et un quark down. Il y a émission d’un électron et d’un antineutrino (antiparticule du neutrino, particule élémentaire appartenant à la famille des leptons). [↑](#footnote-ref-6)
6. La décroissance radioactive est le processus par lequel un noyau instable perd son énergie en émettant un rayonnement ionisant. Elle est directement liée à la période de demi-vie qui est défini comme le temps nécessaire pour que la moitié d’un échantillon de noyaux radioactifs se désintègre naturellement. [↑](#footnote-ref-7)
7. Voir la référence [11]. [↑](#footnote-ref-8)
8. JANIS 4.0 peut afficher nativement les bases de données nucléaires évaluées distribuées sur le web, dont les plus courantes JEFF3.3 et ENDF B-VII, voir la référence [10]. [↑](#footnote-ref-9)
9. Les noyaux métastables sont remarquables car bien que dans un état excité, leur période de décroissance est sensiblement longue. C’est tout particulièrement le cas pour l’Am242 métastable dont la période de 142 ans est à comparer à celle de l’Am242 fondamental : seulement 16 heures. [↑](#footnote-ref-10)
10. Les conséquences d’une mauvaise modélisation du Pu238 étant faibles, la simplification de cette filiation est assez courante [↑](#footnote-ref-11)
11. Chaque colonne de la matrice *A* est un vecteur propre de *M* [↑](#footnote-ref-12)
12. Pour information :

    * Le pas de temps est d’un mois pour le modèle d’épuisement avec flux.
    * Pour le modèle d’épuisement sans flux, le pas de temps est d’un an.

    [↑](#footnote-ref-13)
13. https://www.msu.edu/course/fw/877/bence/matrix\_1.8 [↑](#footnote-ref-14)
14. Les bibliothèques de Dragon sont disponibles sur le site de l’école polytechnique de Montréal

    Site web : <http://www.polymtl.ca/merlin/libraries.htm> [↑](#footnote-ref-15)